

Nitrate leaching under arable land: monitoring, mitigation measures & memory effects

Centre for Hydrogeology and Geothermics (CHYN)
University of Neuchâtel

For the degree of PhD by
Hannah Wey

Dissertation committee:

Prof. Dr. Daniel Hunkeler, University of Neuchâtel (CHYN)
Dr. Else Büinemann-König, Research Institute of Organic Agriculture Frick (FiBL)
Dr. Landon Halloran, University of Neuchâtel (CHYN)
Prof. Dr. Neus Otero Pérez, University of Barcelona

Defended the 20th of October 2021

General Abstract

The loss of nitrogen (N) from agroecosystems is one of the biggest unsolved environmental problems of our time: on the one hand, nitrogen is a critical yield-limiting factor and therefore, N supply in agriculture in the form of fertiliser is crucial to ensure food security. On the other hand, part of this fertiliser is lost to other environmental compartments, e.g. by leaching through the soil to the aquifer in the form of mobile nitrate. Due to this contamination, drinking water limits for nitrate are nowadays exceeded in many regions.

In this study, we investigated the N transport and cycling processes during three cropping seasons (2017-21) under 11 arable fields on silty loams in the Gäu Valley on the Swiss Central Plateau. The crop rotations included silage maize after ploughing the grass-clover ley, winter cereals and canola. The goal was to compare monitoring techniques for nitrate leaching, to determine the main influencing factors for nitrate leaching from the root zone, and to increase understanding of nitrate transport dynamics across the vadose zone. Therefore, we used ion-exchange resin-based Self-Integrating Accumulators (SIA), soil coring for extraction of mineral N (Nmin), Suction Cups (SCs) complemented by a HYDRUS 1D model, and a Vadose Zone Monitoring System (VMS) to assess nitrate leaching in the soil and in the unsaturated zone down to 6 m depth. We also tested if a reduction of the N fertiliser level or a change of fertiliser type reduces nitrate leaching, and calculated surface N balances, including atmospheric deposition, fertilisation, biological N fixation, and N output via yield.

All four monitoring techniques were suited to measure N leaching, but represented different N transport and cycling processes, and varied in spatio-temporal resolution. The average annual leaching measured with SIA devices was moderate for grass-clover leys, canola and maize (38, 42, and 44 kg N $\text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$), and high for cereals (116 kg N $\text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$). Averaged over all crop rotations (71 kg N $\text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$, without strips with mitigation measures), this is triple the amount that is compatible with the national legal target concentration in groundwater (25 mg $\text{NO}_3^- \text{L}^{-1}$). This quality target was also surpassed in 55 % of SC samples. The N balance cumulated over three seasons depended highly on the share of grass-clover ley in the crop rotation that compensated for the negative balances of the other crops (-50, -29, and -45 kg $\text{N}_{\text{tot}} \text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ for canola, cereals and maize versus +126 kg $\text{N}_{\text{tot}} \text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ for grass-clover ley).

Thus, the main drivers for nitrate leaching were the long-term inputs of organic fertilisers with a high share of unavailable N especially to grass-clover leys, the related accumulation in the soil organic N pool, a high mineralisation potential, and finally the N release that is unsynchronised with the plants' needs. Monthly SC measurements showed that nitrate is mainly leached from the root zone during autumn and winter, caused by elevated soil pore water mobilisation in this period. However, this seasonal leaching pattern was not transferred to deeper soil layers in the unsaturated zone, where further N transport was heavily affected by denitrification in clay-rich zones, and by preferential flow including bypassing in desiccation cracks and fractures in the consolidated layers.

Due to the high mineralisation supply from the soil organic N pool, estimated to be 59 kg N ha⁻¹, the fertiliser reduction was only partially visible in the nitrate leaching data, and a change of fertiliser type had no significant effect on nitrate leaching during the research period.

To conclude, the biogeochemical legacy of N dynamics estimated to be in the range of decades, increases the time lag between an intervention on the surface and a visible effect in the aquifer far beyond the one that is explicable with the hydrologic legacy alone, that is estimated to be of several years. We recommend long-term monitoring to further elucidate the impact of these memory effects and establish realistic groundwater quality goals. The autumn N_{min} content in a large number of fields can be used as an indicator for regional nitrate losses to the aquifer, as it was shown to significantly correlate with the subsequent winter leaching. The N fertiliser recommendation should be regionally adapted and account for the long history of manure application with high amounts of unavailable N, and the high mineralisation potential of the local soils.

