

Aus dem Institut für Landwirtschaftliche Verfahrenstechnik
der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel
Prof. Dr. Eberhard Hartung

**Ammoniak- und PM10-Emissionen im Laufstall für
Milchvieh mit freier Lüftung und Laufhof
anhand einer Tracer-Ratio-Methode**

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Agrar- und Ernährungswissenschaftlichen Fakultät
der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel

vorgelegt von
M.Sc. Sabine Schrade
aus Münsingen

Kiel 2009

Dekan: Prof. Dr. Uwe Latacz-Lohmann
1. Berichterstatter: Prof. Dr. Eberhard Hartung
2. Berichterstatter: Prof. Dr. Thomas Jungbluth
Tag der mündlichen Prüfung: 16. Juli 2009

Inhalt

Inhalt	I
Abbildungen	III
Tabellen	V
Abkürzungen	VII
1. Einleitung	1
2. Kenntnisstand	3
2.1 Relevante Stallsysteme für Rindvieh in der Schweiz	3
2.1.1 Entwicklung des Rindviehbestandes	3
2.1.2 Verbreitung und Entwicklung der Stallsysteme für Rindvieh	4
2.1.3 Charakterisierung der häufigsten Situation im Laufstall für Milchvieh	6
2.2 Messkonzept und Methoden	7
2.2.1 Anforderungen an Messkonzept, Messmethoden und Messanordnung	7
2.2.2 Bestimmung von Emissionen bei freier Lüftung	8
2.2.3 Bestimmung der NH ₃ -Konzentration	14
2.2.4 Bestimmung der PM10-Konzentration	16
2.3 Emissionsdaten	18
2.3.1 NH ₃ -Emissionen	18
2.3.2 PM10-Emissionen	23
2.4 Einflussgrößen auf die Emissionen und Minderungsansätze	24
3. Eigene Untersuchung - Vorgehensweise	31
3.1 Auswahl und Charakterisierung der Betriebe	31
3.2 Anwendung der Tracer-Ratio-Methode	35
3.2.1 Zudosierung der Tracer-Gase	35
3.2.2 Probenahme von NH ₃ und Tracer-Gasen mit Luftsammelproben	37
3.2.3 Quantifizierung der Tracer-Gase	40
3.2.4 Quantifizierung von NH ₃	41
3.2.5 Quantifizierung von PM10	41
3.3 Begleitparameter	42
3.3.1 Auswahl von Begleitparametern	43
3.3.2 Erhebung der Begleitparameter	45
3.4 Messkonzept und Durchführung der Messungen	48
3.4.1 Messkonzept und zeitlicher Ablauf	48
3.4.2 Messanordnung	51

3.5 Emissionsberechnung	52
3.5.1 Separate Bestimmung der Emissionen vom Stallbereich und Laufhof	52
3.5.2 Summarische Bestimmung der Emissionen vom Stallbereich und Laufhof..	54
3.6 Datenaufbereitung und -auswertung.....	57
4. Eigene Untersuchung - Ergebnisse.....	59
4.1 Begleitparameter	59
4.2 Emissionsberechnung vom Stallbereich und Laufhof unter Berücksichtigung der Verfrachtung	68
4.2.1 Konzentrationen von NH ₃ und Tracergasen	68
4.2.2 Separate und summarische Emissionsberechnung	71
4.2.3 Herleitung der <i>R</i> -Faktoren der einzelnen Messperioden	74
4.3 NH ₃ -Emission	76
4.3.1 NH ₃ -Emissionen nach Messtagen sowie Tagesverläufen	76
4.3.2 Einflussgrößen auf die NH ₃ -Emission.....	79
4.4 PM10-Emission.....	84
5. Diskussion	88
5.1 Methoden.....	88
5.1.1 Messkonzept	88
5.1.2 Anwendung der Tracer-Ratio-Methode	89
5.1.3 Erhebung der Begleitparameter	92
5.1.4 Emissionsberechnung	92
5.2 Ergebnisse.....	94
5.2.1 Begleitparameter	94
5.2.2 NH ₃ -Emissionen und Einflussgrößen	96
5.2.3 PM10-Emissionen	100
6. Ausblick	102
7. Zusammenfassung	104
8. Summary	106
9. Literatur.....	109
10. Anhang	120

7. Zusammenfassung

Die Emissionsdaten aus der Literatur für Ammoniak (NH_3) und Feinstaub (PM10) bei Milchvieh sind für die in der Schweiz verbreiteten Laufstallsysteme mit Laufhof nicht aussagekräftig. Sie weisen eine große Streubreite auf und decken die Jahreszeiten nicht systematisch ab. Stallsysteme mit freier Lüftung und Laufhof sind bisher nicht untersucht. Die fehlenden Emissionsdaten bei freier Lüftung und von Flächenquellen sind im Wesentlichen auf Schwierigkeiten bei der Ermittlung der Luftwechselrate zurückzuführen.

