

Forschungsbericht

Nr. 166

Ammoniakemissionen aus Tierställen als Vorläufersubstanz für die sekundäre Partikelbildung

Verfasser:

Katharina Standke und Prof. Dr. agr. Wolfgang Büscher

Institut für Landtechnik

Herausgeber: Lehr- und Forschungsschwerpunkt „Umweltverträgliche und Standort-gerechte Landwirtschaft“, Landwirtschaftliche Fakultät der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

Meckenheimer Allee 172 15, 53115 Bonn
Tel.: 0228 – 73 2285; Fax.: 0228 – 73 1776
www.usl.uni-bonn.de

Forschungsvorhaben im Auftrag des Ministeriums für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz des Landes Nordrhein-Westfalen
Bonn, Oktober 2011

ISSN 1610-2460

Projektleitung: Prof. Dr. Wolfgang Büscher

Projektbearbeiter: M. Sc. Prozess- und Qualitätsmanagement Katharina Standke

Institut für Landtechnik
Nussallee 5
53115 Bonn

Zitiervorschlag:

STANDKE, K. UND W. BÜSCHER (2011): Ammoniakemissionen aus Tierställen als Vorläufersubstanz für die sekundäre Partikelbildung. Landwirtschaftliche Fakultät der Universität Bonn, Schriftenreihe des Lehr- und Forschungsschwerpunktes USL, Nr. 166 194 Seiten.

Inhaltsverzeichnis

Verzeichnis der Abkürzungen und Formelzeichen	IV
Abbildungsverzeichnis	X
Tabellenverzeichnis	XIV
1 Einleitung und Zielstellung	1
1.1 Einleitung	1
1.2 Zielstellung	2
2 Literaturanalyse	3
2.1 Zusammensetzung der Atmosphäre	3
2.2 Ammoniak	4
2.2.1 Ammoniakbildung und –freisetzung	4
2.2.2 Ammoniakemissionen aus der Tierhaltung	8
2.2.3 Ausbreitung, Immission, Deposition	16
2.2.4 Umweltwirkungen	17
2.2.5 Gesetzliche Rahmenbedingungen	19
2.2.6 Messmethoden für Ammoniakemissionen	22
2.3 Methoden zur Bestimmung des Luftvolumenstroms	25
2.4 Aerosole	29
2.4.1 Partikelbildung	31
2.4.2 Eigenschaften fester Partikel	37
2.4.3 Deposition von Partikeln	45
2.4.4 Umweltwirkungen	47
2.4.5 Gesetzliche Rahmenbedingungen	50
2.4.6 Probenahme von Partikeln	52
3 Material und Methoden	56
3.1 Material	56
3.1.1 Beschreibung der Versuchsbetriebe der NH ₃ -Messung	56
3.1.2 Standorte und Zeitablauf der Messungen zur Nanopartikel-Größenverteilung	62
3.1.3 Probenahmeorte und zeitlicher Ablauf der Gesamtstaubmessung	65

3.2 Methodische Vorgehensweise	66
3.2.1 Bestimmung der NH ₃ -Konzentration	66
3.2.2 Bestimmung des Volumenstroms	69
3.2.3 Berechnung des Emissionsmassenstroms	73
3.2.4 Erfassung der Wetterdaten	74
3.2.5 NH ₃ -Ausbreitungsrechnung mit Austal2000	75
3.2.6 Bestimmung der Nanopartikel-Größenverteilung	76
3.2.7 Bestimmung der Partikelmassenkonzentration	79
3.2.8 Analyse der chemischen Zusammensetzung	80
4 Ergebnisse	81
4.1 Vorversuche	81
4.1.1 Messdauer	81
4.1.2 Messauflösung	83
4.2 Witterungsbedingungen in den Milchviehställen	84
4.3 Abschätzung der durchschnittlichen NH ₃ -Emission - Gut Frankenforst	85
4.4 Abschätzung der durchschnittlichen NH ₃ -Emission - Haus Riswick	91
4.5 Abschätzung der durchschnittlichen NH ₃ -Emission - Legehennen-Volierenhaltung	100
4.6 Einfluss der Wetterbedingungen auf die NH ₃ -Konzentration in frei gelüfteten Milchviehställen	105
4.6.1 Windgeschwindigkeit und NH ₃ -Konzentration	105
4.6.2 Windrichtung und NH ₃ -Konzentration	106
4.6.3 Temperatur und NH ₃ -Konzentration	109
4.6.4 Luftfeuchtigkeit und NH ₃ -Konzentration	111
4.7 NH ₃ -Ausbreitungsrechnung für den Milchviehstall – Gut Frankenforst	113
4.8 Ergebnisse der Nanopartikel-Größenverteilung	114
4.8.1 Vorbetrachtungen zur Variabilität der Messergebnisse	114
4.8.2 Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst	115
4.8.3 Nanopartikel-Größenverteilung auf Haus Riswick	119
4.8.4 Nanopartikel-Größenverteilung auf einem Betrieb mit Legehennenhaltung	121
4.8.5 Nanopartikel-Größenverteilung im städtischen Bereich	122
4.8.6 Modellierung der modalen Verteilungsfunktionen	123
4.9 Partikelmassenkonzentration und chemische Zusammensetzung	125

5 Diskussion	128
5.1 Eignung der Messstandorte	128
5.1.1 Eignung der Versuchsbetriebe für Emissionsmessungen	128
5.1.2 Eignung der Standorte zur Untersuchung der Nanopartikel-Größenverteilung	128
5.1.3 Eignung der Standorte der Gravimetriesammler	129
5.2 Bewertung der verwendeten Messtechnik	130
5.2.1 Eignung der Gasmesstechnik	130
5.2.2 Eignung der Partikelmesstechnik	131
5.2.3 Eignung der Messtechnik zur Volumenstrombestimmung	133
5.3 Bewertung der Messmethoden	133
5.3.1 Bewertung der Messmethode zur Bestimmung der Gaskonzentration...	133
5.3.2 Bewertung der Methoden zur Volumenstrombestimmung	135
5.3.3 Bewertung der Methoden der Partikelmessungen	136
5.4 Bewertung der Messergebnisse	139
5.4.1 NH ₃ -Emission aus frei gelüfteten Milchviehställen	140
5.4.2 NH ₃ -Emission aus der Legehennen-Volierenhaltung	145
5.4.3 Beurteilung der Ergebnisse hinsichtlich des Bildungspotentials für Sekundärpartikeln	146
5.4.4 Nanopartikel-Größenverteilung	148
5.4.5 Partikelmassenkonzentration und chemische Zusammensetzung	150
5.5 Fazit und Ausblick	151
6 Zusammenfassung	153
7 Schlussfolgerungen für die Umsetzung der Ergebnisse in die Praxis	156
8 Literaturverzeichnis	157
9 Anhang	176
10 Liste über Veröffentlichungen	192
11 Kurzfassung in Deutsch und Englisch	193

Verzeichnis der Abkürzungen und Formelzeichen

a	anno (Jahr)
aq	aquatische Lösung
Al	Aluminium
BAT	Biologische Arbeitsstofftoleranz
BAYLFU	Bayerisches Landesamt für Umweltschutz
BDU	Beratergruppe Boden Düngung Umwelt
BImSchV	Bundesimmissionsschutzverordnung
Bq	Becquerel
BVT	beste verfügbare Technik
c	Konzentration
c_a	Konzentration außen
c_i	Konzentration innen
C	kinetischer Faktor, Cunningham-Korrekturfaktor
Ca	Kalzium
C_{Fo}	Gaskonzentration in der Fortluft
C_{Fr}	Gaskonzentration in der Frischluft
CCN	cloud condensation nucleus (Wolkenkondensationskern)
CH ₄	Methan
CIGR	Commission Internationale du Genie Rural (International Commission of Agricultural and Biosystems Engineering)
CN	condensation nucleus (Kondensationskern)
CNC	condensation nucleus counter (Kondensationskernzähler)
CO ₂	Kohlendioxid
CPC	condensation particle counter (Kondensationskernzähler)
d	Durchmesser
d	day (Tag)
d_{ae}	aerodynamischer Durchmesser
d_g	geometrisches Mittel des Äquivalentdurchmessers der Partikelverteilung

d_p	Äquivalentdurchmesser
D_i	Median des Partikeldurchmessers
DFG	Deutsche Forschungsgemeinschaft
DIN	Deutsches Institut für Normung e.V.
DMA	differential mobility analyser (elektrostatistischer Klassierer)
et al.	et alteri (und andere)
EC	elemental carbon (elementarer Kohlenstoff)
EG	Europäische Gemeinschaft
ECD	Electron Capture Detector (Elektroneneinfangdetektor)
EU	Europäische Union
F	Ausbreitungsfaktor
Fe	Eisen
FTIR	Fourier-Transformations-Infrarot
g	gasförmig
G^*	freie Gibbsche Energie
GC	Gaschromatographie
GV	Großvieheinheit
h	hour (Stunde)
H	Wasserstoff
He	Helium
HNO ₃	Salpetersäure
H ₂ O	Wasser
HO ₂	Hydroperoxyl
HPLC	high performance liquide chromatographie (Flüssigchromatographie)
HPU	heat production unit
H ₂ S	Schwefelwasserstoff
H ₂ SO ₄	Schwefelsäure
$H(T)$	Henry Konstante
IFA	Institut für Arbeitsschutz der deutschen gesetzlichen Unfallversicherung

