

Stickstoffreduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser - Grundlage für die Modellierung des Stickstoff-Eintrags in Oberflächengewässer

Forschungsbericht

Lukas Knoll, Martin Bach, Uwe Häußermann, Lutz Breuer
Justus-Liebig-Universität Gießen

Karoline Morling, Stephan Fuchs, Tatyana Weber
Karlsruhe Institut für Technologie

Oktober 2024

Impressum

Herausgeber

Justus-Liebig-Universität Gießen
Institut für Landschaftsökologie und Ressourcenmanagement
Professur für Landschafts-, Wasser- und Stoffhaushalt (Prof. Dr. Lutz Breuer)
Heinrich-Buff-Ring 26
35392 Gießen
Tel: +49 641 9937380

Durchführung

Justus-Liebig-Universität Gießen
Institut für Landschaftsökologie und Ressourcenmanagement
Professur für Landschafts-, Wasser- und Stoffhaushalt (Prof. Dr. Lutz Breuer)
Heinrich-Buff-Ring 26
35392 Gießen

Karlsruhe Institut für Technologie (KIT)
Institut für Wasser und Umwelt - Wassergütemirtschaft (IWU-WG)
Gotthard-Franz-Str. 3
76131 Karlsruhe

Publikationen als PDF
<https://doi.org/10.22029/jlupub-19106>

Gießen, Oktober 2024

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autorinnen und Autoren.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	9
Summary	15
1 Einleitung	20
2 Modellierung der Stickstoff-Einträge über das Grundwasser mit dem Modellinstrument MoRE	22
2.1 Ausgangssituation	22
2.2 Aktualisierung der Datengrundlagen.....	25
2.2.1 Hydrogeologie	25
2.2.2 Landnutzung	26
2.2.3 Sickerwasserrate und Grundwasserneubildung.....	27
2.2.4 Stickstoff-Überschüsse.....	29
2.2.5 Atmosphärische Stickstoff-Depositionen.....	32
3 Modellierung der Nitratkonzentration im Grundwasser im Bundesgebiet	34
3.1 Verfahren zur Regionalisierung der Nitratkonzentration	34
3.1.1 Kriging-basierte Verfahren	34
3.1.2 Explorativ-statistische Verfahren	35
3.1.3 Emissionsbasierte Verfahren.....	37
3.2 Random Forest-Ansatz zur Modellierung der Nitratkonzentration im Grundwasser	37
3.2.1 Punktdaten (Grundwassermessstellen)	39
3.2.2 Flächendaten	42
3.2.3 Auswertung der Prädiktoren	42
3.2.4 Charakterisierung der Redox-Verhältnisse im Grundwasserleiter	43
3.2.5 Entwicklung des RF-Klassifikationsalgorithmus.....	46
3.3 Ergebnisse	48
3.3.1 Verteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser im Bundesgebiet	48
3.3.2 Unsicherheitsanalyse der geschätzten Nitratkonzentrationen	50
3.3.3 Schlussfolgerungen und Ausblick	51
4 Ermittlung der Stickstoff-Reduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser	53
4.1 Methodischer Ansatz zur Abschätzung der Nitrat-Reduktion	54
4.2 N-Reduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser	58
5 Aktualisierung der Berechnungen im Model MoRE	62
5.1 Bilanzierung der Stickstoff-Einträge	63
5.2 Modellierungs-Ergebnisse auf Ebene der MoRE-Analysegebiete	65
5.3 Vergleich des neuen Ansatzes mit der bisherigen Modellierung.....	70
5.4 Schlussfolgerungen und Ausblick.....	71

6	Danksagung	73
7	Literaturverzeichnis	74
	Anhang	80
A.1	Eingangsdaten MoRE.....	80
A.2	Datengrundlagen der Random Forest-Modellierung der Sauerstoff-, Eisen- und Nitrat-Konzentration im Grundwasser.....	81

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1	Schema der bisherigen Berechnung des Stickstoff (N)-Eintrags in Oberflächengewässer und der dabei berücksichtigten Verluste auf dem Transportweg „Boden – ungesättigte Zone – Grundwasser“ im Modellsystem MoRE.....	23
Abbildung 2	Mittlere Nitrat-Konzentration im Grundwasser in den MoRE-Analysegebieten, früherer Modellstand	24
Abbildung 3:	Mittlere jährliche Sickerwasserrate (Mittel 1961-1990) in den MoRE-Analysegebieten nach Hydrologischem Atlas Deutschland (Karte SWR 1000_250)	28
Abbildung 4:	Mittlere jährliche Grundwasserneubildung (Mittel 1961-1990) in den MoRE-Analysegebieten nach Hydrologischem Atlas Deutschland (Karte GWN_1000) ...	29
Abbildung 5:	Mittlere Stickstoff-Überschüsse auf der Landwirtschaftsfläche (2015-2016) in den Kreisen und kreisfreien Städte ohne Abzug der NH ₃ -Emissionen bei der Ausbringung (n. Bach und Häußermann 2018)	30
Abbildung 6:	Mittlere Stickstoff-Überschüsse auf der Landwirtschaftsfläche 2016 in den Kreisen und kreisfreien Städte mit Abzug der NH ₃ -Emissionen bei der Ausbringung (n. Häußermann et al. 2019)	31
Abbildung 7:	Zuordnung der Flächenkategorien und der als Eingangsdaten für die Modellierung verwendeten landnutzungsspezifischen atmosphärischen Stickstoff-Depositionsraten nach PINETI-3 (Schaap et al. 2018) für die Modellierung des Eintragspfad Grundwasser in MoRE	33
Abbildung 8:	Schema der schrittweisen Aufteilung eines Datensatzes in möglichst homogene Teilmengen anhand von Klassifikationskriterien	36
Abbildung 9:	Vorgehen zur Modellierung der Nitratkonzentration im Grundwasser: Aufbau Datenbasis, Präprozessing, Training und Anwendung der Random Forest (RF)-Klassifikation, Unsicherheitsanalyse mittels Quantile Random Forest (QRF).....	38
Abbildung 10:	Wasserrahmenrichtlinie (WRRL)-Grundwassermessstellen im Bundesgebiet, die für die Random Forest-Modellerstellung verwendet wurden	40
Abbildung 11:	Häufigkeitsverteilung der Nitratkonzentration (Mittel 2009-2018) in den rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen im Bundesgebiet, die für die Random Forest-Modellerstellung verwendet wurden.....	41
Abbildung 12:	Relative Einflussstärke (0 bis 100 %) der sechs wichtigsten Prädiktoren der Random Forest-Klassifikation der Sauerstoff- und der Eisenkonzentration in den rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen im Bundesgebiet.....	43
Abbildung 13:	Gemessene und mit Random Forest (RF)-Modell geschätzte (a) Sauerstoffkonzentrationen und (b) Eisen-Konzentrationen in den rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen im Bundesgebiet.....	44
Abbildung 14:	Verteilung der Nitratkonzentration in den rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen gestuft nach vier Klassen der Redox-Verhältnisse	45

Abbildung 15:	Verteilung der Redox-Verhältnisse (klassiert) im Grundwasser im Bundesgebiet nach Random Forest-Klassifikation	46
Abbildung 16:	a) Relative Einflussstärke (0 bis 100 %) der sechs wichtigsten Prädiktoren für das finale RF-Modell und b) gemessene und mit Random Forest-Modell geschätzte Nitratkonzentrationen in den rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen im Bundesgebiet	48
Abbildung 17:	Verteilung der mittleren Nitratkonzentration im Grundwasser im Zeitraum 2009 bis 2018 im Bundesgebiet nach Random Forest-Modellierung.....	49
Abbildung 18:	90 Prozent-Unsicherheitsintervall ^a der mit Random Forest (RF) modellierten mittleren Nitratkonzentration im Grundwasser im Zeitraum 2009 bis 2018 im Bundesgebiet nach Qantile Random Forest (QRF)-Modellierung.....	51
Abbildung 19:	Schematische Darstellung der Fließwege und der Stickstoff-Frachten zur Abschätzung der Stickstoff-Reduktion in der ungesättigte Zone und im Grundwasserkörper	55
Abbildung 20:	(a) Kombinierte Darstellung der Regressionsgeraden und der Häufigkeitsdichte der rund 360.000 Rasterwerte von Sickerwasserrate (BGR 2003b) und Grundwasserneubildung (BGR 2003a) in Deutschland; (b) Boxplots des Verhältnisses von Grundwasserneubildung (Q_{gw}) zu Sickerwasserrate (Q_{sw}), getrennt für Kluft- und Porengrundwasserleiter	57
Abbildung 21:	a) Stickstoff-Eintrag in das Grundwasser und b) Stickstoff-Fracht im Grundwasser in Deutschland.....	58
Abbildung 22:	Rechnerische Reduktion der Nitratfracht in der ungesättigten Zone und im Grundwasser in Deutschland	59
Abbildung 23:	Boxplots der Häufigkeiten der Nitratreduktion in Deutschland nach a) Typ des Grundwasserleiters und b) Redox-Verhältnissen im Grundwasser	60
Abbildung 24:	Vereinfachtes Schema zur neuen Berechnungsweise der Stickstoff-Einträge über den Eintragspfad Grundwasser in MoRE	62
Abbildung 25:	Nutzungsspezifischer Stickstoff-Eintrag in den Boden in den MoRE-Analysegebieten.....	63
Abbildung 26:	Bilanzübersicht der Stickstoff-Frachten vom Eintrag in den Boden über die ungesättigte Zone bis ins Grundwasser nach MoRE-Modellannahmen und RF-Modellierung.....	65
Abbildung 27:	Potenzielle Nitratkonzentration im Sickerwasser in den MoRE-Analysegebieten; obere Karte in mg N/l, untere Karte in mg NO_3 /l.....	66
Abbildung 28:	Mittlere Nitratkonzentration im Grundwasser in den MoRE-Analysegebieten, basierend auf den Ergebnissen der Random Forest-Modellierung der Nitratkonzentration im Grundwasser	67

Abbildung 29:	Modellierte Stickstoff-Einträge in Oberflächengewässer über den Pfad Grundwasser in den MoRE-Analysegebieten.	68
Abbildung 30:	Modellierte Reduktion der Stickstofffrachten von der ungesättigten Zone zum Grundwasser in den MoRE-Analysegebieten.	69
Abbildung 31:	Verteilungsdichte der Messwerte der Konzentration (in mg/l) von a) Sauerstoff (O ₂), b) Eisen (Fe) und c) Nitrat (NO ₃) (Mittelwerte 2009-2018) der WRRL-Grundwassermessstellen in Deutschland.....	81
Abbildung 32:	Anteile der Landnutzungen Ackerland (links) und Wald (rechts) in Deutschland (BKG 2016)	83
Abbildung 33:	Hydrogeologische Raumgliederung von Deutschland, Merkmal „hydrogeologische Räume“ (BGR & SGD 2015).....	84
Abbildung 34:	Grundwasserneubildungsrate (BGR 2003a) (links) und Grundwasserverweilzeiten (Kunkel et al. 2007, Fuchs et al. 2010) (rechts) in Deutschland	85
Abbildung 35:	Mittlerer Flächennutzungs-gewichteter hydrosphärischer Stickstoff-Überschuss 2007–2016 (für die Landwirtschaftsfläche n. Häußermann et al. 2019) (links) und berechnete potenzielle Nitratkonzentration im Sickerwasser (rechts) in Deutschland	86
Abbildung 36:	Relative Bedeutung (Importance) der Prädiktoren der Random Forest-Modellierung der räumlichen Verteilung der a) Sauerstoff (O ₂)-Konzentration, b) Eisen (Fe)-Konzentration und c) Nitrat (NO ₃)-Konzentration im Grundwasser in Deutschland	87
Abbildung 37:	Räumliche Verteilung der Sauerstoff (O ₂)-Konzentration (2009-2018) im Grundwasser in Deutschland nach Random Forest-Modellierung, a) Mittelwert (Häufigkeitsverteilung s. Abbildung A9a), b) Median und c) 90 % Vorhersageintervall (Prediction Interval, PI)	88
Abbildung 38:	Räumliche Verteilung der Eisen (Fe)-Konzentration (2009-2018) im Grundwasser in Deutschland nach Random Forest-Modellierung, a) Mittelwert, b) Median (Häufigkeitsverteilung) und c) 90 % Vorhersageintervall (Prediction Interval, PI) .	89
Abbildung 39:	Verteilungsdichte der mittels Random Forest modellierten Konzentrationsverteilungen von a) Sauerstoff (O ₂), b) Eisen (Fe) und c) Nitrat (NO ₃) im Grundwasser in Deutschland.....	90

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Flächen und Flächenanteile der in MoRE verwendeten Landnutzungskategorien nach verschiedenen Landnutzungsdatensätzen für Deutschland 27
Tabelle 2:	Zusammenfassung der betrachteten Jahre der Stickstoff-Überschüsse während der Verweilzeiten im Grundwasser (Präprozessing in MoRE) 32
Tabelle 3:	Anzahl der WRRL-Grundwassermessstellen in den Bundesländern, die als Trainingsdaten der Random Forest-Klassifikation der Nitratkonzentration im Grundwasser verwendet wurden 41
Tabelle 4:	Vierstufiges Klassifikationsschema zur Charakterisierung der Redox-Verhältnisse im Grundwasser (nach LAWA 2018, verändert) 45
Tabelle 5:	Häufigkeitsverteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser im Bundesgebiet nach Random Forest-Modellierung 49
Tabelle 6:	Nutzungsspezifische Stickstoff-Einträge in den Boden für die MoRE-Landnutzungskategorien 64
Tabelle 7:	Änderung der modellierten Stickstoff-Einträge über den Grundwasserpfad (Deutschland insgesamt) bei Annahme erhöhter Nitratkonzentration in den MoRE-Analysegebieten mit mehr als 10 % Flächenanteil mit einer Nitratkonzentration über 50 mg NO ₃ /l 70
Tabelle 8:	Vergleich der MoRE-Modellergebnisse des bisherigen Ansatzes und des neuen Ansatzes mit den Ergebnissen der RF-Modellierung 70
Tabelle 9:	Zuordnung der CLC Codes für die Kategorie „Landwirtschaftsflächen“ zu den Landnutzungsklassen „Ackerland“ und „Grünland“ in MoRE 80
Tabelle 10:	Ackerflächen (in km ²) in Deutschland, aufgeteilt nach den in MoRE genutzten Hang-neigungsklassen (in Klammern Angabe des prozentualen Anteils an der gesamten Ackerfläche), die für drei verschiedene Landnutzungs-Datensätze ermittelt wurden 80
Tabelle 11:	Statistische Kenngrößen der Messwerte der Konzentration (in mg/l) von Sauerstoff (O ₂), Eisen (Fe) und Nitrat (NO ₃) (Mittelwerte 2009-2018) der WRRL-Grundwassermessstellen in Deutschland 81
Tabelle 12:	Zusammenstellung der Variablen, die als Prädiktoren für die Random Forest (RF)-Modellierung der Klassierung der Redox-Verhältnisse und der Nitratkonzentration im Grundwasser verwendet werden 82

Abkürzungsverzeichnis

ATKIS	Amtliches Topographisch-Kartographisches Informationssystem
AU	MoRE-Analysegebiet (analytical unit)
BKG	Bundesamt für Kartografie und Geodäsie
BRT	Boosted regression tree
CART	Classification and regression trees
CLC	Corine Land Cover
DGM	Digitales Geländemodell
DMC	Disaster Monitoring Constellation
DON	Gelöster organischer Stickstoff (dissolved organic nitrogen)
EEA	Europäische Umweltagentur (European Environment Agency)
GIS	Geografisches Informationssystem
GK	Geologische Karte
GW	Grundwasser
GWN	Grundwasserneubildung
HÜK	Hydrologische Übersichtskarte
JLU	Justus-Liebig-Universität Gießen
KIT-IWG	Karlsruher Institut für Technologie, Institut für Wasser und Gewässerentwicklung
LBM-DE	Digitales Landesbedeckungsmodell für Deutschland
LF	Landwirtschaftlich genutzte Fläche
MAE	Mittlerer absoluter Fehler (Mean absolute error)
MLR	Multiple lineare Regression (Multiple linear regression)
MONERIS	MOdelling Nutrient Emissions in RVer Systems
MoRE	Modeling of Regionalized Emissions
N	Stickstoff
PINETI	Pollutant Input and Ecosystem Impact
RMSE	Mittlerer quadratischer Fehler (Root mean square error)
Q	Abfluss
QRF	Quantile random forest
R	R (freie statistische Software)
R²	Bestimmtheitsmaß
RF	Random Forest
SEM	Standard error of mean
SGD	Staatliche Geologische Dienste
SIMIK	Simple updating and indicator kriging
SW	Sickerwasser
SWR	Sickerwasserrate
UBA	Umweltbundesamt

ATKIS	Amtliches Topographisch-Kartographisches Informationssystem
UZ	Ungesättigte Zone
WRRL	EU-Wasserrahmenrichtlinie

Zusammenfassung

Die EU-Wasserrahmenrichtlinie (WRRL) fordert die Berichterstattung zu den Einträgen von Nährstoffen (Stickstoff, Phosphat) und Schadstoffen in Flüsse und die Meere. Für diese Aufgabe werden mit dem Modellsystem MoRE (Modeling of Regionalized Emissions; Fuchs et al. 2010) die Stickstoffeinträge in das Gewässersystem aus diffusen und punktuellen Quellen bilanziert. Nach Fuchs et al. (2017) stellt der Grundwasserpfad derzeit mit 54 % (Zeitraum 2006 – 2011) die Haupteintragsquelle für Stickstoff in die Oberflächengewässer in Deutschland dar. Der „gute Zustand“ des Grundwassers in Bezug auf Nitrat wird nach WRRL-Bestandsaufnahme in Deutschland in rund 27 % der Grundwasserkörper verfehlt (BMUB, 2014). Für die Modellierung der N-Einträge über den Pfad „Boden – ungesättigte Zone – Grundwasser“ verwendete MoRE bislang einen empirischen Ansatz (nach Behrendt et al. 1999). Mit diesem Ansatz werden jedoch erheblich niedrigere NO₃-Konzentrationen im Grundwasser berechnet, als tatsächlich gemessen werden (Bach et al. 2016). Das zugrundeliegende Modellkonzept und die empirischen Werte der Parameter gehen im Kern auf die 1980er und 1990er Jahren zurück und sind in wesentlichen Teilen nicht mehr aktuell und/oder nicht mehr rekonstruierbar (überprüfbar).

Im vorliegenden Forschungsvorhaben wurde daher ein neuer Ansatz für diesen Eintragspfad entwickelt, der im Kern zwei Änderungen umfasst: (i) Verwendung von nutzungsspezifischen N-Austrägen für alle Flächennutzungen; (ii) flächendeckende Abschätzung der Nitratkonzentration im Grundwasser mittels eines Random Forest-Klassifikationsverfahren. Im Unterschied zu den sonst üblicherweise verwendeten Modellansätzen wurde damit im vorliegenden Projekt der N-Eintrag in Oberflächengewässer über das Grundwasser als unabhängige Größe geschätzt, deren Berechnung nicht an die übrigen N-Flüsse gekoppelt ist.

Die Berechnungen wurden zunächst für das Bundesgebiet in einem 1 km x 1 km-Raster durchgeführt, für die Anwendung im Modell MoRE wurden die Ergebnisse auf die hydrologischen Analysegebiete (analytical units) des Modells bzw. auf Deutschland insgesamt bezogen. Im Einzelnen wurden folgende Arbeitsschritte durchgeführt.

Aktualisierung der Geo-Datengrundlagen

Für verschiedene Themen wurden aktualisierte und/oder räumlich höher aufgelöste Geo-Datensätze als MoRE-Modelleingangsdaten aufbereitet. Als Informationsquelle zur Landnutzungsverteilung wird das Landbedeckungsmodell Deutschland 2015 (LBM-DE 2015; BKG 2016) verwendet (1 Hektar Mindestgröße Kartiereinheit). Die Abgrenzung und Attributierung der hydrogeologischen Einheiten basiert auf der Hydrogeologische Übersichtskarte 1:200.000 (HÜK200; BGR 2016); ergänzend wurde die Karte der Hydrogeologischen Raumgliederung (HYRAUM; BGR & SGD 2015) von Deutschland herangezogen. Die mittlere jährliche Sickerwasserrate aus dem Boden (SWR 1000_250; BGR 2003b) und die mittlere jährliche Grundwasserneubildung (GWN 1000; BGR 2003a) beinhalten die wichtigsten Größen des Wasserhaushalts. Als zentrale Größe für die Beschreibung der N-Flüsse dient der hydrosphärische Stickstoff-Überschuss auf den Landwirtschaftsflächen (Häußermann et al. 2019) mit Regionalgliederung Kreise. Für natürliche Flächen (Wald, naturnahe Vegetation) und städtische Flächen wird jeweils ein konstanter Wert des N-Eintrags angesetzt. Mit dem PINETI-3-Datensatz (Schaap et al. 2018) steht eine aktualisierte Zeitreihe zur atmosphärischen N-Deposition auf verschiedenen Flächennutzungen zur Verfügung. Als Maske für die Auswertung der digitalen Flächendaten sowie die Darstellung der Ergebnisse zur NO₃-Konzentration dient die Karte „GeoGitter Deutschland 1 km ETRS89-UTM32“ (BKG 2018).

Darstellung der räumlichen Verteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser

Die Nitratkonzentration in einem Grundwasserkörper hängt von zahlreichen Einflussfaktoren ab. Dazu zählen insbesondere die hydrogeologischen Eigenschaften des Grundwasserleiters, die Grundwasserneubildungsrate, die Verweilzeiten in der ungesättigten Zone und im Grundwasser, die Höhe der N-Einträge aus den verschiedenen Landnutzungen und schließlich die Intensität des Nitratabbaus während der Passage des Sicker- bzw. Grundwassers. Ausgangspunkt für die Darstellung der räumlichen Verteilung sind im Regelfall die gemessenen NO_3 -Konzentrationswerte in Grundwassermessstellen. Diese Punktdaten müssen mit geeigneten Regionalisierungs- bzw. Interpolationsverfahren in eine flächenbezogene Darstellung der Konzentrationsverteilung eines Grundwasserinhaltsstoffes transformiert werden. Grundsätzlich werden dafür drei Verfahren unterschieden: (i) geostatistische Verfahren (Kriging-Verfahren), (ii) emissionsbasierte Verfahren und (iii) explorativ-statistische Verfahren.

In geostatistischen Verfahren wird davon ausgegangen, dass die Konzentrationswerte im Grundwasser in einer räumlichen Abhängigkeit voneinander stehen, das heißt, dass Messwerte einander naheliegender Standorte ähnlicher sind als Messwerte weiter entfernter Standorte. Die Ausprägung der räumlichen Autokorrelation wird in Form von Semivariogrammen beschrieben. Im anschließenden Kriging-Verfahren erfolgt mittels eines Semivariogramms die räumliche Interpolation. In einigen Bundesländern wird dafür das SIMIK+-Verfahren (Simple Updating and Indicator Kriging based on Additional Information) verwendet. Zentrale Bedingung für eine (statistisch begründete) Anwendung von Kriging-Verfahren ist die räumliche Autokorrelation der Messwerte. Es ist jedoch nicht bekannt, ob diese Bedingung für die SIMIK-Anwendungen in Deutschland überprüft worden ist.

Neben statistischen Verfahren kann die räumliche Verteilung einer Größe grundsätzlich auch mittels eines Emissions-basierten Ansatzes dargestellt werden. Dabei wird die räumliche Verteilung der Zielgröße durch die Verteilung der emissionsbestimmenden Faktoren geprägt, die im Modell miteinander verknüpft werden. Beispielsweise wird im Projekt AGRUM-DE die Modellkette RAUMIS-GROWA-WEKU-DENUZ (Wendland et al. 2020) eingesetzt, um den Stickstoffeintrag in Oberflächengewässer und Grundwasser auf verschiedenen Transportpfaden zu schätzen. Emissionsbasierte Verfahren stellen allerdings keine Interpolation im engeren Sinne dar, da die Modellierung unabhängig von der Immission, das heißt der räumlichen Verteilung der Messwerte eines Grundwassermessnetzes erfolgt.

Seit einigen Jahren werden zunehmend explorativ-statistische Methoden zur Darstellung der räumlichen Verteilung von Grundwasserparametern eingesetzt. Dabei wird der Zusammenhang zwischen einer Zielgröße (hier: Nitratkonzentration) und einer Vielzahl von (möglichen) erklärenden Variablen (Prädiktoren), deren Ausprägung flächendeckend für ein Betrachtungsgebiet vorliegt, mittels selbstlernender Klassifikationsverfahren analysiert. Ein Verfahren sind „Classification and Regression Trees“ (CART; Entscheidungsbäume), mit denen komplexe, nicht-parametrische Datensätzen mit sowohl numerischen als auch kategorialen Variablen, die als Prädiktoren in das Verfahren eingehen, analysiert werden können (Breiman 1984). In einem CART-Verfahren wird eine Menge von Objekten (Daten) mit Hilfe von Entscheidungsregeln in homogene Teilmengen (Klassen) unterteilt, bei denen die Objekte innerhalb einer Klasse untereinander möglichst ähnlich und zwischen den Klassen möglichst unterschiedlich sind. Ausgehend vom gesamten Datensatz teilt der Entscheidungsalgorithmus die Daten an jeder Entscheidungsstelle (Knoten) in zwei Teildatensätze, das heißt der Entscheidungsbaum verzweigt sich in zwei „Äste“. Diese Aufteilungen werden immer weiter fortgeführt, so dass zahlreiche (nicht-terminale) Knoten gebildet werden. Der Entscheidungsbaum endet schließlich in terminalen Knoten, den „Blättern“, die die Schätzwerte der abhängigen Variable (Zielgröße) liefern.

Für die Modellierung der Nitratkonzentration flächendeckend für das Bundesgebiet wurde das Random Forest (RF)-Verfahren (Breiman, 2001) verwendet, eine Weiterentwicklung von CART. Für das Trainieren des RF-Klassifikationsalgorithmus wurden Zeitreihen der Nitratkonzentrationen (Jahre 2009 bis 2018) sowie weiterer hydrochemischer Parameter von rund 7.000 Messstellen des WRRL-Grundwassermessnetzes über die LAWA-AG „Grundwasser und Wasserversorgung“ bereitgestellt. Die Daten wurden aufbereitet, in eine Datenbank überführt und selektiert, so dass für die weitere Analyse rund 5.400 WRRL-Messstellen verblieben. Die mittlere Nitratkonzentration der ausgewerteten Messstellen beträgt 21,5 mg NO₃/l, der Anteil der Messstellen über dem Schwellenwert von 50 mg NO₃/l liegt bei 15 %.

Folgende Informationen wurden als Prädiktoren der RF-Klassifikation herangezogen: Landnutzung nach LBM-DE 2012, aggregiert zu fünf Landnutzungsklassen; hydrogeologische Raumgliederung HYRAUM; hydrogeologische Übersichtskarte HÜK200; Mittlere jährliche Grundwasserneubildung GWN1000; Grundwasserverweilzeiten in Deutschland (n. Kunkel et al. 2007, Fuchs et al. 2010); Stickstoff-Überschuss auf der Landwirtschaftsfläche (Mittel 2007 bis 2016; Häußermann et al. 2019); potentielle Nitratkonzentrationen im Sickerwasser, berechnet aus mittlerer jährlicher Sickerwasserrate aus dem Boden in Deutschland und dem hydrosphärischen Stickstoff-Überschuss; Wasserspeicherfähigkeit (Feldkapazität) der Böden bis 1 m Tiefe (BGR, 2015) sowie Merkmal Humusgehalt (Gehalte an organischer Substanz der Böden) (BGR, 2007).

Für das Trainieren des Klassifikationsalgorithmus (Entscheidungsbaums) im RF-Verfahren müssen die Punktdaten (NO₃-Grundwasserkonzentrationen) mit den Flächendaten verknüpft werden, die als Prädiktoren dienen. Da keine Informationen zu den Einzugsbereichen der Messstellen verfügbar sind, müssen vereinfachte Annahmen zum potenziellen Einzugsgebiet der Messstellen getroffen werden. In einer Voruntersuchung für die Messstellen im Land Hessen wurde gezeigt, dass ein Kreis mit Radius 1.000 m um die Messstellen die beste Näherung zur Beschreibung des potentiellen Einzugsgebietes darstellt (Knoll et al. 2019). Für die RF-Klassifikation wurden daher die Ausprägung der Prädiktoren im Umkreis von 1.000 m für jede Messstelle ermittelt. Für die fünf Landnutzungsklassen Ackerland, Grünland, Sonderkulturen (Weinbau, Obstbau), Siedlung und Wald wurde deren prozentualer Flächenanteil im Umkreis ausgewertet, für das Merkmal hydrogeologische Einheit wurde der Wert des dominierenden Flächenanteils übernommen, und für die Variablen Grundwasserneubildung, Feldkapazität, Humusgehalt und Stickstoff-Überschuss wurden die Werte flächengewichtet gemittelt. Für die prognostische Anwendung der RF-Klassifikation, das heißt für die flächendeckende Darstellung der Nitratkonzentration im Grundwasser in Deutschland, wurden weiterhin die Werte der Prädiktoren - in gleicher Weise wie für die Kreisbuffer - für jede 1 km x 1 km-Rasterzelle ermittelt.

Die ersten Anwendungen des RF-Verfahren für das Bundesgebiet haben gezeigt, dass die Redox-Verhältnisse im Aquifer den mit Abstand wichtigsten Prädiktor der Nitratkonzentration darstellen. Aufgrund dieser maßgeblichen Bedeutung wurde ebenfalls mittels RF-Klassifikation eine Karte der Redox-Bedingungen im Bundesgebiet erzeugt. Dazu wurden zunächst mit den Daten zur O₂- und zur Fe-Konzentrationen in den WRRL-Grundwassermessstellen als Zielgröße zwei RF-Klassifikationen mit den vorstehend aufgeführten Prädiktoren (mit Ausnahme der Landnutzung und der potentiellen Nitratkonzentration im Sickerwasser) trainiert. Mit diesen RF-Modellen wurden Karten der O₂- und zur Fe-Konzentrationen im Grundwasser generiert. Die O₂- und Fe-Konzentrationen wurden anschließend in eine vierstufige Klassifikation der Redox-Bedingungen (in Anlehnung an LAWA 2018) von [0] aerob bis [3] stark anaerob eingeteilt und eine Karte der Redox-Verhältnisse erzeugt.

Für die Entwicklung und Überprüfung des RF-Klassifikationsalgorithmus für die Nitrat-Konzentration wurden die rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen in einen Trainings- (80 % der Daten) und einen Testdatensatz (20 %) aufgeteilt. Mit dem Trainingsdatensatz zeigt das RF-Modell

eine sehr gute Anpassung ($RMSE = 8,7 \text{ mg NO}_3/\text{l}$, $R^2 = 0,93$, $MAE = 5,4 \text{ mg NO}_3/\text{l}$). Für die anschließende Anwendung des Modells auf den Testdatensatz (20 % der Messstellen) resultierte mit einem $RMSE$ von $20,9 \text{ mg NO}_3/\text{l}$, einem R^2 von $0,51$ und einem MAE von $13,0 \text{ mg NO}_3/\text{l}$ eine gute Vorhersageleistung. Das RF-Modell unterschätzt tendenziell sehr hohe NO_3 -Konzentrationen (ca. $> 90 \text{ mg NO}_3/\text{l}$) und der Prognosebereich ist auf Werte bis ca. $100 \text{ mg NO}_3/\text{l}$ begrenzt.

Mit dem RF-Modell und den Rasterkarten der Prädiktoren wurde schließlich die Verteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser in Deutschland ($1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$ -Raster) geschätzt. Das großräumige Verteilungsmuster der Nitratkonzentration nach dieser Karte ist weitgehend kongruent mit der Verteilung der „roten“ Grundwasserkörper nach WRRL. Die mittlere Nitratkonzentration beträgt $22,7 \text{ mg NO}_3/\text{l}$, für rund 10 % der Fläche wird eine Konzentration $> 50 \text{ mg NO}_3/\text{l}$ ausgewiesen. Das Quantile Random Forest (QRF)-Verfahren ermöglicht es, das Unsicherheitsintervall einer Zielgröße zu berechnen, die mittels Random Forest geschätzt wird (Meinshausen 2006). Das Unsicherheitsintervall ist definiert als die Spannbreite zwischen der unteren und der oberen Grenze der Modellschätzung für eine Klasse des RF-Modells (i.e. ein terminaler Knoten des Entscheidungsbaums). Ein 90 %-Unsicherheitsintervall entspricht dem Bereich vom 5-Perzentil bis zum 95-Perzentil der Werteverteilung, innerhalb derer der wahre Wert der Schätzgröße zu erwarten ist. Für die Nitratkonzentration im Grundwasser wird mittels QRF bei einem mittleren absoluten Fehler von $12,7 \text{ mg NO}_3/\text{l}$ ein mittleres Vorhersageintervall von $53,0 \text{ mg NO}_3/\text{l}$ berechnet. Die Spannbreite der Unsicherheitsintervalle im Regelfall proportional zum Wert der Zielgröße, das heißt große Unsicherheitsintervalle werden überwiegend für die Bereiche berechnet, in denen auch hohe Nitratkonzentrationen geschätzt werden.

Im Hinblick auf den Maßstab der Aussagen, die im vorliegenden Projekt angestrebt werden, sowie in Anbetracht der relativ geringen Dichte des Messnetzes, das für das Training der RF-Klassifikation herangezogen wurde, wird die Prognoseleistung des Modells insgesamt als gut angesehen. Die begrenzte Prognosegüte muss bei der Interpretation der Ergebnisse allerdings stets mitberücksichtigt werden.

Der Prädiktor „Redox-Bedingungen“ hat die mit Abstand stärkste relative Bedeutung für die RF-Klassifikation. Die fünf Prädiktoren „hydrogeologische Einheit“, „Anteil Ackerland“, „potentielle Nitratkonzentration im Sickerwasser“, „Stickstoff-Überschuss auf der Landwirtschaftsfläche“ sowie „Anteil Waldfläche“ treten demgegenüber deutlich zurück. Unter den Prädiktoren ist der „Stickstoff-Überschuss“ die einzige Größe, die durch Managementmaßnahmen der Landwirtschaft beeinflusst werden kann. Dies unterstreicht die Problematik, dass die Nitratkonzentration im Grundwasser in großem Umfang von natürlichen Einflussfaktoren geprägt wird und - zumindest auf kürzere Sicht - auf Änderungen in der Stickstoff-Düngung und Bewirtschaftung nur vergleichsweise schwach reagiert.

Abschätzung der Nitratreduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser

Der Nitratintrag in Oberflächengewässer über den Grundwasserpfad hängt im Wesentlichen von zwei zentralen Prozessen ab: (i) der Nitratfracht mit dem Sickerwasser aus dem durchwurzelten Bodenbereich und (ii) der Verminderung dieser Fracht im Verlauf der Passage des Sickerwassers durch die ungesättigte Zone und anschließend den Grundwasserkörper. Die Größenordnung der Verminderung der N-Fracht in der ungesättigten Zone und im Grundwasser wurde auf Basis der Größen nutzungsspezifischer N-Überschuss, Sickerwasserrate, Grundwasserneubildung und Nitratkonzentration im Grundwasser abgeschätzt. Die Methodik stellt einen vereinfachten konzeptionellen Ansatz dar, der darauf verzichtet, die komplexen biogeochemischen Nitratbauprozesse in der ungesättigten Zone (einschließlich dem durchwurzelten Bodenbereich) und im Aquifer abzubilden. Die Nitratreduktion wird vereinfacht ausgedrückt als das Verhältnis der N-Fracht im Grundwasser zum N-Eintrag in die ungesättigte Zone. Die Verminderung der

Nitratfracht wird dabei als das integrierte Ergebnis der verschiedenen Abbauprozesse im Verlauf des Transports in der ungesättigten Zone und im Grundwasserkörper betrachtet.

Ausgangsgröße ist der hydrosphärische N-Überschuss im Boden, definiert als der Überschuss der N-Flächenbilanz vermindert um die gasförmigen NH_3 -Verluste während und nach der Ausbringung von mineralischen und organischen N-Düngern auf Landwirtschaftsflächen. Im Zeitraum 2007 bis 2016 betrug der hydrosphärische N-Überschuss im Mittel $56 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$, die Spannweite in den Kreisen reichte von 13 bis $146 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$. Für den N-Eintrag auf städtische Flächen wird ein konstanter Wert von $18 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$, für Waldflächen und Flächen mit naturnaher Vegetation wird eine N-Auswaschung unterhalb der Wurzelzone von $5 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ angesetzt. Der hydrosphärische N-Überschuss in den Rasterelementen wurde dann als flächengewichteter Mittelwert aus den nutzungsspezifischen Einträgen der vier Landnutzungskategorien berechnet und beschreibt den N-Eintrag, der aus der Wurzelzone in die ungesättigte Zone gelangt.

Ein Teil der N-Fracht gelangt mit dem Zwischenabfluss (Interflow) bzw. über Drainagen direkt in Oberflächengewässer, wobei auch auf diesen Transportpfaden Nitratreduktion stattfinden kann (was hier allerdings nicht weiter betrachtet wird), der übrige Teil wird mit dem Sickerwasser in das Grundwasser verlagert. Das Verhältnis der Grundwasserneubildung zur Sickerwasserrate wird als Proxygröße verwendet, um den Anteil der N-Fracht näherungsweise abzuschätzen, der aus der ungesättigten Zone weiter in das Grundwasser eingetragen wird. Die durchschnittliche Sickerwasserrate in Deutschland liegt bei etwa 287 mm a^{-1} und die durchschnittliche Grundwasserneubildungsrate bei 125 mm a^{-1} (hydrologische Periode 1961 - 1990). Nach diesem Ansatz gelangt somit mehr als die Hälfte des Sickerwassers über Interflow bzw. Drainagen in die Oberflächengewässer, das heißt trägt nicht zur Grundwasserneubildung bei.

Zur Berechnung der (flächenbezogenen) N-Fracht im Grundwasser wird die Grundwasserneubildungsrate als Näherungswert für den Grundwasservolumenstrom verwendet. In Verbindung mit der Verteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser gemäß RF-Modellierung wird damit schließlich die N-Fracht im Grundwasser berechnet. Der N-Eintrag in die ungesättigte Zone beträgt im Mittel rund $36 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$. Davon wird der größere Teil über Zwischenabfluss und Drainagen abgeführt, der mittlere N-Eintrag in das Grundwasser beläuft sich im Mittel des Bundesgebietes auf rund $17 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ und die mittlere N-Fracht im Grundwasser auf $6 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$.

Die Nitratreduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser wird schließlich als Verhältnis (Quotient) der N-Fracht im Grundwasser zum N-Eintrag in das Grundwasser berechnet, im Mittel des Bundesgebietes beträgt diese Nitratreduktion 57 %. In rund 12 % der Rasterelemente tritt die Situation auf, dass N-Fracht im Grundwasser größer ist als der N-Eintrag in das Grundwasser, womit keine Reduktion, sondern eine Zunahme der N-Fracht berechnet wird. Diese Raster "ohne Reduktion" liegen hauptsächlich in den stärker bewaldeten Gebieten (Alpen, Schwarzwald, Harz usw.); zum einen sind dort die absoluten Werte der beiden Größen niedrig und zum anderen treten diese Regionen im Hinblick auf die Nitratbelastung des Grundwassers nicht als Problemgebiete in Erscheinung.

Die hier vorgestellte Methodik ist nach Stand der Kenntnis der erste Ansatz zur Abschätzung der räumlichen Verteilung der N-Reduktion im Bundesgebiet, integriert über die ungesättigte Zone und das Grundwasser. Unbeschadet der vereinfachenden Annahmen und der beschränkten Aussagekraft bieten die Ergebnisse nach Auffassung der Autorin und Autoren eine brauchbare Annäherung an die Frage, in welcher Größenordnung und mit welcher regionalen Verteilung die N-Frachten über den Sickerwasser- und Grundwasserpfad infolge des Nitratabbaus gegenüber dem Eintrag in den Boden reduziert werden. Eine quantitative Angabe zur Unsicherheit der Zielgröße N-Reduktion ist bislang allerdings nicht möglich.

Neuberechnung des N-Eintrags in Oberflächengewässer über den Grundwasserpfad mit MoRE

Mit den aktualisierten Geodaten zu Hydrogeologie und Landnutzung sowie der verbesserten Abbildung des N-Eintrags über den Grundwasserpfad wurden schließlich die Stickstoff-Frachten mit dem Modellinstrument MoRE neu berechnet.

Nach dem neuen Ansatz werden in Deutschland 1.059 kt N/a in den Boden bzw. die ungesättigte Zone eingetragen. Dabei zeigt sich ein ausgeprägtes räumliches Verteilungsmuster der hydro-sphärischen N-Einträge mit Maxima von mehr als 50 kg N ha⁻¹ a⁻¹ in den intensiven Viehhaltungsregionen geprägten Gebieten im Nordwesten und im südlichen Raum Deutschlands. Dränagen bilden im Modellansatz von MoRE einen eigenen Eintragspfad, der vom Grundwasser unabhängig ist. Für diesen Eintragspfad werden in MoRE 133 kt N/a modelliert. Damit ergibt sich mit dem neuen Modellansatz ein Stickstoff-Eintrag in den Boden von insgesamt 1.191 kt N/a. Im Mittel über alle Analysegebiete stammt der Stickstoff-Austrag zu 90 % aus den Landwirtschaftsflächen. Lediglich 6 % des Stickstoff-Austrages stammen aus Wald und aus Flächen mit natürlicher Vegetation und nur rund 3 % aus Siedlungsfreiflächen; der Beitrag der übrigen Flächen ist vernachlässigbar.

Vom N-Eintrag in den Boden gelangen nur rund 47 % (500 kt N/a) über die ungesättigte Zone in das Grundwasser. Auf Basis von Nitratkonzentrationen im Grundwasser und der Grundwasserneubildungsrate berechnet sich der Stickstoff-Eintrag über das Grundwasser in die Oberflächengewässer von rund 205 kt N/a. Dieser N-Eintrag über den Grundwasserpfad entspricht im Mittel 19 % des N-Eintrages an der Bodenoberfläche. Gegenüber der früheren Berechnung von rund 240 kt N/a (MoRE-Aktualisierung 2016) bedeutet das eine Änderung des Ergebnisses um rund 15 %.

Summary

The EU Water Framework Directive (WFD) demands reporting on the inputs of nutrients (nitrogen, phosphate) and heavy metals into rivers and coastal seas. For this purpose, the model system MoRE (Modeling of Regionalized Emissions; Fuchs et al. 2010) is used to estimate nitrogen inputs into the hydrosphere from diffuse and point sources. According to Fuchs et al. (2017), the groundwater path is the main source of nitrogen input to surface waters in Germany, accounting for 54 % (period 2006 - 2011) of total river load. 27 % of the groundwater bodies in Germany fails the "good status" with regard to nitrate according to the WFD monitoring (BMUB, 2014). For the modelling of N input via the path "soil - unsaturated zone - groundwater" MoRE has so far used an empirical approach (acc. to Behrendt et al. 1999). However, this approach calculates considerably lower NO₃ concentrations in groundwater than actually measured (Bach et al. 2016). The underlying model concept and the empirical values of the parameters go back to the 1980s and 1990s and are in essential parts no longer up to date and/or cannot be verified.