Ziel dieser Untersuchung ist es, die Emissionen von NH_3 und PM10 für die zukünftig in der Schweiz häufigste Situation mit Laufstall und Laufhof für Milchvieh zu bestimmen und damit einen Beitrag für Emissionsinventare zu leisten. Zur Beschreibung der Messsituation, Interpretation der Emissionsdaten und Ableitung von Minderungsmaßnahmen sind wichtige Einflussgrößen zu quantifizieren.

Die Messungen erfolgten in zwölf Messperioden auf sechs Praxisbetrieben. Es handelte sich dabei um freigelüftete Eingebäudelaufställe mit Liegeboxen, planbefestigten Laufflächen und längs zum Stallgebäude angeordnetem Laufhof. Auf drei Betrieben war dieser räumlich vom Stallgebäude getrennt, auf drei Betrieben als kombinierter Liegegang-/Laufhof ausgeführt. Fressgang, Liegegang bzw. Liegegang/Laufhof wurden mit stationären Schiebern drei bis vier Mal pro Tag, der Laufhof zirka alle drei Tage mobil abgeschoben. Die Bestandesgrößen variierten zwischen 20 und 74 Tieren. Mit Messungen in je zwei von drei Jahreszeiten (Sommer, Übergangszeit, Winter) pro Betrieb wurde die klimatische Variation im Jahresverlauf abgedeckt. Die Messdauer pro Jahreszeit betrug mindestens drei Tage.

Für die Bestimmung der Emissionen bei freier Lüftung und von Flächenquellen wurde eine Tracer-Ratio-Methode mit zwei Tracergasen entwickelt und erfolgreich eingesetzt. Um die Emissionen von zwei Bereichen separat zu bestimmen bzw. zwei Emissionsquellen mit unterschiedlicher Quellstärke abzubilden, war ein zweites Tracergas notwendig. Dazu wurde neben dem bereits etablierten Tracergas Schwefelhexafluorid (SF_6) Trifluormethyl-schwefelpentafluorid (SF_5CF_3) eingesetzt. Die verdünnten Tracergase wurden über ein Rohrsystem mit kritischen Kapillaren direkt an den emittierenden Laufflächen kontinuierlich zudosiert und bildeten so die Quelle der NH_3 -Emission ab. Ein Luftsammelsystem bestehend aus Teflonschlauch und kritischen Kapillaren aus Glas ermöglichte in den weiträumigen Ställen eine repräsentative Probenahme der Tracergase und von NH_3 . Die Analyse der beiden Tracergase erfolgte simultan mittels Gaschromatographie (GC-ECD). NH_3 wurde mit einem photoakustischen Sensor (PAS) quantifiziert. Die Hintergrundkonzentration von NH_3 wurde mit Passivsammichern bestimmt. PM10 wurde an insgesamt 9 bis 14 Messorten, im Stallbereich und Laufhof bzw. Liegegang/Laufhof sowie im Hintergrund anreichernd mit Impaktoren gesammelt und anschließend gravimetrisch quantifiziert. Zur Charakterisierung der jeweiligen Messsituation, zur Plausibilisierung von Messdaten, als Bezugsgrößen und zur Ableitung von wichtigen Einflussgrößen auf die

Emissionen wurden neben beschreibenden Betriebsdaten folgende Parameter erfasst: Außenklima, Klima in Stall und Laufhof, Tieraufenthalt, Laufflächenverschmutzung sowie Stickstoff-Input, -Output und -Verwertung.