IC	Ionenchromatographie
ISO	International Organisation for Standardization (Internationale Organisation für Normung)
IVU	Integrierte Vermeidung und Verminderung der Umweltverschmutzung
IR	Infrarot
J	Nukleationsrate
k	Stoffübergangskoeffizient
k_b	Boltzmann-Konstante
k.A.	keine Angaben
kBq	Kilo-Becquerel
Kap.	Kapitel
^{85}Kr	Krypton 85
kt	Kilotonne
exp	Exponent
$\ln(x)$	natürlicher Logarithmus
$\log(x)$	dekadischer Logarithmus
LAI	Länderausschuss für Immissionsschutz
LBL	Landwirtschaftliche Beratungszentrale
LFL	Bayerische Landesanstalt für Landwirtschaft
LUBW	Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg
\dot{m}_{Fo}	Emissionsmassenstrom der Fortluft
\dot{m}_{Fo-Fr}	Emissionsmassenstrom des Stalles
MAK	maximale Arbeitsplatzkonzentration
MBq	Mega-Becquerel
Me	Methylrest
Mg	Magnesium
Mt	Megatonne
n	Anzahl
n.b.	nicht bestimmbar

VII

nm	Nanometer
N	Partikelanzahl (bei physikalischen Zusammenhängen) Stickstoff (in der Chemie)
N_i	Partikelanzahlkonzentration
Na	Natrium
NaCl	Natriumchlorid
NEC	national emission ceiling (nationale Emissionsgrenze)
NH ₃	Ammoniak
NH ₄ ⁺	Ammonium
(NH ₂) ₂ CO	Harnstoff
(NH ₄ NO ₃)	Ammoniumnitrat
NH ₄ HSO ₄	Ammoniumhydrogensulfat
(NH ₄) ₃ H(SO ₄) ₂	Triammoniumhydrogensulfat
((NH ₄) ₂ SO ₄)	Ammoniumsulfat
NMVOC	non methane volatile organic compounds (flüchtige organische Kohlenstoffverbindungen ohne Methan)
NO	Stickstoffmonoxid
NO ₂	Stickstoffdioxid
N ₂ O	Lachgas
NO ₃	Nitrat
NO _x	Stickoxide
O ₃	Ozon
OH	Hydroxid
OM	organic matter (organische Masse)
OPC	optical particle counter (optischer Partikelzähler)
p	Irrtumswahrscheinlichkeit
ppm	parts per million (Teile einer Million)
PE	Polyethylen
PM	particulate matter (Feststoff)

VIII

PM ₁₀	Partikel für die ein definierter gröbenselektierter Lufteinlass der DIN ISO 7708 eine Abscheidewirksamkeit für Partikel mit 10 µm Durchmesser von 50 % aufweist.
PM _{2,5}	Partikel für die ein definierter gröbenselektierter Lufteinlass der DIN ISO 7708 eine Abscheidewirksamkeit für Partikel mit 2,5 µm Durchmesser von 50 % aufweist.
PM ₁	Partikel für die ein definierter gröbenselektierter Lufteinlass der DIN ISO 7708 eine Abscheidewirksamkeit für Partikel mit 1 µm Durchmesser von 50 % aufweist.
PM _{0,1}	Partikel für die ein definierter gröbenselektierter Lufteinlass der DIN ISO 7708 eine Abscheidewirksamkeit für Partikel mit 0,1 µm Durchmesser von 50 % aufweist.
PTFE	Polytetrafluorethylen
<i>Q</i>	jährliche Emissionsrate
<i>s</i>	Sekunde
<i>r</i> *	Radius des kritischen Clusters
R ²	Bestimmtheitsmaß
<i>s</i>	solid (fest)
SF ₆	Schwefelhexafluorid
SMPS	scanning mobility particle sizer (Kombination aus DMA und CNC)
SO ₂	Schwefeldioxid
SO ₃	Schwefeltrioxid
SO ₄ ²⁻	Sulfat
SO _y	Schwefeloxide
<i>t</i>	time (Zeit)
<i>t</i>	Tonne
<i>t</i> _a	Partikelstopzeit
<i>t</i> _r	turbulente Übergangszeit
<i>T</i>	Temperatur
TA-Luft	Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft
TMR	totale Mischraktion
TSP	total suspended particulates

UBA	Umweltbundesamt
v_d	Depositionsgeschwindigkeit
v_{Luft}	Luftgeschwindigkeit
V	Stallvolumen
\dot{V}	Luftvolumenstrom
VarK	Variationskoeffizient
VDI	Verein Deutscher Ingenieure
\dot{V}_{Fo}	Luftvolumenstrom der Fortluft
VOC	volatile organic compounds (flüchtige organische Kohlenstoffverbindungen)
Vol	Volumen
W	Watt
WHO	World Health Organisation (Weltgesundheitsorganisation)
\tilde{x}	Median
X_{\min}	Mindestabstand
Z_i	Impaktionszeit
α	Luftwechselzahl
μm	Mikrometer
μg	Mikrogramm
Δ	Différenz
σ	Standardabweichung
$\sigma_{s/a}$	Oberflächenspannung
π	Kreiszahl (3,14159...)
σ_g	geometrische Standardabweichung der Normalverteilung

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 2.1	Wechselwirkungen natürlicher und anthropogener Prozesse in der Atmosphäre (verändert nach MÖLLER, 2003)	3
Abbildung 2.2	Trend der deutschen NH ₃ -Emissionen nach Quellkategorien (verändert nach UBA, 2011)	9
Abbildung 2.3	Anteile der bundesweiten NH ₃ -Emissionen aus der Tierhaltung (verändert nach DÖHLER et al., 2002)	10
Abbildung 2.4	Anteile der Tierarten an den NH ₃ -Emissionen der Landwirtschaft (verändert nach DÖHLER et al., 2002)	11
Abbildung 2.5	Bezeichnungen für Aerosole in Abhängigkeit vom Aggregatzustand (nach MÜLLER 2002)	30
Abbildung 2.6	Nukleationsraten bei verschiedenen NH ₃ - und H ₂ SO ₄ -Konzentrationen in Abhängigkeit von der Temperatur (NAPARI et al., 2002)	35
Abbildung 2.7	Entstehung von Wolkenkondensationskernen durch Nukleation und Aerosolwachstum (KULMALA, 2003)	36
Abbildung 2.8	Größenbereiche und Bezeichnungen für atmosphärisches Aerosol (MÖLLER, 2003)	40
Abbildung 2.9	Größenverteilung von Aerosolen mit der größten Teilchenzahl im Nukleationsmode und der größten Aerosolmasse im Akkumulationsmode (KITTELSON, 1998)	43
Abbildung 3.1	Grundriss des Milchviehstalles - Gut Frankenforst	57
Abbildung 3.2	Grundriss des Milchviehstalles - Haus Riswick (verändert nach SCHIEFLER et al., 2011)	59
Abbildung 3.3	Volierensystem NATURA-Nova Twin (verändert nach BIGDUTCHMAN, 2009)	61
Abbildung 3.4	Standorte der Nanopartikel-Messungen - Gut Frankenforst (verändert nach www.tim-online.nrw.de, 2011)	63
Abbildung 3.5	Standorte der Nanopartikel-Messungen - Haus Riswick (verändert nach www.tim-online.nrw.de, 2011)	64
Abbildung 3.6	Standorte der Nanopartikel-Messungen - Legehennenhaltung (verändert nach www.tim-online.nrw.de, 2011)	64
Abbildung 3.7	Multigasmonitor 1312 und Messstellenumschalter 1309 (rechts) ..	67
Abbildung 3.8	Funktionsschema des Multigasmonitors (LUMASENSE TECHNOLOGIES, 2010)	68
Abbildung 3.9	Messphasen der Tracer-Abklingmethode (verändert nach HENSELER-PABMANN, 2010)	72
Abbildung 3.10	SF ₆ -Detektor (HENSELER-PABMANN, 2010)	72

Abbildung 3.11	Messtechnik zur Bestimmung der Nanopartikel-Größenverteilung im Praxiseinsatz	76
Abbildung 3.12	Funktionsprinzip des Messsystems zur Bestimmung der Nanopartikel-Größenverteilung (verändert nach PESCH, 2009)	77
Abbildung 3.13	Gravimetriesammler und Messkopf (rechts)	79
Abbildung 4.1	Einfluss der Messdauer auf den Mittelwert der NH ₃ -Konzentration in frei belüfteten Milchviehställen	81
Abbildung 4.2	Einfluss der Messdauer auf den Mittelwert der NH ₃ -Konzentration in einem Volierensystem	82
Abbildung 4.3	Vergleich verschiedener Auswertungsintervalle	83
Abbildung 4.4	Vergleich der gemittelten NH ₃ -Tagesverläufe - Gut Frankenforst	85
Abbildung 4.5	NH ₃ -Tagesmittelwerte und Standardabweichungen in den verschiedenen Messperioden - Gut Frankenforst	86
Abbildung 4.6	Boxplot der NH ₃ -Konzentrationen in den verschiedenen Messperioden - Gut Frankenforst	88
Abbildung 4.7	Vergleich der gemittelten NH ₃ -Tagesverläufe bei verschiedenen Messperioden und Segmenten - Haus Riswick	91
Abbildung 4.8	NH ₃ -Tagesmittelwerte und Standardabweichungen im Segment 1	93
Abbildung 4.9	NH ₃ -Tagesmittelwerte und Standardabweichungen im Segment 2	94
Abbildung 4.10	NH ₃ -Tagesmittelwerte und Standardabweichungen im Segment 3	95
Abbildung 4.11	Boxpot der NH ₃ -Konzentrationen in den verschiedenen Messperioden und Segmenten - Haus Riswick	97
Abbildung 4.12	Vergleich der gemittelten NH ₃ -Tagesverläufe in der Volierenhaltung	100
Abbildung 4.13	NH ₃ -Tagesmittelwerte und Standardabweichungen in der Volierenhaltung während der Wintermessung	101
Abbildung 4.14	NH ₃ -Tagesmittelwerte und Standardabweichungen in der Volierenhaltung während der Sommermessung	102
Abbildung 4.15	Boxplot der NH ₃ -Konzentration in den verschiedenen Messperioden in der Volierenhaltung	103
Abbildung 4.16	Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit und der NH ₃ -Konzentration im Milchviehstall - Gut Frankenforst	105
Abbildung 4.17	Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit und der NH ₃ -Konzentration im Milchviehstall - Haus Riswick	106
Abbildung 4.18	Zusammenhang zwischen der Windrichtung und der NH ₃ -Konzentration im Milchviehstall - Gut Frankenforst	107
Abbildung 4.19	Zusammenhang zwischen der Windrichtung und der NH ₃ -Konzentration im Milchviehstall – Haus Riswick	108