In the present research project, a new approach to this entry pathway was therefore developed, which essentially focus on two items: (i) application of land use-specific N-output for all land use categories; (ii) state-wide estimation of the nitrate concentration in groundwater using a random forest classification method. In contrast to the otherwise commonly used model approaches, in the present project the N input into surface waters via groundwater was thus estimated as an independent variable, the calculation of which is not coupled to the other N fluxes.

The calculations were first carried out for the federal territory of Germany in a 1 km x 1 km grid. For the application in the MoRE model, the results were aggregated to the hydrological analysis areas (analytical units) of the model and to Germany as a whole. In detail the following steps were carried out.

Update of the geodata bases

For various topics, updated and/or spatially higher-resolution geodata sets were prepared as MoRE model input data. The land cover model Germany 2015 (LBM-DE 2015; BKG 2016) is used as information on land use distribution (1 hectare minimum size mapping unit). The delineation and attribution of the hydrogeological units is based on the Hydrogeological Map 1:200,000 (HÜK200; BGR 2016); in addition, the Map of Hydrogeological Spatial Structure (HYRAUM; BGR & SGD 2015) of Germany was used. The mean annual seepage rate from the soil (SWR 1000_250; BGR 2003b) and the mean annual groundwater recharge (GWN 1000; BGR 2003a) provide the most important data of the water balance. The hydrospherical nitrogen surplus on agricultural land (Häußermann et al. 2019) for the regional units of districts serves as the central quantity for the description of the N-flows. For natural land (forest, semi-natural vegetation) and urban areas a constant value of the N input is applied. The PINETI-3 data (Schaap et al. 2018) provide an updated time series for atmospheric N deposition on different land uses. The map "GeoGitter Deutschland 1 km ETRS89-UTM32" (BKG 2018) serves as a mask for the analysis of the spatial data as well as the resulting NO₃ concentration map.

Spatial distribution of nitrate concentration in groundwater

The nitrate concentration in aquifers depends on numerous determining factors. These include in particular the hydrogeological properties of the aquifer, the groundwater recharge rate, the residence time in the unsaturated zone and in the groundwater, the amount of N input from the various land uses and finally the intensity of nitrate reduction during the seepage passage of the unsaturated zone and the groundwater. Starting point for the representation of the spatial distribution are usually the measured NO₃ concentration values in groundwater measuring sites.

These point data have to be transformed into a spatial representation of the concentration pattern of a groundwater constituent using appropriate regionalization or interpolation methods. Basically three different methods are applied: (i) geostatistical methods (Kriging methods), (ii) emission-based methods and (iii) explorative-statistical methods.

In geostatistical methods, it is assumed that the concentration values in the groundwater are spatially dependent on each other, i.e. measured values from nearby sites are more similar than measured values from more distant sites. The expression of the spatial autocorrelation is described in the form of semivariograms. In the following kriging procedure the spatial interpolation is done by means of a semivariogram. In some federal states in Germany the SIMIK+ procedure (Simple Updating and Indicator Kriging based on Additional Information) is used for this purpose. The central prerequisite for a (statistically based) application of kriging methods is the spatial autocorrelation of the measured values. However, it is not known whether this condition has been verified for SIMIK applications in Germany.

In addition to statistical methods, the spatial distribution of a quantity can in principle also be represented using an emission-based approach. The spatial distribution of the target quantity is determined by the distribution of the emission-governing factors, which are linked together in the model. For example, in the AGRUM-DE project the model chain RAUMIS-GROWA-WEKU-DENUZ (Wendland et al. 2020) is used to estimate the nitrogen input into surface waters and groundwater on different transport paths. However, emission-based methods do not represent interpolation in the narrower sense, since the modeling is independent from the immission, i.e. the spatial distribution of the measured values of a groundwater monitoring network.

For some years now, explorative-statistical methods have been increasingly used to represent the spatial distribution of groundwater parameters. The relationship between a target value (here: nitrate concentration) and a large number of (possible) explanatory variables (predictors), the characteristics of which are available for the entire area of interest, is analyzed by means of self-learning classification methods. One method is "Classification and Regression Trees" (CART; decision trees), which can be used to analyze complex, non-parametric data sets with both numerical and categorical variables that enter the method as predictors (Breiman 1984). In a CART procedure, a set of objects (data) is divided into homogeneous subsets (classes) with the help of decision rules, in which the objects within a class are as similar as possible to each other and as different as possible between the classes. Starting from the entire data set, the decision algorithm divides the data at each decision point (node) into two sub-sets, i.e. the decision tree splits into two "branches". These divisions are continued further and further, so that numerous (non-terminal) nodes are formed. The decision tree finally ends in terminal nodes, the "leaves", which provide the estimated values of the dependent variable (target variable).

The Random Forest (RF) method (Breiman, 2001), a further development of CART, was used to model the nitrate concentration for Germany. For the training of the RF-classification algorithm time series of nitrate concentrations (years 2009 to 2018) as well as further hydrochemical parameters of about 7,000 monitoring sites of the WFD groundwater monitoring network were provided by LAWA-AG "Groundwater and Water Supply". The data were processed, transferred to a database and selected, leaving about 5,400 WFD monitoring sites for further analysis. The average nitrate concentration of the evaluated measuring sites is 21.5 mg NO₃/l, the proportion of measuring sites above the threshold of 50 mg NO₃/l is 15 %.

The following predictors were used for the RF classification: Land use according to LBM-DE 2012, aggregated into five land use classes; hydrogeological spatial classification HYRAUM; hydrogeological map HÜK200; mean annual groundwater recharge GWN1000; groundwater residence

times (n. Kunkel et al. 2007, Fuchs et al. 2010); nitrogen surplus on agricultural land (mean 2007 to 2016; Häußermann et al. 2019); potential nitrate concentrations in leachate, calculated from the mean annual leachate rate from the soil in Germany and the hydrospheric nitrogen surplus; water storage capacity (field capacity of soils down to 1 m depth) (BGR, 2015) as well as humus content (content of organic matter in soils) (BGR, 2007).

To train the classification algorithm (decision tree) in the RF procedure, the point data (NO₃ groundwater concentrations) must be linked to the spatial data, which serve as predictors. Since no information on the catchment areas of the monitoring sites is available, simplified assumptions on the potential catchment size and shape attributed to the monitoring sites have to be made. In a preliminary study for the measuring sites in the state of Hesse it was shown that a circle with a radius of 1,000 m around the measuring site is the best approximation for describing the potential catchment (Knoll et al. 2019). For the RF-classification, the values of the predictors were therefore analyzed within a radius of 1,000 m for each measuring point. For the five land use classes arable land, grassland, permanent crops (viticulture, orchards), settlement and forest, their percentage area share in the radius was evaluated, for the hydrogeological unit the type of the spatially dominating unit share was adopted, and for the variables groundwater recharge, field capacity, humus content and nitrogen surplus the values were averaged area-weighted. For the prognostic application of the RF-classification, i.e. for the state-wide representation of the nitrate concentration in the groundwater in Germany, the values of the predictors were further determined - in the same way as for the circular buffers - for each 1 km x 1 km grid cell.

A pre-test of the RF method have shown that the redox conditions in the aquifer are by far the most important predictor of nitrate concentration. Due to this decisive relevance, a map of the redox conditions in German groundwater was also generated by means of RF classification. For this purpose, first of all, with the data on O₂ and Fe concentrations in the WFD groundwater monitoring sites as target values, two RF classifications were trained with the above mentioned predictors (with the exception of land use and the potential nitrate concentration in the leachate). With these RF-models maps of O₂ and Fe concentrations in groundwater were generated. The O₂ and Fe concentrations was then classified in four categories of the redox conditions (acc. to LAWA 2018) from [0] aerobic to [3] strongly anaerobic and a map of the redox conditions was generated.

For the development and verification of the RF classification algorithm for nitrate concentration, the approx. 5,400 WFD groundwater monitoring sites were divided into a training (80% of the data) and a test data set (20%). With the training data set the RF model shows a very good fit (RMSE = 8.7 mg NO₃/l, R² = 0.93, MAE = 5.4 mg NO₃/l). For the subsequent application of the model to the test data set, a RMSE of 20.9 mg NO₃/l, an R² of 0.51 and an MAE of 13.0 mg NO₃/l resulted in a reasonable predictive performance. The RF model tends to underestimate very high NO₃ concentrations (about >90 mg NO₃/l) and the prediction range is limited to values up to about 100 mg NO₃/l.

Finally, the distribution of nitrate concentration in groundwater in Germany was estimated using the RF model and the grid maps of the predictors. The large-scale distribution pattern of the nitrate concentration according to this map is largely congruent with the distribution of the groundwater bodies “not in good status” according to the WFD. The mean nitrate concentration is 22.7 mg NO₃/l, for about 10 % of the area a concentration >50 mg NO₃/l is shown. The Quantile Random Forest (QRF) method calculates the uncertainty interval of a target value estimated by means of random forest (Meinshausen 2006). The uncertainty interval is defined as the range between the lower and upper limit of the model estimate for a class of the RF model (i.e. a terminal node of the decision tree). A 90% uncertainty interval corresponds to the range from the 5-

percentile to the 95-percentile of the value distribution within which the true value of the estimated quantity can be expected. For the nitrate concentration in groundwater, with a mean absolute error of 12.7 mg NO₃/l a mean prediction interval of 53.0 mg NO₃/l is calculated using QRF. The range of uncertainty intervals is usually proportional to the value of the target variable, i.e. large uncertainty intervals mainly occur for those areas where high nitrate concentrations are estimated.

In view of the scale of the findings, which are aimed at in the present project, as well as in view of the relatively low density of the measurement site network, which was used for the training of the RF-classification, the prognosis performance of the model is altogether regarded as good. However, the limited forecast quality must be taken into account when interpreting the results.

The predictor "redox conditions" has by far the strongest relative importance for RF classification. In contrast, the five predictors "hydrogeological unit", "share of arable land", "potential nitrate concentration in leachate", "nitrogen surplus on agricultural land" and "share of forest area" are significantly less important. Among the predictors, the "nitrogen surplus" is the only variable that can be influenced by agricultural practice. This underlines the problem that the nitrate concentration in groundwater is largely governed by natural factors and - at least in the shorter term - reacts only weakly to changes in nitrogen fertilization and management.

Estimation of nitrate reduction in the vadose zone and in groundwater

The nitrate input into surface waters via groundwater depends essentially on two central processes: (i) the nitrate load with the leachate from the soil root zone and (ii) the reduction of this load as the leachate passes the vadose zone and subsequently the groundwater body. The magnitude of the N load reduction in the vadose zone and in the groundwater was estimated based on the magnitudes of use-specific N surplus, leachate rate, groundwater recharge and nitrate concentration in the groundwater. The methodology represents a simplified conceptual approach that does not depict the complex biogeochemical nitrate degradation processes in the unsaturated zone (including the soil root zone) and in the aquifer. In simplified terms nitrate reduction is calculated as the ratio of N load in groundwater to N input into the vadose zone. The reduction of the nitrate load is treated as the integrated result of the different degradation processes during nitrate transport through the vadose zone and the aquifer.

The starting point is the hydrospheric N surplus in the soil, defined as the surplus of the N soil surface budget reduced by the gaseous NH₃ losses during and after the application of mineral and organic N fertilizers on the agricultural land. In the period 2007 to 2016, the hydrospheric N surplus was 56 kg N ha⁻¹ a⁻¹ on average, varying between the districts from 13 to 146 kg N ha⁻¹ a⁻¹. For the N input to urban areas a constant value of 18 kg N ha⁻¹ a⁻¹ is assumed, for forest areas and areas with semi-natural vegetation a N leaching below the root zone of 5 kg N ha⁻¹ a⁻¹ is assumed. The hydrospherical N surplus in the grids was calculated as area-weighted mean from the use-specific N input of the four land use categories and corresponds to the N input that passes from the soil root zone into the vadose zone.

A part of the N load reaches surface waters directly via interflow or tile drains, whereby nitrate reduction can also take place on these transport paths (which is not considered further here), the remaining part reaches the groundwater with the seepage water. The ratio of the groundwater recharge to the seepage rate is used as a proxy quantity to estimate the proportion of the N-load that is further transferred from the vadose zone into the groundwater. The average leachate rate in Germany is about 287 mm a⁻¹ and the average groundwater recharge rate is 125 mm a⁻¹ (hydrological period 1961 - 1990). According to this approach, more than half of the leachate reaches the surface waters via interflow or drainage, i.e. does not contribute to groundwater recharge.

To calculate the (area-related) N load in the groundwater, the groundwater recharge rate is used as an approximate value for the groundwater volume flow. Together with the spatial distribution of the groundwater nitrate concentration according to RF modeling, the N load in the groundwater is finally calculated. The N input into the vadose zone averages about $36 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ in Germany, of which the major part is discharged via interflow and drains, the mean N input into the groundwater averages about $17 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ and the mean N load in the groundwater is $6 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$.

The nitrate reduction in the unsaturated zone and in the groundwater is finally calculated as the ratio (quotient) of the N load in the groundwater to the N input into the groundwater, averaged for Germany this nitrate reduction amounts to 57 %. In about 12 % of the grids the situation occurs that the N load in the groundwater is higher than the N input into the groundwater. These grids "without reduction" are mainly located in the more heavily forested areas (Alps, Black Forest, Harz etc.); on the one hand the absolute values of both quantities are low there and on the other hand these regions do not appear as problem areas with regard to nitrate pollution of groundwater.

The methodology presented here is, as far as we know, the first approach to estimate the spatial distribution of N reduction in Germany, integrated over the vadose zone and the groundwater. Irrespective of the simplifying assumptions, the results offer, in the opinion of the authors, a useful approximation to the question, in which order of magnitude and with which regional pattern the N load is reduced via the leachate and groundwater path as a result of nitrate degradation compared to the N input into the soil. However, a quantitative assessment on the uncertainty of the target variable N reduction is not yet possible.

Recalculation of the N input via groundwater with MoRE

With the updated geodata on hydrogeology and land use as well as the improved mapping of the N input via the groundwater, the N loads in the river basins were finally recalculated with the model instrument MoRE.

According to the new approach, the N input into the soil root zone and the vadose zone, respectively, accounts for 1,059 kt N/a in Germany. The N input is characterized by a large spatial variation of hydrospherical N input with maxima of more than $50 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ in the intensive livestock farming regions in the northwest and south of Germany. In the model approach of MoRE, drainage flow forms a separate input path that is independently calculated from seepage and groundwater flow. For the drainage path, 133 kt N/a are modeled in MoRE. Thus, the new model approach results in a total nitrogen input into the soil of 1,191 kt N/a. On average over all analytical units, 90% of the N input originates from agricultural land. Only 6% of the N load stems from forests and areas with semi-natural vegetation and only 3% from urban areas; the contribution of the remaining land uses negligible.

Only about 47% (500 kt N/a) of the N input into the soil reaches the groundwater via the vadose zone. Based on the nitrate concentrations in the groundwater and the groundwater recharge rate, the nitrogen input via the groundwater into the surface waters is calculated to be about 205 kt N/a. This N input via the groundwater path corresponds on average to 19% of the N input at the soil surface. Compared to the previous calculation of around 240 kt N/a (MoRE update 2016), this represents a change in result of around 15%.

1 Einleitung

Die EU-Wasserrahmenrichtlinie (WRRL) und weitere internationale Abkommen fordern die regelmäßige Berichterstattung zu Stoffeinträgen in Flüsse und Meere. Eine wichtige Rolle in der Betrachtung spielen hier nach wie vor die Nährstoffe, da zu hohe Einträge Probleme verursachen können. So können z.B. zu hohe Nitratkonzentrationen im Grundwasser dessen Nutzbarkeit zur Trinkwassergewinnung in erheblichem Umfang beeinträchtigen (Oelmann et al. 2017). Auch führen die seit Jahren zu hohen Nährstoffeinträge in Oberflächengewässer zur Eutrophierung der marinen Ökosysteme in Nordsee und Ostsee (BMU/BMEL 2020, OSPAR 2020, HELCOM 2020). Für den Parameter Stickstoff stellt nach Fuchs et al. (2017) der Grundwasserpfad mit 54 % (Zeitraum 2006 – 2011) den Haupteintragspfad in die Oberflächengewässer in Deutschland dar. In neueren Modellrechnungen belief sich der Anteil der Stickstoffeinträge über Grundwasser für die beiden Jahre 2015-2016 im Mittel auf 51 % und stellt somit weiterhin die Hälfte der gesamten Stickstoff-Einträge dar (Fuchs et al. 2019). Nach WRRL-Bestandsaufnahme wird in Deutschland der „gute Zustand“ des Grundwassers in Bezug auf Nitrat in rd. 27 % der Grundwasserkörper verfehlt (BMUB, 2014). Hauptsächlich verursacht werden diese Belastungen durch die Nährstoffüberschüsse der landwirtschaftlichen Produktion. Der Europäische Gerichtshof hat mit Urteil vom 21.6.2018 die Bundesrepublik Deutschland wegen unzureichender Maßnahmen gegen die Nitratverunreinigung verurteilt. Damit hat in Deutschland das Problem der Nitratbelastung des Grundwassers spürbar an Aktualität und öffentlicher Aufmerksamkeit gewonnen.

Zur ganzheitlichen Betrachtung der Stoffeinträge, der Identifizierung der wichtigsten Verursacher und Haupteintragspfade und der Beurteilung der Effizienz von Minderungsmaßnahmen ist die Anwendung entsprechender Werkzeuge notwendig. Im Auftrag des UBA wird das Modell MoRE (Modeling of Regionalized Emissions; Fuchs et al. 2010, Fuchs et al. 2017) bundesweit angewendet. MoRE ist ein Open Source Modell, das hinsichtlich der Berechnungsansätze auf das MONERIS-Modellkonzept (MODelling Nutrient Emissions in River Systems; Behrendt et al. 1999, 2003a, 2003b, Venohr et al. 2009) zurückgeht. Das Modell wurde für die Mesoskala, das heißt für die Anwendung für größere Einzugsgebiete entwickelt. Die kleinste räumliche Modelleinheit, sind die sogenannten Analysegebiete (analytical units, AU; insgesamt 2.759 in Deutschland). Diese wurden im Wesentlichen auf Basis hydrologischer Gebietseigenschaften abgeleitet. In den vergangenen Jahren wurde MoRE methodisch weiterentwickelt und stand zu Projektbeginn in der Modellversion 2.0 zur Verfügung. Detaillierte Informationen zum Modell finden sich in Fuchs et al. 2010, Fuchs et al. 2016 und Fuchs et al. 2017.

Mit dem Modellsystem MoRE können unter anderem die Stickstoffeinträge in das Gewässersystem aus diffusen und punktuellen Quellen bilanziert werden. Der über den Grundwasserzustrom bedingte Eintrag in die Oberflächengewässer wird über den Pfad „Boden – ungesättigte Zone – Grundwasser“ abgebildet. Hierfür wird in MoRE nach wie vor der Ansatz des Modells MONERIS verwendet, der auf Behrendt et al. (1999, 2003a, 2003b) zurückgeht. Auch Maßnahmen zur Minderung der Stickstoffeinträge aus der Landwirtschaft können auf Bundesebene konzipiert und bewertet werden.

Eine Plausibilisierung der Modellergebnisse erfolgte bisher ausschließlich anhand der gemessenen Stickstoff-Fracht in Oberflächengewässern. Zwischenergebnisse wie die Nitrat-Konzentration im Grundwasser wurden nicht betrachtet. Bezogen auf die bisher betrachteten Fragestellungen zu Stoffeinträgen in die Oberflächengewässer war dieses Vorgehen vertretbar.

Mit der Betrachtung der NO_3 -Konzentration im Grundwasser als umweltpolitisch relevante Bewertungsgröße wurde die teilweise erhebliche Diskrepanz zwischen modellierten und gemessenen Nitrat-Konzentrationen im Grundwasser in Deutschland offenkundig (Bach et al. 2016).

Das Umweltbundesamt beabsichtigt, das Modellinstrument MoRE weiterhin als Werkzeug für die Abbildung des IST-Zustands hinsichtlich der Stoffeinträge und für die Konzeption von über-regionalen Maßnahmen auf Bundes- und Flussgebiets-Ebene einzusetzen. Die Entwicklung eines verbesserten und transparenten Ansatzes sowie die Aktualisierung der Modelleingangsdaten zur Ermittlung des Stickstoff-Eintrags über den Grundwasserpfad und der NO_3 -Konzentration im Grundwasser ist daher eine zentrale Aufgabe. Mit MoRE soll in Zukunft die Wirkung von Minderungsmaßnahmen auf N-Konzentration und N-Fracht in Grundwasser und Oberflächengewässern in Deutschland zuverlässig abgebildet werden können. Ziel dieses Projektes ist daher die verbesserte Abbildung der Stickstoff-Einträge über das Grundwasser in Oberflächengewässer und der NO_3 -Konzentrationen im Grundwasser im Modell MoRE.

Das umfasst die folgenden Aufgaben:

- ▶ Aktualisierung der Geo-Daten zur Modellierung des N-Eintrags über das Grundwasser
- ▶ Verbesserte Darstellung der räumlichen Verteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser in Deutschland
- ▶ Abschätzung der Nitratreduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser
- ▶ Neuberechnung des N-Eintrags über den Grundwasserpfad mit MoRE
- ▶ Darstellung der resultierenden Stickstoffeinträge über den Pfad Grundwasser in die Oberflächengewässer.

2 Modellierung der Stickstoff-Einträge über das Grundwasser mit dem Modellinstrument MoRE

2.1 Ausgangssituation

Bisher wurden die Einträge in die Oberflächengewässer über den Eintragspfad Grundwasser anhand eines empirischen Ansatzes abgeleitet (nach Behrendt et al. 1999), der hinsichtlich des potenziellen N-Eintrages auf den Stickstoff-Bilanzüberschüssen landwirtschaftlich genutzter Flächen beruht (Abbildung 1). Die Sickerwasserkonzentration ergibt sich aus dem Quotienten der N-Überschüsse (einschließlich der atmosphärischen N-Deposition) und der Sickerwasserrate für alle zur Grundwasserneubildung beitragenden Flächen. Der dabei zu berücksichtigende Überschuss berechnet sich, in Abhängigkeit von der Aufenthaltszeit im Grundwasser, als mittlerer N-Überschuss während der Aufenthaltszeit. Die N-Depositionsrates wird als langjähriger Mittelwert berücksichtigt.

Die Verminderung der Stickstoff-Einträge auf dem Weg des Sickerwassers vom Oberboden bis zum Übertritt in ein Oberflächengewässer infolge von Denitrifikation in der ungesättigten Zone und im Grundwasserleiter wird mit einer Exponentialfunktion beschrieben, die vier hydrogeologische Verhältnisse unterscheidet:

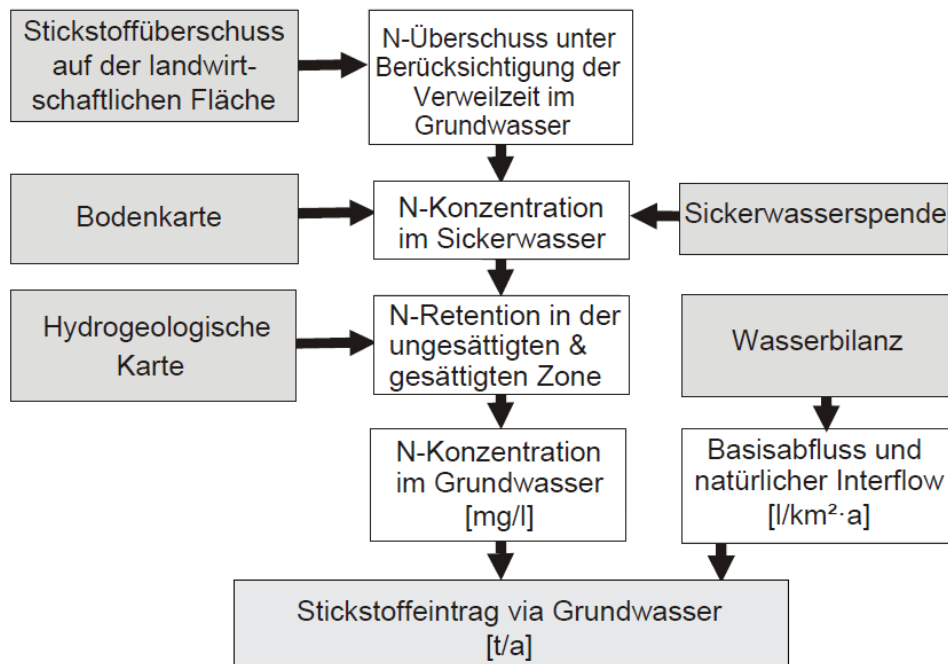
- ▶ gut durchlässiges Festgestein
- ▶ schwach durchlässiges Festgestein
- ▶ tiefes Lockergestein
- ▶ oberflächennahes Lockergestein.

Zusätzlich werden die gelösten organischen Stickstoff-Einträge (DON, dissolved organic nitrogen) aus Feuchtgebieten berücksichtigt. Aufgrund der flächenmäßig geringen Ausdehnung von Feuchtgebieten ist dieser Anteil allerdings sehr gering.

Mit dem methodischen Ansatz wurden auch die zum damaligen Zeitpunkt verfügbaren Eingangsdaten in MoRE übernommen und teilweise nicht aktualisiert. Das zugrundeliegende Modellkonzept und die empirischen Werte der Parameter im Kern auf die 1980er und 1990er Jahre zurück und sind in wesentlichen Teilen nicht mehr aktuell und/oder überarbeitungsbedürftig.

Die nach diesem Ansatz berechnete Stickstoffreduktion ist die mit Abstand mengenmäßig bedeutendste N-Verlustgröße innerhalb der N-Flüsse in Deutschland. Von den insgesamt jährlich rund 1,08 Mio. t N-Überschuss auf der landwirtschaftlich genutzten Fläche (LF) werden gemäß MoRE-Modellierung 283.000 t N/a (Mittel 2006-2011) bzw. 250.000 t N/a (Mittel 2011-2016) über das Grundwasser in Oberflächengewässer eingetragen (Fuchs et al. 2017, Fuchs et al. 2019). Das bedeutet, rund 70 bis 75 % des N-Flächenbilanzüberschuss der Landwirtschaft wird als „Schwund“ betrachtet, der üblicherweise vereinfachend der Denitrifikation (zu N_2 , zu geringen Anteilen auch NO_x) zugeschrieben wird.

Abbildung 1 Schema der bisherigen Berechnung des Stickstoff (N)-Eintrags in Oberflächengewässer und der dabei berücksichtigten Verluste auf dem Transportweg „Boden – ungesättigte Zone – Grundwasser“ im Modellsystem MoRE



Quelle: Venohr et al. (2009).

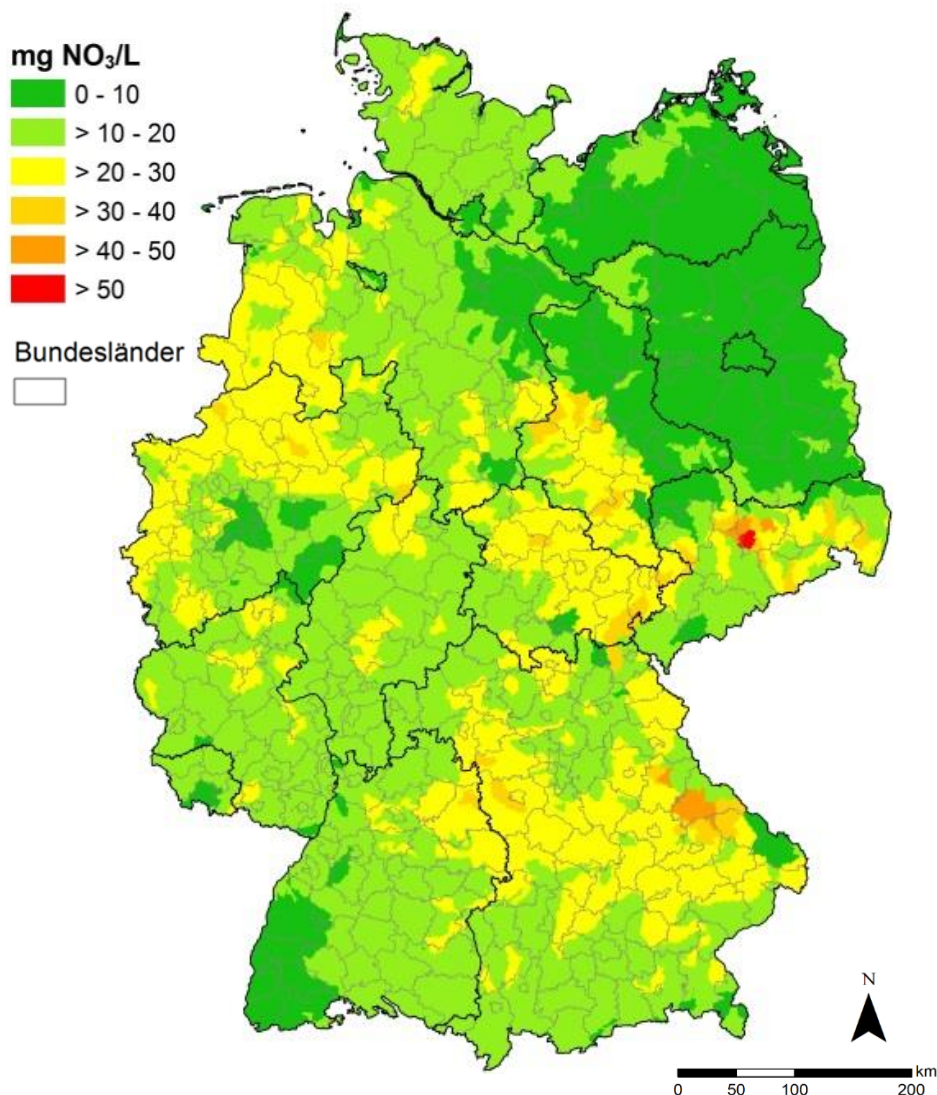
Zu einer vergleichbaren Größenordnung kommen bspw. auch Kunkel et al. (2016) für Mecklenburg-Vorpommern. Nach Berechnung mit der Modellkette GROWA-WEKU-DENUZ (Wendland et al. 2020) gelangen dort von 91.100 t N-Bilanzüberschuss nur 5.900 t N über den Grundwasserpfad in die Oberflächengewässer, was sogar einer Reduktion von rd. 93 % entspricht. In Hirt et al. (2015) wird für das gesamte Weser-Einzugsgebiet eine mittlere Denitrifikationsrate von 46 % und in Teilregionen wie den nördlichen Marschregionen bis zu 80 % ermittelt. Die Werte unterstreichen die erhebliche Bedeutung, die einer möglichst zutreffenden Abbildung dieses N-Transportpfades im Zusammenhang mit der Ermittlung der N-Flüsse in das Gewässersystem insgesamt zukommt.

Aus den Ergebnissen in Bach et al. (2016) wurde als Schlussfolgerung gezogen, dass im Modellsystem MoRE

- die N-Reduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser teilweise deutlich überschätzt wird, und dass infolge dessen
- das Niveau und das regionale Verteilungsmuster der Nitratkonzentrationen im Grundwasser in Deutschland nicht plausibel abgebildet werden (Abbildung 2).

Abbildung 2 verdeutlicht, dass nach MoRE-Modellierung in Deutschland nur in einem einzigen Analysegebiet eine Nitratkonzentration im Grundwasser über 50 mg NO₃/l ausgewiesen wird. Weiterhin fällt ins Auge, dass die Regionen mit intensiver tierischer Veredelung im Nordwesten Deutschlands, die sich durch sehr hohe N-Überschüsse auszeichnen (Häußermann et al. 2019) und in denen häufig hohe Nitratgehalte im Grundwasser auftreten (Knoll et al. 2020a; Wriedt et al. 2019), in der MoRE-Modellierung nicht als Problemgebiete hervortreten.

Abbildung 2 Mittlere Nitrat-Konzentration im Grundwasser in den MoRE-Analysegebieten, früherer Modellstand



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen (nach Bach et al. 2016); Kartengrundlage: © Geo-BasisDE / BKG 2018.

Im Einzelnen wurden von Bach et al. (2016) die folgenden Punkte des ursprünglichen MoRE/MONERIS-Ansatzes als verbesserungsbedürftig herausgestellt.

- ▶ Die von Behrendt et al. (1999) für MONERIS aufgestellte Formel zur Berechnung der Reduktion in der ungesättigten und gesättigten Zone ist eine Funktion der Sickerwasserrate und der hydrogeologischen Bedingungen und stützt sich auf Messungen zur Nitratkonzentration im Grundwasser aus den Jahren 1983 bis 1997. Die verwendeten hydrogeologischen Einheiten gehen auf Arbeiten des niederländischen National Institute of Public Health and the Environment zurück (Meinardi et al. 1994), das die Vulnerabilität von Böden und Grundwasser in Europa untersucht und dafür eine hydrogeologische Übersichtskarte für Europa veröffentlicht hat. Diese Karte genügt auf Grund des sehr kleinen Maßstabes (geringe Auflösung) den heutigen Ansprüchen nicht mehr.
- ▶ Die Sickerwasserrate wurde anhand von Wetterdaten des Deutschen Wetterdienstes (DWD) der Jahre 1983 bis 1987 und 1993 bis 1995 auf Basis eines stark vereinfachten Ansatzes nach Liebscher und Keller (1979) in Verbindung mit Modifikationen nach Wendland

et al. (1993) geschätzt. Diese Sickerwassermengen sind für langjährige Auswertungen ebenso wie für die Modellierung aktueller Zeiträume nicht repräsentativ.

- ▶ Weitere Defizite sind bei der Umsetzung der N-Überschüsse auf Kreisebene in die Analysegebiete festzustellen. Die N-Überschüsse beziehen sich auf die landwirtschaftliche Fläche nach Daten des statistischen Bundesamtes, MoRE greift jedoch für die Jahre 2012-2016 auf die LF der Karte CLC2012 zurück, die infolge ihrer stärkeren Generalisierung den Anteil der LF an der Gesamtfläche systematisch überschätzt.
- ▶ Die Formel zur Berechnung des Stickstoff-Überschusses während der Aufenthaltszeit des Grundwassers kann in Einzelfällen zu unplausiblen Ergebnissen führen. Die dabei verwendeten historischen N-Überschüsse basieren auf teilweise abweichenden methodischen Grundlagen, die mittlerweile durch verbesserte Ansätze abgelöst wurden.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass sowohl die methodischen Ansätze als auch die verwendeten Eingangsdaten einer Aktualisierung bedürfen, um mit dem Modell MoRE die Wirkung von Minderungsmaßnahmen auf N-Konzentration und N-Fracht in Grundwasser und Oberflächengewässern in Deutschland zuverlässig abzubilden.

Im vorliegenden Forschungsvorhaben wurde ein neuer Ansatz für diesen Eintragungspfad entwickelt, der im Kern zwei Änderungen beinhaltet:

- ▶ Verwendung von flächen- bzw. nutzungsspezifischen N-Austrägen (Kap. 5)
- ▶ Flächendeckende Abschätzung der Nitratkonzentration im Grundwasser – die mit dem Random Forest-Modell abgeschätzten Nitratkonzentrationen (s. Kap. 3) werden als Eingangsgröße in der Modellierung des N-Eintrags in Oberflächengewässer über den Grundwasserpfad verwendet.

2.2 Aktualisierung der Datengrundlagen

Im Zusammenhang mit dem neuen Modellierungsansatz wurden Modelleingangsdaten aktualisiert bzw. die Verwendung von räumlich höher aufgelösten Datensätzen für das Bundesgebiet geprüft. Dies erfolgte für die folgenden Datengrundlagen:

- ▶ Hydrogeologie
- ▶ Landnutzung
- ▶ Sickerwasserrate und Grundwasserneubildung
- ▶ Stickstoff-Überschüsse
- ▶ Atmosphärische Stickstoffdeposition.

Eine Übernahme von räumlich höher aufgelösten Datensätzen für die Nutzung im Modellinstrument MoRE ist unter der Voraussetzung möglich, dass die Datensätze flächendeckend für die Bundesrepublik Deutschland vorliegen und regelmäßig fortgeschrieben werden.

2.2.1 Hydrogeologie

Grundlage der Ausweisung von (hydro-)geologischen Einheiten für die MoRE-Analysegebiete in Deutschland war bislang die Geologische Karte Deutschland 1:1.000.000 (GK1000; Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, BGR 1993). Seit 2017 steht dafür die Hydrogeologische Übersichtskarte 1:200.000 (HÜK200; BGR 2016) zur Verfügung. Die Version 3 der HÜK200 beinhaltet neben fachlich-inhaltlichen Korrekturen und datentechnischen Verbesserungen auch

erstmalig einen blattschnittfreien Datenbestand. Die HÜK200 weist fünf hydrogeologische Attribute aus:

- ▶ Durchlässigkeit
- ▶ Geochemischer Gesteinstyp
- ▶ Gesteinsart
- ▶ Hohlraumart
- ▶ Verfestigung.

Zudem steht eine Karte der Hydrogeologischen Raumgliederung von Deutschland (HYRAUM) zur Verfügung (BGR & SGD 2015). Die verbesserte und systematische Raumgliederung und Attributierung der hydrogeologischen Einheiten ist von zentraler Bedeutung für die Modellierung der Nitratkonzentrationsverteilung im Grundwasser sowie für die Darstellung der N-Reduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser.

2.2.2 Landnutzung

Die Landnutzungsinformation bildet eine wesentliche Grundlage für die Modellierungen. Wichtig ist insbesondere eine konsistente Bilanz der Flächennutzungen. In der Vergangenheit wurden die berücksichtigten Landnutzungskategorien anhand des CORINE Landcover Datensatzes (CLC 2012) in der Auflösung von 25 ha von der European Environment Agency (EEA 2016) abgeleitet. Dies ermöglichte bisher eine einheitliche Datenbasis für internationale Flussgebiete. Allerdings ist die Auflösung des Datensatzes mit 25 ha grob. Für die N-Bilanzierung auf Kreisebene diente die Agrarstatistik. Die Flächenangaben zwischen diesen beiden Quellen weisen größere Abweichungen auf, für die Landwirtschaftsfläche beträgt der Unterschied zwischen den beiden Datensätzen 22 % (Überschätzung der LF-Fläche durch CLC2012; Bach et al. 2020).

Zur Klärung der Frage des zukünftig zu verwendenden Landnutzungsdatensatzes wurden unterschiedliche Datensätze miteinander verglichen (CLC2012, ATKIS 2016 und Landbedeckungsmodell Deutschland 2015 (LBM-DE 2015; BKG 2016) und bezogen auf die in MoRE verwendeten Landnutzungskategorien verglichen.

Das LBM-DE 2015 verfügt über eine eindeutige Zuweisung zu den CLC Landnutzungsklassen. Es weist im Gegensatz zum CLC 2012 weniger Ackerfläche aus, dagegen fallen insbesondere die natürlichen Flächen, städtischen Gebiete und Wasserflächen größer aus. Diese Unterschiede sind mutmaßlich in der höheren räumlichen Auflösung des LBM-Datensatzes begründet (LBM-DE: 1 ha gegenüber CLC: 25 ha).

Für den ATKIS-Datensatz liegt keine eindeutige Zuordnung zu den CLC Landnutzungsklassen vor, die Parallelisierung der Nomenklaturen wurde in einem zeitgleich laufenden Projekt manuell vorgenommen. Es ergeben sich für einige Landnutzungskategorien erhebliche Unterschiede im Vergleich zu den Datensätzen CLC 2012 und LBM-DE 2015. Dies umfasst insbesondere das Grünland, die offenen Flächen, die Fläche der Tagebaue und der Feuchtgebiete. Der ATKIS-Datensatz hat den Nachteil, dass hier zum Teil unterschiedliche Zeitschnitte, je nach Aktualisierungsfortschritt durch die Länder, zusammengeführt werden.

Insbesondere die landwirtschaftlichen Flächen sind von zentraler Bedeutung für die Modellierung der Stickstoff-Einträge. Auch im Vergleich zu den anderen Datensätzen weist die Agrarstatistik z.T. erheblich geringere Flächengrößen aus. Ein Grund hierfür kann sein, dass in der Agrarstatistik nur Betriebe oberhalb einer Erfassungsgrenze erhoben werden. Kleine Betriebe mit einer landwirtschaftlichen Nutzfläche kleiner 5 ha werden in der Statistik nicht erfasst, was zu einer Unterschätzung der statistisch erhobenen landwirtschaftlichen Flächen führen kann.

Tabelle 1: Flächen und Flächenanteile der in MoRE verwendeten Landnutzungskategorien nach verschiedenen Landnutzungsdatensätzen für Deutschland

Landnutzungskategorie	Flächenanteil					
	CLC 2012		LBM-DE 2015		ATKIS 2016 ^b	
	km ²	%	km ²	%	km ²	%
Ackerland	140.065	39	126.853	35	128.499	36
Grünland	64.399	18	64.489	18	60.565	17
Natürliche Flächen	113.356	32	118.713	33	117.703	33
Städtische Gebiete ^a	32.911	9	37.976	11	38.740	11
Offene Flächen	297	<1	404	<1	3.492	1
Tagebau	903	<1	1.408	<1	663	<1
Feuchtgebiete	1.324	<1	1.866	1	1.907	<1
Wasserflächen	4.225	1	6.422	2	6.351	2
Gesamt	357.480	100	358.133	100	357.920	100

^a Die Kategorie der städtischen Gebiete umfasst sowohl versiegelte als auch unversiegelte Flächen (Siedlungsfreiflächen).

^b Die Daten für den ATKIS-Datensatz wurden im Rahmen eines weiteren Forschungsvorhabens ermittelt.

Da die Differenz der landwirtschaftlichen Nutzflächen für das LBM-DE 2015 im Vergleich zu den statistischen Daten geringer ausfällt als dies der Fall ist für die Daten des CLC 2012, kann angenommen werden, dass das LBM-DE die landwirtschaftlichen Nutzflächen besser abbildet. Der Datensatz soll nach Stand der Planung des BKG 3-jährig aktualisiert werden. Mit dem neuen Landbedeckungsmodell Deutschland 2015 (LBM-DE 2015; BKG 2016) steht eine höher aufgelöste (Mindestgröße Kartiereinheit: 1 ha) und zeitlich harmonisierte und aktuellere Datenbasis (Bezugsjahr 2015) der Landnutzung zur Verfügung und kann daher als Datenbasis für die Stoffeintragsmodellierung für Deutschland empfohlen werden. Weiterhin bietet das LBM-DE insgesamt eine bessere Aktualität von Wald, Acker und Grünland gegenüber dem ATKIS Grunddatenbestand (Hovenbitzer 2015). Für die Anpassung der Modellierung von Stickstoff-Einträgen im aktuellen Vorhaben wird daher der LBM-DE (BKG 2016) Datensatz als Grundlage der Flächenbilanz in MoRE verwendet.

Im ersten Schritt wurden die LBM-DE 2015 Landnutzungsklassen den MoRE-Landnutzungskategorien zugewiesen (vgl. Tabelle 9 im Anhang). Anschließend wurde die Fläche pro Landnutzungskategorie für jedes Analysegebiet ermittelt.