Key words: arable agriculture, nitrogen, fertiliser, nitrate leaching, transport, N cycle, soil, mineralisation, time lag, legacy, monitoring, SIA, N_{min}, suction cups, vadose zone, unsaturated

Résumé général

La perte d'azote (N) dans les agroécosystèmes est l'un des plus grands problèmes environnementaux non résolus de notre époque : d'une part, l'azote est un facteur critique de limitation des rendements et, par conséquent, l'apport d'azote en agriculture sous forme d'engrais est crucial pour assurer la sécurité alimentaire. D'autre part, une partie de cet engrais est perdue dans d'autres compartiments de l'environnement, par exemple par lixiviation à travers le sol vers l'aquifère sous forme de nitrate mobile. En raison de cette contamination, les limites de concentration dans les eaux potables pour le nitrate sont aujourd'hui dépassées dans de nombreuses régions.

Dans cette étude, nous avons étudié les processus de transport et de cyclage de l'azote pendant trois saisons culturelles (2017-21) pour 11 champs arables situés sur des limons limoneux dans le district du Gäu sur le Plateau Suisse. Les cultures alternaient entre du maïs d'ensilage, des herbages temporaires de trèfle, des céréales d'hiver et du colza. L'objectif était de comparer les techniques de surveillance de la lixiviation du nitrate, de déterminer les principaux facteurs influençant la lixiviation du nitrate à partir de la zone racinaire et d'améliorer la compréhension de la dynamique du transport du nitrate à travers la zone vadose. Nous avons donc utilisé dans cette étude des accumulateurs auto-intégrés (SIA) à base de résine échangeuse d'ions, des carottages du sol pour l'extraction de l'azote minéral (N_{min}), des bougies poreuses (BP) complétées par un modèle HYDRUS 1D et un système de surveillance de la zone vadose (VMS) pour évaluer le lessivage du nitrate dans le sol et dans la zone non saturée jusqu'à 6 m de profondeur. Nous avons également vérifié si une réduction du niveau d'azote dans les engrais ou un changement du type d'engrais azotés réduit le lessivage des nitrates. Enfin nous avons calculé les bilans azotés de surface, comprenant le dépôt atmosphérique, la fertilisation, la fixation biologique de l'azote et la production d'azote par la récolte.

Les quatre techniques de surveillance utilisées sont se prêtent à la mesure du lessivage de l'azote, mais représentent des processus différents du transport et du cycle de l'azote, et varient en termes de résolution spatio-temporelle. Le lessivage annuel moyen mesuré avec les dispositifs SIA est modéré pour les herbages de trèfle, le canola et le maïs (38, 42 et 44 kg N $\text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$) et élevé pour les cultures de céréales d'hiver (116 kg N $\text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$). Si l'on fait la moyenne de toutes les rotations de cultures (71 kg N $\text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$, sans bandes avec mesures d'atténuation), cela représente trois fois la quantité autorisée en accord avec la valeur légale de concentration dans les eaux souterraines (25 mg $\text{NO}_3^- \text{L}^{-1}$). Cet objectif de qualité est également dépassé dans 55 % des échantillons BP. Le bilan azoté cumulé sur trois saisons dépend fortement de la part des herbages dans le cycle de rotation des cultures qui compense les bilans négatifs des autres cultures (-50, -29 et -45 kg N_{tot} $\text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ pour le colza, les céréales et le maïs contre +126 kg N_{tot} $\text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ pour les herbages de trèfle).

Ainsi, les principaux facteurs de lixiviation du nitrate sont d'un côté les apports à long terme d'engrais organiques composés d'une part élevée d'azote indisponible, en particulier pour les herbages de trèfle, de l'autre côté l'accumulation correspondante dans le réservoir d'azote organique du sol, d'un potentiel de minéralisation élevé, et enfin de la libération de l'azote qui n'est pas synchronisée avec les besoins des plantes. Les mesures mensuelles de BP ont montré que le nitrate est principalement

lessivé de la zone racinaire en automne et en hiver en raison de la mobilisation élevée de l'eau interstitielle du sol pendant cette période. Cependant, ce schéma de lixiviation saisonnier n'est pas transféré aux couches plus profondes du sol dans la zone non saturée, où le transport de N est fortement affecté par la dénitrification dans les zones riches en argile et par l'écoulement préférentiel développé dans les fissures de dessiccation et les fractures dans les couches consolidées.