Abbildung 4.20	Zusammenhang zwischen der Temperatur und der NH ₃ -Konzentration im Milchviehstall - Gut Frankenforst	109
Abbildung 4.21	Zusammenhang zwischen der Temperatur und der NH ₃ -Konzentration im Milchviehstall - Haus Riswick	110
Abbildung 4.22	Zusammenhang zwischen der relativen Luftfeuchtigkeit und der NH ₃ -Konzentration im Milchviehstall - Gut Frankenforst	111
Abbildung 4.23	Zusammenhang zwischen der relativen Luftfeuchtigkeit und der NH ₃ -Konzentration im Milchviehstall - Haus Riswick	112
Abbildung 4.24	NH ₃ -Ausbreitungsrechnung für den Milchviehstall mit Austal2000 - Gut Frankenforst	113
Abbildung:4.25	Mittelwerte aus 17 Scans und Standardabweichungen der Partikelanzahl in der Abluft am 23.05.2011	114
Abbildung 4.26	Nanopartikel-Größenverteilung auf der Anlage an verschiedenen Messtagen	115
Abbildung 4.27	Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst am 21.05.2011	116
Abbildung 4.28	Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst am 22.05.2011	117
Abbildung 4.29	Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst am 23.05.2011	118
Abbildung 4.30	Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst am 14.06.2011	119
Abbildung 4.31	Nanopartikel-Größenverteilung in der Abluft des Milchviehstalles auf Haus Riswick am 15.06.2011	120
Abbildung 4.32	Nanopartikel-Größenverteilung in der Zu- und Abluft des Betriebes Haus Riswick am 15.06.2011	120
Abbildung 4.33	Nanopartikel-Größenverteilung auf einem Betrieb mit Legehennenhaltung am 21.06.2011	121
Abbildung 4.34	Nanopartikel-Größenverteilung auf einem Betrieb mit Legehennenhaltung am 27.06.2011	122
Abbildung 4.35	Nanopartikel-Größenverteilung in Köln Stammheim am 16.06.2011 und in Bonn am 25.05.2011	123
Abbildung 4.36	Verteilung der Partikelanzahl in doppelt-logarithmischer Darstellung mit modellierten Verteilungsfunktionen - Volierenstall für Legehennen am 27.06.2011	124
Abbildung 4.37	Verteilung der Partikelanzahl in doppelt-logarithmischer Darstellung mit modellierten Verteilungsfunktionen - Frankenforst, Abluft am 23.05.2011	124
Abbildung 4.38	Intensität der Färbung bei verschiedenen Filterproben	125

Abbildung 4.39	Mittlere NH_4^+ -, SO_4^{2-} - und NO_3^- -Konzentrationen im städtischen und ländlichen Gebiet sowie auf Tierhaltungsanlagen	127
Abbildung 9.1	Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit ($0-6,5 \text{ m s}^{-1}$) und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 1	184
Abbildung 9.2	Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit ($0-4,5 \text{ m s}^{-1}$) und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 1	184
Abbildung 9.3	Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit ($0-6,5 \text{ m s}^{-1}$) und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 2	185
Abbildung 9.4	Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit ($0-4,5 \text{ m s}^{-1}$) und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 2	185
Abbildung 9.5	Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit ($0-6,5 \text{ m s}^{-1}$) und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 3	186
Abbildung 9.6	Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit ($0-4,5 \text{ m s}^{-1}$) und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 3	186
Abbildung 9.7	Zusammenhang zwischen der Temperatur und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 1	187
Abbildung 9.8	Zusammenhang zwischen der Temperatur und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 2	187
Abbildung 9.9	Zusammenhang zwischen der Temperatur und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 3	188
Abbildung 9.10	Zusammenhang zwischen der relativen Luftfeuchtigkeit und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 1	188
Abbildung 9.11	Zusammenhang zwischen der relativen Luftfeuchtigkeit und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 2	189
Abbildung 9.12	Zusammenhang zwischen der relativen Luftfeuchtigkeit und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 3	189
Abbildung 9.13	Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst am 26.06.2011	190

Tabellenverzeichnis

Tabelle 2.1	NH ₃ -Emissionen aus Haltungssystemen für Milchkühe	12
Tabelle 2.2	NH ₃ -Emissionen aus Haltungssystemen für Legehennen	14
Tabelle 2.3	Jahresmittel der Ammoniak- und Ammonium-N-Konzentrationen in der Umgebungsluft in verschiedenen Regionen Mitteleuropas (DÄMMGEN und SUTTON, 2001; HEJ und ERISMAN, 1997; verändert nach LfU, 2004)	16
Tabelle 2.4	Ammoniakkonzentrationen und ihre Wirkung auf den Menschen (verändert nach DFG, 1986)	19
Tabelle 2.5	Messmethoden und Nachweisgrenzen von Tracergasen (verändert nach RAATSCHEN, 1995)	26
Tabelle 2.6	Konzentrationsgrößenordnung (in Vol-%) und Anzahlkonzentrationen (in n m ⁻³) der Luftbestandteile (MÖLLER, 2003)	30
Tabelle 2.7:	Vergleich der chemischen Zusammensetzung von PM ₁₀ bei verschiedenen Massenkonzentrationen (verändert nach LOYMEYER et al., 2003)	44
Tabelle 3.1	Zeitlicher Ablauf der NH ₃ -Messungen - Gut Frankenforst	58
Tabelle 3.2	Zeitlicher Ablauf der NH ₃ -Messungen - Haus Riswick	60
Tabelle 3.3	Zeitlicher Ablauf der NH ₃ -Messungen - Volierenhaltung	61
Tabelle 3.4	Standorte und zeitlicher Verlauf der Nanopartikel-Messungen	62
Tabelle 3.5	Probenahmestandorte und zeitlicher Ablauf der Gesamtstaubmessung	65
Tabelle 3.6	Zeitliche Einordnung der Luftvolumenstrombestimmung mit SF ₆	70
Tabelle 4.1	Witterungsbedingungen auf Gut Frankenforst während der Untersuchungszeiträume	84
Tabelle 4.2	Witterungsbedingungen auf Haus Riswick während der Untersuchungszeiträume	84
Tabelle 4.3	Deskriptive Statistik der NH ₃ -Konzentrationen – Gut Frankenforst ...	87
Tabelle 4.4	Quellkonzentrationen, Luftvolumenströme und Emissionsraten - Gut Frankenforst	89
Tabelle 4.5	Deskriptive Statistik der NH ₃ -Konzentrationen – Haus Riswick	96
Tabelle 4.6	Quellkonzentrationen, Luftvolumenströme und Emissionsraten im Segment 1	98
Tabelle 4.7	Quellkonzentrationen, Luftvolumenströme und Emissionsraten im Segment 2	99
Tabelle 4.8	Quellkonzentrationen, Luftvolumenströme und Emissionsraten im Segment 3	100

Tabelle 4.9	Deskriptive Statistik der NH ₃ -Konzentration in der Volierenhaltung ..	102
Tabelle 4.10	Quellkonzentrationen, Luftvolumenströme und Emissionsraten in der Volierenhaltung	104
Tabelle 4.11	Durchschnittliche Partikelmasse-, NH ₄ ⁺ -, SO ₄ ²⁻ - und NO ₃ ⁻ -Konzentrationen an den Messpunkten im städtischen und ländlichen Gebiet sowie auf Tierhaltungsanlagen	126
Tabelle 9.1	Rinderhalter und Rinder am 3. Mai 2007 in NRW (REHSE UND SCHMITZ, 2008)	176
Tabelle 9.2	Schweinehalter und Schweine am 3. Mai 2007 in NRW (REHSE UND SCHMITZ, 2008)	177
Tabelle 9.3	Legehennenhalter und Legehennen am 3. Mai 2007 in NRW (REHSE UND SCHMITZ, 2008)	178
Tabelle 9.4	Pferdehalter und Pferde am 3. Mai 2007 in NRW (REHSE UND SCHMITZ, 2008)	179
Tabelle 9.5	Schafhalter und Schafe am 3. Mai 2007 in NRW (REHSE UND SCHMITZ, 2008)	180
Tabelle 9.6	Gänse, Enten und Truthühner am 3. Mai 2007 in NRW (REHSE UND SCHMITZ, 2008)	181
Tabelle 9.7	Signifikanzanalyse der NH ₃ -Messungen - Gut Frankenforst	181
Tabelle 9.8	Signifikanzanalyse des Einflusses der Segmente auf die Ergebnisse der NH ₃ -Messung - Haus Riswick	182
Tabelle 9.9	Signifikanzanalyse des Einflusses der Jahreszeit auf die Ergebnisse der NH ₃ -Messung - Haus Riswick	183
Tabelle 9.10	Signifikanzanalyse des Einflusses der Jahreszeit auf die Ergebnisse der NH ₃ -Messung in der Legehennen- Volierenhaltung	183
Tabelle 9.11	Ergebnisse der Partikelmasse-, NH ₄ ⁺ -, SO ₄ ²⁻ - und NO ₃ ⁻ -Bestimmung an den verschiedenen Messpunkten	191

1 Einleitung und Zielsetzung

1.1 Einleitung

Mit der zunehmenden Beachtung von Tierschutzaspekten vollzieht sich derzeit ein Wandel in der landwirtschaftlichen Nutztierhaltung. Während bisher vorwiegend zwangsbelüftete Ställe mit verhältnismäßig geringer Grundfläche pro Tier genutzt wurden, stehen heute tierfreundlichere, offene Stallsysteme zur Verfügung. Deren Wirkung auf die Umwelt, in Form von Ammoniak-, Staub- und Geruchsemissionen stehen im Mittelpunkt des öffentlichen Interesses und werden bei der Durchführung von Genehmigungsverfahren oft diskutiert.