Für die Modellierung der Erosionsgefährdung werden die Ackerflächen standardmäßig in fünf Hangneigungsklassen eingeteilt. Deshalb wurden die Ackerflächen aus dem LBM-DE selektiert und basierend auf dem Digitalen Geländemodell (DGM) mit einer Gitterweite von 10 m (DGM10; Bundesamt für Kartographie und Geodäsie (BKG) 2017) in die entsprechenden Hangneigungsklassen eingruppiert (siehe Tabelle 10 im Anhang).

2.2.3 Sickerwasserrate und Grundwasserneubildung

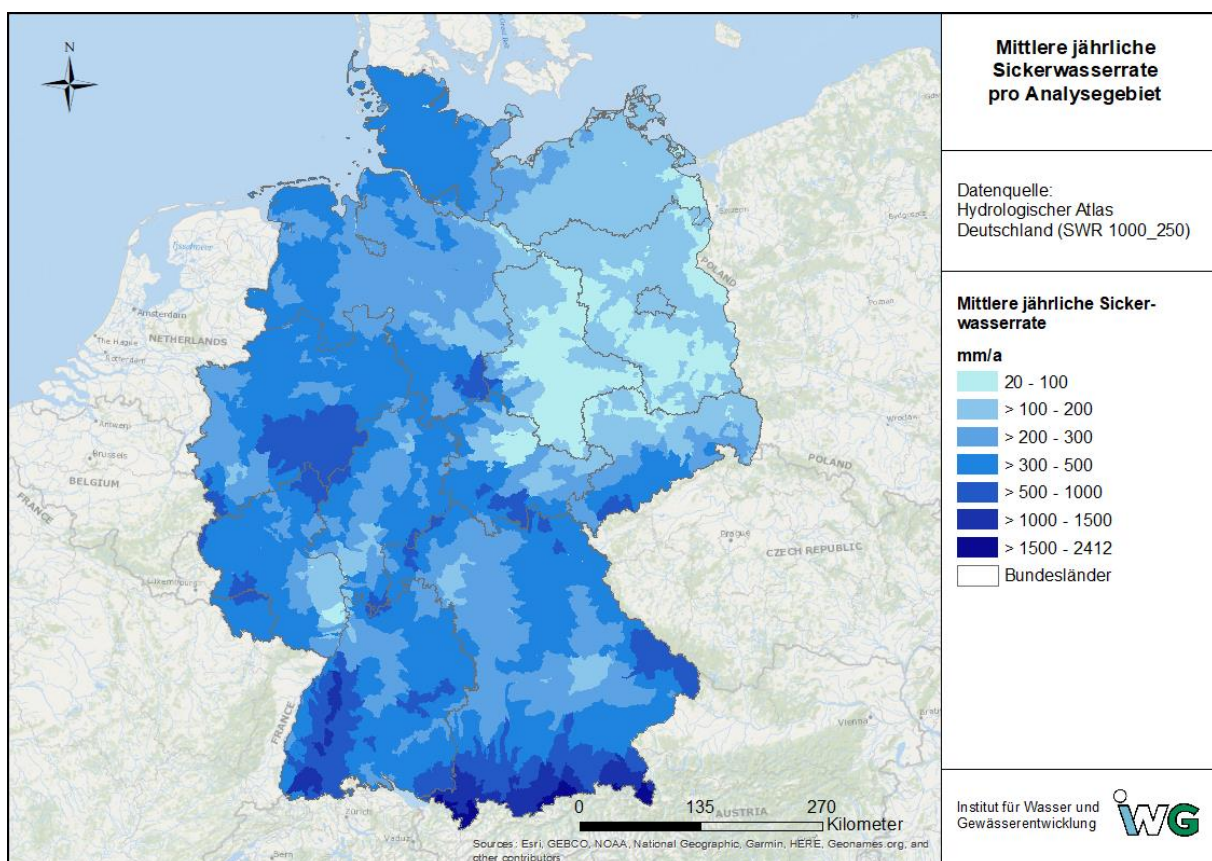
In der bisher angewandten Wasserbilanz in MoRE werden, vereinfacht dargestellt, zunächst die jeweiligen Abflüsse über Dränagen, Kanalisationssysteme und der Oberflächenabfluss bestimmt. Diese Abflusskomponenten werden vom Gesamtabfluss abgezogen, um den Grundwasserabfluss zu berechnen (Behrendt et al. 1999; Fuchs et al. 2010). Der so ermittelte Grundwasserabfluss fällt vergleichsweise hoch aus, da er neben dem langsamen Basisabfluss auch den schnelleren

Zwischenabfluss beinhaltet. Eine Differenzierung zwischen Basis- und Zwischenabfluss ist in der MoRE-Wasserbilanz derzeit nicht möglich. Daher werden für die Modellierung die

- ▶ mittlere jährliche Sickerwasserrate aus dem Boden (SWR 1000_250; BGR 2003b)
- ▶ mittlere jährliche Grundwasserneubildung (GWN 1000; BGR 2003a)

aus dem Hydrologischen Atlas Deutschland herangezogen. Die Rasterdaten wurden mittels GIS für die MoRE-Analysegebiete gemittelt (Abbildung 3, Abbildung 4). Die Sickerwasserrate spiegelt dabei weitestgehend die Verteilung der Niederschläge in Deutschland wider (BMU 2003).

Abbildung 3: Mittlere jährliche Sickerwasserrate (Mittel 1961-1990) in den MoRE-Analysegebieten nach Hydrologischem Atlas Deutschland (Karte SWR 1000_250)

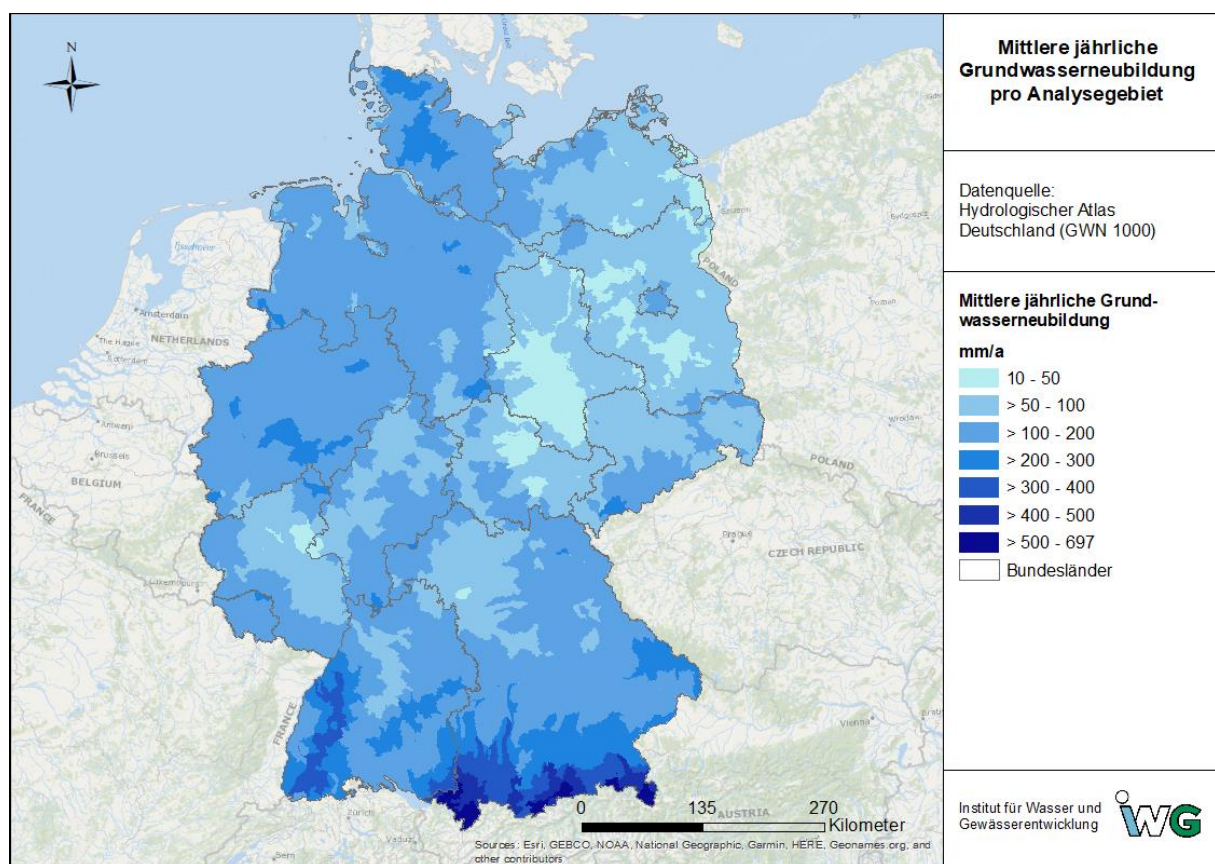


Quelle: Hydrologischer Atlas Deutschland (SWR 1000_250), eigene Darstellung KIT-IWG.

Niedrige Sickerwasserraten von ≤ 100 mm/a finden sich insbesondere in den ostdeutschen Bundesländern (Abbildung 3). Die höchsten Sickerwasserraten treten im Sauerland, dem Schwarzwald und den bayrischen Alpen auf, wo auch die höchsten Niederschläge zu verzeichnen sind. Auch die mittlere Grundwasserneubildung fällt in den ostdeutschen Gebieten zum Teil sehr niedrig aus (Abbildung 4). Aber auch Teile von Rheinland-Pfalz und im nördlichen Bayern weisen eine mittlere Grundwasserneubildung von ≤ 100 mm/a auf. Eine hohe Grundwasserneubildung liegt insbesondere in den bayrischen Alpen und entlang des Schwarzwaldes vor.

Durch Verwendung dieser beiden Eingangsgrößen in MoRE kann der Eintragspfad Grundwasser zwar sehr gut abgebildet werden. Jedoch liegt damit keine vollständige, in sich geschlossene Wasserbilanz mehr vor, mit der auch alle anderen Eintragspfade modelliert werden können. Die Wasserbilanz bleibt somit Gegenstand weiterer Modellentwicklungen.

Abbildung 4: Mittlere jährliche Grundwasserneubildung (Mittel 1961-1990) in den MoRE-Analysegebieten nach Hydrologischem Atlas Deutschland (Karte GWN_1000)



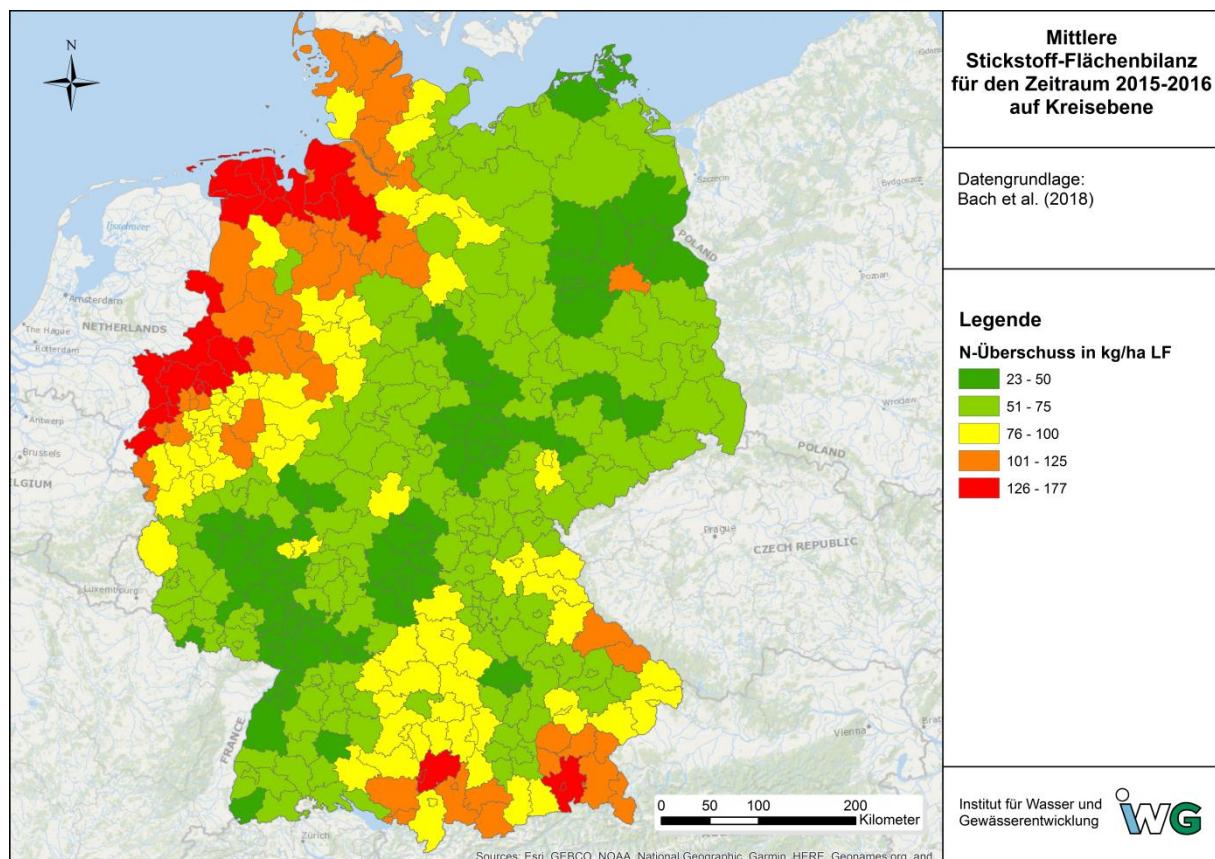
Quelle: Hydrologischer Atlas Deutschland (GWN 1000), eigene Darstellung KIT-IWG.

2.2.4 Stickstoff-Überschüsse

Als zentrale Eingangsgröße für die Modellierung der Stickstoff-Einträge über das Grundwasser in die Oberflächengewässer dient die Größe „Stickstoff-Überschuss auf den landwirtschaftlichen Nutzflächen“ mit Regionalgliederung Kreise. Diese Daten werden im Präprozessing auf die Analysegebiete übertragen. Die bisherige Vorgehensweise im Präprozessing wurde aufgrund der Verwendung eines neuen Landnutzungsdatensatzes angepasst.

Bisher erfolgte die Übertragung der N-Überschüsse auf die Analysegebiete analog zu Fuchs et al. (2017) anhand der Lage der landwirtschaftlichen Nutzflächen basierend auf CLC2012. Abbildung 5 zeigt die mittleren Stickstoff-Überschüsse (ohne Abzug der NH_3 -Emissionen bei der Ausbringung) für das Bundesgebiet auf Kreisebene.

Abbildung 5: Mittlere Stickstoff-Überschüsse auf der Landwirtschaftsfläche (2015-2016) in den Kreisen und kreisfreien Städte ohne Abzug der NH₃-Emissionen bei der Ausbringung (n. Bach und Häußermann 2018)



Quelle: eigene Darstellung KIT-IWG, nach Bach und Häußermann 2018.

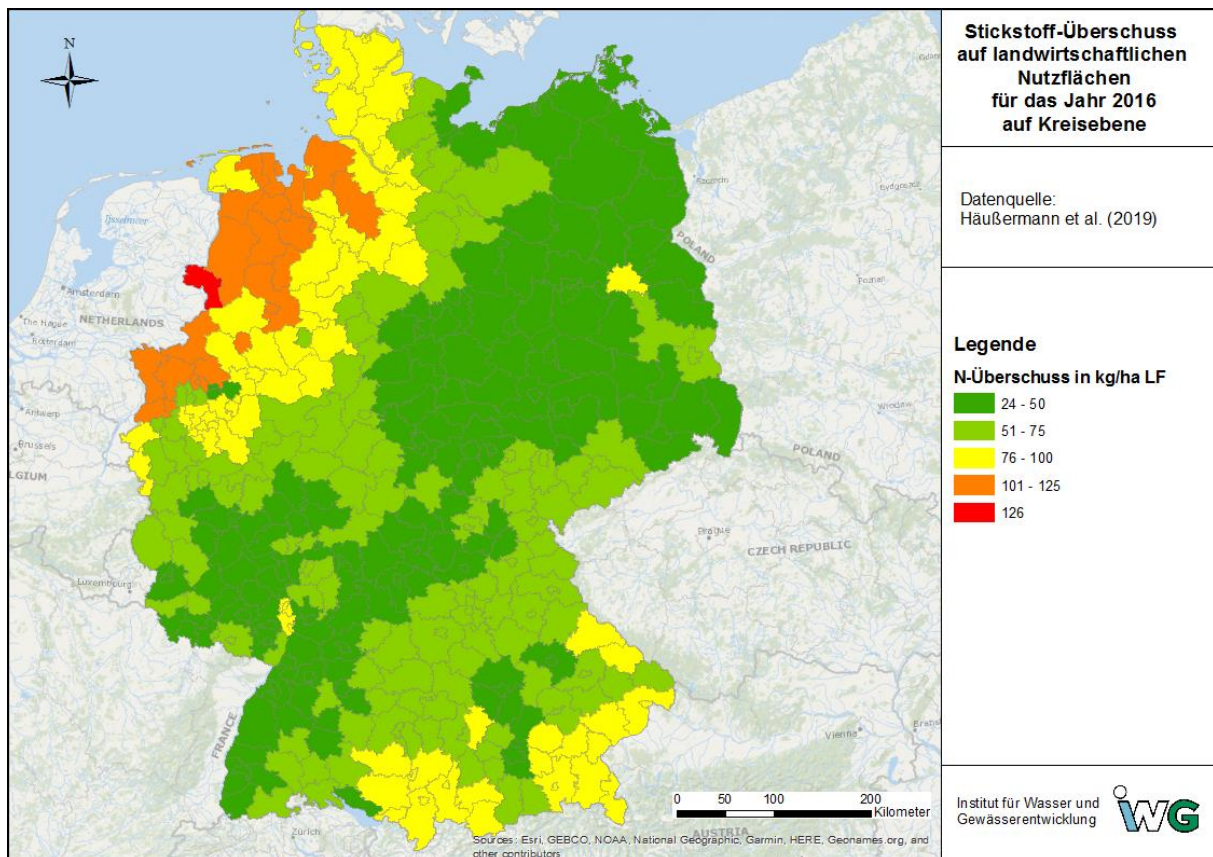
Für das aktuelle Vorhaben wurden sowohl aktualisierte N-Überschüsse als auch ein neues Vorgehen zur Übertragung auf AU-Ebene verwendet.

Die über die Verweilzeit im Grundwasser gemittelten Stickstoff-Überschüsse in Deutschland basieren auf den neuen Werten der Stickstoff-Flächenbilanzen nach Häußermann et al. (2019), Zeitreihe 1995 bis 2018. Mit dem Vorliegen von belastbaren Daten für die NH₃-Emissionsfaktoren im Bericht zu Methoden und Daten (Roesemann et al. 2019) konnten Häußermann et al. (2019) jetzt die NH₃-Verluste in der Bilanz berücksichtigen, die bei der Ausbringung von Wirtschaftsdüngern entstehen.

Für die atmosphärische N-Deposition auf der landwirtschaftlichen Fläche wird der PINETI-3-Datensatz verwendet (Schaap et al. 2018). Eine detaillierte Beschreibung des methodischen Vorgehens findet sich in Häußermann et al. (2019). Abbildung 6 zeigt die Stickstoff-Überschüsse für das Jahr 2016 nach neuem Ansatz (mit Abzug der NH₃-Emissionen bei der Ausbringung), die im vorliegenden Projekt genutzt werden.

Die Übertragung auf die Analysegebiete erfolgte anhand der Lage der landwirtschaftlichen Nutzflächen basierend auf dem LBM-DE 2015. Die absoluten Mengen der N-Überschüsse werden in einem ersten Schritt gewichtet auf die landwirtschaftlichen Flächen in den Analysegebieten übertragen. Dafür erfolgte eine Verschneidung der Kreise mit den landwirtschaftlichen Flächen des LBM-DE.

Abbildung 6: Mittlere Stickstoff-Überschüsse auf der Landwirtschaftsfläche 2016 in den Kreisen und kreisfreien Städte mit Abzug der NH₃-Emissionen bei der Ausbringung (n. Häußermann et al. 2019)



Quelle: Häußermann et al. (2019) (mit Abzug der NH₃-Emissionen im Stall und während der Lagerung), eigene Darstellung KIT-IWG.

Für die Analysegebiete liegen die geschätzten mittleren Verweilzeiten im Grundwasser vor (Kunkel et al. 2007; Tabelle 2). In einem zweiten Schritt wurde für jedes AU ein mittlerer N-Überschuss über die Verweilzeit als Modelleingangsgröße für MoRE gebildet.

Tabelle 2: Zusammenfassung der betrachteten Jahre der Stickstoff-Überschüsse während der Verweilzeiten im Grundwasser (Präprozessing in MoRE)

Klasse der Verweilzeit	Verweilzeit in Jahren	Gemittelte Jahre
1	0 - 5	2012 - 2016
2	> 5 - ≤ 10	2007 - 2016
3	> 10 - ≤ 15	2002 - 2016
4	> 15 - ≤ 25	1997 - 2016
5	> 25 - ≤ 30	1992 - 2016
6	> 30 - ≤ 35	1987 - 2016
7	> 35 - ≤ 40	1982 - 2016
8	> 40 - ≤ 45	1977 - 2016
9	> 45 - ≤ 50	1972 - 2016
10	> 50 - ≤ 55	1967 - 2016
11	> 55 ^a	1962 - 2016

^a Bei Verweilzeiten >55 Jahren werden nur die letzten 55 Jahre berücksichtigt.

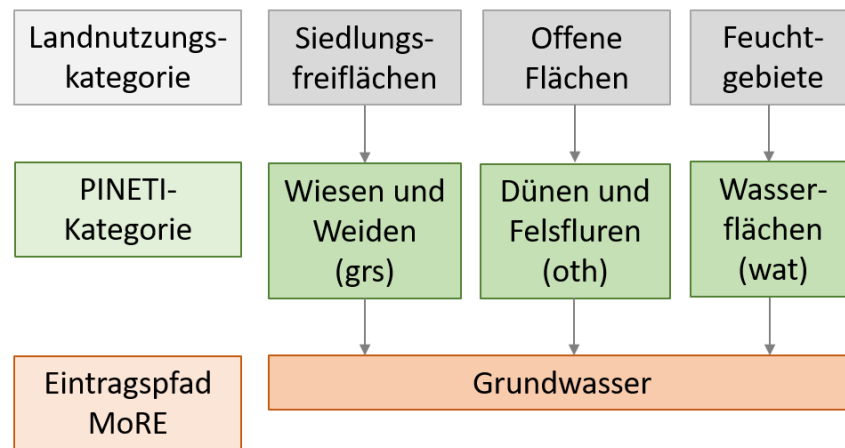
2.2.5 Atmosphärische Stickstoff-Depositionen

Die atmosphärische Deposition wird in der MoRE-Modellierung bei der Bilanzierung der N-Überschüsse berücksichtigt. Bisher wurden die Gesamtdeposition von EMEP MSC-West verwendet, da diese den gesamten Bereich Mitteleuropas abdecken (EMEP/MSW-West 2018; Fuchs et al. 2016). Für den Eintragspfad des Grundwassers wurde bisher ein langjähriges Mittel der Stickstoff-Deposition als Eingangsdatum verwendet.

In vorliegenden Projekt werden jetzt landnutzungsspezifische Depositionsraten verwendet, für die landwirtschaftlichen Flächen wurde dies bereits in der Stickstoff-Überschuss-Bilanz (Häußermann et al. 2019) berücksichtigt. Als Datengrundlage dienen die im PINETI-3 Projekt ermittelten Werte (Schaap et al. 2018). PINETI-3 weist spezifische N-Depositionsraten für zehn Landnutzungsklassen (Vegetationstypen bzw. Beschaffenheit der Landoberflächen) aus. Weitere relevante Landnutzungsflächen für den Grundwasser-Pfad sind natürliche Flächen, Siedlungsfreiflächen, offene Flächen und Feuchtgebiete. Abbildung 7 zeigt, welche der Flächenkategorien den landnutzungsspezifischen N-Depositionsraten von PINETI zugeordnet wurden.

Für die Modellierung des Stickstoff-Austrages aus Flächen mit natürlicher Vegetation, wie bspw. Waldflächen, werden im neuen Ansatz Literaturliteraturauswertungen von Kiese et al. (2011) sowie Beisecker et al. (2012) herangezogen und ein konstanter Wert von 5,5 kg N/(ha·a) für die N-Auswaschung angenommen. Hier wird keine Deposition berücksichtigt.

Abbildung 7: Zuordnung der Flächenkategorien und der als Eingangsdaten für die Modellierung verwendeten landnutzungsspezifischen atmosphärischen Stickstoff-Depositionsraten nach PINETI-3 (Schaap et al. 2018) für die Modellierung des Eintragspfad Grundwasser in MoRE



Quelle: eigene Darstellung KIT-IWG.

Die Depositionswerte der PINETI-Raster wurden für die Analysegebiete gemittelt. Für die Modellierung des Jahres 2016 wurden die mittleren N-Depositionsraten der Jahre 2013-2015 aus dem PINETI-Datensatz verwendet (aktuellere Daten lagen nicht vor). Eine Zeitreihe der atmosphärischen N-Deposition ab 1962 zur Berücksichtigung der langzeitigen Veränderungen, analog zu den Stickstoff-Überschüssen der Landwirtschaftsfläche, konnte nicht erzeugt werden, da keine entsprechenden räumlich höher aufgelösten Daten vorliegen.

3 Modellierung der Nitratkonzentration im Grundwasser im Bundesgebiet

3.1 Verfahren zur Regionalisierung der Nitratkonzentration

Die Nitratkonzentration in einem Grundwasserkörper bzw. an einer Grundwassermessstelle hängt von zahlreichen Einflussfaktoren und Prozessen ab. Dazu zählen insbesondere die hydrogeologischen Eigenschaften des Grundwasserleiters, die Grundwasserneubildungsrate, die Verweilzeiten in der ungesättigten Zone und im Grundwasser (GW) sowie die Landnutzung und die Höhe des Stickstoff-Überschusses auf den Landwirtschaftsflächen. Weiterhin bestimmen die biogeochemischen Verhältnisse in der ungesättigten Zone und im Grundwasserleiter die Intensität des Nitratabbaus während der Passage des Sicker- bzw. Grundwassers.

Die Darstellung der räumlichen Verteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser dient unter anderem zur Konzeption und Lokalisierung von Agrarumweltprogrammen und Minderungsmaßnahmen. Ausgangspunkt für eine räumliche Beschreibung sind im Regelfall lokal gemessene NO_3 -Konzentrationswerte an ausgewählten Grundwassermessstellen, Brunnen und Quellen. Diese Punktdaten müssen mit geeigneten mathematisch-statistischen Regionalisierungs- bzw. Interpolationsalgorithmen in flächenhafte Informationen transponiert werden um die Datenlücken zwischen den Messstellen zu schließen und ein Gesamtbild der Grundwasserbeschaffenheit zu erzeugen. Einen Überblick über gängige Interpolationsverfahren in den Geowissenschaften geben u.a. Goodchild (1992) und Burrough und McDonnell (1998). Grundsätzlich werden drei Verfahren unterschieden, mit denen flächenbezogene Darstellungen der (geschätzten) Stoffkonzentration im Grundwasser erzeugt werden können:

- ▶ Geostatistische Verfahren (Kriging-Verfahren)
- ▶ Explorativ-statistische Verfahren
- ▶ Emissionsbasierte Verfahren.

3.1.1 Kriging-basierte Verfahren

In geostatistischen Verfahren wird die ortsabhängige Ausprägung eines metrisch skalierten Merkmals als Realisierung einer Zufallsfunktion angesehen. Dabei wird angenommen, dass diese Realisierungen in einer räumlichen Abhängigkeit voneinander stehen, das heißt, dass Messwerte einander naheliegender Standorte ähnlicher sind als Messwerte weiter entfernter Standorte (Pesch 2013). Die Ausprägung der räumlichen Autokorrelation wird mittels Semivariogrammen beschrieben, für die verschiedene mathematische Funktionen zur Beschreibung der räumlichen Abhängigkeit verwendet werden (linear, sphärisch, Gauss, polynomisch, exponentiell u.a.m.). Im anschließenden Kriging-Verfahren erfolgt mit Hilfe der Semivariogramme die räumliche Interpolation. Verfahren wie das Kokriging, Indikatorkriging usw. beziehen weitere Variablen in die Semivariogrammfunktion ein.

Ein Verfahren das hier zu nennen ist, ist SIMIK+ (Simple Updating and Indicator Kriging based on Additional Information). SIMIK+ ist ein Ordinary Kriging-Verfahren unter Einbezug von kategorialen Variablen (Hydrogeologie, Landnutzung), die zur Abgrenzung von stratigrafischen Einheiten herangezogen werden, für die dann separate Semivariogramme ausgewertet werden (Bárdossy et al. 2003). Innerhalb einer stratigrafischen Einheit wird die Verteilung der NO_3 -Konzentration ausschließlich als Funktion der Semivarianz berechnet, das heißt es werden keine weiteren Einflussfaktoren auf die Nitratkonzentration (wie bspw. Stickstoffüberschuss, Sickerwasserrate o.ä.) berücksichtigt. In Deutschland wurden mit SIMIK+ flächenhafte Informationen

der NO_3 -Konzentration im Grundwasser u.a. für Baden-Württemberg (Bárdossy et al. 2003), Hessen (Umweltatlas Hessen 2018), Mecklenburg-Vorpommern (Kollatsch et al. 2006) und Thüringen (TLUG o.J.) veröffentlicht. Die Güte des Schätzergebnisses zur räumlichen Verteilung eines Grundwasser-Güteparameters kann mittels Kreuzvalidierung überprüft werden. Entsprechende Untersuchungen zur Unsicherheit der mit SIMIK+ (oder anderen Kriging-Verfahren) generierten Informationen zur flächenhaften Verteilung der NO_3 -Konzentrationen im GW sind den Autoren allerdings nicht bekannt.

Zentrale Bedingung für eine (statistisch begründete) Anwendung von Kriging-Verfahren ist die räumliche Autokorrelation der Messwerte. Nach Stand der Kenntnis der Autoren liegen keine veröffentlichten Informationen darüber vor, ob diese Bedingung für die Arbeiten in den genannten Ländern jeweils überprüft wurde. In einer Kriging-basierten Regionalisierung der Nitratkonzentration im Grundwasser in den Lockergesteinsaquiferen in Niedersachsen kommen Wriedt et al. (2019) aus der Analyse der Semivariogramme zu dem Schluss, dass dort bei Verwendung nicht-transformierter Messwerte kein räumlicher Zusammenhang zwischen den Messstellen erkennbar war. Mit anderen Worten, die Interpolation von Werten für die Bereiche zwischen Messstellen stellte dort im Grunde einen artifiziellen Vorgang dar (Anmerkung: diese Studie war eine rein wissenschaftliche Untersuchung ohne Bezug zu Verwaltungs- oder Vollzugsaufgaben).

3.1.2 Explorativ-statistische Verfahren

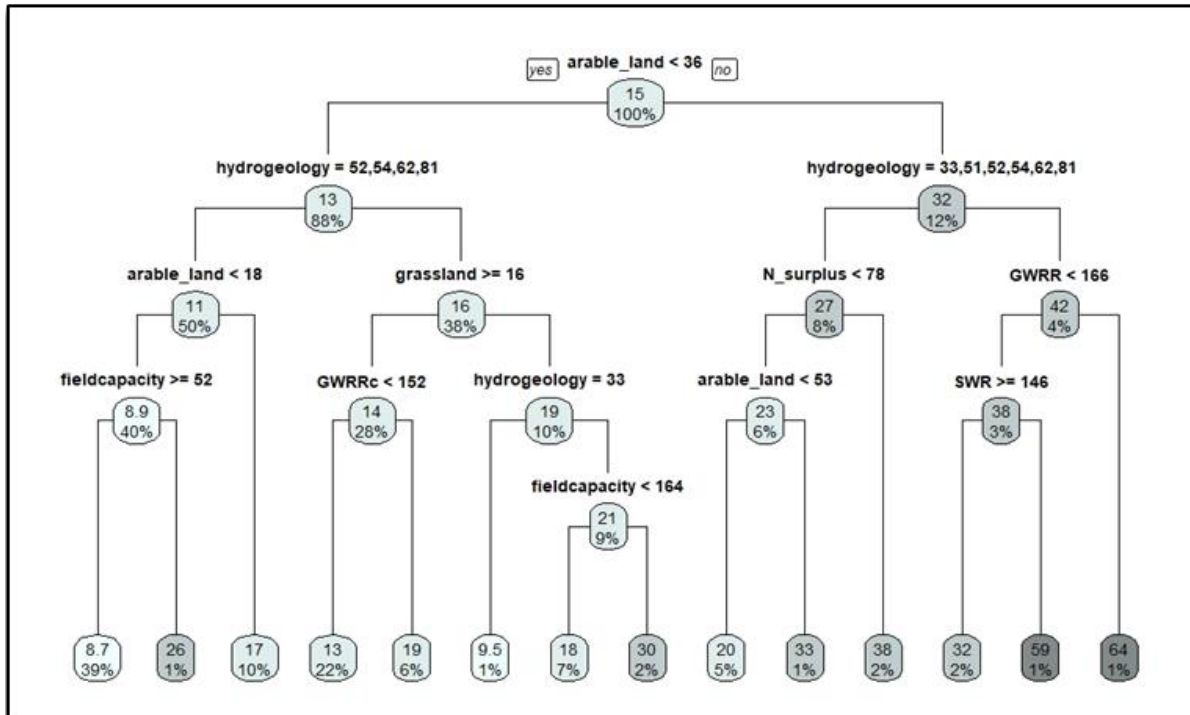
Neben geostatistischen Methoden bilden explorativ-statistische Methoden die zweite Gruppe von räumlichen Interpolationsverfahren. Dabei wird der Zusammenhang zwischen der Zielgröße und einer oder mehreren erklärenden Variablen (Prädiktoren), deren Ausprägung flächendeckend für ein Betrachtungsgebiet vorliegt, statistisch analysiert. Für metrische Variablen kann der statistische Zusammenhang unter anderem als multiple lineare Regression (MLR) (bspw. Boy-Roura et al. 2013) formuliert werden.

Die Anwendung explorativ-statistischer Verfahren zur Prognose der Grundwasserqualität wird regelmäßig in der Literatur beschrieben. Landesweite Karten der Nitratkonzentration im Grundwasser wurden mit Regressionsmodellen bspw. für China (Gu et al. 2013) und für die Vereinigten Staaten entwickelt (Nolan et al. 2002, Nolan und Hitt 2006). Khalil et al. (2005) zeigen die Leistungsfähigkeit verschiedener Algorithmen wie z.B. von neuronalen Netzen oder Support-Vektor-Maschinen für die Vorhersage von Grundwasserverschmutzungen. Neuerdings werden verstärkt Klassifikationsverfahren wie Classification and Regression Trees (CART) eingesetzt. Weiterentwickelte Varianten dieses Verfahrens sind Boosted Regression Trees (BRT) und insbesondere Random Forest (RF) (Tyrallis et al. 2019).

Die Methodik der „Classification and Regression Trees“ geht auf das Prinzip von Entscheidungsbäumen nach Breiman (1984) zurück. Es handelt sich hierbei um ein Werkzeug zur Modellierung und Analyse von komplexen, nicht-parametrischen Datensätzen mit sowohl numerischen als auch kategorialen Variablen, die als Prädiktoren in ein CART-Verfahren eingehen (De'ath and Fabricius 2000). Die Methode eignet sich sowohl zu Regressions- als auch zu Klassifikationsanwendung bzw. einer Kombination aus beiden. In einem CART-Verfahren wird eine Menge von Objekten (Daten) mit Hilfe von Entscheidungsregeln in homogene Teilmengen unterteilt, bei denen die Objekte innerhalb einer Klasse untereinander möglichst ähnlich und zwischen den Klassen möglichst unterschiedlich sind. Ausgehend vom gesamten Datensatz, dem „Wurzelknoten“, teilt der Entscheidungsalgorithmus die Daten an jeder Entscheidungsstelle (Knoten) in zwei Teildatensätze, das heißt der Entscheidungsbaum verzweigt sich in zwei „Äste“ (Abbildung 8). Diese Aufteilungen werden immer weiter fortgeführt, so dass über weitere „Äste“ zahlreiche

(nicht-terminale) Knoten gebildet werden. Der Entscheidungsbaum endet schließlich in terminalen Knoten, den „Blättern“, die die Ausgabewerte (Schätzwerte) der abhängigen Variable (Responsevariable) liefern (Breiman 1984, De’ath and Fabricius 2000).

Abbildung 8: Schema der schrittweisen Aufteilung eines Datensatzes in möglichst homogene Teilmengen anhand von Klassifikationskriterien (Classification and Regression Tree, CART)



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen.

Für die Anwendung von CART als Regressionsverfahren wird zunächst anhand eines Trainingsdatensatzes (bspw. den NO₃-Messwerten eines Grundwassermessnetzes) der Entscheidungsbaum entwickelt. Anschließend wird mittels dieses Entscheidungsbaumes die Zielgröße (bspw. die NO₃-Konzentration) für alle Objekte (bspw. alle Zellen einer Rasterkarte) geschätzt, für die die Werte der Prädiktoren des Entscheidungsbaumes bekannt sind. Ein einfaches CART-Verfahren kann allerdings zu sehr großen und damit instabilen Baumstrukturen und zu einer Überanpassung (Overfitting) des Modells an den Datensatz führen. Damit ist eine relativ geringe Schätzgenauigkeit verbunden und das Schätzergebnis reagiert sehr sensitiv auf geringe Änderungen im Datensatz (De’ath 2007, Hastie et al. 2009, Kuhn and Johnson 2013). Außerdem ist als Nachteil der eingeschränkte Wertebereich für die prognostizierten Werte zu nennen: es können nur Werte geschätzt werden, die auch innerhalb der Spannweite des Trainingsdatensatzes liegen.

Das **Random Forest (RF)**-Verfahren stellt eine Weiterentwicklung von CART dar (Breiman, 2001). Während bei CART nur ein einziger Entscheidungsbaum gebildet wird, werden bei einer RF-Klassifikation zahlreiche Bäume (z.B. 1.000 oder mehr) erzeugt, womit die erwähnten Nachteile ausgeglichen werden. Für die Erstellung eines einzelnen Baumes wird dabei jeweils nur eine zufällig gezogene Teilmenge des Gesamtdatensatzes verwendet („bagging“ bzw. „bootstrap aggregation“). Außerdem erfolgt die Aufteilung an den einzelnen Knoten (Ästen) nur anhand einer Teilmenge der insgesamt zur Verfügung stehenden Prädiktoren. Die Ausgabewerte aller Bäume werden schließlich gemittelt, um einen Ensemble-Wert für die Zielgröße zu erhalten

(Kuhn and Johnson 2013). Damit wird das Risiko des Overfitting an die Trainingsdaten reduziert, die Schätzgenauigkeit wird verbessert und das Modell wird insgesamt robuster.

RF ermöglicht weiterhin ein Ranking der Prädiktoren in Bezug auf deren relative Einflussstärke auf die Ergebnisvariable. Dieses Ranking wird ermittelt, indem die Veränderung der Schätzgenauigkeit mit und ohne den jeweiligen Prädiktor gemessen wird (Breiman 2001). Die Güte bzw. die Schätzgenauigkeit eines RF-Modells wird über eine Kreuzvalidierung durch den RMSE (root mean square error) bzw. MAE (mittlerer absoluter Fehler) als Gütemaß beschrieben.

Random Forest und andere Entscheidungsbaum-basierte Machine Learning-Techniken werden seit Anfang der 2000er Jahre zur Erzeugung von Verteilungskarten von Grundwassergüteparametern erfolgreich eingesetzt (Knoll et al. 2019, Nolan et al. 2014, 2015, Ouedraogo et al. 2018, Ransom et al. 2017, Rodriguez-Galiano et al. 2014, 2018, Tesoriero et al. 2017, Wheeler et al. 2015). Vergleiche verschiedener Verfahren haben gezeigt, dass RF dabei bessere Vorhersagergebnisse liefert als andere CART-Verfahren oder eine multiple lineare Regression (Knoll et al. 2019, Wang et al. 2016). Als methodischer Vorteil von RF gegenüber geostatistischen Verfahren ist anzuführen, dass mit RF für jedes räumliche Element die Ausprägung aller Merkmale (Prädiktoren) für die Schätzung der Zielgröße herangezogen wird. Zwar kann dies in geostatistischen (Kriging-basierten) Ansätzen über Dummy-Variablen grundsätzlich auch erreicht werden, in der praktischen Anwendung sind allerdings nach Stand der Kenntnis bislang keine Dummy-Variablen in die Semivariogramm-Berechnung eingeführt worden.

3.1.3 Emissionsbasierte Verfahren

Neben statistischen Verfahren kann die räumliche Verteilung einer Größe grundsätzlich auch mittels eines Emissions-basierten Ansatzes dargestellt werden, in dem die räumliche Verteilung der emissionsbestimmenden Größen, die im Modell miteinander verknüpft werden, die Verteilung der Zielgröße prägt. In Deutschland wird im Projekt AGRUM-DE die Modellkette RAUMIS-GROWA-WEKU-DENUZ (Wendland et al. 2020) eingesetzt, um den Stickstoffeintrag in Oberflächengewässer und Grundwasser auf verschiedenen Transportwegen zu schätzen. Für den Grundwasserpfad werden, ausgehend vom Stickstoff-Überschuss der Landwirtschaftsfläche und der modellierten Sickerwassermenge, Annahmen zur Denitrifikation im Boden und in der ungesättigten Zone getroffen und daraus die potenzielle Nitratkonzentration im Sickerwasser berechnet. Emissionsbasierte Verfahren stellen jedoch keine Interpolation im engeren Sinne dar, da die Modellierung unabhängig von der Immission, das heißt der räumlichen Verteilung von Messwerten eines Grundwassermessnetzes erfolgt. Eine Darstellung der Unsicherheit der Modellergebnisse (z.B. in Form von Konfidenzintervallen der modellierten Konzentrationen) ist den Autoren für Anwendungen in Deutschland nicht bekannt. In der Anwendung von Wendland et al. (2020) zur Modellierung der Nitratkonzentrationen im Sickerwasser für Nordrhein-Westfalen wurden diese mit Grundwasserkonzentrationsmessdaten validiert, das Ergebnis wird allerdings nicht explizit vorgestellt. Wendland et al. (2020) führen aus, dass zwar generell eine gute räumliche Übereinstimmung der modellierten Sickerwasserkonzentrationen mit den gemessenen Grundwasserkonzentrationen festzustellen sei, in Bereichen mit hohem Denitrifikationsvermögen würden jedoch auch systematische Abweichungen auftreten.