Diese Messanordnung mit Zudosierung, Probenahme und Analytik hat sich im Praxis-einsatz bewährt. Sowohl für NH₃ und PM10 als auch für die Begleitparameter liegt eine vollständige, belastbare Datengrundlage der zwölf Messperioden zur Ableitung eines Emissionsfaktors und Abklärung wichtiger Einflussgrößen vor. Ist zwischen Stallbereich und Laufhof keine räumliche Abgrenzung vorhanden, so ist es nicht möglich, die NH₃-Emission für die beiden Bereiche getrennt zu bestimmen. Hingegen kann die Gesamtemission berechnet werden, wenn eine Annahme über das Verhältnis emissionsrelevanter Parameter vom Laufhof bzw. Liegegang/Laufhof zum Stallbereich (*R*-Faktor) getroffen wird. Dieser *R*-Faktor wurde anhand der Parameter Tieraufenthalt, Laufflächenverschmutzung und Windgeschwindigkeit über den Laufflächen für jede Messperiode abgeschätzt. Dank dem Einsatz von zwei Tracergasen lässt sich ermitteln, wie stark die berechnete Gesamtemission von der Abschätzung des *R*-Faktors abhängt. In stark durch-mischten Systemen hat dieser nur einen kleinen Einfluss auf das Resultat.

Mit dem systematischen Messansatz auf sechs Praxisbetrieben konnten für die NH₃-Emissionen betriebliche sowie jahreszeitliche Effekte aufgezeigt werden. Die Tages-mittelwerte der NH₃-Emissionen variierten über alle Betriebe hinweg im Sommer von 31 bis 67 g pro Großvieheinheit (GV; 1 GV = 500 kg Lebendmasse) und Tag (d), in der Über-gangszeit von 16 bis 44 g/GV·d und im Winter von 6 bis 23 g/GV·d. Nur in der warmen Jahreszeit sind Tagesgänge erkennbar. Die mittleren NH₃-Emissionen der jeweils drei Messtage auf einem Betrieb innerhalb einer Messperiode sind sehr konsistent. Als relevante Einflussgrößen auf die NH₃-Emission resultieren in einem linearen Gemischt-Effekte-Modell, welches die hierarchische Datenstruktur von Betrieb, Messperiode und Messtag berücksichtigt, die Außentemperatur ($F_{1,1053} = 100,7836$; $p < 0,0001$), die Wind-geschwindigkeit im Stall ($F_{1,1053} = 99,4947$; $p < 0,0001$) und der Harnstoffgehalt der Tank-milch ($F_{1,5} = 6,9097$; $p = 0,0466$). Diese Einflussgrößen geben Hinweise auf die Min-derungsansätze bedarfsgerechte und ausgeglichene Fütterung sowie Stallklimaaspekte. Mit Vordach, Sonnenschutz, geeigneter Gebäudeanordnung und Windschutz können Temperatur und Windgeschwindigkeit reduziert werden.

Erstmals wurden PM10-Emissionen auf Milchviehbetrieben mit freier Lüftung quantifiziert. Die PM10-Konzentrationen im Stall und Laufhof bzw. Liegegang/Laufhof lagen meist knapp über oder im Bereich der Hintergrundkonzentration. Entsprechend sind die be-rechneten Emissionen mit einer großen relativen Unsicherheit behaftet. Die berechneten PM10-Emissionen variierten über alle Betriebe hinweg zwischen 0,02 und 2,1 g/GV·d. Innerhalb der Betriebe sind zwischen den Jahreszeiten und Messzeiträumen Unterschiede in der Emissionshöhe erkennbar. Beim vorliegenden Datenumfang und aufgrund der nur knappen Abgrenzung zur Hintergrundkonzentration war kein Zusammenhang mit den untersuchten Einflussgrößen erkennbar.

8. Summary

The data from the literature for ammonia (NH_3) and particulate matter (PM10) emissions from dairy cattle are not meaningful for the loose housing systems with outdoor exercise areas common in Switzerland. Such data exhibit a large variation, and do not systematically cover the seasons. To date, loose housing systems with outdoor exercise areas have not been investigated. The missing emission data for natural ventilation and from diffuse sources can essentially be put down to difficulties in determining the air-exchange rate.

The aim of this study is to determine the emissions of NH_3 und PM10 for the most common situation in Switzerland - that is, dairy cattle in loose housing with outdoor exercise areas - thereby contributing to emission inventories. Important influencing variables must be quantified in order to describe the measuring situation, interpret the emissions data and derive reduction measures.