Die Wirkungen von Ammoniak sind dabei vielschichtig. Neben primären Auswirkungen auf die Vegetation und die Gesundheit von Mensch und Tier rücken auch die sekundären Wirkungen, wie die Bildung von sekundären Aerosolen, zunehmend in den Fokus der Betrachtungen.

Im Rahmen der 39. BImSchV hat sich Deutschland verpflichtet, die Ammoniakemission auf 550.000 t im Jahr zu begrenzen. Mit 95 % hat die landwirtschaftliche Nutztierhaltung den größten Anteil an den anthropogenen NH_3 -Emissionen (DÖHLER et al., 2002). Inwieweit moderne, tiergerechte, aber häufig auch emissionsintensivere Haltungsverfahren die Einhaltung dieses Grenzwertes beeinflussen, ist dabei noch nicht hinreichend untersucht worden. Während die Datendichte bezüglich der Ammoniakemissionen für konventionelle Tierhaltungssysteme ausreichend hoch ist, sind die Aussagen zu den neuen Verfahren noch unzuverlässig und unterliegen einer großen Schwankungsbreite.

Mit der Diskussion über die Senkung des Staubgrenzwertes für PM_{10} und die Einführung eines Grenzwertes von $\text{PM}_{2,5}$ werden sich auch die Anforderungen an Stallsysteme verschärfen. Durch die Bereitstellung des Vorläufergases Ammoniak trägt die Landwirtschaft in bedeutendem Maße zur Feinstaubbelastung bei. Die Bildung von Ammoniumsalzen durch die Reaktion mit saueren Vorläufersubstanzen in der Atmosphäre kann mit bis zu 40 % an der PM_{10} -Masse beteiligt sein (LOHMEYER et al., 2003). Über den Ferntransport dieser Substanzen geht die Wirkung über den regionalen Maßstab hinaus.

Bisher wird vermutet, dass sich die Bildung dieser Sekundäraerosole erst während der Transmission der Vorläufer und nicht an der Quelle selbst vollzieht. Die genauen Bildungsmechanismen und -bedingungen sind aber weiterhin unklar und noch nicht ausreichend untersucht.

1.2 Zielstellung

Das übergeordnete Ziel dieser Arbeit ist die Bereitstellung von Ammoniak-Emissionsdaten aus Tierställen, um damit die Bildung von sekundären Partikeln aus der landwirtschaftlichen Tierhaltung abschätzen zu können.

Während das Emissionsverhalten von herkömmlichen Stallanlagen ausführlich untersucht wurde, fehlen belastbare Werte für aktuelle Haltungsverfahren mit großer Aktivitätsfläche für die Tiere. Zu diesem Zweck sollen Messungen der Ammoniakemission von Offenstallsystemen in der Milchviehhaltung und einem Volierensystem für die Legehennenhaltung durchgeführt werden.

Die Größenverteilung von Partikeln mit einem Durchmesser $< 1 \mu\text{m}$ in den Betrieben und deren Umfeld wird analysiert um Aussagen über den Bildungsort von Sekundärpartikeln treffen zu können. Eine chemische Analyse der wichtigsten Bestandteile der Sekundäraerosole im Gesamtstaub zielt auf die Überprüfung und Unterstützung dieser Aussagen.

2 Literaturanalyse

2.1 Zusammensetzung der Atmosphäre

Die Forschungsarbeit auf dem Sektor des Immissionsschutzes fokussierte sich im letzten halben Jahrhundert stark auf Luftschadstoffe mit Grenzwerten wie Stickoxide (NO_x), Schwefeldioxid (SO_2), Ozon (O_3) und Stäube bis zu einer Größe von $10\ \mu\text{m}$ (PM_{10}). Weniger Beachtung fanden dagegen Schadstoffe ohne Grenzwerte wie Ammoniak (NH_3), Schwefelwasserstoff (H_2S) oder Lachgas (N_2O) (ZHANG et al., 2008).

Die chemische Zusammensetzung der Luft hängt sowohl von den natürlichen und anthropogenen Quellen sowie von der chemischen Umwandlung und Entfernung von Spurenstoffen ab (MÖLLER, 2003). Die in der Luft vorkommenden Partikel sind vielfältig: resuspendierte Bodenteilchen, Rauch aus der Energieerzeugung, photochemisch geformte Partikel, Salzkristalle aus dem Wasser der Ozeane und Wolken aus Wassertropfen oder Eiskristallen (HINDS, 1999; HOBBS, 1999; JAENICKE, 1998; RAES et al., 2000).

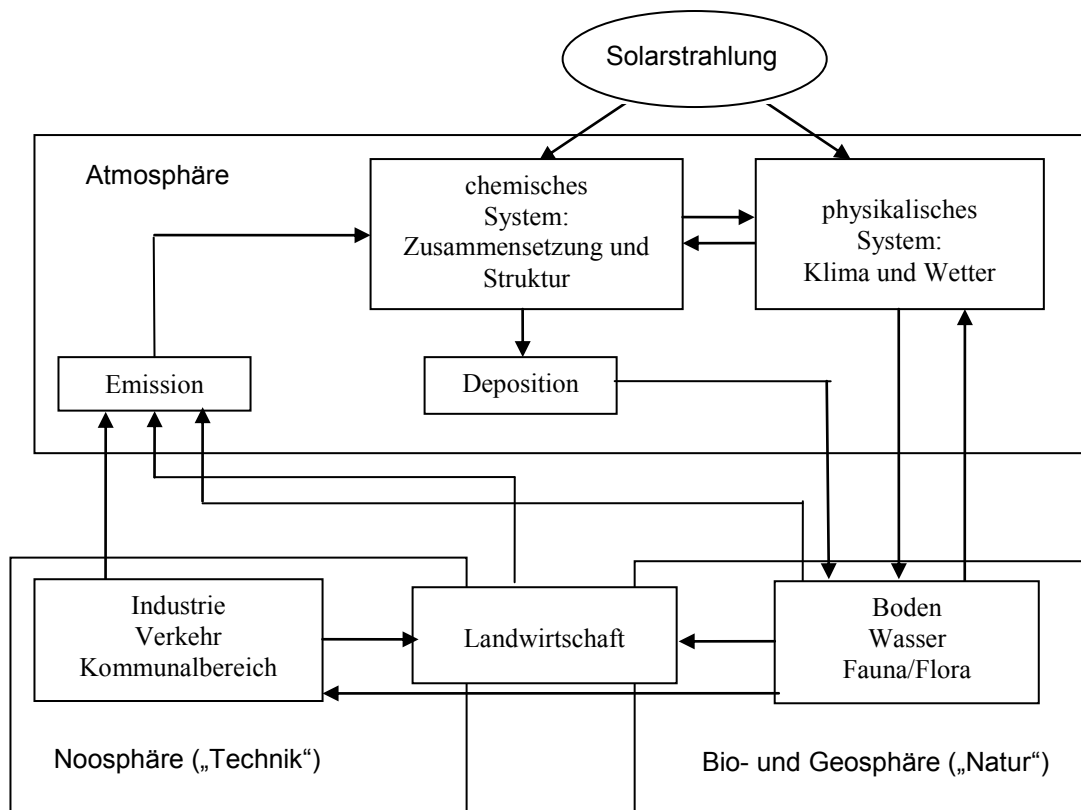


Abbildung 2.1: Wechselwirkungen natürlicher und anthropogener Prozesse in der Atmosphäre (verändert nach MÖLLER, 2003)

Diese Prozesse werden maßgeblich von den physikalischen Bedingungen der Atmosphäre beeinflusst und bilden einen wechselseitigen Zusammenhang mit den chemischen Vorgängen, wie der Emission von Gasen, in dem auch die Landwirtschaft eine zentrale Position einnimmt (Abbildung 2.1).

2.2 Ammoniak

Ammoniak ist eine chemische Verbindung, bestehend aus einem Stickstoff- (N) und drei Wasserstoffatomen (H), die Summenformel ist NH_3 . Es ist ein farbloses, stechend riechendes Gas, das schwer entflammbar und, in allen nicht basischen Flüssigkeiten, sehr gut wasserlöslich ist. Bei der Lösung reagiert ein Teil des NH_3 zu Ammonium (NH_4^+) (BAYLFU, 2004). Die Molmasse von NH_3 beträgt $17,03 \text{ g mol}^{-1}$ bei einem Referenzdruck von 1013 mbar und einer Temperatur von 20°C (IFA, 2011). Als einzige gasförmige Base in der Atmosphäre (ASMAN et al., 1998) übernimmt NH_3 eine wichtige Rolle für den Säuren-Basen-Haushalt (LUBW, 2008), indem das, durch die beiden primär emittierten Spurenstoffe SO_2 und NO (Stickstoffmonoxid) gebildete, Aziditätspotenzial neutralisiert wird (ASMAN et al., 1998; MÖLLER, 2003; BAEK et al., 2004) Die Verweilzeit von NH_3 in der Atmosphäre wird mit 5-9 Tagen angegeben (ISERMANN, 1994).