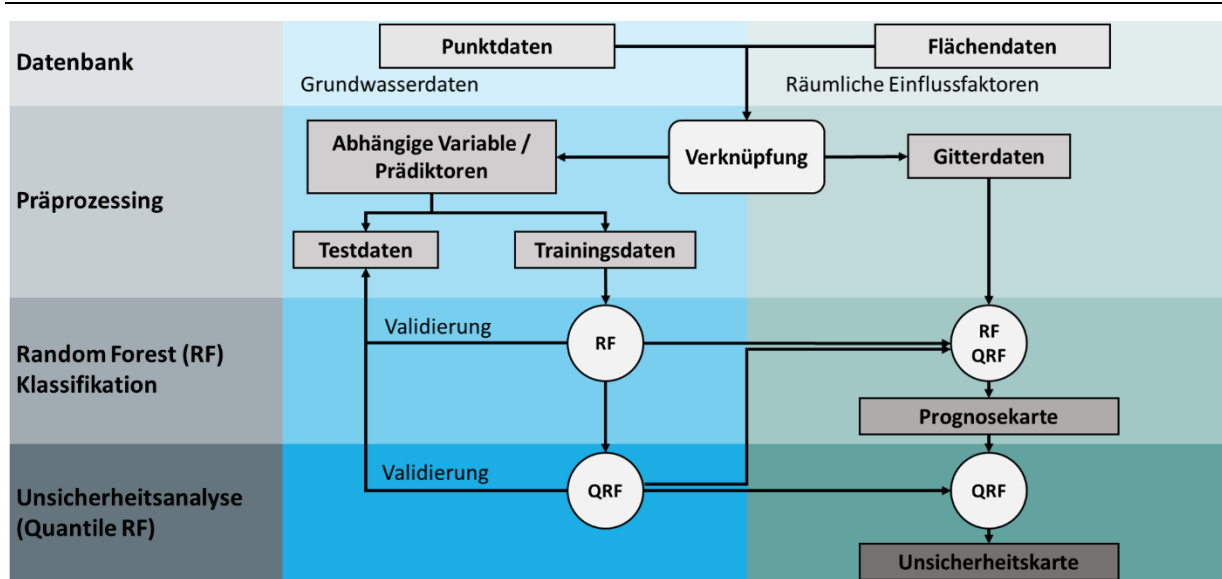
3.2 Random Forest-Ansatz zur Modellierung der Nitratkonzentration im Grundwasser

Der Vergleich der vier Verfahren CART, BRT (Boosted Regression Trees, n. Freund und Schapire 1996), RF und MLR exemplarisch für die Regionalisierung der Nitratkonzentration im Grund-

wasser in Hessen (Knoll et al. 2019) hat gezeigt, dass mit RF das beste Vorhersageergebnis erreicht wird, was sich auch mit den Erkenntnissen aus anderen Studien deckt (Ouedraogo et al. 2019, Tesoriero et al. 2017, Wheeler et al. 2015). Für die Modellierung der Nitratkonzentration flächendeckend für das Bundesgebiet wird daher im Folgenden das Random Forest-Verfahren verwendet. Als Kompromiss zwischen möglichst hoher räumlicher Differenzierung und Arbeitsaufwand wurde als räumliche Auflösung ein 1 km x 1 km-Raster gewählt. Der RF-Ansatz gliedert sich in vier Schritte (Abbildung 9).

- ▶ Aufbau Datenbank
 - Punktdaten der Nitratkonzentration einschließlich Redox-Parameter (Sauerstoff (O₂) und Eisen (Fe)) an Grundwassermessstellen (Kap. 3.2.1)
 - Flächendaten der Verteilung der Prädiktoren für die RF-Klassifikation in Deutschland (Kap. 3.2.2).
- ▶ Präprozessing
 - Ermittlung der Ausprägung (Werte) der Prädiktoren in Umkreis jeder Grundwassermessstelle (Kap. 3.2.3)
 - Charakterisierung der Redox-Verhältnisse im Grundwasserleiter (Kap. 3.2.4).
- ▶ Random Forest-Klassifikation
 - Entwicklung eines optimalen RF-Klassifikationsalgorithmus (Kap. 3.2.5)
 - Anwendung des RF-Algorithmus auf die gesamte Fläche des Bundesgebietes (1 km x 1 km-Rasterzellen) und Schätzung (Vorhersage) der Nitratkonzentration (Kap. 3.3.1)
- ▶ Unsicherheitsanalyse mittels Quantile Random Forest (QRF): Ausweisung der Spannbreiten der Unsicherheit der geschätzten Nitratkonzentrationen (Kap. 3.3.2).

Abbildung 9: Vorgehen zur Modellierung der Nitratkonzentration im Grundwasser: Aufbau Datenbasis, Präprozessing, Training und Anwendung der Random Forest (RF)-Klassifikation, Unsicherheitsanalyse mittels Quantile Random Forest (QRF)



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen.

Im Folgenden werden die für den RF-Ansatz verwendeten Eingangsdaten und die Arbeitsschritte beschrieben.

3.2.1 Punktdaten (Grundwassermessstellen)

Für das Trainieren des Klassifikationsalgorithmus benötigt das Random Forest-Verfahren einen umfangreichen Satz an Messwerten der Nitratkonzentration im Grundwasser, der zudem möglichst alle auftretenden Kombinationen der Prädiktorenwerte abdeckt. Dafür wurden von den Bundesländern die Stammdaten sowie Zeitreihen der Nitratkonzentrationen sowie weitere hydrochemische Parameter für rund 24.000 Grundwassermessstellen in Deutschland übermittelt, von denen etwa 7.000 Messstellen zum WRRL-Grundwassermessnetz gehören. Die Verwendung des WRRL-Grundwassermessnetzes geht auf die Empfehlung der Vertreter*innen der LAWA-AG „Länder Arbeitsgemeinschaft Wasser -Grundwasser und Wasserversorgung“ (am 29./30. Jan. 2019) zurück, da an dieses Messnetz einheitliche Kriterien und Anforderungen geknüpft sind und es in allen Bundesländern zumindest annähernd die gleiche Messstellendichte aufweist. Folgende Informationen wurden Messstellen-bezogen erfasst und analysiert:

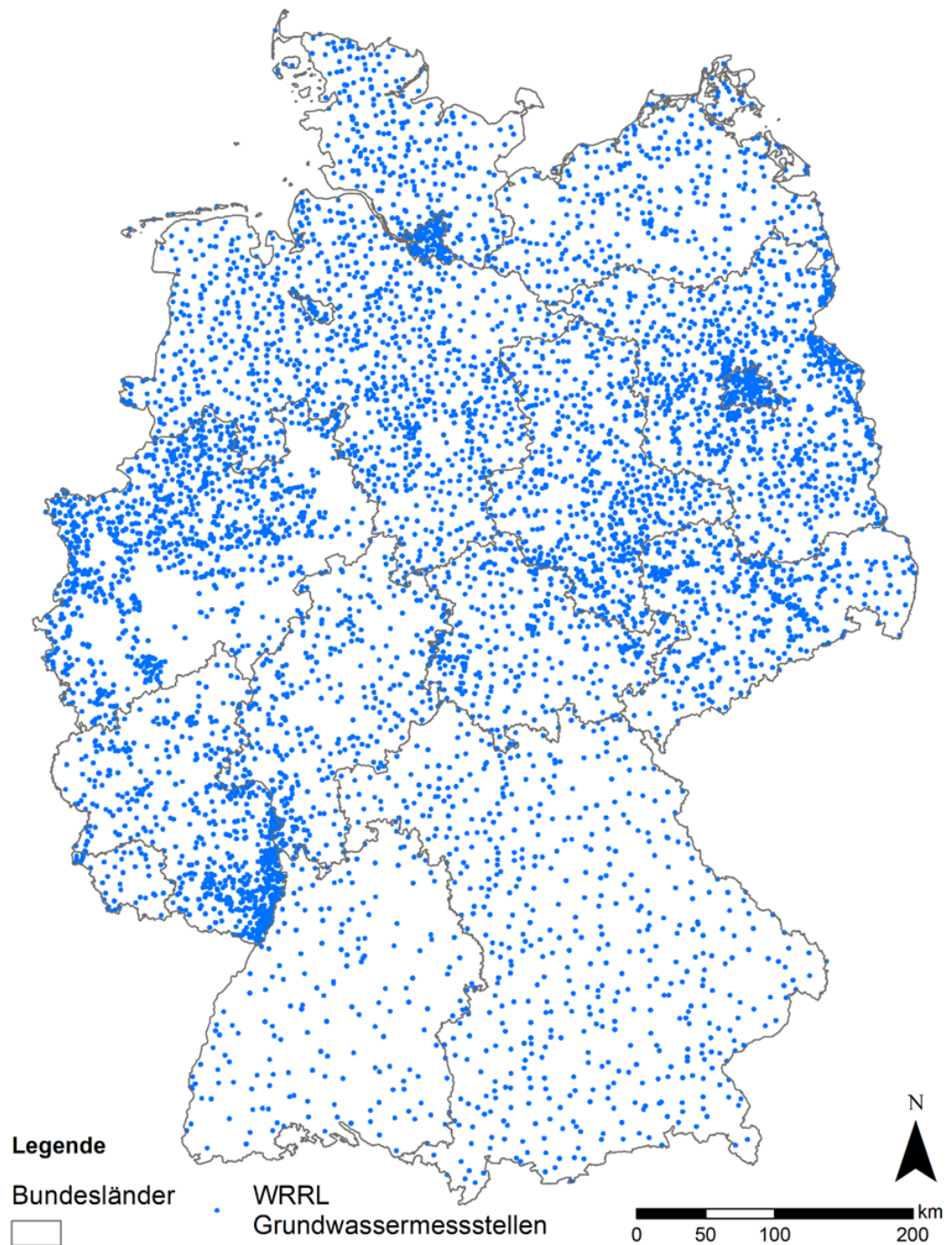
- ▶ Koordinaten
- ▶ Tiefe der Messstelle
- ▶ Tiefenlage der Filterstrecke
- ▶ Zeitreihe der NO_3 -Konzentration
- ▶ Sauerstoff (O_2)-Gehalt
- ▶ Eisen (Fe)-Gehalt
- ▶ Hydrogeologische Charakteristik des Aquifers
- ▶ Mittlere Verweilzeit des Grundwassers
- ▶ Landnutzung im Umfeld der Messstelle.

Statistische Kenngrößen und Häufigkeitsverteilungen der Sauerstoff-, Eisen- und Nitratkonzentrationen sind im Anhang (Abbildung 31, im Anhang; Tabelle 11, im Anhang) dargestellt. Die Daten wurden aufbereitet, in eine Datenbank überführt und nach den folgenden Kriterien selektiert:

- ▶ Eindeutig zugeordneter Messstellentyp: Grundwassermessstelle (GWM), Brunnen oder Quelle
- ▶ Angabe zur Messstellentiefe bzw. Ausbau der Filterstrecke vorhanden (ausgenommen Quellen)
- ▶ Messstellentiefe < 100 m
- ▶ Mindestens zwei Messwerte im Zeitraum 2009 bis 2018
- ▶ Standardfehler des Mittelwertes (SEM) < 10 mg NO_3 /l.

Nach Anwendung dieser Kriterien auf den Datensatz verblieben rund 5.400 Messstellen des WRRL-Grundwassermessnetzes für die Regionalisierung von Nitrat im Grundwasser. Tabelle 3 zeigt eine Übersicht der übermittelten und nach Anwendung der Auswahlkriterien verbliebenen Messstellen der jeweiligen Bundesländer. Abbildung 10 zeigt die räumliche Verteilung und die Häufigkeitsverteilung der Nitratkonzentrationen in diesem Messnetz.

Abbildung 10: Wasserrahmenrichtlinie (WRRL)-Grundwassermessstellen im Bundesgebiet, die für die Random Forest-Modellerstellung verwendet wurden

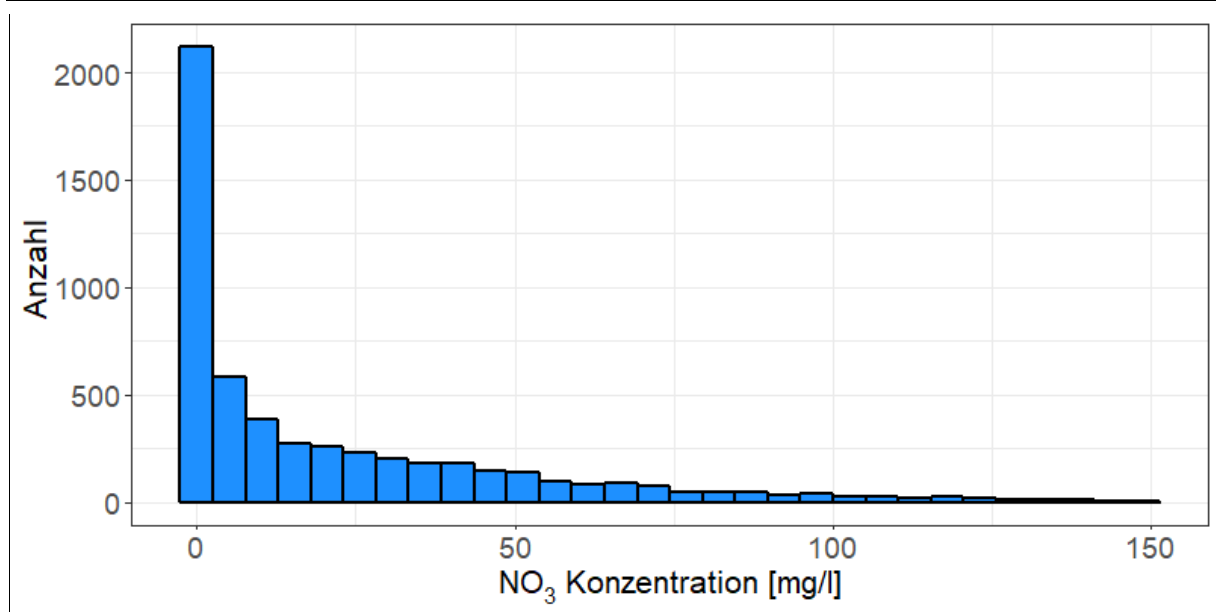


Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen, nach Knoll et al. 2020a; Kartengrundlage: © Geo-BasisDE / BKG 2018.

Tabelle 3: Anzahl der WRRL-Grundwassermessstellen in den Bundesländern, die als Trainingsdaten der Random Forest-Klassifikation der Nitratkonzentration im Grundwasser verwendet wurden

Bundesland	Anzahl Messstellen	Bundesland	Anzahl Messstellen
Baden-Württemberg	180	Niedersachsen	971
Bayern	494	Nordrhein-Westfalen	821
Berlin	65	Rheinland-Pfalz	399
Brandenburg	579	Saarland	45
Bremen	25	Sachsen	447
Hamburg	134	Sachsen-Anhalt	458
Hessen	181	Schleswig-Holstein	235
Mecklenburg-Vorpommern	166	Thüringen	214
Gesamt	5.414		

Abbildung 11: Häufigkeitsverteilung der Nitratkonzentration (Mittel 2009-2018) in den rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen im Bundesgebiet, die für die Random Forest-Modellerstellung verwendet wurden



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen.

Für die weiteren Analysen wurde der Mittelwert der Nitratkonzentration in den Messstellen im Zeitraum 2009 bis 2018 verwendet. Die mittlere Nitratkonzentration der ausgewerteten Messstellen beträgt 21,46 mg NO₃/l, der Anteil der Messstellen über dem Schwellenwert von 50 mg NO₃/l liegt bei 15 %.

3.2.2 Flächendaten

Als Prädiktoren der RF-Klassifikation zur Abschätzung der Nitratkonzentration im Grundwasser im Deutschland wurden die folgenden bundesweit verfügbaren Flächeninformationen herangezogen:

- ▶ Landbedeckungsmodell Deutschland, Merkmal „Landnutzung“, aggregiert zu fünf Landnutzungsklassen (Ackerland, Grünland, Sonderkulturen, Siedlung und Wald) (Quelle: BKG 2016; Verteilung Ackerland und Wald; Abbildung 32, im Anhang)
- ▶ HYRAUM - Hydrogeologische Raumgliederung von Deutschland, Merkmal „hydrogeologische Räume“ (BGR & SGD 2015; 32 Kategorien; Abbildung 33, im Anhang)
- ▶ HÜK200 - Hydrogeologische Übersichtskarte von Deutschland 1:200.000 (BGR 2016; sechs Attribute)
- ▶ Mittlere jährliche Grundwasserneubildung in Deutschland 1:1000.000 (GWN1000; BGR 2003a; Abbildung 34, im Anhang)
- ▶ Grundwasserverweilzeiten in Deutschland (Kunkel et al. 2007, Fuchs et al. 2010; Abbildung 34, im Anhang)
- ▶ Stickstoff-Überschuss auf der landwirtschaftlich genutzten Fläche, Regionalgliederung Kreise (Mittel 2007 bis 2016; Abbildung 7; Häußermann et al. 2019)
- ▶ Potentielle Nitratkonzentrationen im Sickerwasser, berechnet aus mittlerer jährlicher Sickerwasserrate aus dem Boden in Deutschland und dem hydrosphärischen Stickstoff-Überschuss (Abbildung 35, im Anhang)
- ▶ Wasserspeicherkapazität (Feldkapazität) der Böden bis 1 m Tiefe (BGR, 2015) und
- ▶ Humusgehalt - Gehalte an organischer Substanz der Böden (BGR, 2007).

3.2.3 Auswertung der Prädiktoren

Für das Trainieren des Klassifikationsalgorithmus (Entscheidungsbaums) im RF-Verfahren müssen die Punktdaten (Grundwasserkonzentrationsdaten) mit den Flächendaten verknüpft werden, die als Prädiktoren bzw. erklärende Variablen dienen. Auf Landesebene sind im Regelfall keine Angaben zum Grundwasserfließregime bzw. zum Einzugsbereich einer Messstelle verfügbar. Daher müssen vereinfachte Annahmen bezüglich des potentiellen Einzugsgebietes der Messstellen getroffen werden. Eine kreisförmige Bufferzone mit Radius 1.000 m um die jeweilige Messstelle stellt eine vertretbare Näherung zur Beschreibung des potentiellen Einzugsgebietes dar (Johnson and Belitz 2009, Wheeler et al. 2015, Knoll et al. 2019). Mit dieser Prämisse wurden für jede Messstelle in einem Kreisbuffer mit 1.000 m Radius die Ausprägungen der Prädiktoren aus den in Kap. 3.2.2 aufgeführten Karten ermittelt. Eine detaillierte Listung der verwendeten Merkmale ist Tabelle 12 (Anhang) zu entnehmen. Für die fünf Landnutzungsklassen Ackerland, Grünland, Sonderkulturen (Weinbau, Obstbau), Siedlung und Wald wurde deren prozentualer Flächenanteil im Buffer berechnet. Die Landnutzung stellt somit eine numerische Variable dar. Für die Merkmale hydrogeologischer Einheiten wurde der Wert des dominierenden Flächenanteils übernommen und geht als kategoriale Variable ein. Für die Variablen Grundwasserneubildung, Feldkapazität, Humusgehalt und Stickstoff-Überschuss wurden die Werte flächengewichtet gemittelt innerhalb der Buffer.

Für die Anwendung der RF-Klassifikation zur flächendeckenden Ermittlung (1 km x 1 km Raster) der Nitratkonzentration im Grundwasser in Deutschland wurden weiterhin die Werte der Prädiktoren (analog wie für die Kreisbuffer) für jede 1 km x 1 km-Rasterzelle ermittelt. Als

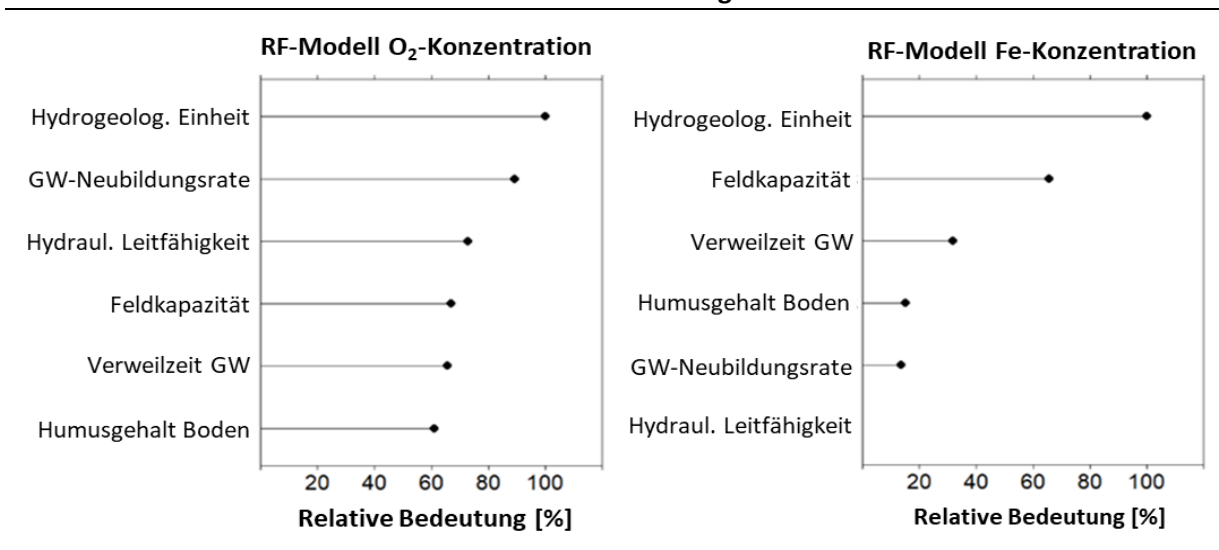
Maske für die Auswertung der digitalen Flächendaten und die Darstellung der Ergebnisse zur NO_3 -Konzentration dient die Karte „GeoGitter Deutschland 1 km ETRS89-UTM32“ (BKG 2018).

3.2.4 Charakterisierung der Redox-Verhältnisse im Grundwasserleiter

Die ersten Anwendungen des RF-Verfahren für das Bundesgebiet haben gezeigt, dass die Redox-Verhältnisse im Grundwasserkörper den mit Abstand wichtigsten Prädiktor der Nitratkonzentration darstellen. Diese Feststellung deckt sich mit zahlreichen Veröffentlichungen (bspw. Korum 1992, Rivett et al. 2008, Ransom et al. 2017). Die Denitrifikation erfolgt unter anaeroben Bedingungen, wenn denitrifizierende Bakterien und Elektronenspendler im Aquifer vorhanden sind (Rivett et al. 2008). Anaerobe Bedingungen sind durch eine Sauerstoffkonzentration von ≤ 1 bis 2 mg/l und eine Eisenkonzentration von $\geq 0,1$ bis 0,2 mg/l gekennzeichnet (Rivett et al. 2008, Kunkel et al. 2004, 2017, McMahon und Chapelle 2008). Eine Reihe von Veröffentlichungen befassen sich mit der großräumigen Abschätzung der Redox-Bedingungen im Grundwasser, wobei auch häufig Machine Learning-Verfahren eingesetzt wurden (Close et al. 2016, Tesoriero et al. 2015, 2017, Rosecrans et al. 2017, Koch et al. 2019, Friedel et al. 2020, Wilson et al. 2020).

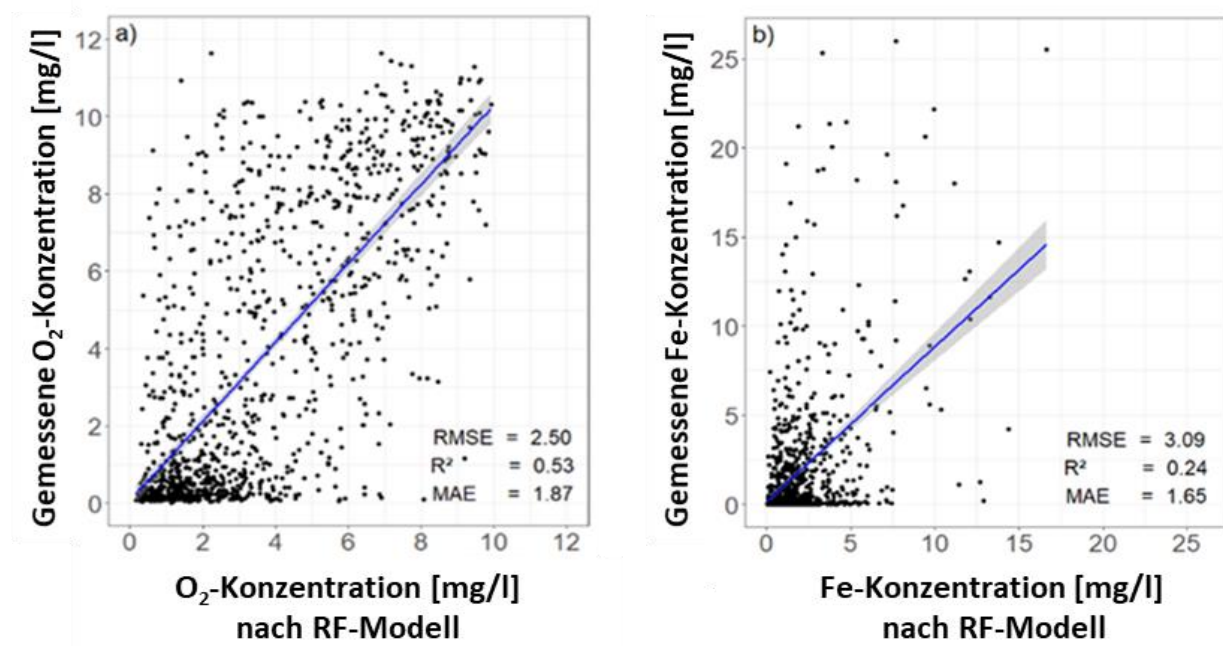
Aufgrund der prägenden Bedeutung der Redox-Verhältnisse im Grundwasserleiter wurde im Rahmen des Präprozessing eine Karte der Redox-Bedingungen im Bundesgebiet mittels Random Forest erzeugt. Dazu wurden zunächst mit den Daten zur O_2 - und zur Fe-Konzentrationen in den WRRL-Grundwassermessstellen als Zielgröße zwei RF-Klassifikation mit den in Kap. 3.2.2 aufgeführten Prädiktoren (mit Ausnahme der Landnutzung und der potenziellen Nitratkonzentration im Sickerwasser) trainiert. Abbildung 12 zeigt jeweils die relative Bedeutung der sechs wichtigsten Prädiktoren der O_2 - und der Fe-Konzentrationsverteilung. Eine Darstellung für alle Prädiktoren findet sich im Anhang (Abbildung 36a) und b), im Anhang). Mit diesen RF-Modellen wurden Karten der Sauerstoff- und der Eisen-Konzentration im Grundwasser in Deutschland erzeugt (Abbildung 37 und Abbildung 38, im Anhang). In Abbildung 13 sind die mit dem RF-Modell geschätzten den gemessenen O_2 - bzw. Fe-Konzentrationen gegenübergestellt.

Abbildung 12: Relative Einflussstärke (0 bis 100 %) der sechs wichtigsten Prädiktoren der Random Forest-Klassifikation der Sauerstoff- und der Eisenkonzentration in den rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen im Bundesgebiet



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen, nach Knoll et al. 2020a.

Abbildung 13: Gemessene und mit Random Forest (RF)-Modell geschätzte (a) Sauerstoff-Konzentrationen und (b) Eisen-Konzentrationen in den rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen im Bundesgebiet



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen, nach Knoll et al. 2020a.

Die gestufte Charakterisierung der Redox-Bedingungen wurde in Anlehnung an das Klassifikationsschema der LAWA (2018) durchgeführt und nach Knoll et al. (2020a) modifiziert. Demzufolge ist die O₂-Konzentration der prägende Parameter für das Auftreten von Denitrifikation, wobei Konzentrationen < 2 mg/l ausgeprägt anaerobe Bedingungen und intensive Denitrifikation anzeigen (Rivett et al. 2008). In diesem Fall werden einer Messstelle zwei Punkte zugeordnet. Im Übergangsbereich von 2 bis 5 mg/l O₂ tritt eine mäßige Denitrifikation auf und es wird ein Punkt zugeordnet. Bei O₂-Konzentrationen > 5 mg/l herrschen ausgeprägt aerobe Bedingungen. Die Wahrscheinlichkeit für Nitratabbau durch Denitrifikation ist gering und einer Messstelle wird kein Punkt zugeordnet. Da die Denitrifikation vorzugsweise in Gegenwart von Fe-Konzentrationen ≥ 0,2 mg/l auftritt (Kunkel et al. 2004, 2017), wurde in der vorliegenden Untersuchung für diese Situation ein zusätzlicher Punkt vergeben. Daraus ergeben sich vier Redox-Klassen:

- ▶ [3] stark anaerob
- ▶ [2] anaerob
- ▶ [1] intermediär
- ▶ [0] aerob.

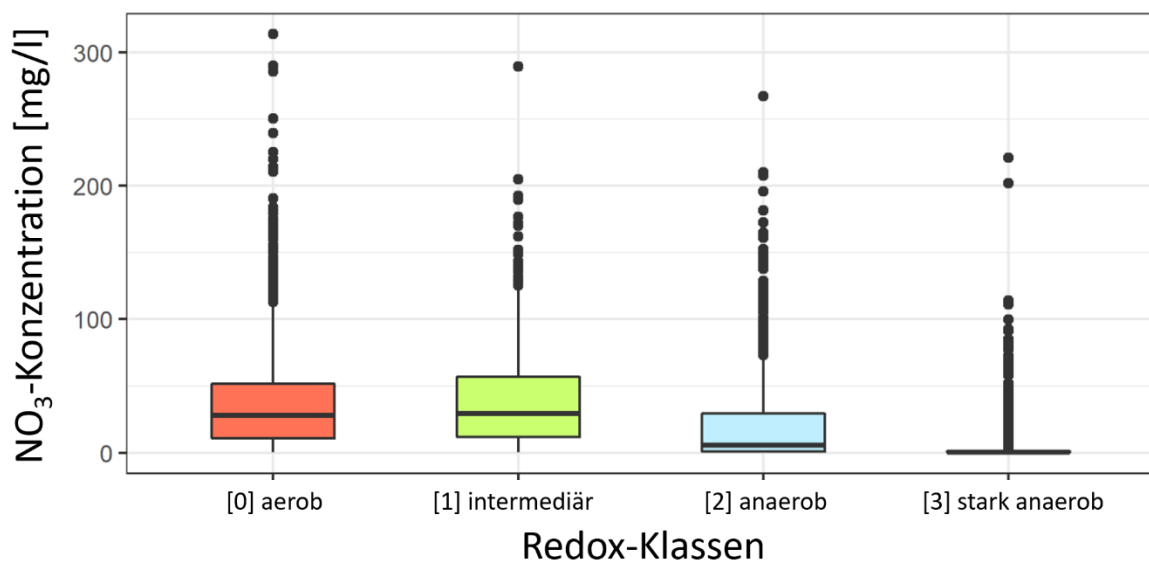
Tabelle 4 zeigt das Klassifizierungsschema.

Tabelle 4: Vierstufiges Klassifikationsschema zur Charakterisierung der Redox-Verhältnisse im Grundwasser (nach LAWA 2018, verändert)

Eisen (Fe)-Konzentration	Sauerstoff (O ₂)-Konzentration		
	< 2 mg/l [2 Punkte]	2 - 5 mg/l [1 Punkt]	> 5 mg/l [0 Punkte]
≥ 0,2 mg/l [1 Punkt]	stark anaerob [3]	anaerob [2]	intermediär [1]
< 0,2 mg/l [0 Punkte]	anaerob [2]	intermediär [1]	aerob [0]

Die Redox-Verhältnisse in den WRRL-Grundwassermessstellen wurden gemäß Tabelle 4 in eine der vier Klassen eingeteilt. In Abbildung 14 ist die Häufigkeitsverteilung der Nitrat-Konzentrationen der WRRL-Grundwassermessstellen in den vier Redox-Klassen dargestellt. In den Klassen [2] „anaerob“ und [3] „stark anaerob“ sind die Nitratkonzentrationen offensichtlich sehr deutlich durch ein denitrifizierendes Grundwassermilieu geprägt.

Abbildung 14: Verteilung der Nitratkonzentration in den rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen gestuft nach vier Klassen der Redox-Verhältnisse (gemäß Tabelle 4)

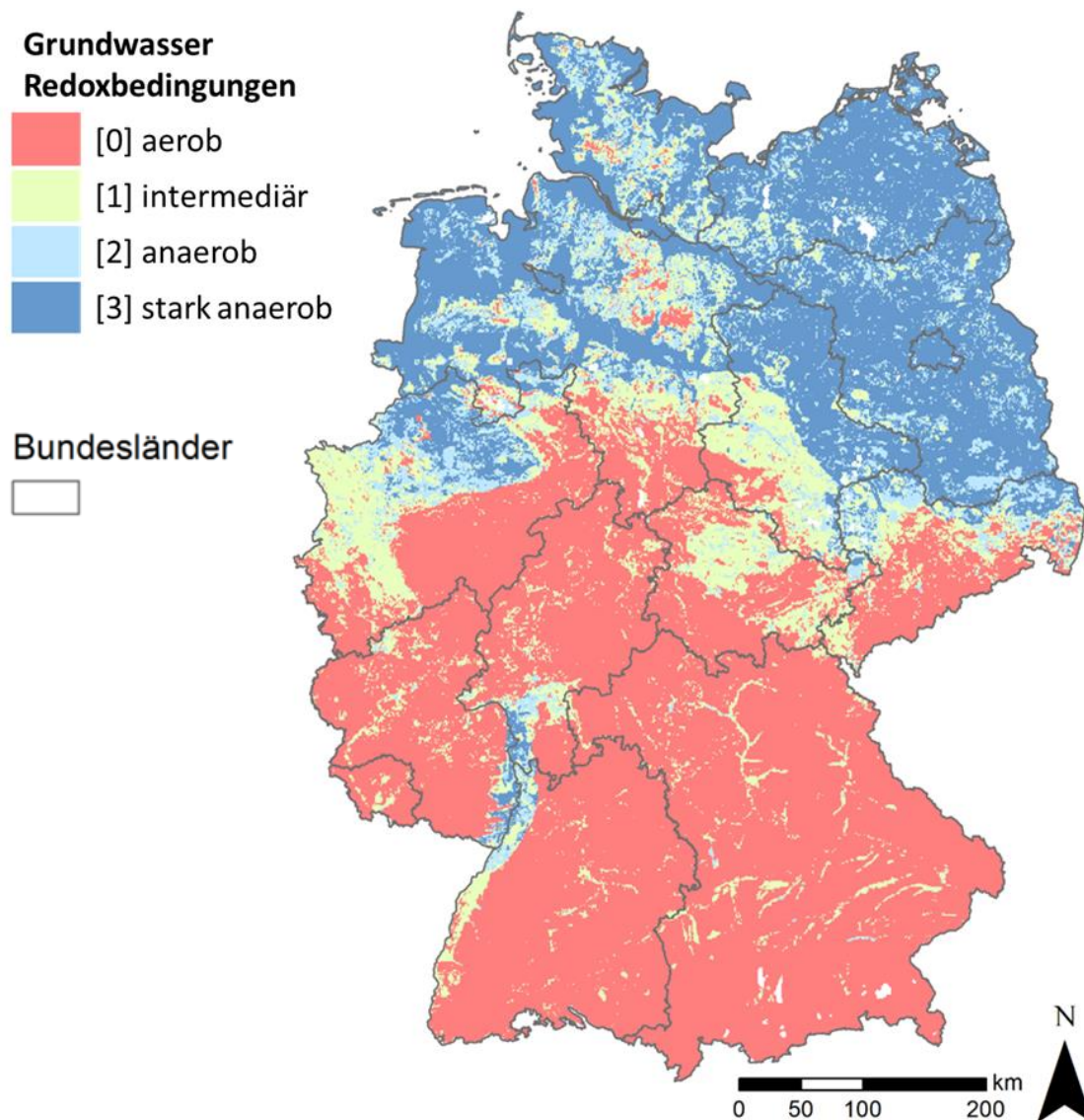


Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen, nach Knoll et al. 2020a.

Mittels Überlagerung der O₂- und der Fe-Konzentration und Auswertung der Redox-Verhältnisse für jedes Raster (1 km x 1 km) gemäß Tabelle 4 wurden schließlich die vierstufige Klassifizierung der Redox-Verhältnisse auf Deutschland angewendet (Abbildung 15).

Die Redox-Bedingungen in Deutschland können vereinfacht in zwei große Bereiche unterteilt werden. In der Norddeutschen Tiefebene und auch in einigen Niederungen, wie z.B. dem Oberrhein, treten überwiegend anaerobe bis stark anaerobe Bedingungen auf, während in den süd- und mitteldeutschen Mittelgebirgsregionen aerobe Redox-Verhältnisse dominieren.

Abbildung 15: Verteilung der Redox-Verhältnisse (klassiert) im Grundwasser im Bundesgebiet nach Random Forest-Klassifikation



Quelle: eigene Darstellung, Univ. Gießen nach Knoll et al. 2020a; Kartengrundlage: © Geo-BasisDE / BKG 2018.

3.2.5 Entwicklung des RF-Klassifikationsalgorithmus

Für die Vorhersage-Modellierung wurde das R-Paket 'caret' v. 6.0-82 (Kuhn 2018) verwendet, in dem die R-Pakete:

- ▶ 'randomForest' (Liaw und Wiener 2002) (method = 'rf')
- ▶ 'quantregForest' (Meinshausen 2017) (method = 'qrf')

implementiert sind. In 'caret' wurde sowohl die Anzahl der Bäume (ntree = 1.000) sowie die dreimal wiederholte 10-fache Kreuzvalidierung (method = 'repeatedcv', number = 10, repeats = 3) als Resampling-Methode in der Modelltrainingsfunktion des RF-Verfahrens festgelegt.

Für die Entwicklung und Überprüfung des RF-Klassifikationsalgorithmus wurden die rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen in einen Trainings- (80 % der Daten) und einen Testdatensatz (20 %) aufgeteilt. Um eine annähernd gleiche Verteilung der Variablen auf beide Datensätzen zu

gewährleisten, wurde dafür eine geschichtete Zufallsstichprobe verwendet (Kuhn und Johnson 2013). Die Bewertung der Modellgüte erfolgt anhand von drei Gütemaßen:

- ▶ Mittlerer quadratischer Fehler (RMSE)
- ▶ Bestimmtheitsmaß (R^2)
- ▶ Mittlerer absoluter Fehler (MAE).

RMSE und MAE beschreiben den mittleren Modellvorhersagefehler in der Einheit der Modellzielgröße (hier: mg NO_3/l), während R^2 ein gebräuchliches Maß für die Varianz der Vorhersage darstellt. Zur Bestimmung der Modellgüte wurde das RF-Modell mit dem Trainingsdatensatz entwickelt und dann mit dem unabhängigen Testdatensatz validiert.

In Abbildung 16a) sind zunächst die sechs wichtigsten Prädiktoren aufgeführt. Der Prädiktor „Redox-Bedingungen (Klasse)“ hat die mit Abstand stärkste relative Bedeutung für die Klassifikation. Die übrigen fünf aufgeführten Prädiktoren:

- ▶ hydrogeologische Einheit
- ▶ Anteil Ackerland
- ▶ potentielle Nitratkonzentration im Sickerwasser
- ▶ Stickstoff-Überschuss auf der Landwirtschaftsfläche
- ▶ Anteil Waldfläche.

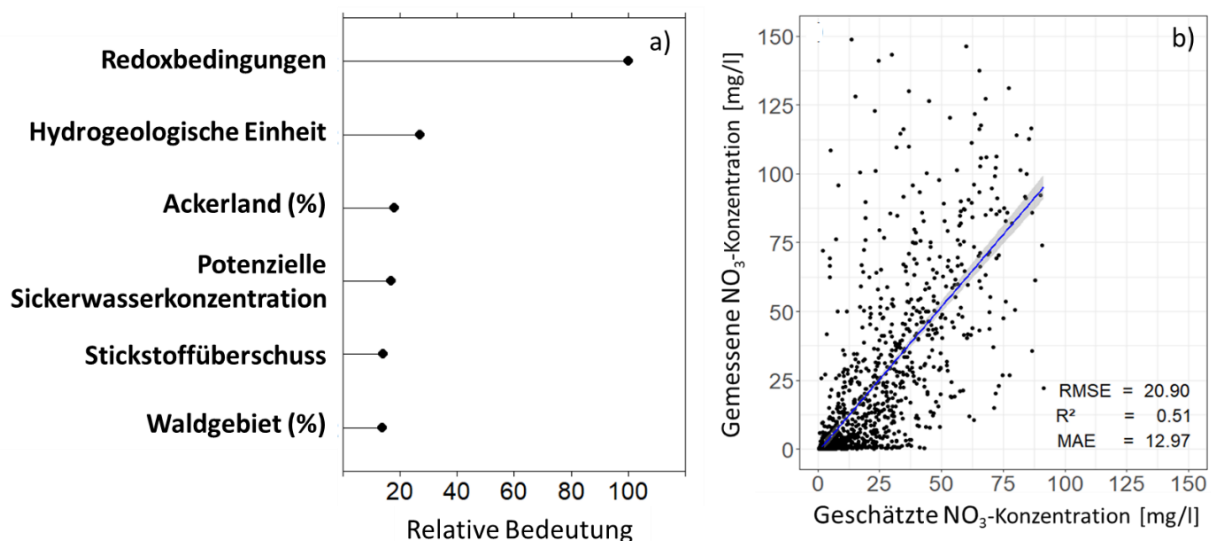
treten demgegenüber deutlich zurück. Unter den Prädiktoren ist der „Stickstoff-Überschuss“ die einzige Größe, die durch Managementmaßnahmen der Landwirtschaft beeinflusst werden kann, die Umwandlung von Ackerland in eine andere Nutzungsform außen vorgelassen. Dies unterstreicht die Problematik, dass die Nitratkonzentration im Grundwasser in großem Umfang von natürlichen Einflussfaktoren geprägt wird und, zumindest auf kürzere Sicht, auf Änderungen in der Stickstoff-Düngung und Bewirtschaftung nur vergleichsweise schwach reagiert.

Nach Anwendung des trainierten RF-Modells auf den unabhängigen Testdatensatz resultierte mit einem RMSE von 20,90 mg/l, einem R^2 von 0,51 und einem MAE von 12,97 mg NO_3/l eine gute Vorhersageleistung. Bei der Anwendung des Modells auf den Trainingsdatensatz werden üblicherweise sehr hohe Vorhersageleistungen ermittelt (RMSE = 8,66 mg/l, R^2 = 0,93, MAE = 5,39 mg/l), die die eigentliche Prognosefähigkeit des Modells überschätzen („Overfitting“ bzw. Überanpassung), was allerdings im Grundprinzip des RF-Algorithmus so gewollt ist.

Eine Möglichkeit eine plausible Vorhersageleistung des Modells zu ermitteln und dabei eine Überanpassung des Modells zu vermeiden, stellt die Methode der Kreuzvalidierung dar. Bei der 3-fach wiederholten 10-fachen Kreuzvalidierung wird der Gesamtdatensatz in 10 Teilmengen partitioniert, die nacheinander jeweils als Testdatensatz fungieren anhand dessen die Vorhersagegüte ermittelt wird. Dieser Vorgang wird dreimal wiederholt und das mittlere Gütemaß ermittelt, woraus eine robuste Beurteilung der Vorhersageleistung resultiert. Das letztlich verwendete RF-Prognosemodell zur Abschätzung der Nitratkonzentrationen wurde mit den gesamten rund 5.400 Messstellen des WRRL-Datensatzes trainiert und die Vorhersageleistung mittels Kreuzvalidierung beurteilt. Mit einem RMSE von 20,12 mg/l, einem R^2 von 0,52 und einem MA von 12,71 mg NO_3/l zeigt sich nahezu eine identische Vorhersageleistung wie die anhand des unabhängigen Testdatensatz ermittelte.