En raison de la minéralisation élevée de l'azote organique du sol, estimée à 59 kg N ha^{-1} , la réduction d'utilisation d'engrais azoté n'est que partiellement visible dans les données de lixiviation des nitrates, et un changement de type d'engrais n'a aucun effet significatif sur la lixiviation des nitrates pendant la période d'observation.

En conclusion, l'héritage biogéochimique du cycle de l'azote, estimé à plusieurs décennies, ne permet pas d'observer l'impact d'intervention en surface sur les concentrations dans l'aquifère à une échelle de modification hydrologique, estimé à plusieurs années. Nous recommandons une surveillance à long terme pour mieux élucider l'impact de ces effets de mémoire et établir des objectifs réalistes de qualité des eaux souterraines. La teneur en N_{\min} à l'automne dans un grand nombre de champs peut être utilisée comme un indicateur des pertes régionales de nitrates dans l'aquifère, car il a été démontré qu'elle est significativement corrélée avec le lessivage hivernal ultérieur. La législation sur les engrains azotés devrait être adaptée par rapport à la région et devrait tenir compte de l'historique d'utilisation de fumier, des quantités élevées d'azote non disponible, et du potentiel élevé de minéralisation des sols locaux.

Mots clés: agriculture arable, azote, engrais, lixiviation des nitrates, transport, cycle de l'azote, sol, minéralisation, décalage temporel, héritage, surveillance, SIA, N_{\min} , bougies poreuses, zone vadose, non saturée.

Allgemeine Zusammenfassung

Der Verlust von Stickstoff (N) aus Agrarökosystemen ist eines der größten ungelösten Umweltprobleme unserer Zeit. Einerseits ist Stickstoff ein kritischer ertragsbeschränkender Nährstoff, und daher ist die N-Versorgung in der Landwirtschaft in Form von Dünger entscheidend für die Gewährleistung der Ernährungssicherheit. Andererseits geht ein Teil dieses Stickstoffdüngers verloren, z. B. durch Auswaschung in Form von mobilem Nitrat durch den Boden in den Grundwasserleiter. Aufgrund dieser Verunreinigung werden heute in vielen Regionen die Trinkwassergrenzwerte für Nitrat überschritten.

In dieser Studie untersuchten wir die N-Transport- und Kreislaufprozesse während drei Anbauperioden (2017-21) auf 11 Feldern mit schluffigem Lehmboden im Gäu im Schweizer Mittelland. Die Fruchfolgen umfassten Silomais nach dem Pflügen der Kleegraswiese, Wintergetreide und Raps. Die Ziele waren, (1) verschiedene Monitoringmethoden für die Nitratauswaschung zu vergleichen, (2) die Haupteinflussfaktoren für die Nitratauswaschung aus der Wurzelzone zu bestimmen und (3) das Verständnis der Nitrat-Transportdynamik durch die ungesättigte Zone zu verbessern. Wir haben selbstintegrierende Akkumulatoren (SIA) auf der Basis von Ionenaustauschharzen, Bodenproben zur Extraktion von mineralischem N (Nmin), Saugkerzen (SKs), ergänzt durch ein HYDRUS 1D-Modell, und ein Überwachungssystem spezifisch für die ungesättigte Zone (VMS) eingesetzt, um die Nitratauswaschung bis zu einer Tiefe von 6 m bewerten zu können. Wir prüften auch, ob eine Verringerung der N-Düngermenge oder ein Wechsel des Düngemittels die Nitratauswaschung verringert und berechneten die N-Oberflächenbilanzen, einschließlich der atmosphärischen N-Deposition, der N-Düngung, der biologischen N-Fixierung und des N-Ernteaustrags.