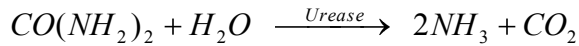
2.2.1 Ammoniakbildung und -freisetzung

NH_3 wird in der Natur bei der Zersetzung von stickstoffhaltigem, organischem Material, wie abgestorbene tierische und pflanzliche Lebewesen und Exkrementen, gebildet. Die Freisetzung des gebundenen Stickstoffs erfolgt als NH_3 . Dieser Prozess wird auch als Ammonifikation bezeichnet. Der Stickstoff wird so dem Kreislauf wieder zugeführt.

Der von den Nutztieren mit dem Futter aufgenommene Stickstoff wird im Körper nur zu geringen Teilen als Protein festgelegt. Der überwiegende Teil wird in Form von Harnstoff über den Kot und Urin wieder ausgeschieden (KIRCHGESSNER, 1997; HARTUNG, 2001; MONTENY, 2000).

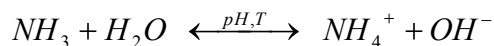
Der Harnstoff ($(\text{NH}_2)_2\text{CO}$) wird mit Wasser (H_2O) zu NH_3 und Kohlendioxid (CO_2) umgesetzt. Diese Spaltung wird von dem Enzym Urease katalysiert und als Harnstoff-Hydrolyse bezeichnet.

Das Enzym Urease wird durch Mikroorganismen im Kot der Nutztiere in hinreichendem Maße bildet (ELZING und MONTENY, 1997; GROOT KOERKAMP et al., 1998a; MONTENY, 2000).



Die Aktivität der Urease steigt dabei mit zunehmender Substrattemperatur an. Zusammen mit der Harnstoffkonzentration wirkt sie auf die Hydrolyserate. Unter normalen Bedingungen kann von einer zeitnahen Umsetzung des gesamten Harnstoffs ausgegangen werden, in der eher die Harnstoffkonzentration in der Gülle als die Ureaseaktivität limitierend wirkt (BROSE, 2000). ELZIG und MONTENY (1997) geben diesbezüglich eine vollständige hydrolytische Umsetzung des Harnstoffs innerhalb von zwei Stunden an. Eine Reduzierung der Harnstoffausscheidung ist somit ein wirksames Mittel zur Reduzierung von gasförmigen Stickstoffverlusten durch hydrolytische Spaltung.

Das nicht ionisierte NH_3 in der flüssigen Phase steht im Dissoziationsgleichgewicht mit dem ionisierten NH_4^+ (HARTUNG, 2001):



Der relative NH_3 -Anteil am gesamten Stickstoff ist dabei positiv mit der Temperatur und dem pH-Wert korreliert (MONTENY, 2000). So führt nach LOEHR (1984) schon eine kleine pH-Wert-Erhöhung zu einer Verschiebung des Dissoziationsgleichgewichtes auf die Seite von NH_3 . Die pH-Wert-Absenkung durch die Ansäuerung (z. B. durch den Zusatz von Säuren, wie Milchsäure oder Salpetersäure) bei Flüssigmist zur Emissionsminderung wird aber in der landwirtschaftlichen Praxis kaum angewandt.

Die Freisetzung des gebildeten NH_3 von der flüssigen in die gasförmige Phase, die ihn umgebende Luft, erfolgt nach den Gesetzmäßigkeiten des konvektiven Stoffübergangs. Die Konzentrationen c des NH_3 in der Gas- und Flüssigphase liegen an der Grenzfläche der Phasen in einem temperaturabhängigen Gleichgewicht (HARTUNG, 1995; MONTENY et al., 1998). Dieses Verdunstungsgleichgewicht folgt dabei dem Henry'schen Gesetz (GROOT KOERKAMP et al., 1998a):

$$\frac{c_{\text{NH}_3}(\text{Flüssigphase})}{c_{\text{NH}_3}(\text{Gasphase})} = H(T)$$

mit $H(T)$ = Henry Konstante.

Die Stärke der NH_3 -Freisetzung wird über den Stoffübergangskoeffizienten k definiert. Dieser ist abhängig von der Partialdruckdifferenz zwischen flüssiger und gasförmiger Phase (AROGO et al., 1999; MONTENY, 2000) und weist eine positive Korrelation mit der Temperatur T und der Luftgeschwindigkeit v_{Luft} auf. (HARTUNG und BÜSCHER, 1995; HAHNE et al., 1999). Durch Turbulenzen und hohe Luftgeschwindigkeiten wird das NH_3 an der Grenzschicht schneller abtransportiert. Dieses ständige Partialdruckgefälle hat eine erhöhte NH_3 -Freisetzung zur Folge (HARTUNG, 1995).

In Geflügelkot stellt die Harnsäure das Ausgangsprodukt der NH_3 -Bildung dar. Die Enzyme Urease, Uricase, Allantoinase und Ureidoglycolase katalysieren die Umsetzung zu NH_3 und CO_2 (GROOT KOERKAMP, 1994; GRONAUER, 2001). Da für diese Umsetzung Wasser benötigt wird, ist der Feuchtegehalt des Kotes für die NH_3 -Freisetzung von besonderer Bedeutung (VOGELS und VAN DER DRIFT, 1976). Maßnahmen, die zu einem schnellen Wasserentzug aus den Oberflächen der Exkremente führen, wie z. B. die Kotbelüftung, finden daher in der Geflügelhaltung häufig Anwendung.

Die Einflussfaktoren auf NH_3 -Emission können wie im Folgenden dargestellt, zusammengefasst werden (BDU und LBL, 2005; GROOT KOERKAMP, 1994; MEISSNER, 2004; AARNIK, 1997; GUARINO et al., 2003; NGWABIE et al., 2009; BRAAM et al., 1997; ZHANG et al., 2004, 2005; ROM et al., 2004; KROODSMA et al., 1993; SCHRADE, 2009; AROGO et al., 1999; MONTENY und ERISMAN, 1998; HINZ et al., 2010; ACHILLES et al., 2002):

- **Proteingehalt des Futters:** Es besteht eine direkte Abhängigkeit zwischen der Proteinmenge im Futter und der über den Harn ausgeschiedenen Stickstoffmenge. Die NH_3 -Verluste steigen mit der Stickstoffmenge, die über den Bedarf der Tiere hinaus verfüttert wird.
- **Verschmutzte Oberfläche:** Die NH_3 -Emissionen steigen proportional zur Größe der mit Fäkalien verschmutzten Oberfläche an und sind abhängig von der Bodengestaltung.
- **pH-Wert** des Substrates.
- **Temperatur:** Die NH_3 -Freisetzung ist abhängig von den Temperaturbedingungen. Sie steigt bei einer Temperaturerhöhung an.
- **Wind:** Die Höhe der Emission ist abhängig vom Luftaustausch über den emittierenden Oberflächen. So bildet sich zum Beispiel über offenen Güllelagern eine Dunstglocke aus NH_3 -gesättigter Luft. Wenn diese durch Windeinwirkung abgetragen wird, beginnt die Luft erneut NH_3 aufzunehmen
- **Tieraktivität:** Im Verlauf eines Tages sind deutlich Schwankungen der NH_3 -Emission durch eine veränderte Aktivität der Tier nachweisbar.

2.2.2 Ammoniakemissionen aus der Tierhaltung

Eine quantitative Bestimmung und Analyse der NH_3 -Emissionen ist im Hinblick auf die zahlreichen Umweltwirkungen des Gases und seiner Reaktionsprodukte wichtig. Angaben zur Verlässlichkeit der Emissionsdaten und der daraus resultierenden Emissionsfaktoren sind dabei von großer Bedeutung (LUBW, 2008).

Die weltweite NH_3 -Emission schätzen BOUWMAN et al. (1997) und SCHLESINGER und HARTLEY (1992) auf 50–54 Mt pro Jahr. Der Anteil der durch die Ausscheidungen landwirtschaftlicher Nutztiere verursacht wird, beläuft sich dabei auf 21,6 Mt und hiervon werden wiederum 12,8 Mt der Rinderhaltung zugeschrieben (BOUWMAN et al., 1997).

In Mitteleuropa bewegt sich die durch NH_3 emittierte Stickstoffmenge in etwa in derselben Größenordnung wie die Gesamtmenge an Stickstoff, die durch NO und NO_2 (Stickstoffdioxid) in die Atmosphäre freigesetzt wird (BAYLFU, 2004). Nach SEINFELD und PANDIS (1998) hat die Oxidation von NH_3 einen Anteil von bis zu 6 % an der globalen Emission von Stickoxiden (NO_x).

In Deutschland ist die Landwirtschaft für 95 % der NH_3 -Emissionen verantwortlich. Die restlichen 5 % verteilen sich auf den Verkehr (2 %) und auf verschiedene Industrieprozesse, die Energiewirtschaft (insbesondere Kohle- und Ölverbrennung in Kraftwerken), sowie Haushalt und Kleinverbraucher, Abfallwirtschaft und den landwirtschaftlichen Verkehr (DÖHLER et al., 2002).