Abbildung 16b) zeigt die Güte der Modellanpassung für den Testdatensatz. Offensichtlich unterschätzt das RF-Modell tendenziell sehr hohe NO_3 -Konzentrationen (ca. $>100 \text{ mg/l}$) und der Prognosebereich ist auf Werte bis ca. 100 mg/l begrenzt. Im Hinblick auf den im hier vorgestellten Projekt angestrebten Maßstab der Aussagen sowie in Anbetracht der relativ geringen Dichte des Messnetzes ($1 \text{ Messstelle pro } 66 \text{ km}^2$), das für die Modellbildung (Training der RF-Klassifikation) herangezogen wurde, wird die Leistung des Modells von den Autorinnen und Autoren als gut angesehen. Andere Studien zur großräumigen Vorhersage der Nitratkonzentrationen im Grundwasser führten zu vergleichbaren Modelleleistungen (Knoll et al. 2019, Nolan et al. 2015, Ransom et al. 2017, Wheeler et al. 2015). Die begrenzte Prognosegüte muss bei der Interpretation der Ergebnisse (Kap. 3.3) allerdings stets mitberücksichtigt werden.

Abbildung 16: a) Relative Einflussstärke (0 bis 100 %) der sechs wichtigsten Prädiktoren für das finale RF-Modell und b) gemessene und mit Random Forest-Modell geschätzte Nitratkonzentrationen in den rund 5.400 WRRL-Grundwassermessstellen im Bundesgebiet



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen, nach Knoll et al. 2020a.

3.3 Ergebnisse

3.3.1 Verteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser im Bundesgebiet

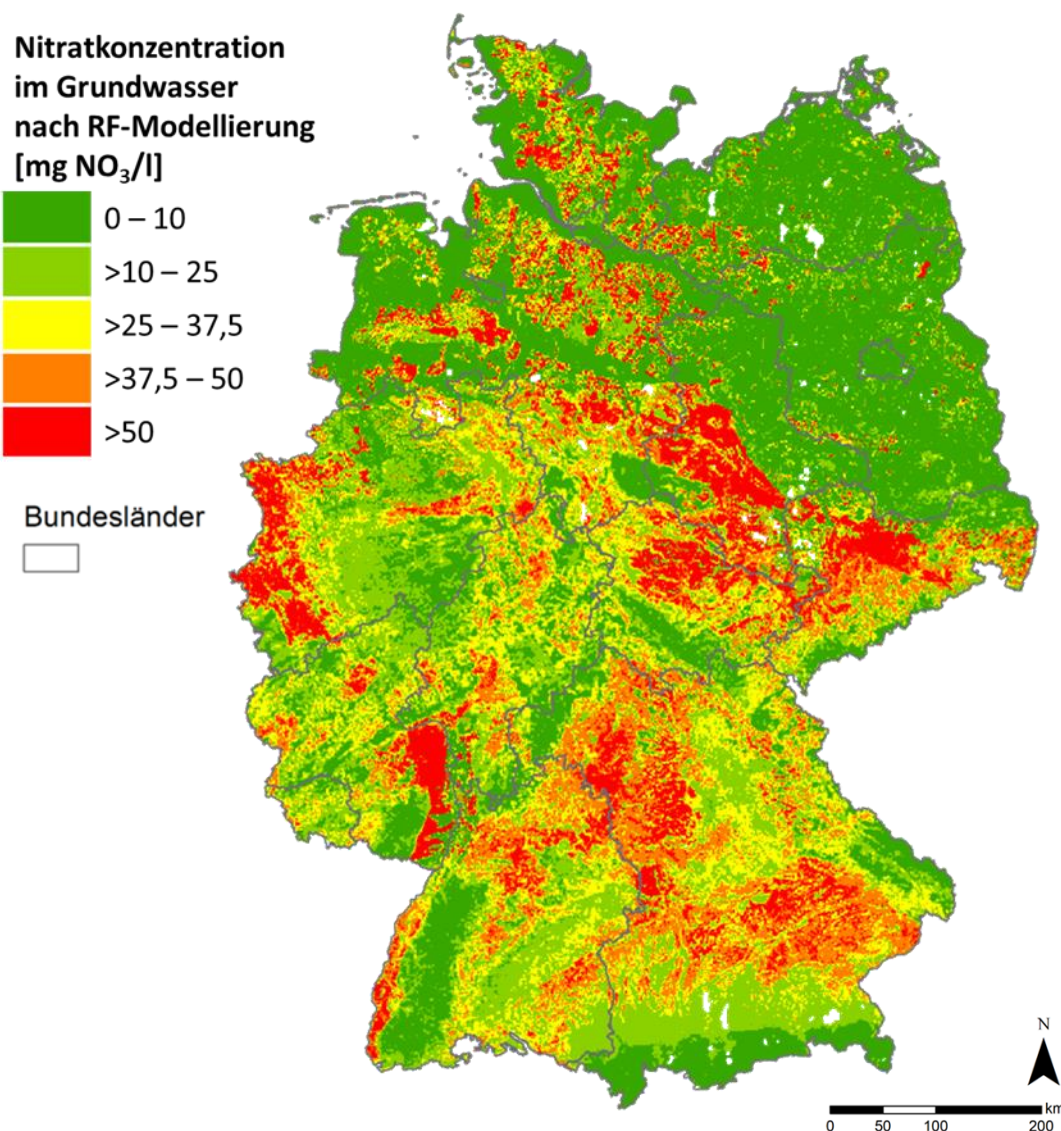
Mit dem RF-Modell (Kap. 3.2.5) und den Rasterkarten ($1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$) der Prädiktoren (Kap. 3.2.2) wurde schließlich die Verteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser im Bundesgebiet ($1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$) geschätzt, Abbildung 17 zeigt das Ergebnis.

Nitrat-Konzentrationen über 50 mg/l werden vor allem für die intensiv landwirtschaftlich genutzten Bördegebiete, die Regionen mit hohem Viehbesatz (insbesondere in Nordwestdeutschland) sowie für Gebiete mit hohem Anteil an Sonderkulturen (wie bspw. Rheinhessen, Oberrheinebene) ausgewiesen. Für die Mittelgebirge bzw. die Regionen mit vorherrschender Grünlandnutzung werden überwiegend niedrige Konzentrationen geschätzt. In Tabelle 5 ist die Häufigkeitsverteilung der mittels RF-Modell geschätzten Nitratkonzentrationen aufgeführt (s. a. Abbildung 39c), im Anhang).

Tabelle 5: Häufigkeitsverteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser im Bundesgebiet nach Random Forest-Modellierung

Nitratkonzentration (mg NO ₃ /l)	Flächenanteil (%)
bis 10	36
> 10 bis 25	24
> 25 bis 37,5	17
> 37,5 bis 50	13
> 50	10

Abbildung 17: Verteilung der mittleren Nitratkonzentration im Grundwasser im Zeitraum 2009 bis 2018 im Bundesgebiet nach Random Forest-Modellierung



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen, nach Knoll et al. 2020a; Kartengrundlage: © Geo-BasisDE / BKG 2018.
Hinweis: Die Karte gibt eine großräumige Übersicht und ist für kleinräumige Aussagen nicht geeignet.

Die glazial geformten jungpleistozänen Einheiten im nordöstlichen Teil Deutschlands weisen überwiegend niedrige Nitratkonzentrationen auf. Die Grundwasserleiter in dieser Region sind durch geringe Fließgeschwindigkeiten, lange Grundwasserverweilzeiten und stark anaerobe Verhältnisse gekennzeichnet (Merz et al. 2009, Wendland et al. 2008). Merz et al. (2009) beschreiben allerdings auch Gebiete mit hohen NO_3 -Konzentrationen in Brandenburg (östlich und nordöstlich von Berlin), die im RF-Modell nicht auftreten. Im Nordwesten Deutschlands treten hohe NO_3 -Konzentrationen in den Geest-Regionen des Mittelpleistozäns in Erscheinung, während im Tiefland das Grundwasser nahezu nitratfrei ist, was im Einklang mit den Aussagen von Wriedt et al. (2019) steht. Die Redox-Bedingungen sind in der Geest tendenziell weniger anaerob bis intermediär, im Gegensatz zum Tiefland, wo stark anaerobe Bedingungen vorherrschen (vgl. Eschenbach et al. 2018).

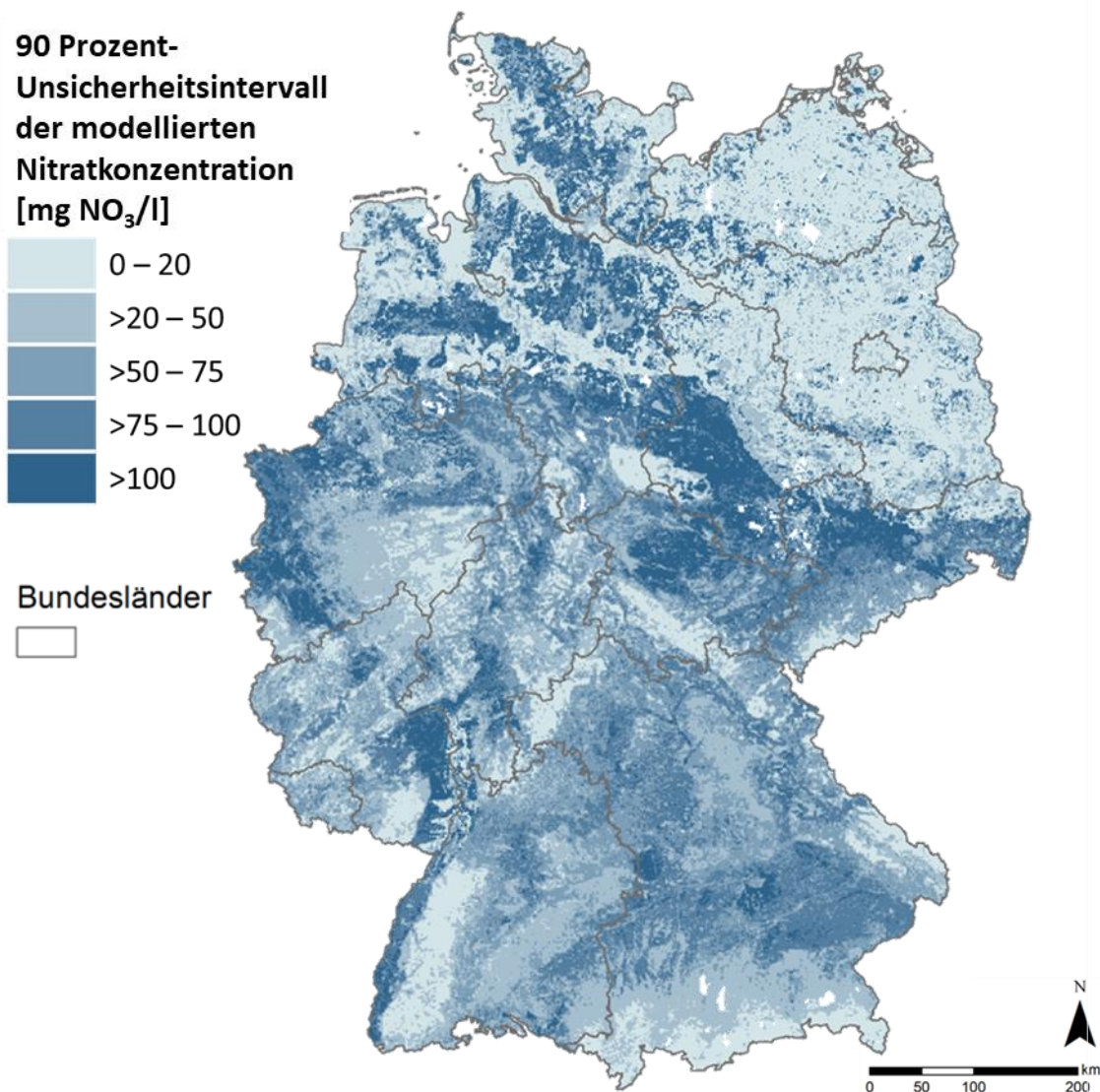
Die Niederungen mit Sand- und Kiesablagerungen im mittleren und südlichen Teil Deutschlands, wie u.a. die Niederrheinische Bucht und das Oberrheintal, weisen aufgrund fehlender Deckschicht, bei nur schwach anaeroben bis intermediären Redox-Bedingungen und intensiver landwirtschaftlicher Nutzung häufig nitratbelastetes Grundwasser auf (Grimm-Strele et al. 2008, Knoll et al. 2019, Kuhr et al. 2013, Wendland et al. 2008). Für die Porengrundwasserleiter des nördlichen Alpenvorlandes prognostiziert das RF-Modell großflächig hohe Nitratkonzentrationen, was im Widerspruch zu den im Allgemeinen gut entwickelten Deckschichten und der damit verbundenen hohen Schutzfunktion der Grundwasserleiter in dieser Region steht. Die tendenzielle Überschätzung der Nitratkonzentration in diesen Gebieten kann möglicherweise auf die geringe Dichte des Messnetzes zurückgeführt werden, auch ist die Schätzunsicherheit in diesem Bereich hoch.

In den Festgesteinsgebieten in Mittel- und Süddeutschland sind Kluft- und Karstgrundwasserleiter im Allgemeinen anfälliger für Verunreinigungen und weisen überwiegend höhere Nitratkonzentrationen im Grundwasser auf, was auch mit einem geringeren Denitrifikationspotenzial aufgrund aerober bis intermediärer Redox-Bedingungen einhergeht (Hannappel et al. 2018). In diesen Arealen entsprechen die hohen Nitratkonzentrationen im Grundwasser den Gebieten mit hohen Stickstoff-Überschüssen, wie z.B. in nördlichen Teilen Bayerns und Sachsens sowie im Thüringer Becken.

3.3.2 Unsicherheitsanalyse der geschätzten Nitratkonzentrationen

Für die Bewertung und Interpretation von modellierten (prognostizierten) Werten sollte es gute fachliche Praxis sein, neben der modellierten Zielgröße stets auch ein Maß für die Abschätzung der Unsicherheit dieses Wertes zu berechnen. Das Quantile Random Forest (QRF)-Verfahren ermöglicht es, das Unsicherheitsintervall einer Zielgröße zu berechnen, die mittels Random Forest geschätzt wird (Meinshausen 2006). Während RF nur den Mittelwert aller Werte betrachtet, die einem terminalen Knoten (Blatt) eines RF-Baumes zugeordnet werden, wertet QRF auch die Verteilung dieser Werte aus. Das Unsicherheitsintervall (Prediction Interval) wird dabei definiert als die Spannbreite zwischen der unteren und der oberen Grenze der Modellschätzungen bzw. der Werte, die den terminalen Knoten zugehören. Ein 90 %-Unsicherheitsintervall entspricht dem Bereich vom 5-Perzentil bis zum 95-Perzentil der Werteverteilung, innerhalb derer der wahre Wert der Schätzgröße zu erwarten ist. Abbildung 18 zeigt die Verteilung der Unsicherheitsintervalle der RF-Schätzung in Deutschland. Das mittlere Unsicherheitsintervall (mean prediction interval, gemittelt über alle Rasterzellen) liegt bei 53,0 mg NO_3 /l. Große Unsicherheitsintervalle sind überwiegend in den Bereichen festzustellen, in denen auch hohe Nitratkonzentrationen geschätzt werden. Offensichtlich ist gerade in nitratbelasteten Regionen die Variabilität der NO_3 -Konzentration im Grundwasser vergleichsweise hoch.

Abbildung 18: 90 Prozent-Unsicherheitsintervall^a der mit Random Forest (RF) modellierten mittleren Nitratkonzentration im Grundwasser im Zeitraum 2009 bis 2018 im Bundesgebiet nach Qantile Random Forest (QRF)-Modellierung.



Quelle: eigene Darstellung, JLU nach Knoll et al. 2020a, Kartengrundlage: © Geo-BasisDE / BKG 2018.

^a Lesehinweis: Wenn beispielsweise die RF-Schätzung als Erwartungswert der Nitratkonzentration im Grundwasser 40 mg NO₃/l für eine Rasterzelle und QRF für diese Zelle ein 90 Prozent-Unsicherheitsintervall von 50 mg NO₃/l ausweist, dann liegt der wahre Wert der Nitratkonzentration mit 90 %-iger Wahrscheinlichkeit zwischen 40 ± 25 mg NO₃/l, das heißt zwischen 15 und 65 mg NO₃/l.

3.3.3 Schlussfolgerungen und Ausblick

Die hier vorliegenden Ergebnisse gehen auf den Datensatz der rund 5.400 WRRL-Messstellen zurück. Mit dieser Auswahl wurde eine RF-Modellierung auf Basis einer annähernd gleichmäßigen Messstellendichte in allen Bundesländern durchgeführt. Ein Vergleich mit einer RF-Modellierung basierend auf einem umfangreicheren Datensatz (mit rd. 13.000 GW-Messstellen, hier nicht näher vorgestellt) hat gezeigt, dass bei Verwendung eines größeren Trainingsdatensatzes (was einer höheren Messstellendichte entspricht) die Unsicherheit des RF-Modells verringert wird. Für eine RF-Modellierung ist es daher grundsätzlich anzustreben, einen möglichst umfang-

reichen Datensatz für das Training der RF-Klassifikation auszuwerten, vorausgesetzt dieser Datensatz erfüllt die Kriterien einer repräsentativen räumlichen Abdeckung der verschiedenen landschaftlichen Charakteristika.

Die Autorinnen und Autoren gehen davon aus, dass die derzeit auftretenden Schätzfehler und Unsicherheiten des RF-Verfahrens durch verbesserte Ermittlungen einzelner Prädiktoren reduziert werden können. Die hohe Relevanz der Redox-Bedingungen für die Abschätzung von Nitratkonzentrationen unterstreicht insbesondere die Bedeutung einer genauen Beschreibung der hydrogeochemischen Bedingungen der Aquifere. Weiterhin könnte eine genauere Abgrenzung der Einzugsbereiche der Messstellen in Verbindung mit einer Abschätzung der mittleren Verweilzeiten des Sicker- und Grundwassers (von der Bodenoberfläche bis zur Erfassung in einer Messstelle) möglicherweise zu besseren Ergebnissen und geringerer Unsicherheit führen. Bis dato ist jedoch keine bundesweite, detaillierte Datenbasis über die Grundwasserflurabstände, die Mächtigkeit der Deckschichten und die Strömungsverhältnisse in den Aquiferen verfügbar. Grundsätzlich kann das RF-Verfahren ohne größeren Aufwand um weitere Prädiktoren erweitert werden bzw. die aktuell verwendeten können modifiziert werden.

Modellfehler können auch aus Unsicherheiten in der Bestimmung der Zielgröße entstehen. Die vertikale Verteilung der Redox-Verhältnisse in Aquiferen zeigt häufig eine Abnahme der aeroben Bedingungen mit der Tiefe (Close et al. 2016, Rosecrans et al. 2017). Aufgrund dieser hydrogeochemischen Zonierung der Aquifere hängt die NO_3 -Konzentration einer Grundwasserprobe stark von dem Horizont ab, in dem die Probe entnommen wird. Im Allgemeinen nehmen die NO_3 -Konzentrationen mit zunehmender Brunnentiefe ab (Ransom et al. 2017, Wheeler et al. 2015, Tesoriero et al. 2017).

Wriedt et al. (2019) zeigten ebenfalls eine Abnahme der Nitratkonzentrationen mit der Tiefe, kamen jedoch zu dem Schluss, dass eine vertikale Abstufung der Tiefenhorizonte die hydrogeochemische Zonierung der Grundwasserleiter nicht adäquat beschreibt. Lange Filterstrecken können auch zu einer Vermischung des Grundwassers aus einer aeroben und einer anaeroben Zone bei der Probenahme führen. Eng benachbarte Messstellen, die Proben aus verschiedenen Horizonten liefern, führen zudem zu einer hohen räumlichen Variabilität im Datensatz.

Die genannten Aspekte verdeutlichen die Einschränkungen eines großskaligen Modellierungsansatzes. Die RF-Modellierung bietet eine Reihe von Ansätzen für weitere Verbesserungen und Vertiefungen. Die Autorinnen und Autoren sind allerdings der Überzeugung, dass das RF-Verfahren tragfähige Ergebnisse liefert, um die räumliche Verteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser mit einem einheitlichen Ansatz für das Bundesgebiet darzustellen. Die Ergebnisse können unter anderem zur Identifizierung von Nitrat-sensiblen Gebieten oder zur Quantifizierung der Stickstoffeinträge in Oberflächengewässer über den Grundwasserpfad herangezogen werden.

4 Ermittlung der Stickstoff-Reduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser

Der Nitrateintrag in Oberflächengewässer über den Grundwasserpfad hängt im Wesentlichen von zwei zentralen Prozessen ab:

- ▶ der Nitratfracht mit dem Sickerwasser aus dem durchwurzelten Bodenbereich und
- ▶ der Verminderung dieser Fracht im Verlauf der Passage des Sickerwassers durch die ungesättigte Zone und anschließend den Grundwasserkörper.

Bereits die Gegenüberstellung der Größenordnung der potenziellen Nitratkonzentrationen im Sickerwasser in Deutschland (Abbildung 6 in Bach et al. 2016) und der Nitratkonzentrationen im Grundwasser nach RF-Modellierung (Abbildung 17) verdeutlicht, dass offensichtlich ein beträchtlicher Teil der Nitratfracht im Untergrund abgebaut wird.

Die Nitrat-Reduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser ist in erster Linie auf die Denitrifikation zurückzuführen, das heißt die mikrobielle Reduktion von oxidiertem Stickstoff zu molekularem Stickstoff als Endprodukt ($\text{NO}_3 \rightarrow \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO} \rightarrow \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2$). Denitrifikation findet nur unter anaeroben Bedingungen statt, wenn Elektronenspender zur Verfügung stehen (Knowles 1982, Seitzinger et al. 2006, Rivett et al. 2008). Je nach Art der denitrifizierenden Bakterien wird zwischen heterotropher und autotropher Denitrifikation unterschieden (Durand et al. 2011). Bei der heterotrophen Denitrifikation verwenden die Bakterien organischen Kohlenstoff als Elektronendonator, während bei der autotrophen Denitrifikation die Elektronen aus der Oxidation anorganischer Verbindungen wie bspw. Eisensulfid (Pyrit, FeS_2) gewonnen werden (Korom 1992). Die Intensität (Rate) der Denitrifikation hängt vor allem von den vorherrschenden Redox-Bedingungen, von der Verfügbarkeit von organischem Kohlenstoff im Sickerwasser und Grundwasser bzw. von Eisensulfid im Untergrund sowie von der Verweilzeit des Sicker- und Grundwassers ab (Ranson et al. 2017, Knoll et al. 2020a, 2020b).

Im globalen Maßstab stellt die Denitrifikation den maßgeblichen Prozess zur Entfernung von reaktivem Stickstoff aus dem biogeochemischen N-Kreislauf dar. Nach Seitzinger et al. (2006) werden weltweit etwa 46 % der Menge an reaktivem Stickstoff, die durch die technische Ammoniak-synthese (Haber-Bosch-Verfahren) jährlich neu in den N-Kreislauf eingebracht werden, durch die Denitrifikation in Böden wieder entfernt. Für Europa schätzten Van Egmond et al. (2002) diesen Anteil auf 40 %. Die Stärke der Nitratreduktion kann räumlich sehr stark variieren und zwischen 0 % und 100 % der N-Frachten im Grundwasserleiter erreichen (McAleer et al. 2017). Für Dänemark wurde von Højberg et al. (2017) eine mittlere NO_3 -Reduktion im Grundwasser von 63 % angegeben.

Die Prozesse und Einflussfaktoren der Denitrifikation im Sickerwasser und Grundwasser wurden in Deutschland in regionalen Studien unter anderem für das Hessische Ried (Kludt et al. 2016), im Testfeld Scheyern (Schwientek et al. 2016) und die Wassergewinnung Rheda-Wiedenbrück (Wisotzky et al. 2018) untersucht. Von Bergmann et al. (2013) wurden für 21 Untersuchungsgebiete in Deutschland das regionale Ausmaß und die Zeiträume analysiert, in denen ein Nachlassen des Nitratbaus zu relevanten Auswirkungen auf die Rohwasserqualität führen kann.

Mit der Modellkette RAUMIS-GROWA-DENUZ-WEKU wird von Wendland et al. (2020) eine mittlere Denitrifikationsrate von rund 45 % des N-Überschuss in Böden für Nordrhein-Westfalen abgeleitet. Für das Bundesland Mecklenburg-Vorpommern (Kunkel et al. 2017) und für ein Einzugsgebiet in Sachsen-Anhalt (Wriedt et al. 2006) wird jeweils eine Verminderung von 80 % der N-Eintragsfracht in den Aquiferen berechnet. Für das Einzugsgebiet der Weser wurde mit dem

Modell MONERIS eine mittlere Reduktion der N-Fracht von 46 % und für einzelne Marsch-Gebiete Werte bis über 80 % modelliert (Hirt et al. 2012). In den genannten Untersuchungen wurde jeweils ein vergleichsweise umfangreicher Variablensatz zur Modellierung des Denitrifikationsprozesses verwendet. Informationen über die heterogene Verteilung der Nitratreduktion in Böden und Grundwasserleitern auf der Grundlage harmonisierter Ansätze mit hoher räumlicher Auflösung stehen jedoch flächendeckend für das Bundesgebiet nicht zur Verfügung.

4.1 Methodischer Ansatz zur Abschätzung der Nitrat-Reduktion

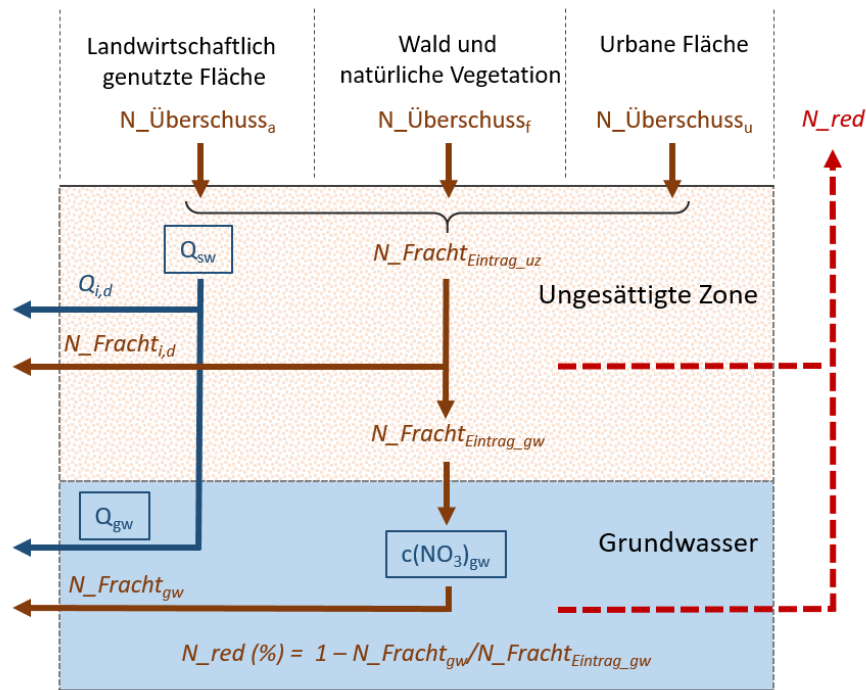
Für die Abschätzung der Nitratreduktion auf einer größeren Skala wie bspw. auf Bundesebene ist aufgrund der begrenzten Datenverfügbarkeit und der begrenzten räumlichen Auflösung daher eine vereinfachte Methodik erforderlich. Im Rahmen dieses Vorhabens wurde ein neuer Ansatz entwickelt, um die Größenordnung der Verminderung der N-Fracht in der ungesättigten Zone und im Grundwasser flächendeckend für das Bundesgebiet auf Basis der verfügbaren Daten zu nutzungsspezifischem N-Überschuss, Sickerwasserrate, Grundwasserneubildung und Nitratkonzentration im Grundwasser abzuschätzen. Die Methodik stellt einen vereinfachten konzeptionellen Ansatz dar, der darauf verzichtet, die komplexen biogeochemischen Nitratabbauprozesse in der ungesättigten Zone (einschließlich dem durchwurzelten Bodenbereich) und im Aquifer abzubilden. Die Nitratreduktion wird ausgedrückt als das Verhältnis der N-Fracht im Grundwasser zum N-Eintrag in die ungesättigte Zone wiedergegeben. Die Verminderung der Nitratfracht wird dabei als das integrierte Ergebnis der verschiedenen Abbauprozesse im Verlauf des Transports in der ungesättigten Zone und im Grundwasserkörper betrachtet. Abbildung 19 zeigt das zugrundeliegende Schema der Wasserflüsse und der N-Frachten unterhalb der Bodenoberfläche.

Die Berechnung der N-Reduktion baut auf den Datengrundlagen und Ergebnissen der Modellierung der Nitratkonzentration im Grundwasser in Deutschland im 1 km x 1 km Raster auf (Kap. 3). Ausgangsgröße ist der hydrosphärische N-Überschuss im Boden, der definiert ist als der Überschuss der N-Flächenbilanz vermindert um die gasförmigen NH_3 -Verluste während und nach der Ausbringung von mineralischen und organischen N-Düngern auf Landwirtschaftsflächen. Das heißt, der hydrosphärische N-Überschuss beschreibt die Menge an Stickstoff, die tatsächlich in den Boden gelangt und damit potenziell in die Hydrosphäre verlagert werden kann.

In Deutschland betrug der hydrosphärische N-Überschuss im Zeitraum 2007 bis 2016 im Mittel $56 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$, die Spannweite in den Kreisen reichte von 13 bis $146 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$. Für die Flächen der Sonderkulturen (Wein, Obst, Hopfen) wurde der hydrosphärische N-Überschuss mit dem Faktor 1,5 multipliziert. Für den N-Eintrag (N-Überschuss) auf städtische Flächen wird ein konstanter Wert von $18 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ angesetzt, was (angenähert) der atmosphärischen N-Deposition entspricht. In Anbetracht der geringen Ammoniakgehalte in der N-Zufuhr auf diesen Flächen wird kein Abzug für gasförmige NH_3 -Verluste vorgenommen. Für Waldflächen und Flächen mit naturnaher Vegetation wird kein Wert für den N-Eintrag, sondern der Literatúrauswertung von Beisecker et al. (2012) folgend mit einer N-Auswaschung unterhalb der Wurzelzone von $5,5 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ gerechnet. In Bezug auf die in Abbildung 19 dargestellten Systemgrenzen stellt diese Annahme eine gewisse Inkonsistenz dar. Der hydrosphärische N-Überschuss der Landwirtschaftsflächen und der Eintrag in die städtischen Flächen beschreibt tatsächlich die N-Menge, die auf die Bodenoberfläche bzw. in den Oberboden gelangt. Die berechnete Nitratreduktion für diesen Teil der N-Fracht umfasst somit die Abbauvorgänge im durchwurzelten Bodenbereich der Acker-, Grünland- und Sonderkulturflächen, in dem sich anschließenden Bereich der ungesättigten Zone (unterhalb der Wurzelzone bis zur Grundwasseroberfläche) sowie im Aquifer selbst. Für den Bereich der Waldflächen und naturnahen Vegetation wird die Nitratreduktion

jedoch erst unterhalb der Wurzelzone in Ansatz gebracht. In Anbetracht der im Regelfall nur geringen Denitrifikation in Waldböden (Beisecker et al. 2012) hat diese Vereinfachung jedoch keinen nennenswerten Einfluss auf die Größe der Nitratreduktion insgesamt.

Abbildung 19: Schematische Darstellung der Fließwege und der Stickstoff-Frachten zur Abschätzung der Stickstoff-Reduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasserkörper



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen, nach Knoll et al. 2020a.

mit

$N_Überschuss_{a,f,u}$	hydrosphärischer N-Überschuss für verschiedene Landnutzungsarten; a = Landwirtschaft (einschließl. Ackerland, Grünland und Sonderkulturen), f = Wald, u = städtisch ($\text{kg N ha}^{-1} \text{a}^{-1}$)
Q_{sw}	Sickerwasserrate (mm a^{-1})
Q_{gw}	Grundwasserneubildung (mm a^{-1})
$Q_{i,d}$	Interflow, Drainage (mm a^{-1})
$c(\text{NO}_3)_{gw}$	NO_3 -Konzentration im Grundwasser (mg l^{-1})
$N_Fracht_{Eintrag_uz}$	N-Eintrag in die ungesättigten Zone ($\text{kg N ha}^{-1} \text{a}^{-1}$)
$N_Fracht_{i,d}$	N-Fracht im Zwischenabfluss und Drainageabfluss ($\text{kg N ha}^{-1} \text{a}^{-1}$)
$N_Fracht_{Eintrag_gw}$	N-Eintrag in das Grundwasser ($\text{kg N ha}^{-1} \text{a}^{-1}$)
N_Fracht_{gw}	N-Fracht aus dem Grundwasser in Oberflächengewässer ($\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$);
N_red	Reduktion der N-Fracht zwischen Eintrag in die ungesättigte Zone und Austrag über das Grundwasser (%).

Berechnete Werte kursiv; blaue Pfeile stehen für Wasserflüsse und braune Pfeile für die damit transportierten N-Frachten.

Unter den Boden- und Klimabedingungen in Deutschland wird Stickstoff in relevanten Mengen üblicherweise nur in Form von Nitrat mit dem Sickerwasser verlagert, die Konzentrationen von Ammonium und organischem N in der Bodenlösung sind unterhalb der Wurzelzone in der Regel sehr gering.

In jedem Rasterelement wurde aus dem LBM-DE 2015 der Anteil der vier aufgeführten Landnutzungskategorien ausgewertet und anschließend der hydrosphärische N-Überschuss als flächengewichtetes Mittel aus den nutzungsspezifischen Einträgen der vier Nutzungskategorien berechnet (Gleichung 1). Die resultierende Größe $N_Fracht_{Eintrag_uz}$ beschreibt den N-Eintrag, der aus der Wurzelzone in die ungesättigte Zone gelangt.

Gleichung 1: Stickstoffeintrag aus der Wurzelzone in die ungesättigte Zone

$$N_Fracht_{Eintrag_uz} = w_a \times N_Überschuss_a + w_s \times N_Überschuss_s + w_f \times N_Überschuss_f + w_u \times N_Überschuss_u$$

mit

$N_Fracht_{Eintrag_uz}$ N-Eintrag in die ungesättigte Zone ($\text{kg N ha}^{-1} \text{a}^{-1}$)

$N_Überschuss_a$ hydrosphärischer N-Überschuss Landwirtschaftsfläche ($\text{kg N ha}^{-1} \text{a}^{-1}$)

$N_Überschuss_s$ hydrosphärischer N-Überschuss Sonderkulturen
= $N_Überschuss_a \times 1,5$ ($\text{kg N ha}^{-1} \text{a}^{-1}$)

$N_Überschuss_f$ N-Überschuss Wald und naturnahe Vegetation ($5 \text{ kg N ha}^{-1} \text{a}^{-1}$)

$N_Überschuss_u$ N-Überschuss städtisches Land ($18 \text{ kg N ha}^{-1} \text{a}^{-1}$)

$w_{a,s,f,u}$ Gewichtungsfaktoren Flächenanteil (-), mit $\sum w_i = 1$.

Ein Teil der N-Fracht gelangt nicht bis in das Grundwasser, sondern gelangt mit dem Zwischenabfluss (Interflow) bzw. über Drainagen ($Q_{i,d}$) direkt in Oberflächengewässer ($N_Fracht_{i,d}$), der übrige Teil wird mit dem Sickerwasser in das Grundwasser verlagert ($N_Fracht_{Eintrag_gw}$) (Gleichung 2). Das Verhältnis der Grundwasserneubildung (Q_{gw}) (nach BGR 2003a) zur Sickerwasserrate (Q_{sw}) (nach BGR 2003b) wird als Proxygröße verwendet, um den Interflow-Anteil und damit den N-Eintrag über die ungesättigte Zone in das Grundwasser ($N_Fracht_{Eintrag_gw}$) näherungsweise abzuschätzen.

Gleichung 2: Stickstoff-Eintrag über die ungesättigte Zone ins Grundwasser

$$N_Fracht_{Eintrag_gw} = (Q_{gw} / Q_{sw}) \times N_Fracht_{Eintrag_uz}$$

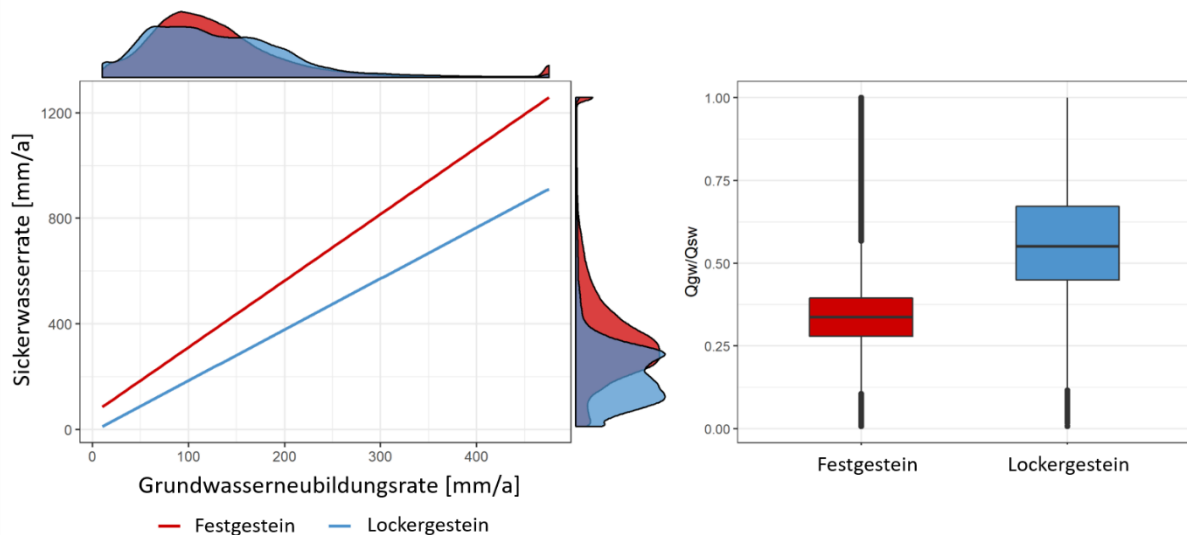
mit

Q_{gw} Mittlere Grundwasserneubildung (mm a^{-1}) (s. Kap. 3.2.2; BGR 2003a)

Q_{sw} Mittlere Sickerwasserrate (mm a^{-1}) (s. Kap. 3.2.2; BGR 2003b).

Abbildung 20a) zeigt die regionale Verteilung des N-Eintrags in das Grundwasser in Deutschland, die sich nach diesem Berechnungsansatz ergibt. Die durchschnittliche Sickerwasserrate für Deutschland liegt bei etwa 287 mm a^{-1} (BGR 2003b), die durchschnittliche Grundwasserneubildungsrate bei 125 mm a^{-1} (BGR 2003a; hydrologische Periode 1961–1990). Nach dem Ansatz der Gleichung 2 gelangt somit mehr als die Hälfte des Sickerwassers über Interflow bzw. Drainagen in die Oberflächengewässer, das heißt trägt nicht zur Grundwasserneubildung bei. Infolge von unterschiedlichen Verfahren zur Ermittlung der Sickerwasserrate und der Grundwasserneubildung tritt in einigen Tieflandregionen die Situation auf, dass die mittlere Sickerwasserrate kleiner der mittleren Grundwasserneubildung ist. Da die Grundwasserneubildung nicht höher sein kann als die Sickerwasserrate wurde in diesen Fällen die Sickerwasserrate gleich der Grundwasserneubildung gesetzt. Die Differenz zwischen Sickerwasserrate und Grundwasserneubildung ist in Festgesteinsaquiferen im Mittel deutlich höher und das Verhältnis Q_{gw}/Q_{sw} somit größer als in Lockergesteinsaquiferen (Abbildung 20b).

Abbildung 20: (a) Kombinierte Darstellung der Regressionsgeraden und der Häufigkeitsdichte der rund 360.000 Rasterwerte von Sickerwasserrate (BGR 2003b) und Grundwasserneubildung (BGR 2003a) in Deutschland; (b) Boxplots des Verhältnisses von Grundwasserneubildung (Q_{gw}) zu Sickerwasserrate (Q_{sw}), getrennt für Kluft- und Porengrundwasserleiter



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen, nach Knoll et al. 2020a.

Für die Berechnung der (flächenbezogenen) N-Fracht im Grundwasser ($N_{Fracht_{gw}}$) wird die Grundwasserneubildungsrate als Näherungswert für den Grundwasservolumenstrom verwendet. Die N-Fracht im Grundwasser wird schließlich aus der Verteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser gemäß RF-Modellierung (s. Kap. 3.3.1, Abbildung 17) und dem Grundwasservolumenstrom berechnet (Gleichung 3).

Gleichung 3: Flächenbezogene Stickstoff-Fracht im Grundwasser

$$N_{Fracht_{gw}} = c(NO_3)_{gw} \times Q_{gw} / 443$$

mit

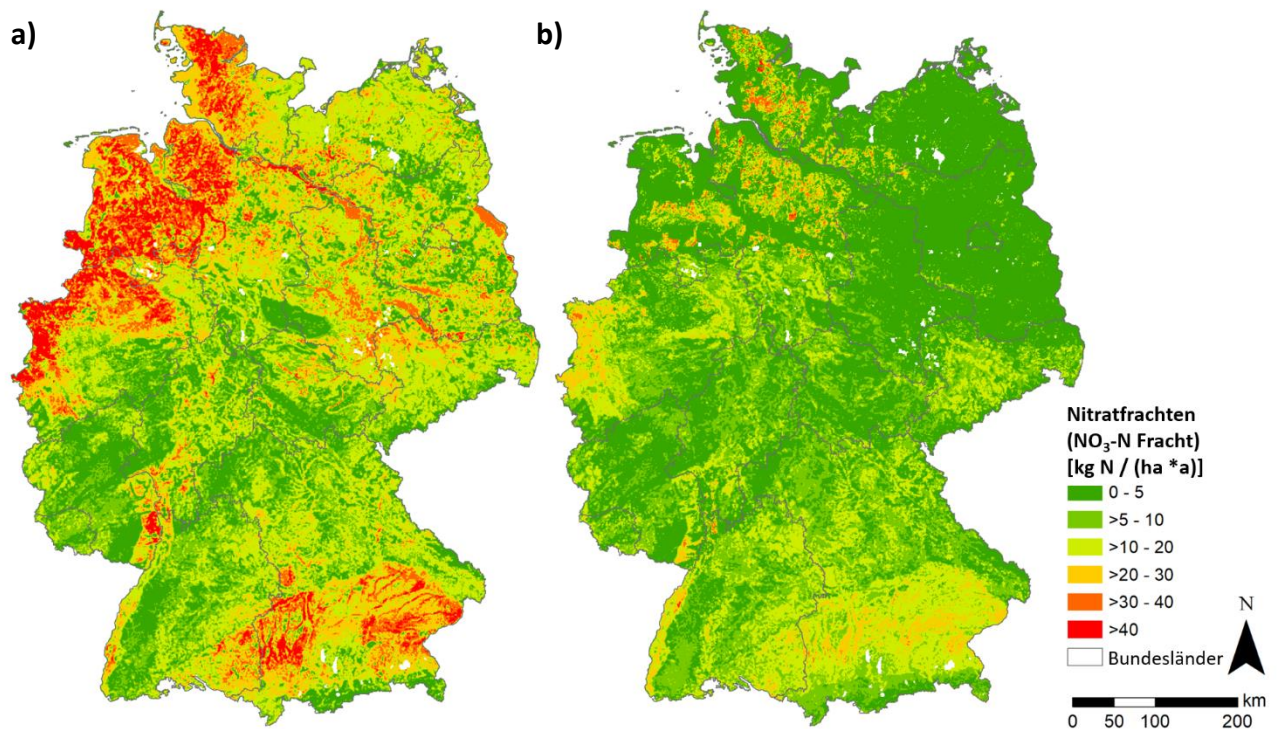
$c(NO_3)_{gw}$ Nitratkonzentration im Grundwasser ($mg\ NO_3\ l^{-1}$) (s. Kap. 3.3.1)

443 Umrechnungsfaktor Einheiten.

Abbildung 21 zeigt die regionale Verteilung des N-Eintrags und der resultierenden N-Fracht im Grundwasser in Deutschland nach diesem Ansatz. Der N-Eintrag in die ungesättigte Zone beträgt im Mittel rund $36\ kg\ N\ ha^{-1}\ a^{-1}$. Davon wird der größere Teil über Zwischenabfluss und Dränagen abgeführt. Auch auf diesem Transportpfaden kann Nitratreduktion stattfinden, was für die hier interessierenden Fragestellungen jedoch nicht weiter berücksichtigt wird. Der mittlere N-Eintrag in das Grundwasser beläuft sich im Mittel des Bundesgebietes auf rund $17\ kg\ N\ ha^{-1}\ a^{-1}$. Die höchsten Belastungen (über $40\ kg\ N\ ha^{-1}\ a^{-1}$) sind in den Intensiv-Viehhaltungsregionen in Nordwest- und Südostdeutschland sowie in Tieflandregionen und Flussniederungen festzustellen (Abbildung 21a).