Alle vier Monitoringmethoden waren für die Messung der N-Auswaschung geeignet, repräsentierten jedoch unterschiedliche N-Transport- und Kreislaufprozesse und unterschieden sich in der räumlichen und zeitlichen Auflösung. Die durchschnittliche jährliche Auswaschung, die mit SIA-Messgeräten gemessen wurde, war unter Kleegraswiesen, Raps und Mais moderat ($38, 42$ und $44 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$) und unter Getreide hoch ($116 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$). Im Durchschnitt über alle Fruchfolgen ($71 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$, ohne Streifen mit Minderungsmaßnahmen) ist dies dreimal so viel, wie mit der nationalen gesetzlichen Zielkonzentration im Grundwasser ($25 \text{ mg NO}_3^- \text{ L}^{-1}$) vereinbar ist. Dieses Qualitätsziel wurde auch in 55 % der SK-Proben übertroffen. Die über drei Anbauperioden kumulierte N-Bilanz hing stark vom Anteil an Kleegraswiese in der Fruchfolge ab, welche die negativen Bilanzen der anderen Kulturen ausglich (-50, -29 und -45 $\text{kg N}_{\text{tot}} \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ für Raps, Getreide und Mais gegenüber +126 $\text{kg N}_{\text{tot}} \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ für Kleegraswiese).

Die Hauptursachen für die Nitratauswaschung waren (1) die langfristigen Einträge von organischen Düngern mit einem hohen Anteil an nichtverfügbarem N, insbesondere bei Kleegraswiese, (2) die damit verbundene N-Akkumulation im organischen Bodenpool, (3) ein hohes Mineralisierungspotenzial und schließlich (4) die nicht mit dem Bedarf der Pflanzen synchronisierte N-Freisetzung. Monatliche SK-Messungen zeigten, dass Nitrat hauptsächlich im Herbst und Winter aus dem Wurzelbereich ausgewaschen wird, was auf die erhöhte Mobilisierung des Porenwassers in dieser

Zeit zurückzuführen ist. Dieses saisonale Auswaschungsmuster wurde jedoch nicht auf tiefere Bodenschichten in der ungesättigten Zone übertragen, wo der N-Transport durch Denitrifikation in tonreichen Zonen und durch präferenziellen Fluss in Trockenrissen und Bodenspalten stark beeinträchtigt wurde.

Die Mineralisierung aus dem organischen N-Bodenpool wurde auf 59 kg N ha^{-1} geschätzt. Deshalb war die N-Düngerreduktion in der Nitratauswaschung nur teilweise sichtbar. Ein Wechsel des Düngers hatte während des Untersuchungszeitraums keine signifikanten Auswirkungen auf die Nitratauswaschung.

Das Jahrzehntelange biogeochemische Vermächtnis der N-Dynamik verlängert die Zeitspanne zwischen einem Eingriff an der Oberfläche und einer sichtbaren Auswirkung im Grundwasserleiter weit über die Zeitspanne hinaus, die allein mit dem hydrologischen Vermächtnis von einigen Jahren erklärbar ist. Wir empfehlen ein langfristiges Monitoring, um die Auswirkungen dieser Effekte weiter zu erforschen und realistische Ziele für die Grundwasserqualität festzulegen. Der Herbst-Nmin-Gehalt auf einer großen Anzahl von Feldern kann als Indikator für regionale Nitratverluste in den Grundwasserleiter verwendet werden, da er nachweislich signifikant mit der anschließenden Nitratauswaschung im Winter korreliert. Die N-Düngerempfehlung sollte regional angepasst werden und die langjährige Ausbringung von organischem Dünger mit hohen Mengen an nichtverfügbarem N sowie das hohe Mineralisierungspotenzial der lokalen Böden berücksichtigen.

Schlüsselwörter: Ackerbau, Landwirtschaft, Stickstoff, Dünger, Nitratauswaschung, Transport, N-Kreislauf, Boden, Mineralisierung, Vermächtnis, Monitoring, SIA, Nmin, Saugkerzen, ungesättigte Zone

Table of contents

I) General Introduction	1
1 The trade-off between food and drinking water production	2
2 The N cycle in soils	3
3 Ecosystem consequences of nitrate leaching	5
4 Human health consequences of nitrate in drinking water	6
5 National and international nitrate legislation.....	7
6 Nitrate leaching mitigation measures.....	8
7 Challenges for nitrate leaching monitoring in agriculture	9
8 Research objectives, hypotheses and experimental approach	10
9 Study site in the Gäu valley.....	11
II) Field-scale monitoring of nitrate leaching in agriculture: assessment of three methods	15
1 Introduction	18
2 Methodology.....	21
2.1 Study site	21
2.2 General experimental design.....	22
2.3 Field properties.....	22
2.4 Fertilisation and nitrate leaching mitigation strategies.....	23
2.5 Monitoring techniques	24
2.6 Water flux model.....	28
2.7 Statistical analysis	29
3 Results.....	30
3.1 SIA measurements	30
3.2 N _{min} measurements.....	31
3.3 Water flux model fit.....	32
3.4 Suction cup measurements	33
4 Discussion	36
4.1 Nitrate leaching occurs mainly during winter months	36
4.2 Preferential flow is an important leaching factor.....	38
4.3 The choice of methods depends mainly on project goals	38
4.4 Long-term datasets are essential	39