Die NH_3 -Emissionen in Deutschland konnten bis 2009 auf 597 kt reduziert werden (Abbildung 2.2). Das entspricht einem Rückgang um 15 % zum Vergleichsjahr 1990 mit einem Ausstoß von 700 kt. Diese Reduktion resultiert vor allem aus dem Abbau der Tierbestände und einer Verbesserung des Technikstandes in der Tierhaltung in den neuen Bundesländern nach der Wiedervereinigung (UBA, 2009). Eine weitere Reduzierung der Emissionen auf 550 Kt bis zum Jahr 2010, wie sie als nationale Emissionshöchstgrenze festgelegt wurden, kann aber trotz der immensen Rückgänge in der Landwirtschaft nur mit weiteren massiven Minderungsmaßnahmen erreicht werden (LUBW, 2008).

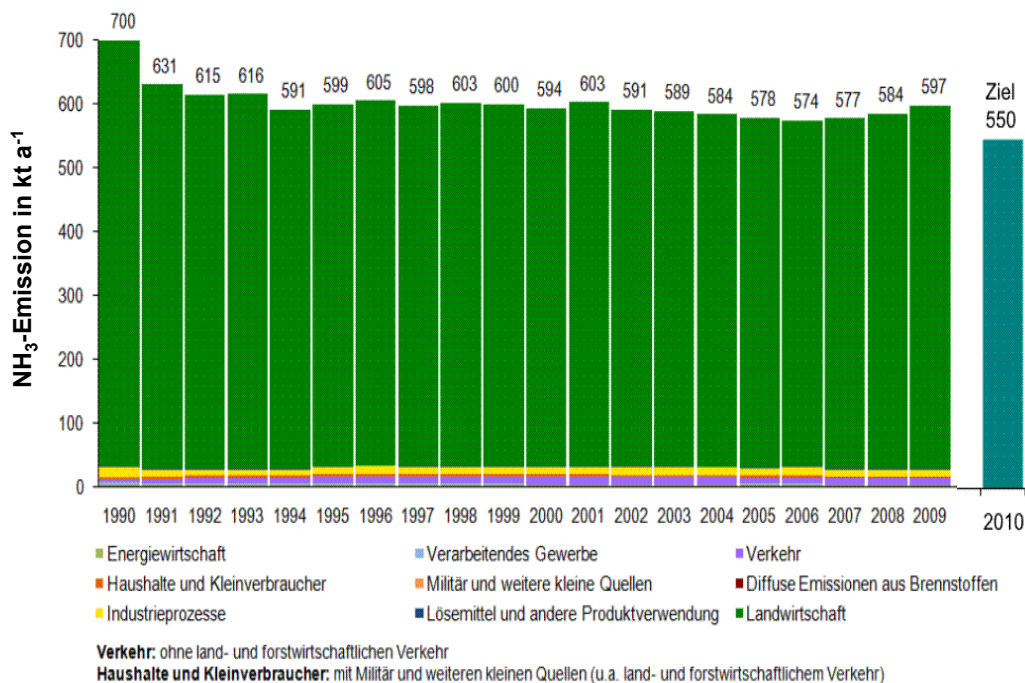


Abbildung 2.2: Trend der deutschen NH_3 -Emissionen nach Quellkategorien (verändert nach UBA, 2011)

Betrachtet man den Sektor der landwirtschaftlichen Tierhaltung genauer, so zeigt sich, dass etwa 37 % der Emissionen aus den Ställen und 4 % aus der Weidehaltung stammen. 39 % der Emissionen entstehen bei der Ausbringung von Wirtschaftsdüngern (Gülle und Mist), 20 % entstammen der Lagerung von Mineral- und Wirtschaftsdüngern (Abbildung 2.3) (DÖHLER et al., 2002).

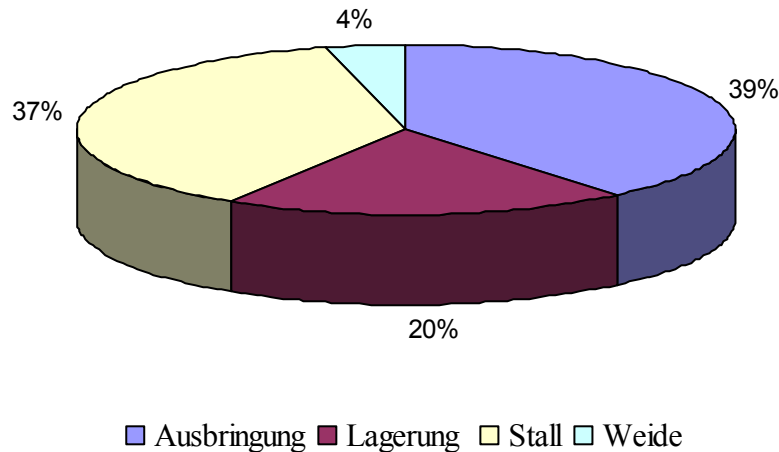


Abbildung 2.3: Anteile der bundesweiten NH₃-Emissionen aus der Tierhaltung (verändert nach DÖHLER et al., 2002)

Im Stallbereich treten somit etwa ein Drittel der gesamten NH₃-Verluste auf (HARTUNG, 1990), wobei der Höhe der Emissionen maßgeblich von der Tierart, dem Stallsystem und der Temperatur beeinflusst wird (DEKOCK et al., 2004; MONTENY, 2000). Im Tagesverlauf treten dabei starke Schwankungen der NH₃-Emission auf, die zwischen 40 und 180 % liegen können. MANNEBECK und OLDENBURG (1991) konnten einen ähnlichen Tagesverlauf, mit minimalen Konzentrationen am frühen Morgen und Maximalwerten zwischen 12.00 und 16.00 Uhr, bei allen Tierarten nachweisen. Die stärksten Konzentrationsschwankungen zwischen der nächtlichen Ruhephase und der Aktivitätsphase am Tag fanden sich bei Legehennen. Der Einfluss von emissionsaktiven Oberflächen im Stall wurde von OOSTHOEK et al. (1990) in einem Kleinkammer-Versuch mit 1 m² Grundfläche näher untersucht. Die höchste Emission wies ein verschmutzter Betonboden auf. Ein verschmutzter Spaltenboden zeigte eine etwas geringere Emission, die sich durch Reinigung mit einem Kotschieber und durch Wasser erheblich senken ließ.

In Bezug auf die Tierarten fällt der Hauptanteil mit fast der Hälfte (49 %) der jährlichen Emissionen auf die Rinderhaltung (Milchvieh und Mastrinder). Ihr folgt die Schweinehaltung mit 22 %; die Haltung von Geflügel emittiert mit einem Anteil von 7 % vergleichsweise wenig NH₃ (Abbildung 2.4) (DÖHLER et al., 2002).

Die regionale NH_3 -Belastung ist von der Verteilung der Tierbestände abhängig. Für die verschiedenen Nutztierarten sind die aktuellen Bestandszahlen in den Landkreisen Nordrhein-Westfalens in den Tabellen 9.1 bis 9.6 aufgeführt.

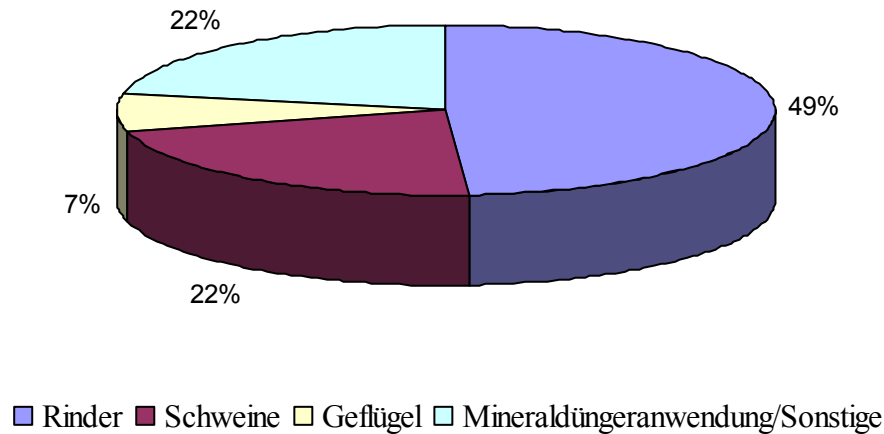


Abbildung 2.4: Anteile der Tierarten an den NH_3 -Emissionen der Landwirtschaft (verändert nach DÖHLER et al., 2002)

Für die Bewertung von Tierhaltungen im Bezug auf die Umweltwirkungen ist die Bereitstellung geeigneter Emissionsfaktoren unerlässlich (BRUNSCH und MÜLLER, 2005). Wichtig für eine Einstufung vorliegender Emissionsfaktoren ist eine Einschätzung der Datenqualität, da sich diese unmittelbar auf die Qualität der Emissionsfaktoren überträgt. Kenntnisse über Parameter wie Haltungsverfahren, Lagerungs- und Ausbringtechnik des Wirtschaftsdüngers, Witterung oder Betriebsmanagement üben bei der Abschätzung von Emissionen einen nicht zu unterschätzenden Einfluss aus (DÄMMGEN et al., 2006). Eine Klassifizierung bezüglich der Höhe der Auswirkungen von NH_3 -Emissionen nimmt der Nationale Bewertungsrahmen Tierhaltungsverfahren (KTBL, 2006) vor. Alle gängigen Haltungsverfahren werden dabei in die Kategorien von „sehr geringe“ über „mittlere“ bis „sehr hohe“ Auswirkungen eingestuft. Bei der Bewertung von Emissionen aus Fäkalien muss neben der Menge auch speziell ihre Zusammensetzung beachtet werden (GROOT KOERKAMP, 1994). Durch Multiplikation des Emissionsfaktors für den Tierplatz mit der Anzahl der im Betrieb vorhandenen Tierplätze, oder mit der Tiermasse, erhält man den Emissionsmassenstrom des Betriebes pro Jahr, der für weiterführende Ausbreitungsrechnungen genutzt werden kann (KRAUSE und LINKE, 2005).