In Abbildung 21b) sind die nach Gleichung 3 ermittelten N-Frachten im Grundwasser dargestellt. Im Durchschnitt des Bundesgebietes beträgt diese N-Fracht $6\ kg\ N\ ha^{-1}\ a^{-1}$ und liegt damit deutlich niedriger als der Eintrag über die ungesättigte Zone von $17\ kg\ N\ ha^{-1}\ a^{-1}$.

Abbildung 21: a) Stickstoff-Eintrag in das Grundwasser und b) Stickstoff-Fracht im Grundwasser in Deutschland



Hinweis: In Abb. 22b) wird die Nitrat-N-Fracht und *nicht* die Nitrat-N-Konzentration im Grundwasser dargestellt, die Darstellung hat *keinen* Bezug zum Nitratgrenzwert von 50 mg NO₃/l.

Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen, nach Knoll et al. 2020a; Kartengrundlage: © Geo-BasisDE / BKG 2018

4.2 N-Reduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser

Die Nitratreduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser wird schließlich gemäß dem Ansatz in Abbildung 19 als Verhältnis der N-Fracht im Grundwasser zum N-Eintrag berechnet (Gleichung 4).

Gleichung 4: Nitratreduktion in der ungesättigten Zone und im Grundwasser

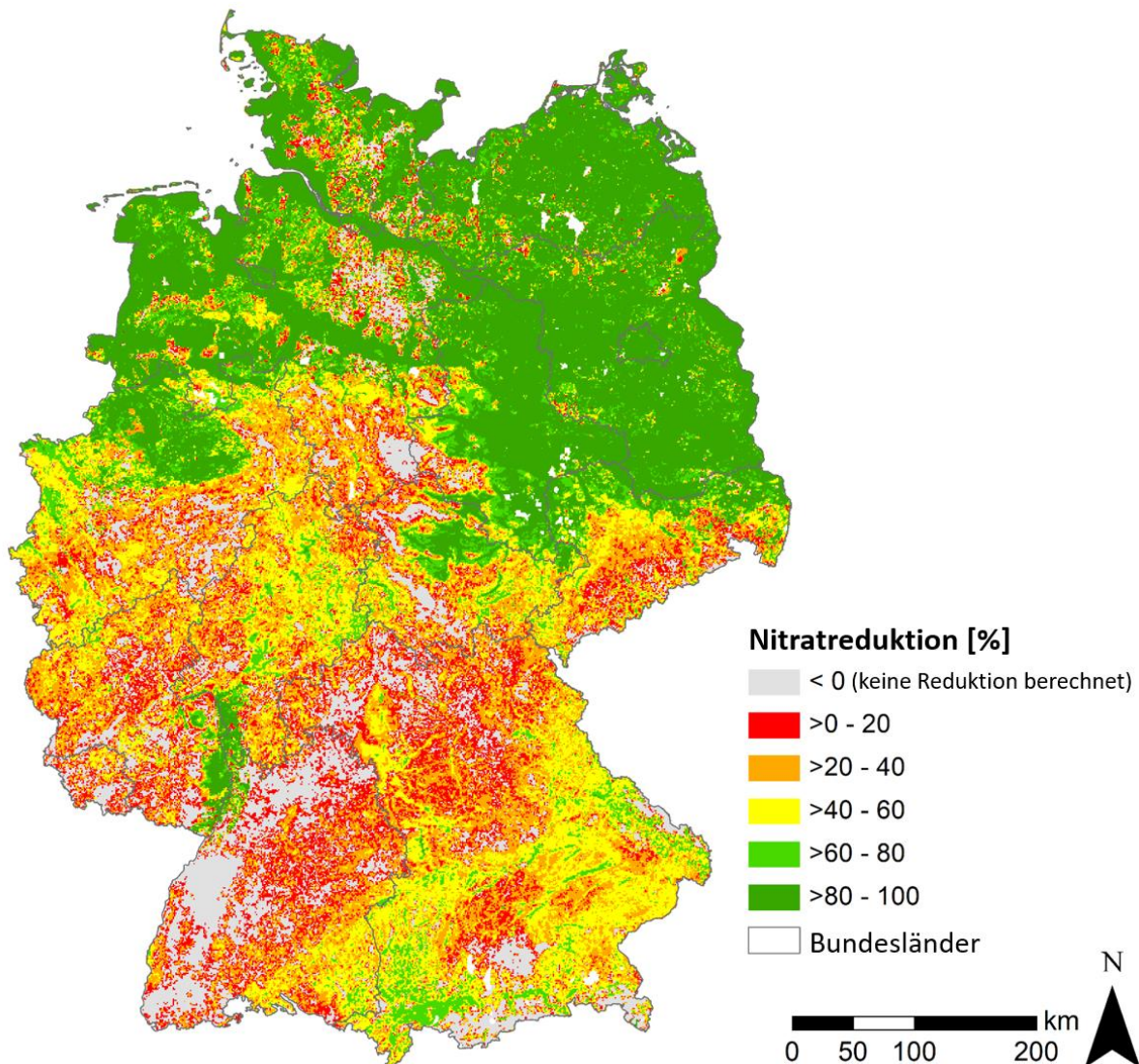
$$N_Red = (1 - N_Fracht_{gw} / N_Fracht_{Eintrag_gw}) \times 100$$

mit

N_Red Reduktion der N-Fracht zwischen Eintrag in das Grundwasser und Austrag über das Grundwasser (%).

Abbildung 22 zeigt die räumliche Verteilung der Nitratreduktion in Deutschland. Im Mittel beträgt die Nitratreduktion 57 % (ohne Berücksichtigung der Raster, für die das Verhältnis $Q_{gw}/Q_{sw} > 1$ ist, das heißt in denen rechnerisch keine Reduktion auftritt). In rund 12 % der Rasterelemente tritt die Situation $N_Fracht_{gw} > N_Fracht_{Eintrag_gw}$ auf, sodass nach Gleichung 4 keine Reduktion, sondern Zunahme der N-Fracht berechnet wird (graue Areale in Abbildung 22). Gebiete "ohne Reduktion" liegen hauptsächlich in den stärker bewaldeten Gebieten (Alpen, Schwarzwald, Harz usw.). Dort sind die absoluten Werte von N_Fracht_{gw} und $N_Fracht_{Eintrag_gw}$ im Regelfall so niedrig, dass bereits aufgrund der methodisch bedingten Variabilität der Werte, die im Unsicherheitsbereich der beiden Größen liegt, der Fall $N_Fracht_{gw} > N_Fracht_{Eintrag_gw}$ eintreten kann.

Abbildung 22: Rechnerische Reduktion der Nitratfracht in der ungesättigten Zone und im Grundwasser in Deutschland



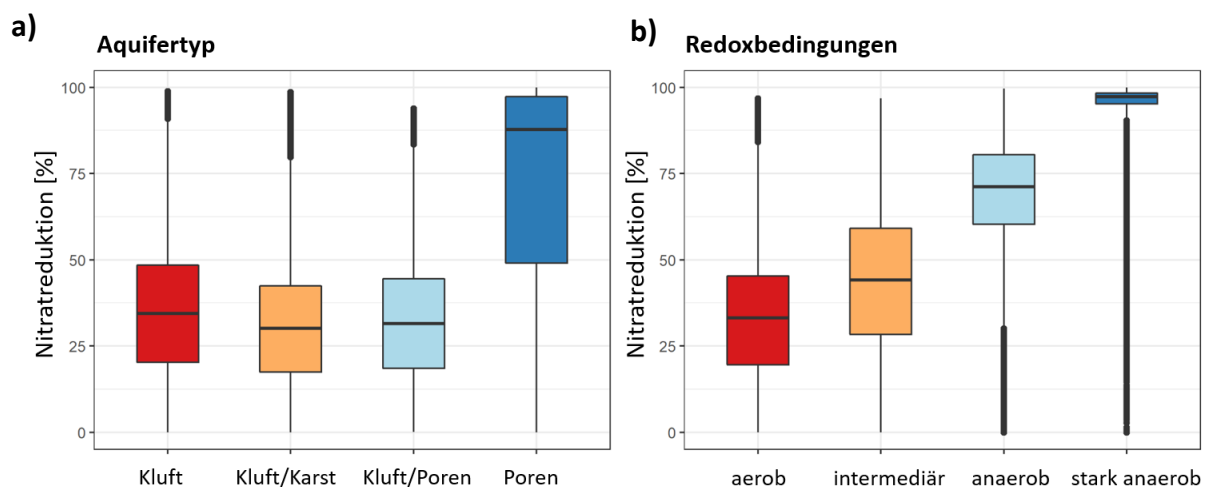
Quelle: eigene Darstellung, JLU nach Knoll et al. 2020a, Kartengrundlage: © Geo-BasisDE / BKG 2018

Die regionale Verteilung der Nitratreduktionsraten zeigt einen ausgeprägten Nord-Süd-Kontrast mit hohen Minderungsraten bis zu 100 % in der norddeutschen Tiefebene und geringer bis gar keiner Reduktion in Mittel- und Süddeutschland. Dieser Kontrast spiegelt die hydrogeologischen Großräume in Deutschland wider. In der norddeutschen Tiefebene dominieren ergiebige Lockergesteinsaquifere mit meist geringer Strömungsgeschwindigkeit und langen Verweilzeiten, die in Verbindung mit der großen Mächtigkeit der Deckschichten insgesamt durch stark anaerobe Verhältnisse gekennzeichnet sind und infolgedessen hohe Nitratreduktionsraten aufweisen. In den Mittelgebirgsregionen sind überwiegend klüftige oder verkarstete Festgesteinsgrundwasserleitern mit meist guten bis mittleren Redox-Bedingungen vertreten (s. Abbildung 16), in denen nur geringe Nitratreduktion stattfindet. Das Alpenvorland zeigt eine heterogene Verteilung der Nitratreduktion. Der südliche Teil mit seinen hauptsächlich jungpleistozänen glazialen Ablagerungen weist höhere Reduktionsraten auf, während im nördlichen Teil mit vorherrschend quartären fluviatilen Kiesablagerungen nur geringe Nitratreduktion stattfindet. Die tertiären Sedimentablagerungen im nördlichen Alpenvorland sind stellenweise mit stärkeren

Lößablagerungen bedeckt, was wiederum zu höheren Nitratreduktionsraten in diesen Gebieten führt.

Mediane und Spannweiten der Nitratreduktion für die vier Typen des Grundwasserleiters sowie für die Redox-Verhältnisse im Grundwasser sind in Abbildung 23 dargestellt. In den Rasterelementen mit überwiegend klüftigen bzw. verkarsteten Grundwasserleitern werden im Mittel 32,9 % bis 36,1 % Nitratreduktion berechnet, während die Gebiete mit Porengrundwasserleiter mit 72,5 % einen wesentlich höheren Nitratreduktion aufweisen (Abbildung 23a). In Bezug auf die Redox-Verhältnisse (s. Kap. 3.2.4) steigt die Mittlere Nitratreduktion erwartungsgemäß von der Klasse [0] „anaerob“ mit 32,9 % über 44,8 % und 69,1 % bis auf 95,8 % in der Klasse [3] „stark anaerob“ (Abbildung 23b).

Abbildung 23: Boxplots der Häufigkeiten der Nitratreduktion in Deutschland nach a) Typ des Grundwasserleiters und b) Redox-Verhältnissen im Grundwasser (gem. Tabelle 4)



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen, nach Knoll et al. 2020a.

Die hier vorgestellte Methodik ist nach Stand der Kenntnis der Autorinnen und Autoren der erste Ansatz zur Abschätzung der räumlichen Verteilung der N-Reduktion im Bundesgebiet, integriert über die ungesättigte Zone und das Grundwasser. Unbeschadet der vereinfachenden Annahmen und bieten die Ergebnisse eine brauchbare Annäherung an die Frage, in welcher Größenordnung und mit welcher regionalen Verteilung die N-Frachten über den Sickerwasser- und Grundwasserpfad infolge des Nitratabbaus gegenüber dem Eintrag in den Boden reduziert werden.

Eine quantitative Angabe zur Unsicherheit der Zielgröße N-Reduktion ist bislang nicht möglich. Für den hydrosphärischen N-Überschuss der Landwirtschaftsflächen wird die Unsicherheit auf etwa $\pm 10 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ geschätzt (Häußermann et al. 2019), für die spezifischen N-Einträge der übrigen Flächennutzungen sind keine entsprechenden Angaben bekannt. Für die Nitratkonzentration im Grundwasser wird mittels QRF ein mittlerer absoluter Fehler von $12,7 \text{ mg NO}_3/\text{l}$ berechnet (Kap. 3.3.2). Für die Größen der Sickerwasser- und der Grundwasserneubildungsrate wurden von der BGR (2003a, 2003b) keine Unsicherheitsanalysen durchgeführt.

Um die Güte der Ergebnisse zur N-Reduktion stichprobenartig zu prüfen, könnten die Ergebnisse zum „N-Exzess“ im Grundwasser nach der N_2/Ar -Methodik herangezogen werden. Mittels des N_2/Ar -Verhältnisses wird die Konzentration von überschüssigem N_2 im Grundwasser berechnet, woraus die Denitrifikationsmenge abgeleitet werden kann (Eschenbach et al. 2018). N_2/Ar -Untersuchungen sind bislang in Deutschland in Nordrhein-Westfalen (Schwanekamp

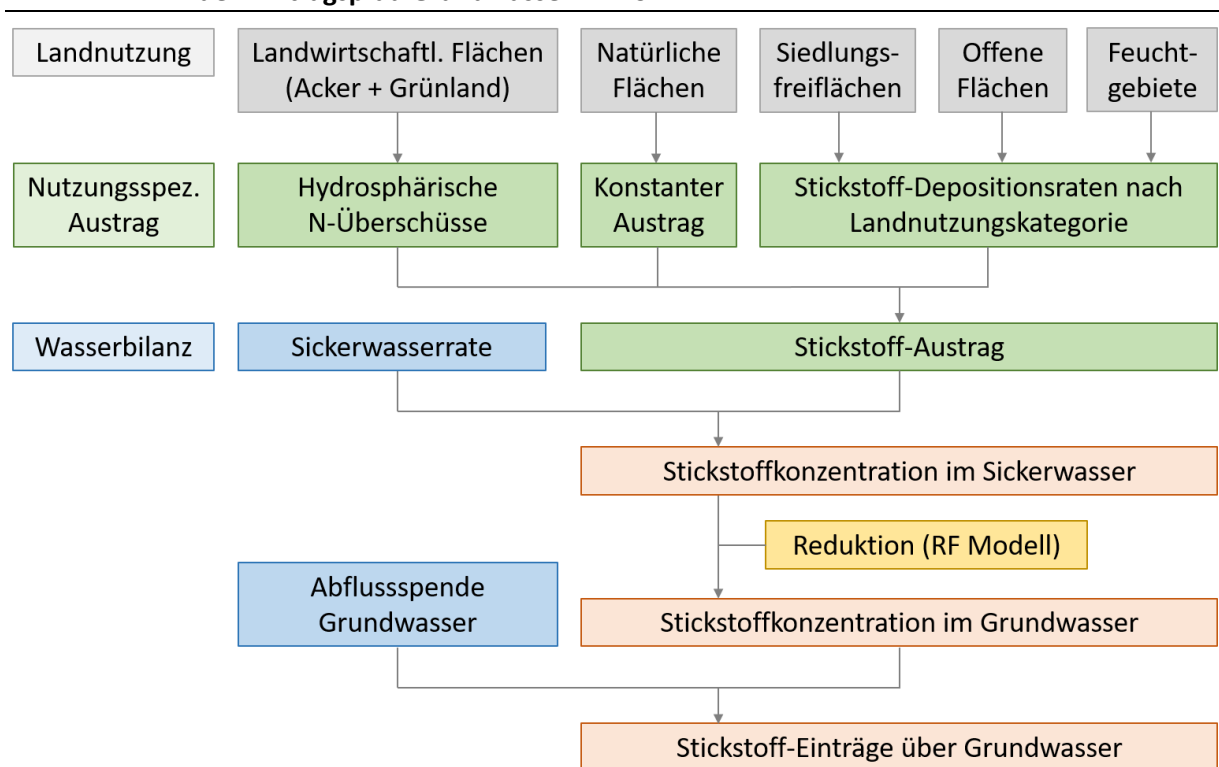
2017), Hessen (HLNUG 2019) und Niedersachsen (Eschenbach et al. 2018) durchgeführt worden; eine Auswertung im Rahmen des hier vorgestellten Vorhabens war jedoch zum einen aus arbeitswirtschaftlichen Grund nicht möglich, zum anderen stehen diese Untersuchungen nur eingeschränkt für eine Auswertung zur Verfügung.

Bei der Interpretation der Größenordnungen und der räumlichen Verteilung der Nitratreduktion in der ungesättigten Zone und im Aquifer ist schließlich auch zu berücksichtigen, dass die Denitrifikationsprozesse an das Vorkommen von begrenzten Ressourcen in diesen Kompartimenten gebunden sind (Wilde et al. 2017). Die wasserwirtschaftlichen Fachverbände in Deutschland weisen regelmäßig darauf hin, dass in der Regel nicht bekannt ist, wie weit die Denitrifikationskapazitäten im Untergrund bereits ausgeschöpft sind (Bergmann et al. 2013). Für den größten Teil der Grundwasservorkommen in Deutschland, die zur Trinkwasserversorgung genutzt werden, kann nicht abgeschätzt werden, wie lange die derzeitigen Nitratreduktionsraten auch in Zukunft noch wirksam sein werden (Oelmann et al. 2017). Die gleiche Situation tritt in Bezug auf den Nitrattransport von der Bodenoberfläche in das Grundwasser und weiter in die Oberflächengewässer auf: die Probleme der Überschreitung des Grenzwerts vom 50 mg NO₃/l im Grundwasser nach WRRL bzw. nach Nitrat-Richtlinie und der übermäßigen N-Fracht in die Küstenmeere wird momentan durch die Nitratreduktion während des N-Transports noch stark gedämpft. Wenn zukünftig eine zunehmende Erschöpfung der Nitratabbaukapazitäten eintritt, dann wird sich die Nitratproblematik in Deutschland verschärfen.

5 Aktualisierung der Berechnungen im Model MoRE

Abbildung 24 zeigt ein vereinfachtes Schema des in diesem Vorhaben entwickelten neuen Ansatzes zur Berechnung der Einträge über den Pfad Grundwasser. In dem neuen Ansatz wird für jedes Analysegebiet der flächengewichtete (potenzielle) N-Austrag aus den nutzungsspezifischen N-Austrägen berechnet. Durch Verrechnung mit der Sickerwasserrate erhält man daraus die potenzielle Stickstoffkonzentration im Sickerwasser (Abbildung 24). Aus der potenziellen Stickstoffkonzentration im Sickerwasser und der mit dem RF-Modell geschätzten Nitratkonzentration im Grundwasser lässt sich ein Reduktionsfaktor ermitteln (Kapitel 4). Die über die ungesättigte Zone und das Grundwasser transportierten Stickstofffrachten werden um diesen Reduktionsfaktor reduziert.

Abbildung 24: Vereinfachtes Schema zur neuen Berechnungsweise der Stickstoff-Einträge über den Eintragspfad Grundwasser in MoRE



Quelle: eigene Darstellung KIT-IWG.

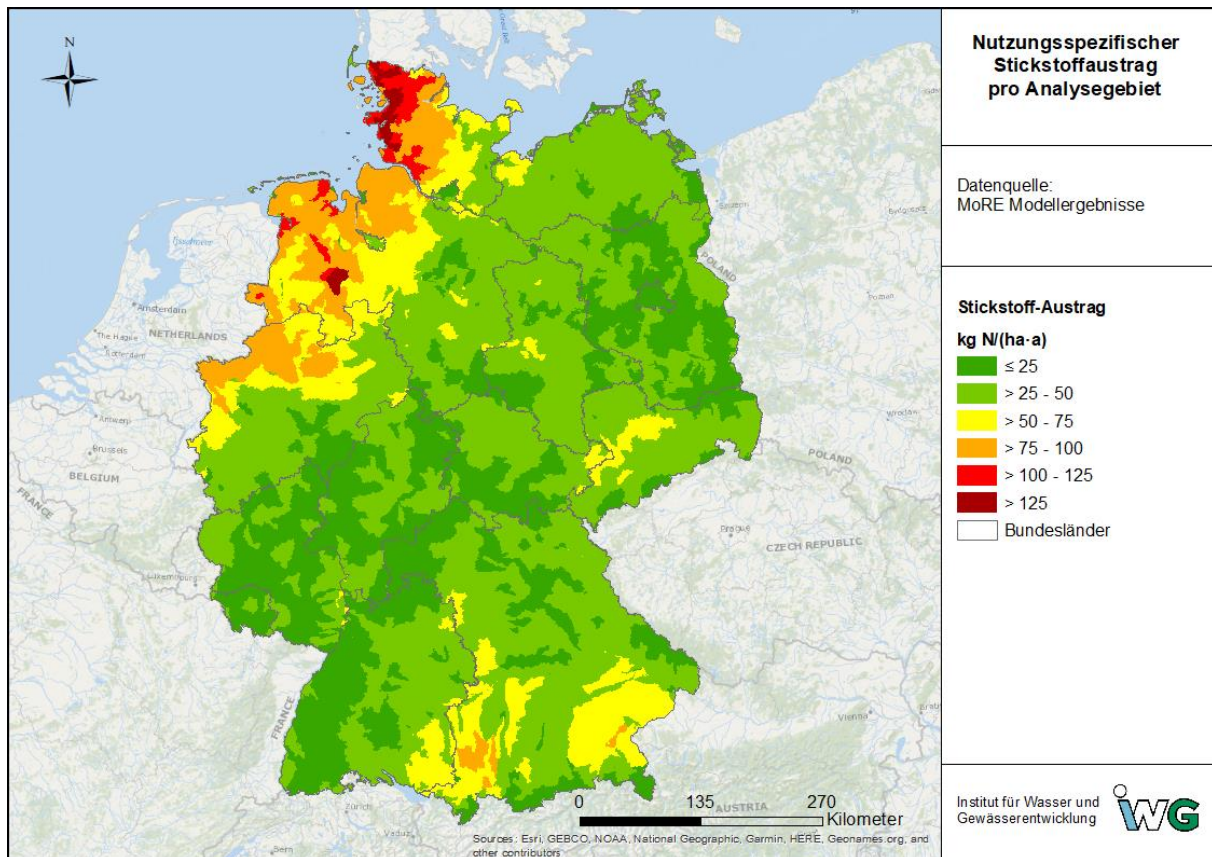
In der Berechnung der Einträge erfolgt derzeit kein Abgleich der berechneten Konzentrationen im Sickerwasser (c_{SW}) und der Konzentrationen im Grundwasser (c_{GW_RF}), die durch das RF-Modell bestimmt wurden. Das bedeutet, dass die Einträge über Grundwasser ausschließlich aus den beiden Größen „Konzentration im Grundwasser“ und „Grundwasserneubildungsrate“ ermittelt werden. In einigen Regionen in Deutschland tritt nach diesem Ansatz die Situation auf, dass $c_{GW_RF} > c_{SW}$, das heißt der Reduktionsfaktor wird negativ. In diesen Fällen wird davon ausgegangen, dass keine Reduktion zwischen Sickerwasser und Grundwasser in dem jeweiligen Gebiet auftritt.

Die im folgenden vorgestellten Ergebnisse beziehen sich auf Deutschland (ausgenommen Bodensee und Stettiner Haff) und das Jahr 2016.

5.1 Bilanzierung der Stickstoff-Einträge

Nach dem neuen Modellansatz werden auf Ebene der Analysegebiete für Deutschland insgesamt rund 1.191 kt N/a in den Boden eingetragen (Tabelle 6). Dabei zeigt sich ein deutliches räumliches Muster des spezifischen Stickstoff-Eintrages. Besonders hohe Einträge von mehr als 50 kg N ha⁻¹ a⁻¹ finden sich in den von intensiver Viehhaltung geprägten Gebieten im Nordwesten und im südlichen Raum Deutschlands (Abbildung 25). Dies spiegelt die räumliche Verteilung der N-Überschüsse in der Landwirtschaft wider (Abbildung 6).

Abbildung 25: Nutzungsspezifischer Stickstoff-Eintrag in den Boden in den MoRE-Analysegebieten



Quelle: eigene Darstellung KIT-IWG.

In der Summe über alle Analysegebiete stammt der nutzungsspezifische Stickstoff-Eintrag in den Boden zu 92 % aus den Landwirtschaftsflächen (Summe dräniertes und nicht dräniertes Acker- und Grünland; Tabelle 6). Lediglich 5,5 % des Stickstoff-Eintrags in den Boden stammen aus natürlichen Flächen und nur rund 2,6 % aus Siedlungsfreiflächen; der Beitrag der offenen Flächen und der Feuchtgebiete ist mit jeweils ≤1 % vernachlässigbar (Tabelle 6).

In der Modellierungsumgebung von MoRE bilden die Einträge über dränierte Flächen in Oberflächengewässern üblicherweise einen eigenständigen Eintragspfad, der vom Eintragspfad des Grundwassers unabhängig ist (Fuchs et al. 2010). Der Stickstoff-Eintrag in den Boden von dränierten Flächen auf Ackerland und Grünland umfasst zusammen rund 133 kt N/a (Tabelle 6). Das entspricht rund 12 % des Eintrages in den Boden von den landwirtschaftlichen Flächen.

Tabelle 6: Nutzungsspezifische Stickstoff-Einträge in den Boden für die MoRE-Landnutzungs-kategorien

Landnutzung	Fläche (km ²)	Nutzungsspezifischer Stickstoff-Eintrag (kg ha ⁻¹ a ⁻¹)	Stickstoff-Eintrag	
			(t N/a)	(%)
Ackerland, davon				
<i>nicht dräniert</i>	110.217	56,1	617.794	51,9
<i>dräniert</i>	16.634	52,7	87.700	7,4
Grünland, davon				
<i>nicht dräniert</i>	56.924	60,0	341.625	28,7
<i>dräniert</i>	7.562	59,3	44.834	3,8
Natürliche Flächen	118.711	5,5	65.291	5,5
Siedlungsfreiflächen	23.616	13,0	30.797	2,6
Feuchtgebiete	1.861	16,5	3.062	0,0
Offene Flächen	404	6,3	253	0,3
Summe/Mittel	335.929^a	35,4	1.191.357	100

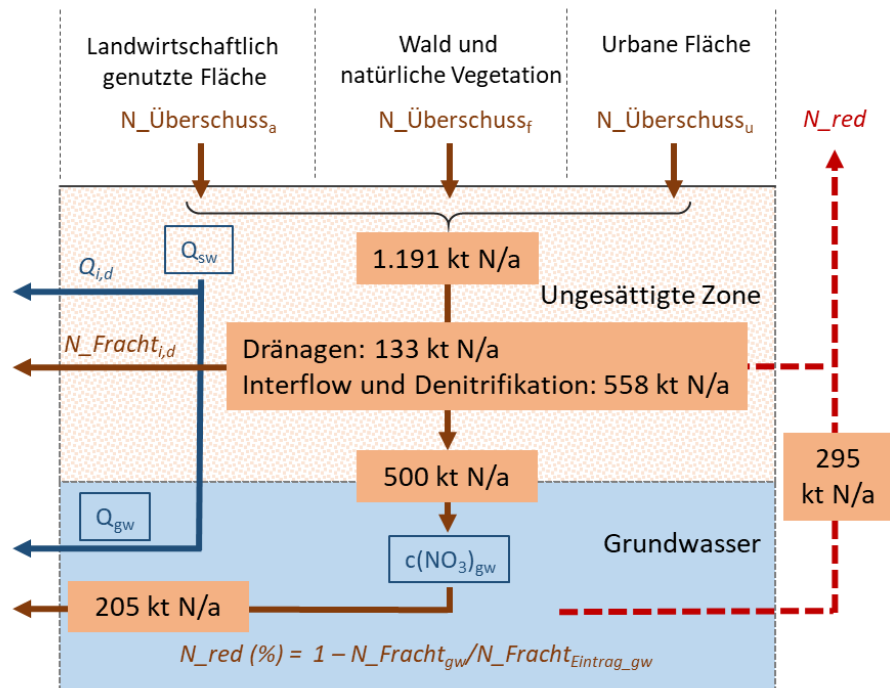
^a Differenz zur Gesamtfläche Deutschland von 357.480 km² (Tab. 1) entspricht den versiegelten Flächen; diese tragen nicht zum Grundwasserpfad bei. Hier sind nur die Siedlungsfreiflächen aufgeführt.

Werden folglich von der Gesamtsumme des nutzungsspezifischen N-Eintrages in den Boden (1.191 kt N/a) die Einträge auf dränierten Flächen (133 kt N/a) abgezogen, verbleiben rund 1.059 kt N/a, die in der Modellvorstellung von MoRE mit dem Sickerwasser verlagert werden (Abbildung 26).

Bei Anwendung von Gleichung 2 zur Ermittlung des N-Eintrages aus der ungesättigten Zone ins Grundwasser (Kapitel 4.1) ergeben sich in der Summe über alle Analysegebiete 500 kt N/a (Abbildung 26). Das bedeutet, dass rund 47 % des eingetragenen Stickstoffs an der Oberfläche potentiell durch die ungesättigte Zone gelangt und ins Grundwasser übertritt. Die verbleibenden 558 kt N/a bilden demnach den potentiellen Eintrag über den Zwischenabfluss (Interflow) in die Oberflächengewässer, der aber entsprechend des natürlichen Reduktionsvermögens in der ungesättigten Zone und insbesondere im Uferbereich erheblich geringer ausfallen sollte. Eine genaue Quantifizierung der Einträge über Zwischenabfluss war im Rahmen dieses Projektes nicht vorgesehen.

Basierend auf den Nitratkonzentrationen im Grundwasser, die mit dem RF-Modell (Kapitel 3) erstellt und gemittelt auf die Ebene der Analysegebiete in MoRE implementiert wurden, ergeben sich unter mittleren hydrologischen Bedingungen Stickstoff-Einträge über Grundwasser von rund 205 kt N/a für Deutschland. Zwischen der ungesättigten Zone und dem Grundwasser erfolgt somit rechnerisch eine Reduktion um 59 %. (Anmerkung: diese Angabe differiert etwas gegenüber dem Wert von 57 %, der in Kap. 4.2 genannt wird. Der Unterschied ist auf die unterschiedliche Art der Mittelung zurückzuführen: in Kap. 4.2 wird die Reduktion über die 1 km x 1 km-Raster der Abbildung 22 gemittelt, in MoRE wird die Reduktion auf Ebene der AU gemittelt). Der Stickstoff-Eintrag über Grundwasser entspricht 19 % des nutzungsspezifischen Eintrages an der Bodenoberfläche (Abbildung 26).

Abbildung 26: Bilanzübersicht der Stickstoff-Frachten vom Eintrag in den Boden über die ungesättigte Zone bis ins Grundwasser nach MoRE-Modellannahmen und RF-Modellierung



Quelle: eigene Darstellung Univ. Gießen und KIT-IWG

5.2 Modellierungs-Ergebnisse auf Ebene der MoRE-Analysegebiete

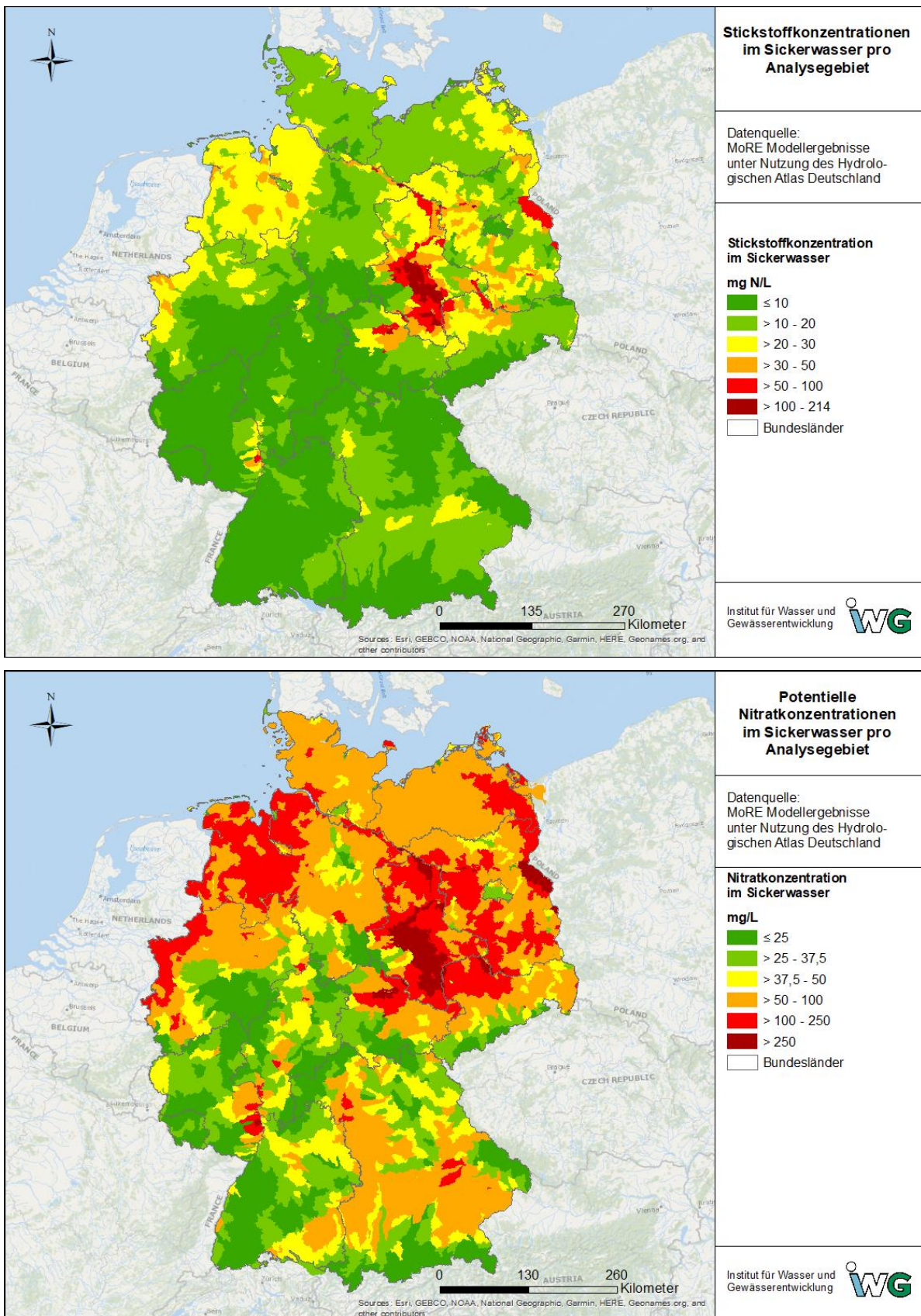
Aus dem Stickstoff-Eintrag in den Boden und der mittleren jährlichen Sickerwasserrate (Abschnitt 2.2.3) wurden die potenzielle Stickstoffkonzentration im Sickerwasser pro Analysegebiet berechnet (Abbildung 27).

Die Konzentration im Sickerwasser kann in erster Näherung zur Beurteilung der Belastung des Grundwassers genutzt werden. Liegt die Konzentration an Nitrat im Sickerwasser unterhalb von 50 mg/l kann davon ausgegangen werden, dass auch die Konzentration im Grundwasser diesen in der WRRL festgelegten Schwellenwert langfristig nicht überschreitet. So bliebe das natürliche Denitrifikationspotential der Grundwasserleiter über einen möglichst langen Zeitraum erhalten.

Sehr hohe potenzielle Konzentrationen treten demnach insbesondere in den ostdeutschen Gebieten in Erscheinung. Im Vergleich zu den übrigen Regionen Deutschlands handelt es sich bei den östlichen Landesteilen um sehr trockene Gebiete mit niedrigen Jahresniederschlagsmengen, so dass auch die Sickerwasserraten sehr niedrig ausfallen (Abbildung 3). In der Berechnung führt dies zu hohen potenziellen Stickstoffkonzentrationen im Sickerwasser. Am stärksten ausgeprägt ist dies für eine Reihe von Analysegebieten im Einzugsgebiet der Saale zu erkennen (Abbildung 27).

Auch für den Nordwesten Deutschlands werden höhere Stickstoffkonzentrationen im Sickerwasser berechnet, die flächendeckend über 100 mg Nitrat/l liegen. In diesen Gebieten treten höhere Sickerwasserraten im Vergleich zu den östlichen Bundesländern auf, die höheren potenziellen Stickstoffkonzentrationen im Sickerwasser resultieren in diesen Regionen aus den sehr hohen N-Überschüssen der Landwirtschaft.

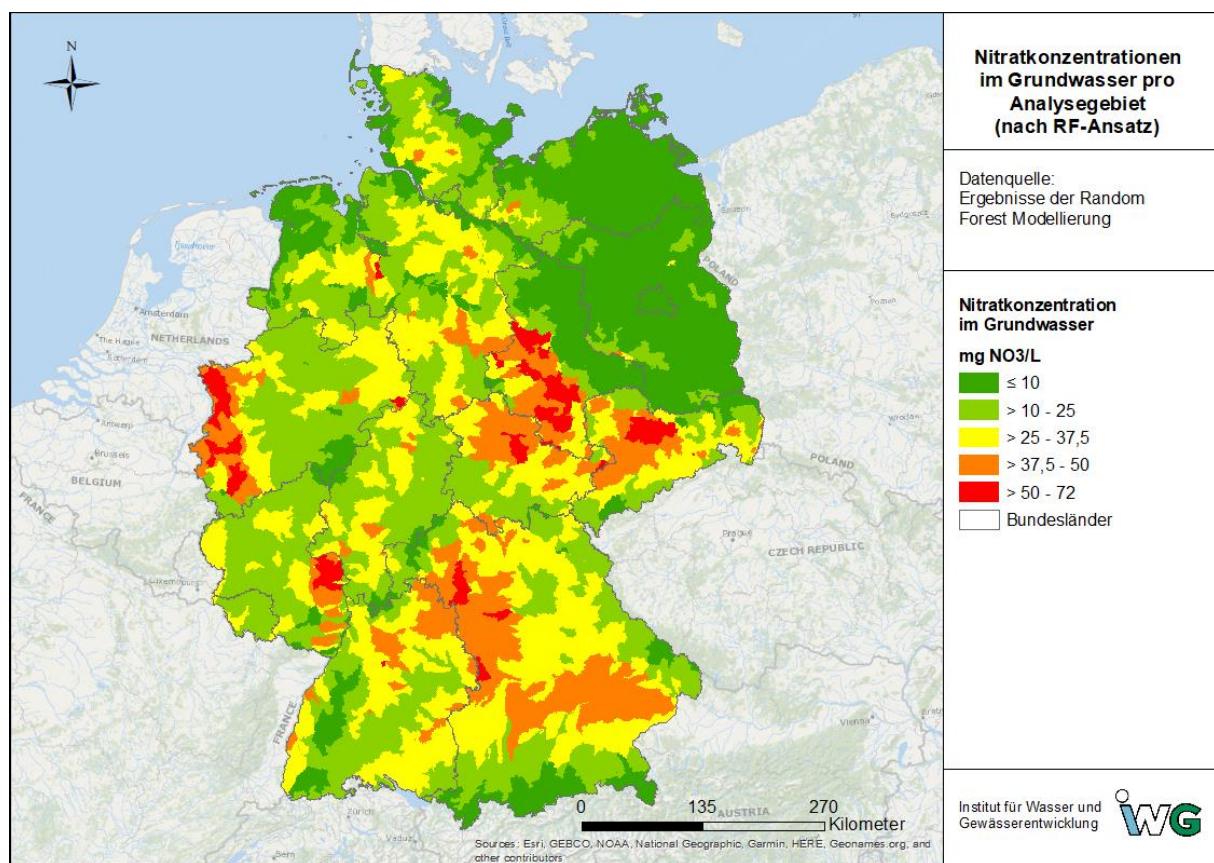
Abbildung 27: Potenzielle Nitratkonzentration im Sickerwasser in den MoRE-Analysegebieten; obere Karte in mg N/l, untere Karte in mg NO₃/l (unterschiedliche Klassenteilung)



Quelle: eigene Darstellung KIT-IWG, unter Verwendung Hydrologischer Atlas Deutschland.

Die Nitratkonzentration im Grundwasser wurde flächendeckend für Deutschland (1 km x 1 km-Raster) mittels Random Forest-Modellierung abgeschätzt (Kapitel 3.2). Für die Modellierung mit MoRE wurden diese auf Rasterebene ermittelten Konzentrationen im Grundwasser für die Analysegebiete gemittelt (Abbildung 28). Analysegebiete mit >50 mg NO_3/l treten demnach vor allem im Niederrheinischen Tiefland, in Rheinhessen, in der Börde, in Nordthüringen und der Region Meißen auf.