Measurements took place over twelve measuring periods on six commercial farms. Housing consisted of naturally ventilated one-building loose-housing systems with cubicles, solid floor surfaces and an outdoor exercise area arranged alongside the stable. On three of the farms this exercise area was spatially separated from the stables; on the other three, it was executed as a combined cubicle access area/outdoor exercise area. The feeding aisle, cubicle access area or combined cubicle access area/outdoor exercise area were mucked out three to four times daily with stationary scrapers, whilst the outdoor exercise area was mucked out with portable equipment every three days or so. Herd sizes ranged between 20 and 74 animals. Climatic variation over the course of the year was covered by measurements taken in two out of three seasons (summer, transition period, winter) per farm. The duration of measurements was at least three days per measurement period.

A tracer ratio method with two tracer gases was developed and successfully implemented to determine emissions in the case of natural ventilation and from diffuse sources. A second tracer gas was determined to quantify emissions from two different areas separately or to image two sources with different emission levels. In addition to the already-established tracer gas sulphur hexafluoride (SF_6), trifluoromethyl sulphur pentafluoride was used. The dilute tracer gases were continuously supplied directly to the emitting floor surfaces via a tube system with critical capillaries, thereby imaging the source of the NH_3 emission. An air-collection system consisting of a Teflon hose and glass critical capillaries enabled us to take a representative sampling of the tracer gases and NH_3 in the spacious housing. The two tracer gases were analysed simultaneously by means of gas chromatography with electron-capture detector (GC/ECD). NH_3 was quantified using a photo-acoustic sensor (PAS). The background concentration of NH_3 was determined with passive samplers. PM10 was collected cumulatively with impactors at a total of 9 to 14 measuring points in the housing area, outdoor exercise area or cubicle access area/outdoor exercise area, and in the background, then quantified gravimetrically. In

order to characterise the measuring situation in each case, as a plausibility check of the measuring data, as reference quantities, and to deduce important variables influencing the emissions, the following parameters were recorded in addition to descriptive farm data: outdoor climate, climate in housing and outdoor exercise area, use of the different areas by the animals, aisle/exercise-area soiling, and nitrogen input, output and utilisation.

This measuring design with dosing, sampling and analytics has proven its worth in practical use. Both for NH_3 and PM10 as well as for the accompanying parameters, we have recourse to complete, resilient underlying data from the twelve measuring periods to derive an emission factor and clarify important influencing variables. If there is no spatial separation between housing area and outdoor exercise area, then it is not possible to determine NH_3 emission levels for the two areas separately. By contrast, total emissions can be calculated if the ratio of emission-relevant parameters from the outdoor exercise area or cubicle access area/outdoor exercise area to those of the housing area (*R* factor) are implicated. This *R* factor was estimated on the basis of the parameters use of the different areas by the animals, aisle/exercise-area soiling and wind speed over the floor surfaces for each measuring period. Thanks to the use of two tracer gases, it can be determined to which extent strongly the calculated total emission depends on the estimation of the *R* factor. In well mixed systems the *R* factor only has a small influence on the result.

With this systematic measuring approach on six commercial farms, we were able to demonstrate individual-farm effects as well as seasonal effects for the NH_3 emissions. The average daily values for NH_3 emissions across all farms ranged from 31 to 67 g per livestock unit (LU; 1 LU = 500 kg live weight) and day (d) in the summer, from 16 to 44 g/LU·d in the transition period, and from 6 to 23 g/LU·d in the winter. Diurnal patterns are only recognisable in the warm season. The average NH_3 emissions of the three measuring days on each farm within one measuring period are highly consistent. As relevant variables influencing NH_3 emissions, outside temperature ($F_{1,1053} = 100,7836$; $p < 0.0001$), wind speed in barn ($F_{1,1053} = 99,4947$; $p < 0.0001$) and urea content of tank milk ($F_{1,5} = 6,9097$; $p = 0.0466$) result in a linear mixed-effects model taking account of the hierarchical data structure of farm, measuring period and measuring day. These influencing variables give an indication of the mitigation approaches of need-based, balanced feed, as well as housing-climate aspects. With a porch, sun protection, appropriate building layout and windbreak, temperature and wind speed can be reduced.

For the first time, PM10 emissions on dairy-cattle farms with natural ventilation were quantified. PM10 concentrations in the housing and outdoor exercise area or cubicle access area/outdoor exercise area were usually just above or in the range of the background concentration. Accordingly, the calculated PM10 emissions are fraught with a high relative uncertainty, varying across all farms between 0.02 und 2.1 g/LU·d. Within the farms, differences in emission levels are recognisable between the seasons and measuring periods. With the present volume of data and based on the very slight differentiation from

the background concentration, there was no recognisable connection with the influencing variables investigated.