Untersuchungen zur NH₃-Emission aus Ställen zur Milchviehhaltung

In den letzten Jahren wurden zahlreiche Untersuchungen zum Emissionsverhalten von Milchviehställen durchgeführt. Neben konventionellen, zwangsgelüfteten Anlagen traten auch immer häufiger moderne, frei gelüftete Ställe in den Fokus der Betrachtungen. Die Gaskonzentrationen wurden dabei überwiegend mit gut erprobten, kontinuierlich arbeitenden Messgeräten ermittelt. Zur Bestimmung des Luftvolumenstroms wurden unterschiedliche Methoden von Schätzungen über Anemometer, Messventilatoren und Tracergasmessungen und verschiedene Bilanzmethoden eingesetzt. Besonders bei frei belüfteten Stallgebäuden bestehen jedoch noch immer Schwierigkeiten in der korrekten Erfassung der Abluftvolumenströme (HARTUNG, 2001). Einen Überblick ausgewählter Emissionsfaktoren bietet die Tabelle 2.1.

Tabelle 2.1: NH₃-Emissionen aus Haltungssystemen für Milchkühe

Quelle	Haltungssystem	NH ₃ -Emission in kg GV ⁻¹ a ⁻¹
TA-LUFT (2002)	Anbindehaltung, Fest- und Flüssigmist	4,86
	Liegeboxenlaufstall, Fest- und Flüssigmist	14,57
	Laufstall, Tiefstreu	
	Laufstall, Tretmist	15,79
EURICH-MENDEN et al. (2010)	Anbindehaltung, Fest- und Flüssigmist	4
	Liegeboxenlaufstall, Fest- und Flüssigmist	12
	Laufstall, Tiefstreu	
	Laufstall, Tretmist	13
PEDERSEN et al. (2004)	Anbindehaltung	6,9
SCHNEIDER et al. (2006)	Liegeboxenlaufstall, Flüssigmist, frei gelüftet	16,53 - 18,89
DEMMERS et al. (2001)	Liegeboxenlaufstall, Flüssigmist, frei gelüftet	8,9
DEMMERS et al. (1998)	Liegeboxenlaufstall, Flüssigmist, frei gelüftet	11,5
HEIDENREICH et al. (2008)	Liegeboxenlaufstall, Flüssigmist, frei gelüftet	10,8
BROSE (2000)	Liegeboxenlaufstall, Tretmist, frei gelüftet	2,4 – 5,9
SEIPELT et al. (1999)	Liegeboxenlaufstall, Flüssigmist, frei gelüftet	14,2 – 20,9
	Laufstall, Tretmist	31,2
NGWABIE et al. (2009)	Liegeboxenlaufstall, Flüssigmist, frei gelüftet	7,7 - 9,9

Untersuchungen zur NH₃-Emission bei Legehennen

Die landesweiten Emissionen aus der Geflügelhaltung nehmen, im Vergleich mit den anderen Tierarten, mit 5 % an der gesamten NH₃-Emission nur einen sehr geringen Anteil ein. Aufgrund der regionalen Konzentration der Bestände können sie aber lokal zu erheblichen Belastungen führen. Die Literaturanalyse zu NH₃-Emissionen aus der Legehennenhaltung zeigt eine starke Variabilität der Messergebnisse, die nach GRONAUER (2001) auf unterschiedliche Untersuchungszeiträume und Messtechniken, verschiedene Haltungssysteme und ungleiche Randparameter, wie Jahreszeit und Fütterung, zurück zu führen sind. Die Boden- und Volierenhaltung wurde bislang im Vergleich zur Käfigbatteriehaltung noch wenig untersucht. Mit dem Verbot der Käfighaltung in Deutschland hat sich der Forschungsschwerpunkt deutlich auf die alternativen Haltungsverfahren verlegt.

Viele Untersuchungen vergleichen mehrere Haltungssysteme miteinander und unterscheiden sich in der Datengewinnung stark voneinander. Ausgewählte Literaturangaben zur NH₃-Emission aus der Legehennenhaltung werden im Folgenden tabellarisch zusammengefasst (Tabelle 2.2).

Tabelle 2.2: NH₃-Emissionen aus Haltungssystemen für Legehennen

Quelle	Haltungssystem	NH₃-Emission in g Tier⁻¹ a⁻¹
TA-LUFT (2002)	Käfighaltung, belüftetes Kotband	38,9
	Volierenhaltung, belüftetes Kotband	91,1
	Bodenhaltung	366
GROOT KOERKAMP (1998b)	Käfighaltung, belüftetes Kotband	35
FABBRI et al. (2007)	Käfighaltung, Kotgrube	163
	Käfighaltung, belüftetes Kotband	62
HINZ et al. (2010)	Kleingruppenhaltung	55,26
	Bodenhaltung	608,03
	Volierenhaltung	540,93
	Freilandhaltung	592,43
EURICH-MENDEN et al. (2011)	Kleingruppe, unbelüftetes Kotband	150
	Kleingruppe, belüftetes Kotband	40
	Bodenhaltung mit Volierengestellen, unbelüftetes Kotband	56-91
	Bodenhaltung mit Volierengestellen, belüftetes Kotband	46
	Bodenhaltung, Kotbunker, ganzjährige Lagerung im Stall	315
HÖRNIG et al. (2001)	Volierenhaltung, Kottrocknung	104,2 – 136,0
	Käfighaltung, Kottrocknung	16,6 – 18,3
MÜLLER (2003)	Volierenhaltung, belüftetes Kotband	112
MÜLLER (2004)	Volierenhaltung, Kottrocknung	131,9

Minderungsmaßnahmen

Die NH₃-Emissionen aus der Landwirtschaft beruhen zum größten Teil auf natürlichen Prozessen bei der Tierhaltung. Eine Einflussnahme ist, z. B. durch die Änderung von Produktionsprozessen oder eine Einschränkung der Produktion, möglich. Neben Minderungsmöglichkeiten, die die Produktion selbst betreffen, sind integrierte politische Maßnahmen, wie Agrarumweltmaßnahmen und die Anpassung der rechtlichen Rahmenbedingungen, erforderlich, um NH₃-Emissionen effektiv und dauerhaft zu senken (UBA, 2002). Möglichkeiten zur Minderung von NH₃-Verlusten in der landwirtschaftlichen Produktionskette wurden vom BDU und LBL (2005) zusammengestellt:

Fütterung:

- Vermeidung von Proteinüberschüssen;
- Rinderhaltung: gezielte Ausgleichsfütterung in der Weideperiode;
- Schweinehaltung: Phasenfütterung, N-reduzierte Futtermittel, Komponentenwahl.

Stall und Laufhof:

- trockene, saubere Lauf- und Liegeflächen;
- schnelle Harnabführung ins Güllelager;
- kühle Stalltemperaturen in warmen Jahreszeiten;
- im Sommer Zugang zum Laufhof beschränken und Weidezeit ausdehnen.

Lagerung von Wirtschaftsdünger:

- Abdeckung von Güllelagern;
- so wenig wie möglich rühren;
- auf die Nutzung offener Behälter im Sommer verzichten.

Ausbringung von Wirtschaftsdüngern

- Verlustarme Ausbringtechnik (z. B. Schleppschlauch) und sofortiges Einarbeiten;
- Ausbringung im Frühjahr oder Spätsommer, nicht auf Brache oder Stroh;
- Gülleausbringung in den Abendstunden und heißes, trockenes und windiges Wetter meiden;
- Verdünnung der Gülle und Zustand des Bodens bezüglich der Einsickerung beachten.

2.2.3 Ausbreitung, Immission, Deposition

Die Deposition von NH_3 zeigt sich, aufgrund der Vielzahl verstreuter Quellen, räumlich und zeitlich stark differenziert. NH_3 , das aus landwirtschaftlichen Tierhaltungsanlagen emittiert wird, wird überwiegend quellnah, im Umkreis von wenigen Kilometern, deponiert (ASMAN et al., 1998; LAI, 1996; BAYLfU, 2004). Der Eintag in die umliegenden Ökosysteme erfolgt dabei zu 44 % als trockene Deposition und zu 6 % über Niederschläge (nasse Deposition) (LAI, 1996; BAYLfU, 2004). Das verbleibende NH_3 reagiert in der Atmosphäre zu partikulärem NH_4^+ , dessen Eintag eine wesentlich homogenere Verteilung aufweist. In der sekundären Aerosolbildung nimmt NH_4^+ eine Schlüsselrolle ein (Vgl. Kap, 2.4.1) und trägt so zum partikulären Ferntransport von reduzierten Stickstoffverbindungen in wesentlichem Maße bei. 14 % dieses NH_4^+ werden trocken, 36 % nass deponiert (LAI, 1996). In quellfernen Gebieten überwiegt somit die nasse Deposition durch Niederschläge (ASMAN et al., 1998) oder eine „Auskämmung“ durch Blätter, Nadeln und Äste aus dem Nebel, nahe der Quelle die trockene Ablagerung (BAYLfU, 2004). In der Tabelle 2.3 sind die NH_3 und NH_4^+ -Konzentrationen in Gebieten mit unterschiedlicher landwirtschaftlicher Hauptnutzungsrichtung im Vergleich zu Reinluftgebieten dargestellt. Es zeigt sich deutlich, dass es vor allem in Regionen mit intensiver Tierhaltung, aber auch in stark ackerbaulich geprägten Gegenden, zu hohen NH_3 - und NH_4^+ -Gehalten in der Luft kommt.