Abbildung 28: Mittlere Nitratkonzentration im Grundwasser in den MoRE-Analysegebieten, basierend auf den Ergebnissen der Random Forest-Modellierung der Nitratkonzentration im Grundwasser



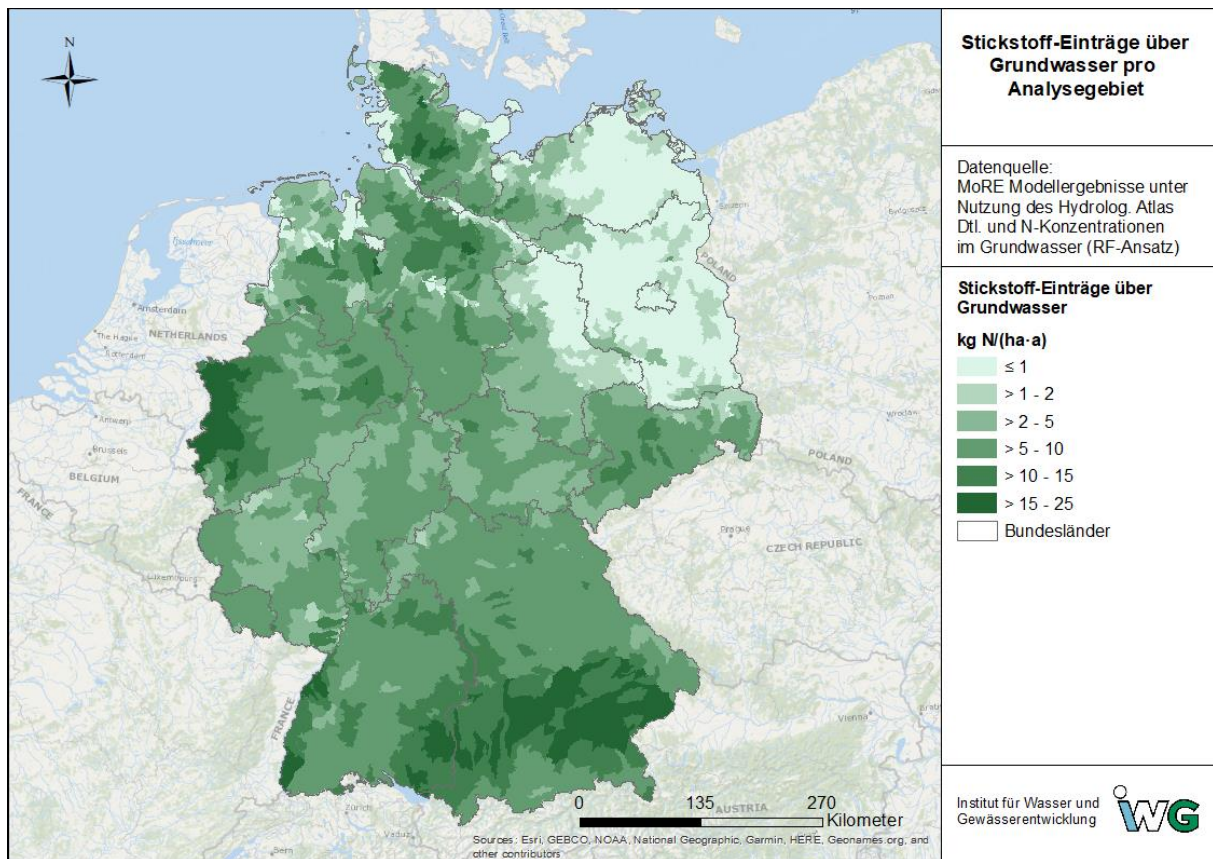
Quelle: eigene Darstellung KIT-IWG.

Für die Berechnung der Stickstoff-Einträge in Oberflächengewässer über den Pfad Grundwasser wurden schließlich die mittlere jährliche Grundwasserneubildung aus dem Hydrologischen Atlas (Abschnitt 2.2.3) sowie die mit dem RF-Modell ermittelten Stickstoffkonzentrationen im Grundwasser verwendet. Für mittlere hydrologische Bedingungen ergibt sich daraus ein N-Eintrag in Oberflächengewässer über den Grundwasserpfad von insgesamt rund 205 kt N/a für das Bundesgebiet.

Die Einträge verteilen sich regional unterschiedlich (Abbildung 29). Regionen, in denen mit dem RF-Modell hohe Stickstoffkonzentrationen ermittelt wurden, weisen oftmals auch die höchsten Stickstoff-Einträge über Grundwasser auf. Dazu zählen insbesondere der Westen Nordrhein-Westfalens, einige Gebiete in Schleswig-Holstein und im Norden Niedersachsens, sowie der bayerische Voralpenraum. Gebiete in Ostdeutschland (insbesondere das Saale-Einzugsgebiet), im Nordwesten Bayerns und Rheinhessen weisen nach der RF-Modellierung auf Ebene der MoRE-Analysegebiete ebenfalls sehr hohe Konzentrationen im Grundwasser auf (Abbildung 28). Die

berechneten Stickstoff-Frachten fallen jedoch aufgrund der wesentlich geringen mittleren Grundwasserneubildung (≤ 100 mm/a; Abbildung 4) in diesen Regionen vergleichsweise geringer aus.

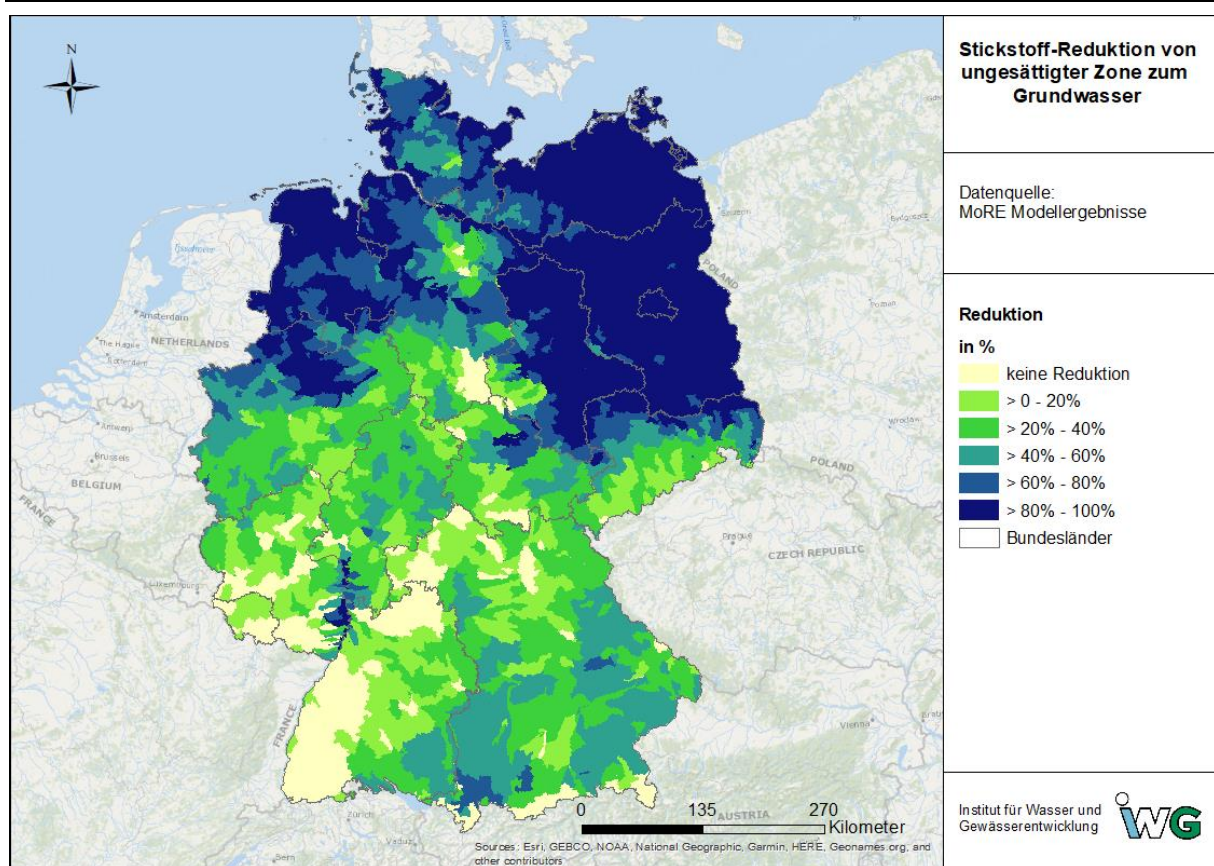
Abbildung 29: Modellierte Stickstoff-Einträge in Oberflächengewässer über den Pfad Grundwasser in den MoRE-Analysegebieten.



Quelle: eigene Darstellung KIT-IWG, unter Verwendung von Hydrologischer Atlas Deutschland (GWN 1000) und Stickstoffkonzentrationen im Grundwasser (nach RF-Modellierung).

Aus dem Vergleich der Stickstofffrachten im Grundwasser und von der ungesättigten Zone in das Grundwasser (gemäß Gleichung 4; Kapitel 4.2) wurde die Nitrat-Reduktion auf Ebene der Analysegebiete berechnet. Dabei zeigt sich ein deutliches Nord-Süd-Gefälle, das die mit dem RF-Ansatz ermittelten Redox-Verhältnisse im Grundwasser (Abschnitte 3.2.4 und 4.2) widerspiegelt. In der norddeutschen Tiefebene, die durch lange Grundwasseraufenthaltszeiten und stark anaerobe Redox-Verhältnisse geprägt ist, werden hohe Reduktionsraten von mehr als 60 % ermittelt (Abbildung 30). Dagegen weisen die mittel- und süddeutschen Regionen wesentlich niedrigere Reduktionsraten auf. In diesen Regionen wurden mit dem RF-Ansatz vorrangig aerobe oder intermediäre Redox-Verhältnisse ermittelt.

Abbildung 30: Modellierte Reduktion der Stickstofffrachten von der ungesättigten Zone zum Grundwasser in den MoRE-Analysegebieten.



Quelle: eigene Darstellung KIT-IWG.

Für einige Regionen wurde mit diesem Ansatz keine Reduktion ermittelt. Dabei handelt es sich beispielsweise um die Schwarzwaldregion, der westliche Harz, die südliche Pfalz und die nördliche Region Baden-Württembergs (Abbildung 30). In diesen Analysegebieten fallen die mit dem RF-Ansatz ermittelten Konzentrationen im Grundwasser teilweise höher aus als die berechneten Konzentrationen im Sickerwasser. In absoluten Werten sind die Unterschiede der Nitratkonzentrationen zwischen ungesättigter Zone und Grundwasser in diesen Analysegebieten jedoch sehr gering; im Mittel betragen sie 3,75 mg NO₃/L (Median ,74 mg NO₃/L). Bei den genannten Regionen handelt es sich um Gebiete mit geringen Grundwasserverweilzeiten und aeroben Redox-Verhältnissen (Abschnitte 3.2.4 und 4.2).

In der RF-Modellierung werden sehr hohe Nitratkonzentrationen tendenziell unterschätzt (Abschnitt 3.2.5). Daher wurde für die Darstellung mit MoRE eine Abschätzung vorgenommen, wie sich die modellierten Einträge über den Pfad Grundwasser verändern, wenn die Konzentrationen im Grundwasser schrittweise erhöht werden, um diese Unterschätzung auszugleichen. Dafür wurden alle Analysegebiete ausgewählt, in denen laut RF-Modell mehr als 10 % der Fläche eine Nitratkonzentration > 50 mg/L im Grundwasser aufweisen. Für die 698 ausgewählten Analysegebiete (30 % der Landesfläche) wurden die mittleren Konzentrationen schrittweise um 10 % bis 50 % erhöht und die Einträge erneut berechnet. In der Summe über alle Analysegebiete ergeben sich bei Erhöhung der Konzentrationen um jeweils 10 % in den ausgewählten Gebieten eine Zunahme der Gesamteinträge über Grundwasser um jeweils rund 4 % (Tabelle 7). Mit der

Annahme, dass in den ausgewählten Gebieten die mittleren Konzentrationen um 50 % höher liegen, würden sich somit für das Bundesgebiet um 20 % höhere Stickstoff-Einträge über den Grundwasserpfad ergeben.

Tabelle 7: Änderung der modellierten Stickstoff-Einträge über den Grundwasserpfad (Deutschland insgesamt) bei Annahme erhöhter Nitratkonzentration in den MoRE-Analysegebieten mit mehr als 10 % Flächenanteil mit einer Nitratkonzentration über 50 mg NO₃/l

	Ausgangswert	Erhöhung der Nitratkonzentration in ausgewählten Gebieten um				
		+10 %	+20 %	+30 %	+40 %	+50 %
Stickstoff-Einträge über das Grundwasser (t N/a)	204.510	212.424	220.680	228.936	237.192	245.448
Änderung gegenüber Ausgangswert		+3,9 %	+7,9 %	+11,9 %	+16,0 %	+20,0 %

5.3 Vergleich des neuen Ansatzes mit der bisherigen Modellierung

Eine Gegenüberstellung der Ergebnisse der bisherigen Modellierung und nach neuem Ansatz auf Basis des RF-Modells kann nur eingeschränkt erfolgen. Für den neuen Ansatz wurde eine Vielzahl neuer Eingangsdaten verwendet, die sich von den bisherigen unterscheiden (s. Kapitel 2.2). Durch Verwendung der Daten zu den mittleren hydrologischen Bedingungen für den neuen Modellansatz liegt in MoRE keine in sich geschlossene Wasserbilanz mehr vor, so dass die Stickstoff-Einträge nicht wie bisher über alle Pfade berechnet werden können und ein Vergleich erschwert wird. Im Folgenden wird deshalb nur auf einige ausgewählte Punkte näher eingegangen.

Mit dem neuen Modellansatz werden in MoRE deutlich niedrigere potenzielle Stickstoffkonzentrationen im Sickerwasser berechnet als im Rahmen der Aktualisierung für das Jahr 2016. Im Mittel über alle Analysegebiete liegt die Konzentration um rund 52 % niedriger (Tabelle 8). Dies liegt hauptsächlich in den verwendeten Eingangsdaten zur Sickerwasserrate begründet, die für die hier verwendeten Daten aus dem Hydrologischen Atlas wesentlich höher ausfällt als im bisherigen Modellansatz. Im Gegensatz dazu wurden mit dem neuen Ansatz höhere Stickstoffkonzentrationen im Grundwasser ermittelt. Diese fallen im Mittel ca. 30 % höher aus (Tabelle 8).

Tabelle 8: Vergleich der MoRE-Modellergebnisse des bisherigen Ansatzes und des neuen Ansatzes mit den Ergebnissen der RF-Modellierung

	MoRE Aktualisierung 2016	Neuer Modellierungsansatz mit RF-Modell
Mittlere potenzielle Stickstoffkonzentration im Sickerwasser (mg N/l) ^a	33,68	17,48
Mittlere Stickstoffkonzentration im Grundwasser (mg N/l) ^a	3,30	4,70
Stickstoff-Einträge in Oberflächengewässer über das Grundwasser (t N/a)	240.323	204.510

^a gemittelt über alle deutschen Analysegebiete

Bereits im Rahmen eines früheren Vorhabens wurde festgehalten, dass MoRE mit den bisherigen Modellansätzen erheblich niedrigere Stickstoffkonzentrationen im Grundwasser berechnet als tatsächlich gemessen werden (Bach et al. 2016). Die Berechnung erfolgt im herkömmlichen Modellierungsansatz über eine Abschätzung der Denitrifikationsleistung in Locker- und Festgesteins-Aquiferen nach Behrendt et al. (1999). Regionen, in denen hohe Stickstoffkonzentrationen im Grundwasser gemessen werden wie beispielsweise die Börde, Rheinhessen oder das Niederrheinische Tiefland (vgl. Abbildung 2) werden bei diesem Modellansatz nicht adäquat abgebildet (UBA 2019).

Dagegen können mit dem RF-Modell die NO_3 -Konzentrationen im Grundwasser flächendeckend für Deutschland unter Verwendung bundesweiter Grundwassermessungen und anhand hydrogeologischer und weiterer Prädiktoren abgebildet werden. Die Implementierung dieser realitätsnäheren Nitratkonzentrationen im Grundwasser in MoRE ist für die Modellierung der Einträge grundsätzlich zu empfehlen.

Für den Berechnungsansatz mit dem RF-Modell gilt, dass die bisherige Verknüpfung zur Denitrifikationsleistung im Aquifer nicht mehr wiedergegeben werden kann. Allerdings lässt sich über eine Abschätzung der Reduktion zwischen der oberflächennah eingetragenen Stickstoffmenge und den berechneten Einträgen im Grundwasser diese Lücke schließen. Angesichts der Unsicherheit in der großräumigen Darstellung der Denitrifikationsleistung in der ungesättigten Zone und im Grundwasser stellt dies einen einfachen und nachvollziehbaren Ansatz dar.

Trotz höherer Konzentrationen im Grundwasser wurden für den neuen Ansatz nach Random Forest um ca. 15 % niedrigere Stickstoff-Einträge über diesen Pfad in Höhe von 204.510 t N/a berechnet, während im Rahmen der Aktualisierung für das Jahr 2016 noch 240.323 t N/a ermittelt wurden (Tabelle 8). Ursache hierfür ist, dass in der MoRE Wasserbilanz bisher der Zwischenabfluss nicht gesondert ausgewiesen wird und dem Grundwasser zugerechnet wird (Behrendt et al. 1999; Fuchs et al. 2010). Für den RF-Modellierungsansatz wird als Grundlage der mittleren jährlichen Grundwasserneubildung die entsprechende Karte aus dem Hydrologischen Atlas Deutschland verwendet (Abschnitt 2.2.3), deren Grundwasserneubildung geringer ausfällt.

5.4 Schlussfolgerungen und Ausblick

Mit dem neuen Ansatz, der im Rahmen dieses Vorhabens entwickelt wurde, können die Stickstoffkonzentrationen im Grundwasser flächendeckend für Deutschland abgebildet werden. Die Abschätzung der Verteilung der Nitratkonzentration im Grundwasser für Deutschland nach Knoll et al. (2019, 2020a, 2020b) ist derzeit nach Stand der Kenntnis die einzige Datenquelle dieser Art. Andere Ansätze wie bspw. Der AGRUM-Modellverbund bewerten die regionale Verteilung der Grundwassergefährdung auf Basis der Größe „potenzielle Nitratkonzentration im Sickerwasser“ (Wendland et al. 2020). Eine Verwendung für die Modellierung der Einträge über den Pfad Grundwasser im Modellsystem MoRE ist die Verwendung der NO_3 -Verteilungskarte im Grundwasser zu empfehlen. Dies ermöglicht die Identifizierung von besonders belasteten Gebieten hinsichtlich der Stickstoff-Einträge.

Als Abflusskomponente wurde in diesem Vorhaben die Grundwasserneubildung aus dem Hydrologischen Atlas herangezogen. Unberücksichtigt bleibt in diesem Vorhaben der Zwischenabfluss, mit dem ebenfalls Stickstoff in die Oberflächengewässer eingetragen wird. In der Darstellung des Hydrologischen Atlas bildet der Zwischenabfluss die Differenz aus Sickerwasserrate und Grundwasserneubildung (Jankiewicz et al. 2005). Um Einträge über den Zwischenabfluss berechnen zu können, wird zudem eine Stickstoff-Konzentration in der ungesättigten Zone benötigt. Diese Konzentration muss Werte in der Größenordnung zwischen der Konzentration im Si-

ckerwasser und der Konzentration im Grundwasser aufweisen. Für die Modellierung von Stoffeinträgen in Baden-Württemberg nutzten Kiemle et al. (2015) für die Stickstoff-Konzentrationen im natürlichen Zwischenabfluss den zweifachen Wert der Stickstoff-Konzentration des Grundwassers. Diese Vorgehensweise beruht auf einer Abschätzung der LUBW (2004). Diese Vorgehensweise ist für den in diesem Vorhaben erarbeiteten Ansatz nur begrenzt anwendbar, denn in weiten Teilen Baden-Württembergs wie dem Schwarzwald wurde mit dem hier vorgestellten Ansatz keine Reduktion der Stickstoff-Frachten von der ungesättigten Zone zum Grundwasser ermittelt (Abbildung 30). In diesen Gebieten liegen die mit dem RF-Ansatz ermittelten Stickstoff-Konzentrationen im Grundwasser höher als die berechneten Konzentrationen im Sickerwasser, weshalb ein Ansatz mit der doppelten Grundwasserkonzentration als Zwischenabfluss-Konzentration keine plausiblen Ergebnisse liefern würde.

Für eine Abschätzung der Stickstoff-Einträge über Zwischenabfluss ergeben sich also verschiedene Möglichkeiten zur Berechnung. Im einfachsten Fall geht man davon aus, dass der Zwischenabfluss als Differenz aus Sickerwasserrate und Grundwasserneubildung aus dem Hydrologischen Atlas berechnet werden kann und die Konzentration im Zwischenabfluss gleich der Konzentration im Grundwasser ist. Für die deutschen AU ergibt sich nach diesem Ansatz ein Zwischenabfluss von 59.105 Mio. m³/a, dies entspricht 59 % der Sickerwasserrate. Die ermittelte Grundwasserneubildung beträgt dagegen mit 41.592 Mio. m³/a etwas weniger (41 % der Sickerwasserrate). Für ganz Deutschland ergeben sich dann Einträge über Zwischenabfluss von 278 kt N. Diese Einträge fallen somit um 26 % höher aus als die ermittelten Einträge über Grundwasser in Höhe von 205 kt N. Hierbei handelt es sich jedoch nur um eine Überschlagsrechnung. Die Einträge über den Zwischenabfluss müssen noch weiter untersucht und plausibilisiert werden, was jedoch nicht Bestandteil dieses Vorhabens war. Eine zukünftige Verwendung eines Wasserhaushaltsmodells würden hier zu einer Verbesserung der Modellvorhersage führen, da der Zwischenabfluss als eigenständige Abflusskomponente dargestellt werden kann.

Neben der Anpassung der Wasserbilanz stellt ein möglicher Stickstoff-Abbau durch Denitrifikation beim Übertritt vom Grundwasser ins Oberflächengewässer einen weiteren offenen Punkt in der Eintragsmodellierung dar. In der bisherigen Modellvorstellung von MoRE wird dieser Vorgang bei der Berechnung der Einträge in die Oberflächengewässer nicht berücksichtigt, es erfolgt lediglich eine Berechnung der Reduktion innerhalb des Gewässers während der Frachtberechnung. Dass beim Übertritt vom Grundwasser zum Oberflächengewässer ein Abbau durch Denitrifikation stattfinden kann, konnten Lutz et al. (2020) anhand von Isotopenuntersuchungen im Einzugsgebiet der Selke zeigen. Im Mittel wurden dabei rund 12 % des Nitrats im Grundwasser der Uferzone durch Denitrifikation entfernt. Aus einer Literaturstudie von Hill (2019) gehen Reduktionsraten von bis zu 90 % hervor, die sehr stark von den jeweiligen hydrogeologischen Gegebenheiten im Bereich der Uferzone abhängen.

Eine Möglichkeit zur Abschätzung des Stickstoff-Abbaus in der Uferzone könnte durch eine Gegenüberstellung der mit dem RF-Modell erstellten Grundwasserkonzentrationen und im Gewässer gemessenen Konzentrationen erfolgen. Da die Frachten in Oberflächengewässern jedoch mitunter erheblich durch Einträge von Punktquellen (Kläranlagen, industrielle Direkteinleiter) bestimmt werden, muss zunächst die Gewässerfracht ermittelt werden, die dem Anteil des Grundwasserzustroms entspricht. Erst dann kann ein Vergleich durchgeführt und ein möglicher Abbau ermittelt werden. Eine solche aufwendige Betrachtung zur Bestimmung des möglichen Stickstoff-Abbaus in der Uferzone konnte im Zeitrahmen des Projektes nicht abschließend durchgeführt werden und bleibt somit Gegenstand weiterer Modellentwicklungen.

6 Danksagung

Die im vorliegenden Forschungsbericht dargestellten Ergebnisse wurden im Rahmen des FuE-Vorhabens des Umweltbundesamtes „Bewertung von Maßnahmen zur Verminderung von Nitrateinträgen in die Gewässer auf Basis regionalisierter Stickstoff-Überschüsse“ (FKZ 37 1522 220 0; Laufzeit 2015 -2020) erarbeitet. Dem Umweltbundesamt ist für die Förderung zu danken.

Zahlreiche Personen haben mit Ideen, Anregungen und Diskussionsbeiträgen dazu beigetragen. Insbesondere möchten die Autorinnen und Autoren allen Personen und Dienststellen der Wasserwirtschaftsverwaltungen der Länder sowie des Umweltbundesamtes für ihre Unterstützung sehr herzlich danken, die mit der Übermittlung von Daten der Grundwassermessnetze der Länder sowie vielen weiteren Daten und Informationen zum Gelingen beigetragen haben. Dem LAWA-Ausschuss „Grundwasser und Wasserversorgung“ danken die Autorinnen und Autoren für die Gelegenheit, die Ansätze und Ergebnisse des Projekts dem Ausschuss vorzustellen und mit den Teilnehmerinnen und Teilnehmern zu diskutieren.

7 Literaturverzeichnis

- Bach M, Klement L, Häußermann U (2016): Bewertung von Maßnahmen zur Verminderung von Nitrateinträgen in die Gewässer auf Basis regionalisierter Stickstoff-Überschüsse. Teil I: Beitrag zur Entwicklung einer ressort-übergreifenden Stickstoffstrategie. Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau, UBA-Texte 55/2016, 48 S.
- Bach M, Häußermann U (2018): Berechnung von Stickstoff-Flächenbilanzen für Deutschland, Bundesländer und Kreise, Jahre 1995 bis 2016 (Projektbericht). Institut für Landschaftsökologie und Ressourcenmanagement, Justus-Liebig-Universität, Gießen (unveröff.)
- Bach M, Häußermann U, Klement L, Knoll L, Breuer L, Weber T, Fuchs St, Heldstab J, Reutimann J, Schäppi B (2020): Reaktive Stickstoffflüsse in Deutschland 2010-2014 (DESTINO Bericht 2). Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau, UBA-Texte 64/2020, 166 S.
- Bárdossy A, Giese H, Grimm-Strele J, Barufke KP (2003): SIMIK+ – GIS-implementierte Interpolation von Grundwasserparametern mit Hilfe von Landnutzungs- und Geologiedaten. Hydrol Wasserbewirtsch 47, 13–20.
- Behrendt H, Huber P, Kornmilch M, Opitz D, Schmoll O, Scholz G, Uebe R, Pagenkopf WG, Bach M. (1999): Nährstoffbilanzierung der Flussgebiete Deutschlands. Umweltbundesamt, UBA-Texte 75/99, 386 S.
- Behrendt H, Bach M, Kunkel R, Opitz D, Pagenkopf WG, Scholz G, Wendland F (2003): Internationale Harmonisierung der Quantifizierung von Nährstoffeinträgen aus diffusen und punktuellen Quellen in die Oberflächengewässer Deutschlands. Umweltbundesamt, UBA-Texte 82/2003, 232 S.
- Beisecker R, Blankenburg H, Bittersohl J, Evers J (2012): Diffuse Stoffausträge aus Wald und naturnahen Nutzungen. LAWA-Bund/Länder-Arbeitsgemeinschaft Wasser, Abschlussbericht. Kassel/Göttingen.
- Bergmann A, van Straaten L, van Berk W, Dietrich P, Franko U, Kiefer J (2013): Konsequenzen nachlassenden Nitratabbauvermögens in Grundwasserleitern. Abschlussbericht. DVGW Deutscher Verein des Gas- und Wasserfaches e. V. (DVGW), Bonn, 181 S.
- BGR (Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe) (2003a): Mittlere jährliche Grundwasserneubildung von Deutschland 1:1.000.000 (GWN1000), Hannover.
- BGR (Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe) (2003b): Mittlere jährliche Sickerwasserrate aus dem Boden in Deutschland 1:1.000.000 (SWR1000_250), Hannover.
- BGR (Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe) (2007): Nutzungsdifferenzierte Bodenübersichtskarte der Bundesrepublik Deutschland 1:1.000.000, (BÜK1000N), Version 2.3, Hannover.
- BGR (Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe) & SGD, 2016. Hydrogeologische Übersichtskarte von Deutschland 1:200.000, Oberer Grundwasserleiter (HÜK200 OGWL). Digitaler Datenbestand, Version 3.0, Hannover.
- BGR (Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe) (2016): HÜK200 - Hydrogeologische Übersichtskarte von Deutschland 1:200.000, Hannover.
- BKG (Bundesamt für Kartografie und Geodäsie) (2016): Geographische Gitter für Deutschland in UTM-Projektion (GeoGitter national) , Frankfurt a.M.
- BKG (Bundesamt für Kartografie und Geodäsie) (2016): Digitales Landbedeckungsmodell für Deutschland (LBM-DE2015), Frankfurt a.M.
- BMU/BMEL Hrsg] (2020): Nitratbericht 2020. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (BMU) und Bundesministerium für Ernährung und Landwirtschaft (BMEL), Berlin.
- BMU (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit) [Hrsg.] (2003): Hydrologischer Atlas Deutschland. Hydrometeorologie, Bonn.
- BMU (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit) [Hrsg.] (2014). Wasserwirtschaft in Deutschland – Teil 2: Gewässerqualität., Bonn.
- Breiman L (1984): Classification and Regression Trees. Routledge.
- Breiman L (2001): Random Forests. Mach Learn 45, 5-32.

- Boy-Roura M, Nolan BT, Menció A, Mas-Pla J (2013): Regression model for aquifer vulnerability assessment of nitrate pollution in the Osona region (NE Spain). *J Hydrol* 505, 150–162.
- Burrough PA, McDonnell RA (1998): *Principles of Geographical Information Systems*. New York.
- Close ME, Abraham P, Humphries B, Lilburne L, Cuthill T, Wilson S (2016) Predicting groundwater redox status on a regional scale using linear discriminant analysis. *J Contam Hydrol* 191, 19–32.
- De'ath G (2007): Boosted trees for ecological modeling and prediction. *Ecology* 88, 243-251.
- De'ath G, Fabricius KE (2000): Classification and regression trees: a powerful yet simple technique for ecological data analysis. *Ecology* 81, 3178-3192.
- EMEP/MSC-West (2018): Nasse und trockene atmosphärische Deposition von oxidiertem und reduziertem Stickstoff für das Jahr 2015. EMEP-Meteorological Synthesizing Centre - West (EMEP/MSC-West). (http://www.emep.int/mscw/mscw_ydata.html#ASCIIdata, 20.08.2018).
- Eschenbach W, Budziak D, Elbracht J, Hoepfer H, Krienen L, Kunkel R, Meyer K, Well R, Wendland F (2018): Possibilities and limitations of validating modelled nitrate inputs into groundwater at the macroscale using the N2/Ar-method. *Grundwasser* 23, 125–39.
- EU Copernicus programme (2018): High Resolution Layer: Imperviousness Density (IMD) 2015: European Environment Agency (EEA). (<https://land.copernicus.eu/pan-european/high-resolution-layers/imperviousness/status-maps/2015>, geprüft 18.02.2020).
- European Environment Agency (EEA) [Hrsg.] (2016): CORINE Land Cover vector data. 2012. Copernicus Land Monitoring Services. European Environment Agency (EEA). (<http://land.copernicus.eu/pan-european/corine-land-cover/view>, 19.04.2016).
- Freund Y, Schapire RE, 1996. Experiments with a New Boosting Algorithm. In: *Proceedings of the Thirteenth International Conference on Machine Learning, ICML'96*. Morgan Kaufmann Publishers Inc., San Francisco, CA, USA, 148–156.
- Friedel MJ, Wilson SR, Close ME, Buscema M, Abraham P, Banasiak L (2020): Comparison of four learning-based methods for predicting groundwater redox status. *J Hydrol* 580, 124200.
- Fuchs St, Scherer U, Wander R, Behrendt H, Venohr M, Opitz D, Hillenbrand T, Marscheider-Weidemann F, Götz T (2010): Berechnung von Stoffeinträgen in die Fließgewässer Deutschlands mit dem Modell MONERIS. UBA-Texte 45/2010.
- Fuchs St, Toshovski S, Wander R, Kittlaus S, Reid L (2016): Aktualisierung der Stoffeintragsmodellierung (Regionalisierte Pfadanalyse) für die Jahre 2012 bis 2014. Karlsruher Institut für Technologie, Institut für Wasser und Gewässerentwicklung, Fachbereich Siedlungswasserwirtschaft und Wassergütewirtschaft. Karlsruhe.
- Fuchs St, Weber T, Wander R, Toshovski S, Kittlaus S, Reid L (2017): Effizienz von Maßnahmen zur Reduktion von Stoffeinträgen. Umweltbundesamt (UBA), Dessau-Roßlau, UBA-Texte 05/2017.
- Fuchs St, Allion K, Morling K, Toshovski S (2019): Aktualisierung der Stoffeintragsmodellierung (Regionalisierte Pfadanalyse) für die Jahre 2015-2016. Karlsruher Institut für Technologie, Institut für Wasser und Gewässerentwicklung, Fachbereich Siedlungswasserwirtschaft und Wassergütewirtschaft, Karlsruhe.
- Goodchild MF (1992): Geographical Data Modelling. *Computers Geosciences* 4(18), 401-408.
- Grimm-Strele J, Casper M, van Dijk P, Finck M, Gudera T, Korte S (2008): Modelling system MoNit for simulation of groundwater pollution by nitrate of the Upper Rhine valley aquifer. *Wasserwirtschaft* 98, 55–9.
- Gu Baojing, Ge Y, Chang SX, Luo W, Chang J (2013): Nitrate in groundwater of China: Sources and driving forces. *Global Environ Change* 23(5), 1112-1121.
- Hannappel S, Koepf C, Bach T (2018): Characterization of the denitrification potential of aquifers in Saxony-Anhalt. *Grundwasser* 23, 311–21.
- Hastie T, Tibshirani R, Friedman J (2009): *The Elements of Statistical Learning*. Springer, 2nd ed, 745 p.
- Häußermann U, Bach M, Klement L, Breuer L (2019): Stickstoff-Flächenbilanzen für Deutschland mit Regionalgliederung Bundesländer und Kreise – Jahre 1995 bis 2017, Methodik, Ergebnisse und Minderungsmaßnahmen. Umweltbundesamt (UBA), Dessau-Roßlau, UBA-Texte 131/2019, 167 S.

- HELCOM (Helsinki Kommission) (2020): Thematic assessment of eutrophication 2011-2016. Supplementary report to the HELCOM 'State of the Baltic Sea' report (PRE-PUBLICATION) (http://stateofthebalticsea.helcom.fi/wp-content/uploads/2018/07/HELCOM_Thematic-assessment-of-eutrophication-2011-2016_pre-publication.pdf, abgerufen 22.2.2021)
- Hill AR (2019): Groundwater nitrate removal in riparian buffer zones: a review of research progress in the past 20 years. *Biogeochemistry* 143, 347–369.
- HLNUG (Hessisches Landesamt für Naturschutz, Umwelt und Geologie) (2019): Ergebnisse der N₂/Ar-Messungen im Grundwasser in Hessen, Wiesbaden. (https://www.hlnug.de/fileadmin/dokumente/das_hlnug/jahresberichte/2019/Seiten_aus_Jahresbericht_2019_W4_Die_N2Argon-Methode.pdf).
- HLNUG (Hessisches Landesamt für Naturschutz, Umwelt und Geologie) (2018): Karte Grundwasserbeschaffenheit - Flächige Nitratverteilung 2008 – 2010. Umweltatlas Hessen (http://atlas.umwelt.hessen.de/servelet/Frame/atlas/wasser/grundwasser/beschaff_txt.htm).
- Hovenbitzer M (2015): Copernicus in der Praxis am Beispiel des Landbedeckungsmodells Deutschland (LBM-DE). Management natürlicher Ressourcen mit Hilfe von Copernicus Diensten und Daten. Vortrag. München, 12.11.2015.
- Jankiewicz P, Neumann J, Duijnsveld WHM, Wessolek G, Wycisk P, Hennings V (2005): Abflusshöhe - Sickerwasserrate - Grundwasserneubildung - Drei Themen im Hydrologischen Atlas von Deutschland. *Hydrologie und Wasserbewirtschaftung HyWa* 49, 2-13.
- Johnson TD, Belitz K (2009): Assigning land use to supply wells for the statistical characterization of regional groundwater quality: Correlating urban land use and VOC occurrence. *J Hydrol* 370, 100–108.
- Khalil A, Almasri MN, McKee M, Kaluarachchi JJ (2005): Applicability of statistical learning algorithms in groundwater quality modeling. *Water Resources* 41(5), W05010.
- Kiemle L, Fuchs St, Henning K (2015): Modellierung der Nährstoffeinträge in die Fließgewässer Baden-Württembergs für die Aktualisierung der Bewirtschaftungspläne nach WRRL. Modellbeschreibung und Ergebnisse der MONERIS-BW Version „März 2015. Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg (LUBW), Karlsruhe.
- Kiese R, Heinzler Ch, Werner Ch, Wochele S, Grote R, Butterbach-Bahl, K (2011): Quantification of nitrate leaching from German forest ecosystems by use of a process oriented biogeochemical model. In: *Environmental Pollution* 159 (11), S. 3204–3214.
- Knoll L, Bach M, Breuer L (2019): Large scale prediction of groundwater nitrate concentrations from spatial data using machine learning. *Sci Total Environ* 668, 1317-1327.
- Knoll L, Breuer L, Bach M (2020a): Nation-wide estimation of groundwater redox conditions and nitrate concentrations through machine learning. *Environ Res Lett* 15, 064004.
- Knoll L, Häußermann U, Breuer L, Bach M (2020b): Spatial Distribution of Integrated Nitrate Reduction across the Unsaturated Zone and the Groundwater Body in Germany. *Water* 2020, 12, 2456; doi:10.3390/w12092456.
- Koch J, Stisen S, Refsgaard JC, Ernstsens V, Jakobsen PR, Højberg AL (2019): Modeling Depth of the Redox Interface at High Resolution at National Scale Using Random Forest and Residual Gaussian Simulation. *Water Resour Res* 55, 1451–69.
- Kollatsch RA, Küchler A, Schwerdtfeger B, Stölken B, Hannappel S (2006): Regionalisierung diffuser stofflicher Grundwasserbelastungen in Mecklenburg-Vorpommern. *Wasser und Abfall* 3/2006, 40-45.
- Korom SF (1992): Natural denitrification in the saturated zone: A review. *Water Resour Res* 28, 1657-68.
- Kuhn M, Johnson K (2013): *Applied Predictive Modeling*. Springer, New York (online: [//www.springer.com/de/book/9781461468486](http://www.springer.com/de/book/9781461468486)).
- Kuhr P, Haider J, Kreins P, Kunkel R, Tetzlaff B, Vereecken H, Wendland F (2013): Model Based Assessment of Nitrate Pollution of Water Resources on a Federal State Level for the Dimensioning of Agro-environmental Reduction Strategies. *Water Resour Manag* 27, 885–909.

- Kunkel R, Bach M, Behrendt H, Wendland F (2004): Groundwater-borne nitrate intakes into surface waters in Germany. *Water Sci Technol* 49, 11–19.
- Kunkel R, Herrmann F, Kape HE, Keller L, Koch F, Tetzlaff B, Wendland F (2017): Simulation of terrestrial nitrogen fluxes in Mecklenburg-Vorpommern and scenario analyses how to reach N-quality targets for groundwater and the coastal waters. *Environ Earth Sci* 76, 146.
- Kunkel R, Montzka C, Wendland F (2007): Anwendung des im Forschungszentrum Jülich entwickelten Modells WEKU zur Ableitung flussgebietsbezogener Aufenthaltszeiten des Grundwassers in Deutschland. Umweltbundesamt, UFOPLAN-Projekt 205 24 204, Endbericht Teilvorhaben.
- LAWA (Länderarbeitsgemeinschaft Wasser) (2018): Konzept zur Beurteilung der Grundwassergüte anhand weiterer Stoffgehalte unter Berücksichtigung eines möglichen Nitratabbaus. Bund/Länder-Arbeitsgemeinschaft Wasser (LAWA), Ständiger Ausschuss „Grundwasser und Wasserversorgung (AG)“, Stand 06. Februar 2018.
- Liaw A, Wiener M (2002): Classification and Regression by Random Forest. *R News* 2, 8–22.
- Liebscher HJ, Keller R (1979): Abfluss. In: Keller R (Ed.), Textband zum Hydrologischen Atlas der Bundesrepublik Deutschland, Bonn.
- LUBW (Landesanstalt für Umwelt Baden-Württemberg) (2004): Integrale Datenanalyse zur Abschätzung von regionalen Stickstoffsalden, von Denitrifikationsraten sowie zur orientierenden Prognose von Grundwasserkonzentrationen (IDAS). Abschätzung und Bewertung der Stickstoff-Bilanzüberschüsse auf landwirtschaftlich genutzten Flächen in Baden-Württemberg, Karlsruhe.
- Lutz S, Trauth R, Musolff A, van Breukelen BM, Knöller K, Fleckenstein JH (2020): How Important is Denitrification in Riparian Zones? Combining End-Member Mixing and Isotope Modeling to Quantify Nitrate Removal from Riparian Groundwater. In: *Water Resour. Res.* 56 (1), e2019WR025528. DOI: 10.1029/2019WR025528.
- McMahon PB, Chapelle FH (2008): Redox Processes and Water Quality of Selected Principal Aquifer Systems. *Groundwater* 46, 259–71.
- Meinardi CR, Beusen AHW, Bollen MJS, Klepper O (1994): Vulnerability to diffuse pollution of European soils and groundwater. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), RIVM Rapport 461501002.
- Meinshausen N (2006): Quantile Regression Forests. *J Mach Learn Res* 7, 983-999.
- Merz C, Steidl J, Dannowski R (2009): Parameterization and regionalization of redox based denitrification for GIS-embedded nitrate transport modeling in Pleistocene aquifer systems. *Environ Geol* 58, 1587.
- Morling K (2019): Urbane Agglomerationsräume. Erstellung eines GIS-Datensatzes im Rahmen des Projektes „Nutzung der harmonisierten Wasserhaushaltsmodellierung (LARSIM-ME der BfG) bei der bundesweiten Stoffeintragsmodellierung mit MoRE“ (UBA FKZ 3717 22 223 0). KIT Karlsruhe, Institut f. Siedlungswasserwirtschaft.
- Nolan BT, Hitt KJ (2006): Vulnerability of shallow groundwater and drinking-water wells to nitrate in the United States. *Environ Sci Technol* 40, 7834–7840.
- Nolan BT, Hitt KJ, Ruddy BC (2002): Probability of nitrate contamination of recently recharged groundwaters in the conterminous United States. *Environ Sci Technol* 36, 2138–2145.
- Nolan BT, Fienen MN, Lorenz DL (2015): A statistical learning framework for groundwater nitrate models of the Central Valley, California, USA. *J Hydrol* 531, 902–911.
- Nolan BT, Gronberg JM, Faunt CC, Eberts SM, Belitz K (2014): Modeling Nitrate at Domestic and Public-Supply Well Depths in the Central Valley, California. *Environ Sci Technol* 48, 5643–5651.
- Oelmann M, Czichy Ch, Scheele U, Zaun S, Dördelmann O, Harms E, Penning M, Kaupe M, Bergmann A, Steenpaß Ch (2017): Quantifizierung der landwirtschaftlich verursachten Kosten zur Sicherung der Trinkwasserbereitstellung (FKZ 3716 74 263 0). Umweltbundesamt (UBA), Dessau-Roßlau, UBA-Texte 43/2017, 252 S.
- Pesch R (2013): Einsatz landschaftsökologischer Regionalisierungsverfahren im terrestrischen und marinen stoffbezogenen Umweltmonitoring. Habilschrift, Univ. Vechta, 204 S.
- OSPAR (Oslo und Paris Konvention) (2020): Third OSPAR Integrated Report on the Eutrophication Status of the OSPAR Maritime Area, 2006-2014 (<https://oap.ospar.org/en/ospar-assessments/intermediate-assessment-2017/pressures-human-activities/eutrophication/third-comp-summary-eutrophication/>; abgerufen 22.2.2021).