5 Conclusion.....	41
III) Surface N balances and nitrate leaching: the importance of mineralisation rate and time lag	43
1 Introduction	45
2 Methodology.....	47
2.1 Study site	47
2.2 Experimental design	48
2.3 Field properties.....	50
2.4 Monitoring techniques	50
2.5 Meteorological data and percolation simulation	53
2.6 Data set and statistics.....	54
3 Results.....	55
3.1 Fertilisation, harvest yields and balances.....	55
3.2 Leaching and N_{min}	57
3.3 Mitigation measures.....	60
3.4 Multivariate analysis.....	62
4 Discussion	63
4.1 Low surface N balances except for grass-clover leys, and high nitrate leaching ..	63
4.2 Time lag in leaching: the biogeochemical legacy	63
4.3 Mineralisation is the missing puzzle	64
4.4 Adaptation of the local fertiliser level is necessary	66
4.5 Long-term data and more research needed because of memory effects.....	67
Conclusion.....	68
IV) The movement of water, nitrate and bromide through the vadose zone	69
1 Introduction	71
2 Methodology.....	73
2.1 Field site.....	73
2.2 Soil properties.....	74
2.3 General experimental setup	74
2.4 Nitrogen fertilisation	75
2.5 Tracer experiment with bromide.....	76
2.6 N_{min} soil samples	76
2.7 Vadose Zone Monitoring System (VMS) and pore water sampling	77
2.8 Meteorological data	78

2.9 Ion and isotope analysis	78
3 Results	79
3.1 Water content measurements	79
3.2 Tracer test with bromide	79
3.3 Water isotopes ($\delta^{2\text{H}}$ and $\delta^{18\text{O}}$) in precipitation and pore water samples.....	82
3.4 N _{min} soil samples	82
3.5 N concentration in pore water	82
3.6 Nitrate isotopes ($\delta^{15\text{N}}$ and $\delta^{18\text{O}}$) in pore water samples.....	84
4 Discussion	85
4.1 Nitrification to leaching-prone nitrate in the 1 st depth	85
4.2 The importance of preferential flow: desiccation cracks, fingers and fractures...	85
4.3 Water collection, denitrification and preferential flow in the 2 nd depth	87
4.4 Remobilisation of blocked water results in infiltration in the 3 rd and 4 th depth	87
4.5 Unclear effect of the fertiliser reduction.....	88
4.6 Further measurements and simulations are needed	88
5 Conclusion	89
V) General discussion, conclusions and future outlook	91
1 Main results	92
1.1 Key findings on nitrate leaching monitoring	92
1.2 Comparison of N dynamics with legislation	93
1.3 Mitigation effects were masked by preferential flow and mineralisation	93
1.4 The biogeochemical and hydrologic legacy	94
2 Feasible agricultural recommendations for N leaching reduction in the Gäu.....	95
2.1 Eliminating N fertilisation after harvest	95
2.2 Preventing winter leaching after ploughing a ley.....	95
2.3 Planting N-efficient crops	96
2.4 Launching a local marketing label	97
2.5 Adapting local fertiliser recommendation.....	97
2.6 Expanding monitoring.....	98
3 Perspectives for future project management & research	100
VI) References	103
VII) Appendix Chapter II	115
VIII) Appendix Chapter III	121

IX) Appendix Chapter IV	125
X) Lists of Figures and Tables	129
1 List of Figures	130
2 List of Tables	134
XI) Pledge of Honour	137
XII) Original Publication	139
XIII) Assessments	141



View to the Gäu valley from the Jura mountains in the North, April 2021

PhD thesis
Hannah Wey
CHYN, Université de Neuchâtel
December 2021

Pictures: H. Wey