- Ouedraogo I, Defourny P, Vanclooster M (2018): Application of random forest regression and comparison of its performance to multiple linear regression in modeling groundwater nitrate concentration at the African continent scale. *Hydrogeol J* 27, 1081-1098.
- Ransom KM, Nolan BT, Traum A, Faunt J, Bell CC, Gronberg AM, Wheeler JAM (2017): A hybrid machine learning model to predict and visualize nitrate concentration throughout the Central Valley aquifer, California, USA. *Sci Total Environ* 601–602, 1160–1172.
- Rivett MO, Buss SR, Morgan P, Smith JWN, Bemment CD (2008): Nitrate attenuation in groundwater: A review of biogeochemical controlling processes. *Water Res.* 42 4215–32.
- Rodriguez-Galiano V, Mendes MP, Garcia-Soldado MJ, Chica-Olmo M, Ribeiro L (2014): Predictive modeling of groundwater nitrate pollution using Random Forest and multisource variables related to intrinsic and specific vulnerability: A case study in an agricultural setting (Southern Spain). *Sci Total Environ* 476–477, 189–206.
- Rodriguez-Galiano VF, Luque-Espinar JA, Chica-Olmo M, Mendes MP (2018): Feature selection approaches for predictive modelling of groundwater nitrate pollution: An evaluation of filters, embedded and wrapper methods. *Sci Total Environ* 624, 661–672.
- Rösemann C, Haenel HD, Dämmgen U, Freibauer A, Wulf S, Eurich-Menden B, Döhler H, Schreiner C, Bauer B, Osterburg B (2019): Calculations of gaseous and particulate emissions from German Agriculture 1990- 2013; Report on methods and data (RMD). Submission 2019. Von Thünen-Institut, Braunschweig, Thünen Report 67.
- Rosecrans CZ, Nolan BT, Gronberg JM (2017): Prediction and visualization of redox conditions in the groundwater of Central Valley, California. *J Hydrol* 546 341–56.
- Schaap M, Hendriks C, Kranenburg R, Kuenen J, Segers A, Schlutow A (2018): PINETI-3: Modellierung atmosphärischer Stoffeinträge von 2000 bis 2015 zur Bewertung der ökosystem-spezifischen Gefährdung von Biodiversität durch Luftschadstoffe in Deutschland. Umweltbundesamt (UBA), Dessau-Roßlau, UBA-Texte 79/2018.
- Schwanekamp C (2017): Bestimmung des Exzess-Stickstoffes in Grundwasser mit der Stickstoff/Argon-Methode an ausgewählten Pilotmessstellen in Nordrhein-Westfalen. MSc-Arbeit, Hochschule Niederrhein, Krefeld (https://www.flussgebiete.nrw.de/system/files/atoms/files/masterarbeit_schwanekamp_druckversion.pdf, abgerufen 22.2.2021)
- Tesoriero AJ, Gronberg JA, Juckem PF, Miller MP, Austin BP (2017): Predicting redox-sensitive contaminant concentrations in groundwater using random forest classification. *Water Resour Res* 53, 7316–7331.
- TLUG (Thüringer Landesanstalt für Umwelt und Geologie) (o.J.): Regionalisierte Nitratbelastung des Grundwasser SIMIK+ Thüringen 2012. In: Nährstoffe in thüringischen Gewässern https://www.thueringen.de/mam/th8/tlug/content/abt_1/aktuelles/zusammenfassendes_begleitpapier_naehrstoffsituation_1.pdf; 29.01.2021)
- Tyralis H, Papacharalampous G, Langousis A (2019): A Brief Review of Random Forests for Water Scientists and Practitioners and Their Recent History in Water Resources. *Water* 11, 910.
- UBA (2019): Chemischer Zustand des Grundwassers. Umweltbundesamt (UBA), Dessau-Roßlau (Online verfügbar unter <https://www.umweltbundesamt.de/themen/wasser/grundwasser/zustand-des-grundwassers/chemischer-zustand-des-grundwassers#undefined>, abgerufen 19.08.2020).
- Venohr M, Hirt U, Hofmann J, Opitz D, Gericke A, Wetzig A, Natho S, Neumann F, Hürdler J, Matranga M, Mahnkopf J, Gadegast M, Behrendt H (2011): Modelling of Nutrient Emissions in River Systems – MONERIS – Methods and Background. *International Review of Hydrobiology* 96, 435–483.
- Wang B, Oldham C, Hipsey MR (2016): Comparison of Machine Learning Techniques and Variables for Groundwater Dissolved Organic Nitrogen Prediction in an Urban Area. *Procedia Engineering*, 12th International Conference on Hydroinformatics (HIC 2016) - Smart Water for the Future 154, 1176–1184.
- Wendland F, Blum A, Coetsiers M, Gorova R, Griffioen J, Grima J, Hinsby K, Kunkel R (2008): European aquifer typology: a practical framework for an overview of major groundwater composition at European scale. *Environ Geol* 55, 77–85.
- Wendland F, Bergmann S, Eisele M, Gömann H, Herrmann F, Kreins P, Kunkel R (2020): Model-Based Analysis of Nitrate Concentration in the Leachate—The North Rhine-Westfalia Case Study, Germany. *Water* 12, 550.

Wheeler DC, Nolan BT, Flory AR, DellaValle CT, Ward MH (2015): Modeling groundwater nitrate concentrations in private wells in Iowa. *Sci Total Environ* 536, 481–488.

Wilde S, Hansen C, Bergmann A (2017): Decreasing denitrification capacity in aquifers: Scaled model-based evaluation. *Grundwasser* 22, 293–308.

Wilson SR, Close ME, Abraham P, Sarris TS, Banasiak L, Stenger R, Hadfield J (2020): Achieving unbiased predictions of national-scale groundwater redox conditions via data oversampling and statistical learning. *Sci Total Environ* 705, 135877.

Wriedt G, Rode M (2006): Modelling nitrate transport and turnover in a lowland catchment system. *J Hydrol* 328, 157–176.

Anhang

A.1 Eingangsdaten MoRE

Tabelle 9: Zuordnung der CLC Codes für die Kategorie „Landwirtschaftsflächen“ zu den Landnutzungsklassen „Ackerland“ und „Grünland“ in MoRE

CLC_ID	MoRE-Landnutzungsklassen	Beschreibung (CLC-Klassifikation)
211	Ackerland	Nicht bewässertes Ackerland
212	Ackerland	Regelmäßig bewässertes Ackerland
213	Ackerland	Rieselfelder
221	Ackerland	Weinanbauflächen
222	Ackerland	Obst und Beerenobstbestände
223	Ackerland	Olivenhaine
241	Ackerland	Einjährige Kulturen in Verbindung mit Dauerkulturen
242	Ackerland	Komplexe Parzellenstrukturen
243	Ackerland	Landwirtschaftlich genutztes Land mit Flächen natürlicher Vegetation von signifikanter Größe
244	Ackerland	Land- und forstwirtschaftliche Flächen
231	Grünland	Wiesen und Weiden

Die Summe der Flächen oben aufgelisteten Klassen wird als landwirtschaftliche Nutzfläche in MoRE betrachtet.

Tabelle 10: Ackerflächen (in km²) in Deutschland, aufgeteilt nach den in MoRE genutzten Hangneigungsklassen (in Klammern Angabe des prozentualen Anteils an der gesamten Ackerfläche), die für drei verschiedene Landnutzungs-Datensätze ermittelt wurden

Hangneigungs- klasse	Landnutzungs-Datensatz		
	CLC 2012	LBM-DE 2015	ATKIS 2016 ^a
Gefälle <1%	40.867 (29%)	32.868 (26%)	33.134 (26%)
Gefälle 1-2%	28.793 (21%)	23.463 (18%)	23.795 (19%)
Gefälle 2-4%	30.422 (22%)	25.905 (20%)	26.299 (20%)
Gefälle 4-8%	25.931 (19%)	25.706 (20%)	26.102 (20%)
Gefälle >8%	14.054 (10%)	18.911 (15%)	19.169 (15%)
Gesamt	140.065	126.853	128.499

^a Die Daten für den ATKIS-Datensatz wurden im Rahmen eines weiteren Forschungsvorhabens ermittelt und sind hier vergleichend aufgeführt.

A.2 Datengrundlagen der Random Forest-Modellierung der Sauerstoff-, Eisen- und Nitrat-Konzentration im Grundwasser

Tabelle 11: Statistische Kenngrößen der Messwerte der Konzentration (in mg/l) von Sauerstoff (O₂), Eisen (Fe) und Nitrat (NO₃) (Mittelwerte 2009-2018) der WRRL-Grundwassermessstellen in Deutschland

Statistisches Verteilungsmaß	O ₂	Fe	NO ₃
Anzahl	5.837	5.628	5.414
Minimum	0,00	0,002	0,01
1. Quartil	0,27	0,010	0,63
Median	1,72	0,090	7,80
Mittelwert	3,52	1,614	21,46
3. Quartil	6,81	1,530	33,45
Maximum	12,27	27,42	148,78

Abbildung 31: Verteilungsdichte der Messwerte der Konzentration (in mg/l) von a) Sauerstoff (O₂), b) Eisen (Fe) und c) Nitrat (NO₃) (Mittelwerte 2009-2018) der WRRL-Grundwassermessstellen in Deutschland

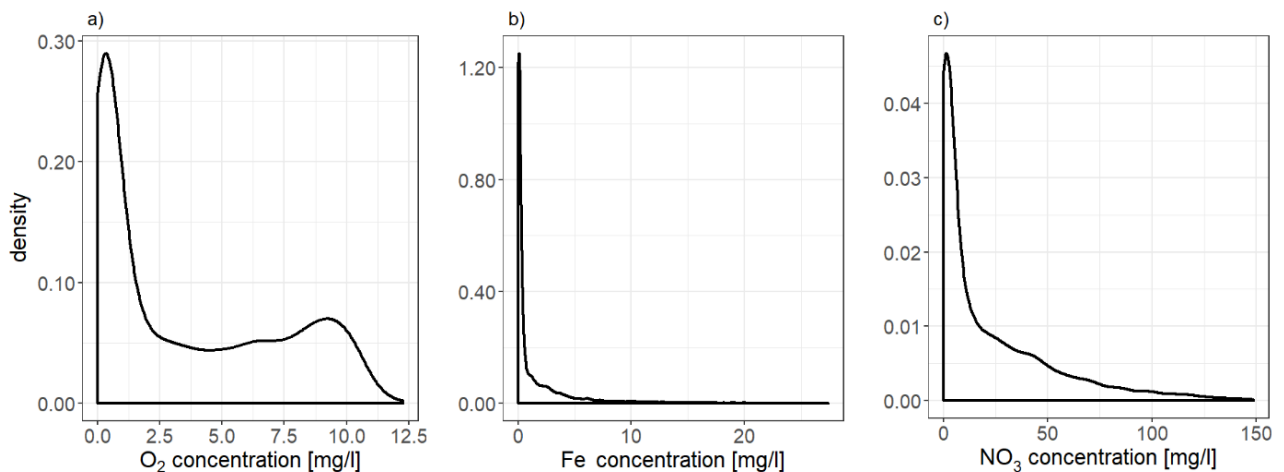
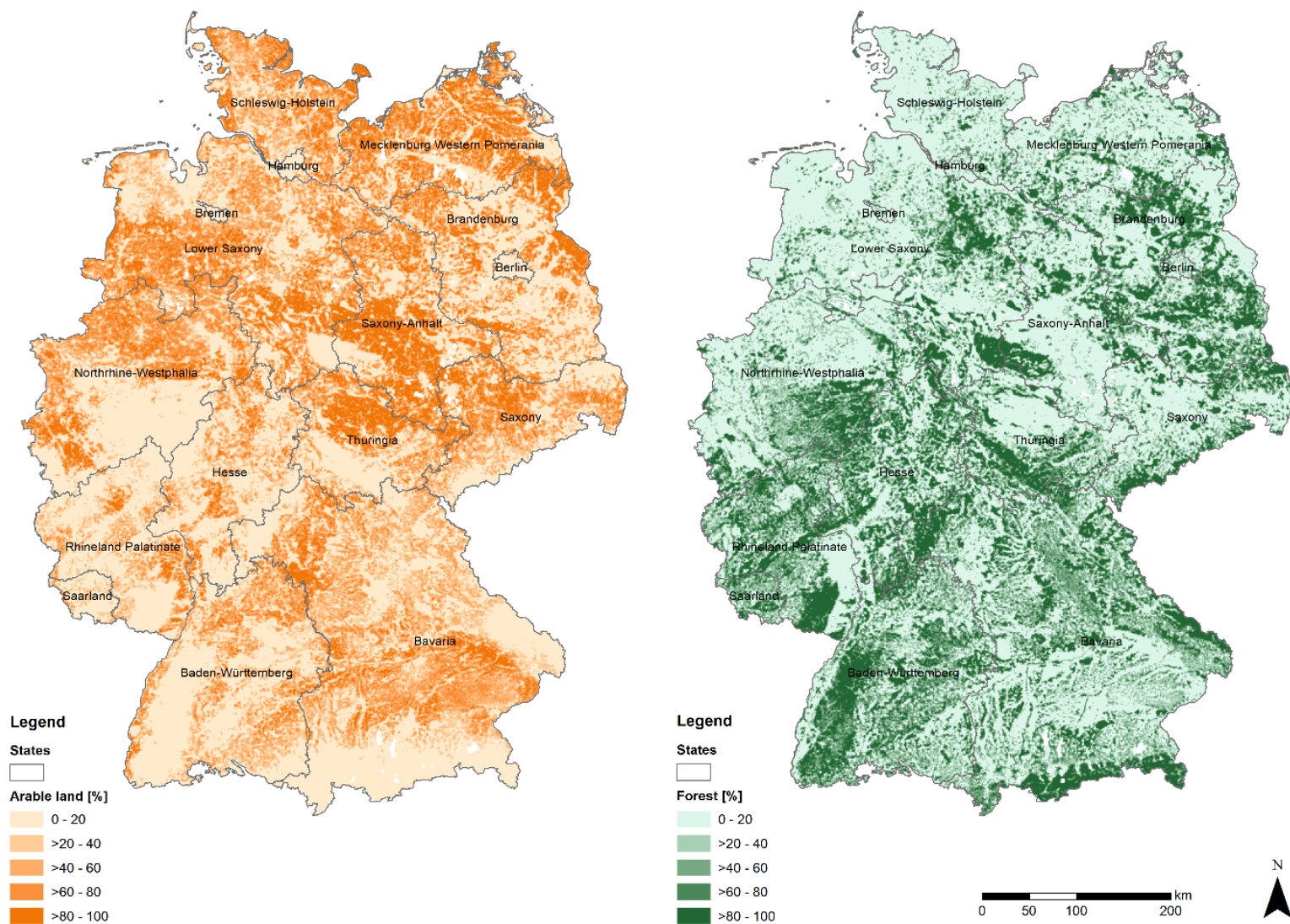


Tabelle 12: Zusammenstellung der Variablen, die als Prädiktoren für die Random Forest (RF)-Modellierung der Klassierung der Redox-Verhältnisse und der Nitratkonzentration im Grundwasser verwendet werden

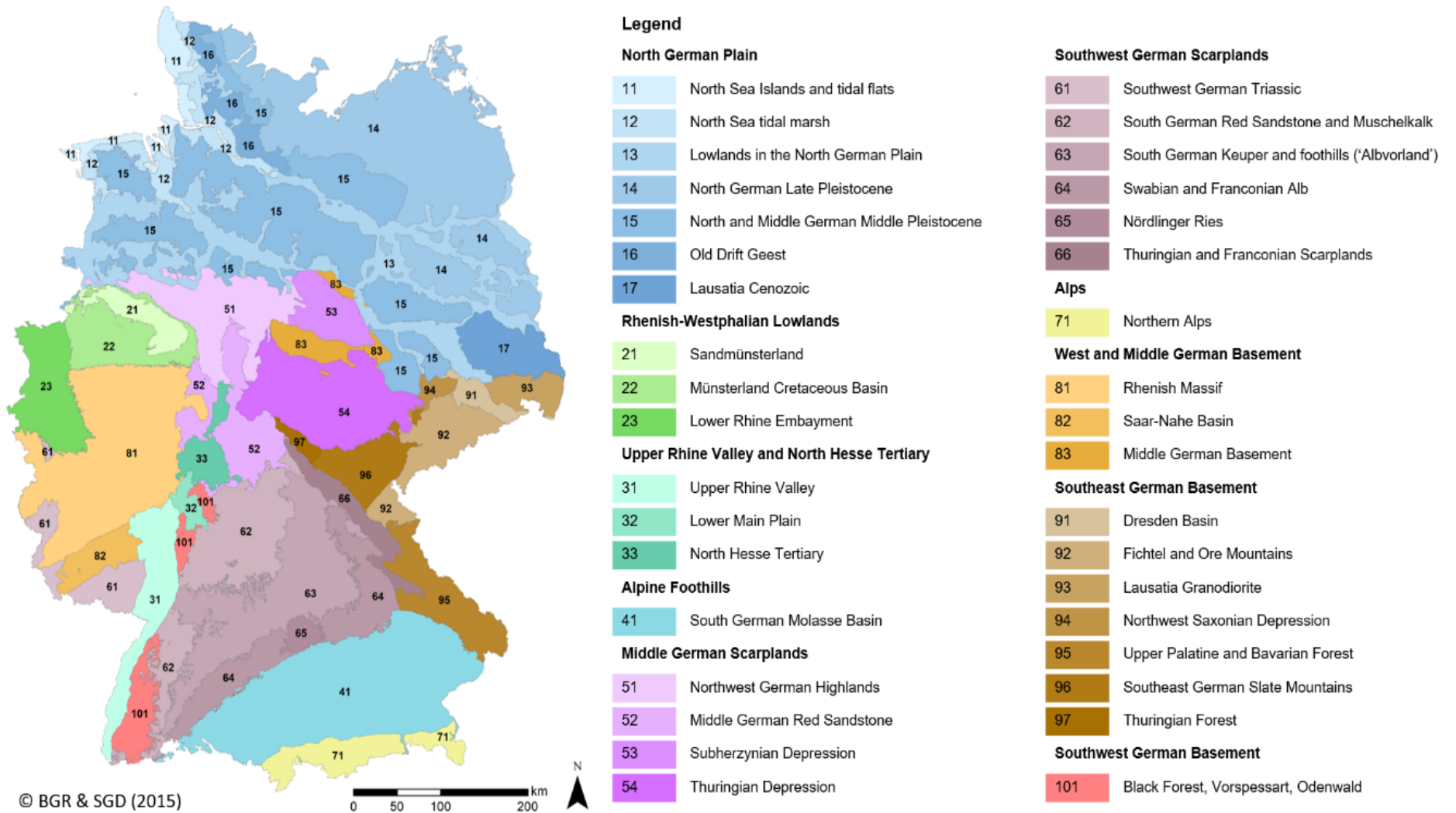
Prädiktor-Variablen	Einheit	Variablen-Name	Variablen-Typ	Verwendetes Modell	Quelle
Landnutzung					
Urban Land	%	urban_land	numerisch		LBM-DE2012 (BKG 2016)
Arable Land	%	arable_land	numerisch		
Grassland	%	grassland	numerisch		
Forest	%	forest	numerisch		
Special crops	%	special_crops	numerisch		
Water	%	water	numerisch		
Hydrosphärischer N-Überschuss (Mittel 2007-2016)	kg N ha ⁻¹ a ⁻¹	Nsurp_cm	numerisch	RF _{NO3}	Häußermann et al. (2019), veränd.
Hydrogeologie und Hydrologie					
Hydrogeologische Einheiten (32 Klassen)	(-)	hyd_unit	kategorial	RF _{O2} , RF _{Fe} , RF _{NO3}	HYRAUM (BGR & SGD 2015)
Gesteinstyp des Aquifers (3 Klassen)	(-)	L_GA	kategorial	RF _{O2}	
Consolidation Aquifer (3 Klassen)	(-)	L_VF	kategorial	RF _{O2} , RF _{NO3}	
Aquifer-Typ (4 Klassen)	(-)	L_HA	kategorial	RF _{O2} , RF _{NO3}	
Geochemischer Gesteinstyp des Aquifers (7 Klassen)	(-)	L_GC	kategorial	RF _{O2} , RF _{NO3}	
Hydraulische Konduktivität (11 Klassen)	(-)	L_KF	kategorial	RF _{O2} , RF _{Fe} , RF _{NO3}	
Aquifer Charakter (3 Klassen)	(-)	L_CH	kategorial	RF _{O2} , RF _{NO3}	
Sickerwasserrate	mm/a	SWR	numerisch	-	SWR1000_250 (BGR 2003b)
Grundwasserneubildungsrate	mm/a	GWR	numerisch	RF _{O2} , RF _{Fe} , RF _{NO3}	HAD55_gwn1000_v1_raster (BGR 2003a)
Potenzielle Nitratkonzentration im Sickerwasserr	mg NO ₃ /l	SWR_conc	numerisch	RF _{NO3}	Berechnet aus SWR und N-surplus
Mittlere Verweilzeit im Grundwasser	Jahre	RTGW	numerisch	RF _{O2} , RF _{Fe} , RF _{NO3}	Kunkel et al. (2007), zit. N. Fuchs et al. (2010)
Redox-Verhältnisse (4 Klassen)	(-)	Redox	kategorial	RF _{NO3}	Berechnet aus O ₂ - und Fe-Konzentration im Grundwasser
Bodeneigenschaften					
Feldkapazität (0-1 m Bodentiefe)	mm	FC	numerisch	RF _{O2} , RF _{Fe} , RF _{NO3}	FK10dm1000_250 (BGR 2015)
Humus Gehalt im Oberboden (0-10 cm für Grünland und Wald, 0-30 cm für Acker)	%	HUMUS	numerisch	RF _{O2} , RF _{Fe} , RF _{NO3}	HUMUS1000 (BGR 2007)

Abbildung 32: Anteile der Landnutzungen Ackerland (links) und Wald (rechts) in Deutschland (BKG 2016)



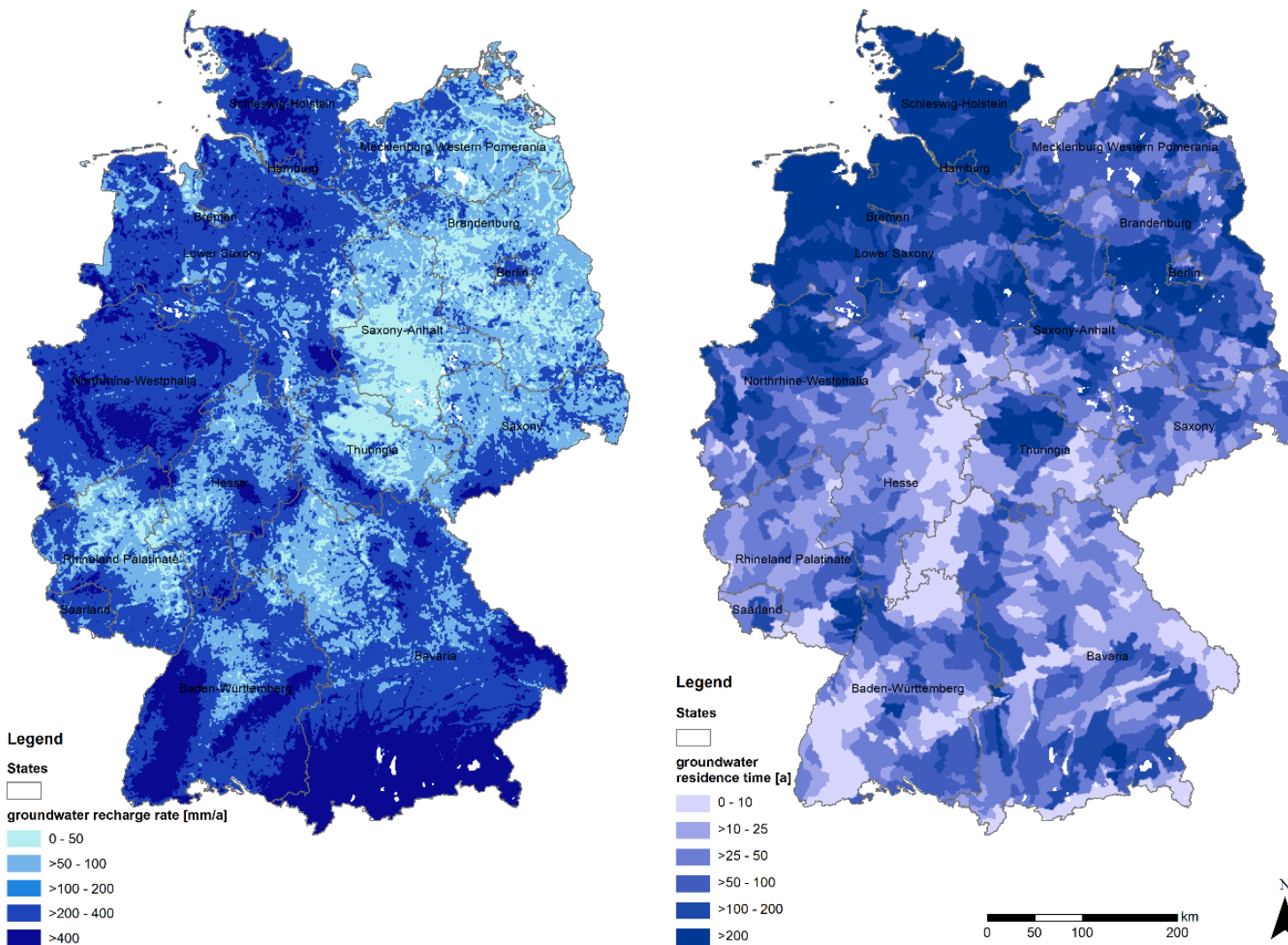
Quelle: BKG (2016). Kartengrundlage: © Geo-BasisDE / BKG 2018.

Abbildung 33: Hydrogeologische Raumgliederung von Deutschland, Merkmal „hydrogeologische Räume“ (BGR & SGD 2015)



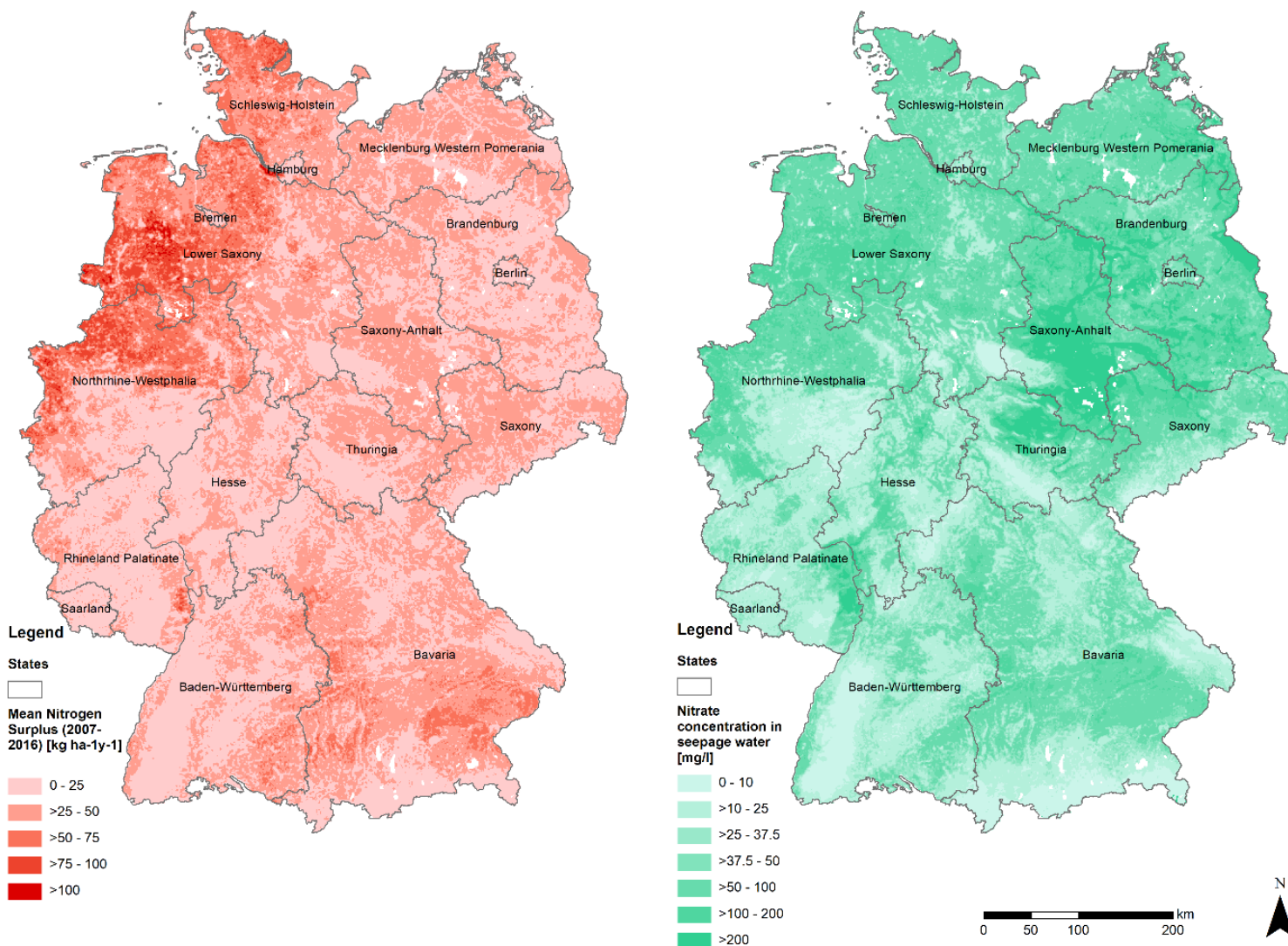
Quelle: BGR & SDG (2015).

Abbildung 34: Grundwasserneubildungsrate (BGR 2003a) (links) und Grundwasserverweilzeiten (Kunkel et al. 2007, Fuchs et al. 2010) (rechts) in Deutschland



Kartengrundlage: © Geo-BasisDE / BKG 2018.

Abbildung 35: Mittlerer Flächennutzungs-gewichteter hydrosphärischer Stickstoff-Überschuss 2007–2016 (für die Landwirtschaftsfläche n. Häußermann et al. 2019) (links) und berechnete potenzielle Nitratkonzentration im Sickerwasser (rechts) in Deutschland



Kartengrundlage: © Geo-BasisDE / BKG 2018.

Abbildung 36: Relative Bedeutung (Importance) der Prädiktoren der Random Forest-Modellierung der räumlichen Verteilung der a) Sauerstoff (O₂)-Konzentration, b) Eisen (Fe)-Konzentration und c) Nitrat (NO₃)-Konzentration im Grundwasser in Deutschland

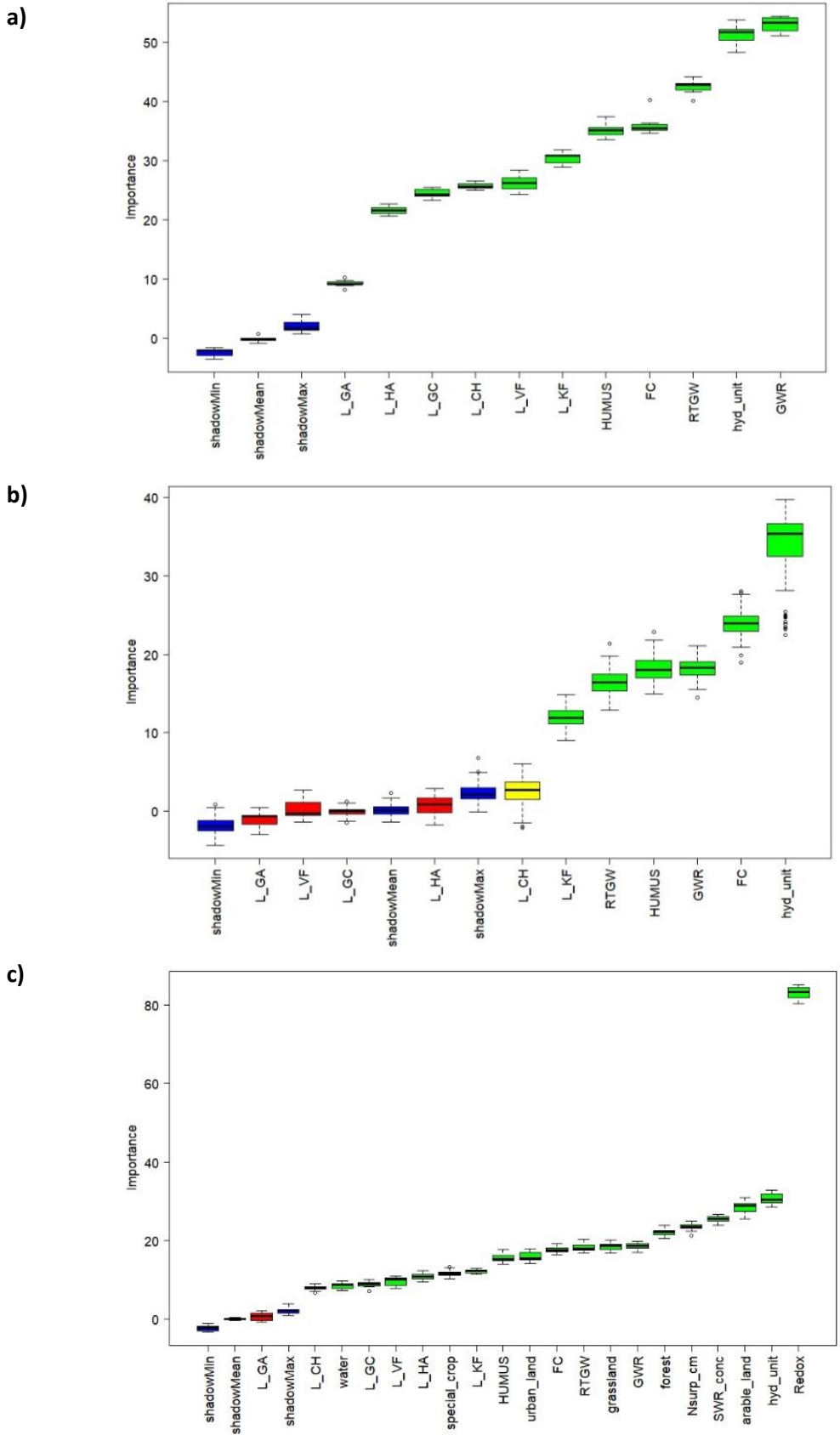


Abbildung 37: Räumliche Verteilung der Sauerstoff (O₂)-Konzentration (2009-2018) im Grundwasser in Deutschland nach Random Forest-Modellierung, a) Mittelwert (Häufigkeitsverteilung s. Abbildung A9a), b) Median und c) 90 % Vorhersageintervall (Prediction Interval, PI)

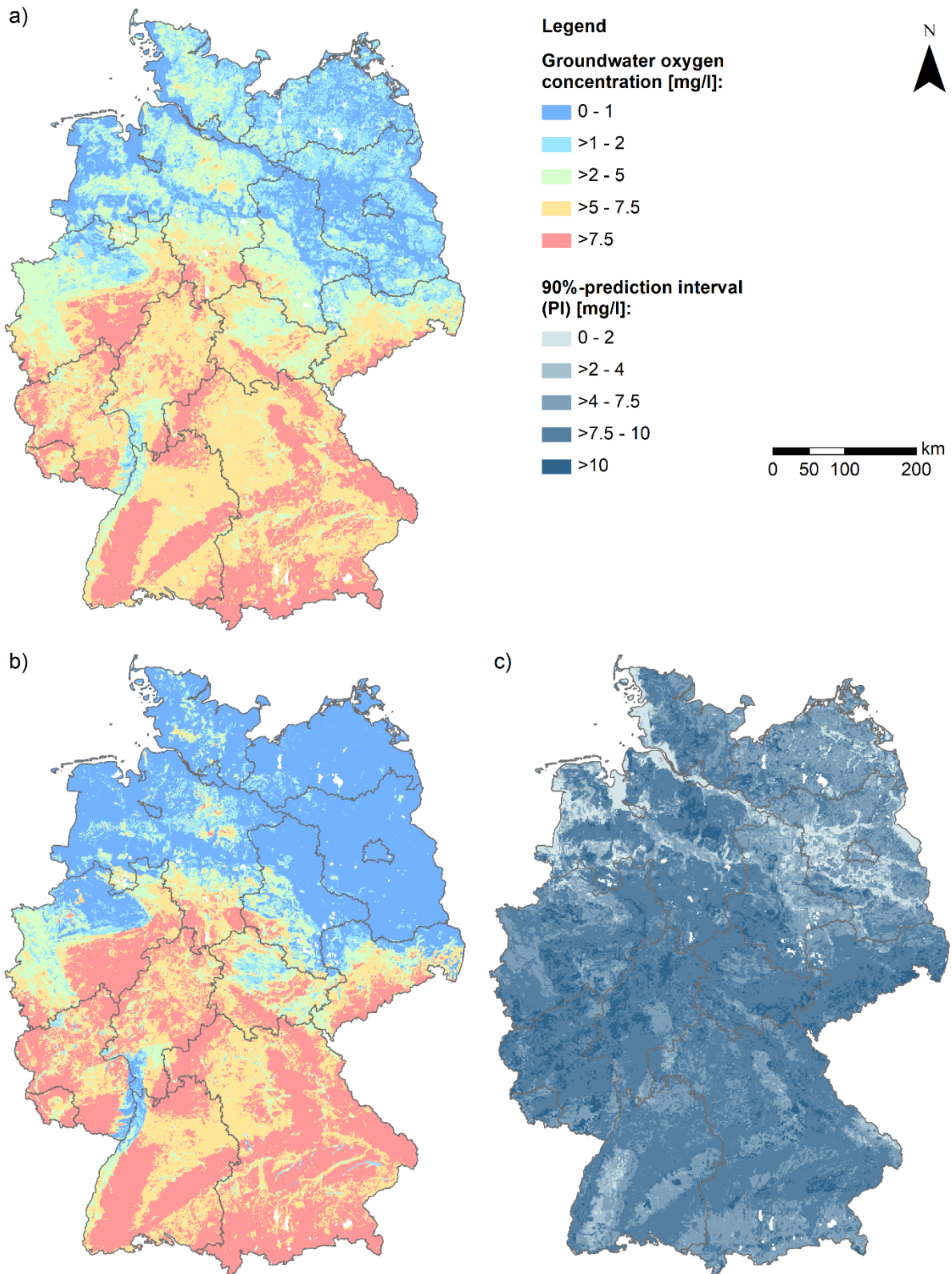


Abbildung 38: Räumliche Verteilung der Eisen (Fe)-Konzentration (2009-2018) im Grundwasser in Deutschland nach Random Forest-Modellierung, a) Mittelwert, b) Median (Häufigkeitsverteilung s. Abbildung A9b) und c) 90 % Vorhersageintervall (Prediction Interval, PI)

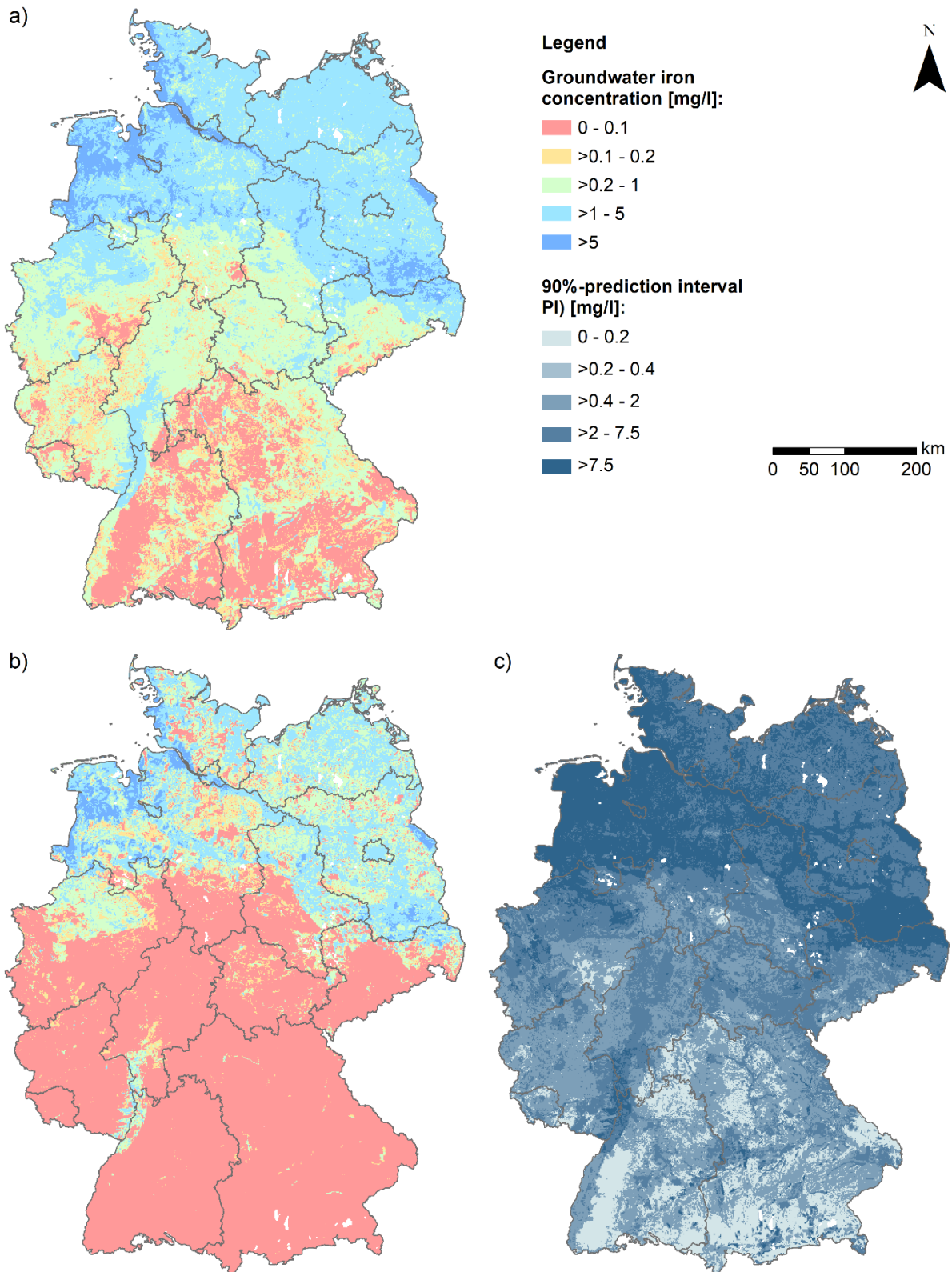


Abbildung 39: Verteilungsdichte der mittels Random Forest modellierten Konzentrationsverteilungen von a) Sauerstoff (O_2), b) Eisen (Fe) und c) Nitrat (NO_3) im Grundwasser in Deutschland