Tabelle 2.3: Jahresmittel der Ammoniak- und Ammonium-N-Konzentrationen in der Umgebungsluft in verschiedenen Regionen Mitteleuropas (DÄMMGEN und SUTTON, 2001; HEJ und ERISMAN, 1997; verändert nach BAYLfU, 2004)

Gebiet	Ammoniak-Konzentration in $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$	Ammonium-N-Konzentration in $\mu\text{g NH}_3 \text{ m}^{-3}$
Reinluft	0,1 – 0,5	0,1 -1,0
forstwirtschaftliche Gebiete	1,0 -1,5	1,0 – 2,5
ackerbauliche Gebiete	1 – 3	2 -3
intensive Tierhaltung	5 -20	3 -6

Die TA-LUFT (2002) gibt eine Depositionsgeschwindigkeit (v_d) für NH_3 von 1 cm s^{-1} an. In der VDI-RICHTLINIE 3782 (2004) und bei ASMAN et al. (1998) werden verschiedene Literaturquellen detaillierter betrachtet und tabellarisch zusammengestellt. Besondere Beachtung kommt dabei die Einflussgrößen Oberflächenstruktur (z.B. Bewuchs, Bebauung) und den physikalischen und chemischen Eigenschaften des Stoffes zu. Die Depositionsgeschwindigkeit wird hier mit 1 bis $2,9 \text{ cm s}^{-1}$ angegeben. Unterschiede treten in Abhängigkeit von der Jahreszeit und der Pflanzenart auf, über der es zur Deposition kommt (z. B. Graskultur, Laub- oder Nadelwald).

2.2.4 Umweltwirkungen

Der jährliche Stickstoffeintrag in Form von NH_3 und NH_4^+ beläuft sich in Deutschland im Mittel auf rund $16 \text{ kg N je Hektar}$ (BAYLfU, 2004). Die Wirkungen, die durch diese Immissionen entstehen, sind vielschichtig und wurden intensiv untersucht. Detaillierte Darstellungen zur Wirkung von NH_3 auf Ökosysteme finden sich beispielsweise bei KRUPA (2003) und FANGMEIER et al. (1994). Hier sollen daher nur die wichtigsten Wirkungen kurz erläutert werden.

Eutrophierung

NH_3 , NH_4^+ und oxidierte Stickstoffverbindungen haben eine düngende Wirkung. An der Stickstoffübersorgung naturnaher Böden ist NH_3 mit bis zu 50 % beteiligt; es lässt sich dabei hinsichtlich der eutrophierenden Wirkung nicht von anderen Stickstoffverbindungen unterscheiden (BAYLfU, 2004).

Auf nährstoffarmen Standorten (z. B. Hochmoore) führt ein zusätzlicher Stickstoffeintrag schnell zu negativen Effekten auf die Pflanzengesellschaften. Es kommt zur Verdrängung der ursprünglichen Pflanzenarten, durch angepasste, Stickstoff-liebende Vertreter (BOBBINK et al., 1992; LAI, 1995), die mit einem Verlust der Biodiversität einher geht. Weiterhin werden überschüssige Stickstoffverbindungen, wie NO_3^- , ausgewaschen und in Flüsse, Seen sowie das Grundwasser geschwemmt und beeinträchtigen dort das natürliche Gleichgewicht (LUBW, 2008; BDU und LDB, 2005; IHLE, 2001).

Versauerung

NH_3 und seine chemischen Verbindungen tragen neben Schwefelverbindungen (SO_y), NO_x und VOCs sekundär zur Versauerung natürlicher Ressourcen bei (GROOT KOERKAMP, 1994; DÄMMGEN und SUTTON, 2001). Von einer Versauerung von Böden spricht man, wenn freie Protonen (H^+) in die Bodenstrukturen abgegeben werden. Dies geschieht zum einen bei der Oxidation von NO_3^- (MÖLLER, 2003). Aber auch bei der NH_4^+ -Aufnahme durch die Wurzel gibt die Pflanze Protonen zum Ladungsausgleich ab (LUBW, 2008).

Direkte Schäden an der Vegetation

Hohe NH_3 und NH_4^+ -Gehalte in der Luft können zu Störungen im Zellstoffwechsel von Pflanzen, besonders von empfindlichen Waldbäumen führen. Es kommt zu Vergilbungen und Braunfärbungen an Blättern und Nadeln bis hin zum Absterben von Pflanzenteilen oder ganzen Beständen (ROELOFS et al., 1985; BAYLfU, 2004) sowie zu einer Verschiebung der Artenzusammensetzung im Unterholz (VAN DER ERDEN et al., 1998). Da die Konzentration von NH_3 und NH_4^+ mit zunehmender Entfernung von der Quelle abnimmt, tritt eine direkte Schädigung der Vegetation meist nur in unmittelbarer Nähe zum Emittenten auf (DÄMMGEN und SUTTON, 2001; MÖLLER, 2003).

Wirkung auf die Gesundheit

Das Reizgas NH_3 wirkt vor allem auf die Augen und die Schleimhäute des oberen Respirationstraktes. Die Wirkung ist dabei abhängig von der Konzentration und der Expositionsdauer. In hohen Konzentrationen reizt das Gas zu Tränen und wirkt erstickend. Die maximale Arbeitsplatzkonzentration (MAK-Wert) wird mit 20 ppm angegeben (DFG, 2011). Diese Konzentration sollte auch bei der Tierhaltung, vor allem bei der Schweinehaltung nicht überschritten werden. Da dieser Wert weit oberhalb der Geruchsschwelle von NH_3 liegt (2,8 ppm) ist eine unbemerkt toxische Exposition in der Regel ausgeschlossen. Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit sind schon ab einer Konzentration von 7 ppm wahrscheinlich (DONHAM und CUMBRO, 1999), bei einer Dosis von mehr als 5000 ppm wirkt NH_3 in kürzester Zeit tödlich (LUBW, 2008). Verschiedene Konzentrationsbereiche mit ihren zugehörigen Wirkungen auf den Menschen sind in der Tabelle 2.4 zusammengestellt.

Gesundheitliche Schädigungen sind bei NH_3 -Konzentrationen, die in der Nähe von Tierhaltungsanlagen auftreten, demnach nicht zu erwarten (BAYLfU, 2004).

Tabelle 2.4: Ammoniakkonzentrationen und ihre Wirkung auf den Menschen (verändert nach DFG, 1986)

Ammoniakkonzentration in ppm	Wirkung
10- 20	Geruchsschwelle
ab 20	Belästigung
100	Reizung der Schleimhäute
300 – 500	maximal 1 Stunde erträglich
700	Reizung und Schädigung der Augen
1.700	Husten, Stimmritzenkrampf
2.500 – 6.500	bei 30 Minuten Expositionsdauer lebensgefährlich
> 5.000	schnell tödlich

Legehennen reagieren stark auf erhöhte NH_3 -Konzentrationen in der Stallluft. Bereits ab 10 ppm sinkt die Legeleistung und die Tiere verlieren an Gewicht (DEATON et al., 1982; HONGWEI et al., 1987), erste Schäden an den Schleimhäuten im Atemtrakt treten bei Konzentrationen ab 20-25 ppm (AL-MASHHADANI und BECK, 1985) bzw. 13-26 ppm (ADAM, 1973) auf. Nach HARTUNG (1990) sind bei Rindern gesundheitliche Beeinträchtigungen erst ab 100 ml m^{-3} eindeutig nachweisbar.

2.2.5 Gesetzliche Rahmenbedingungen

In umfassendem Maße liegen gesetzliche Regelungen zur NH_3 -Problematik auf nationaler und internationaler Ebene vor. Es werden Höchstmengen für NH_3 -Emissionen festgesetzt, Minderungsziele definiert und Empfehlungen für Maßnahmen zur Erreichung dieser Ziele gegeben.

NEC-Richtlinie

Die europäische Richtlinie 2001/81/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 23. Oktober 2001 (NEC-Richtlinie) wurde mit der 33. Verordnung zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (33. BImSchV, 2004) in nationales Recht umgesetzt. Sie legt nationale Höchstmengen für die Emission bestimmter Luftschadstoffe fest, die als „national emission ceilings“ (NECs) bezeichnet werden. Diese Höchstmengen gelten für NH₃, NO_x, SO₂ und NMVOCs (flüchtige organische Kohlenstoffverbindungen ohne Methan).

39. Verordnung zum Bundes-Immissionsschutzgesetz

In der 39. BImSchV (2010) sind die nationalen Höchstmengen für NH₃ festgelegt. Ab dem Jahr 2010 wird die Begrenzung der jährlichen NH₃-Emissionen auf 550 kt beibehalten. Die Ermittlung dieses Emissionswertes beruht jedoch nur vereinzelt auf detaillierten Messungen und stützt sich zum größten Teil auf Berechnungen. Eine genaue Trendüberwachung ist damit fast unmöglich und mit großen Unsicherheiten behaftet (LUBW, 2006).

Eine Studie von DÖHLER et al. (2002) im Auftrag des Umweltbundesamtes bewertet die Einhaltung des Grenzwertes mit vertretbarem Aufwand in einem realistischen Minderungsszenario mit einem Minderungspotential von 7 % als unrealistisch..

Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft (TA-Luft)

Die TA-LUFT (2002) regelt die Abstandsvorgaben zu empfindlichen Ökosystemen und Pflanzen, um diese vor NH₃-Einträgen zu schützen. Es wird eine Abstandskurve im Anhang dargestellt, die sich aus der NH₃-Konzentration und dem Mindestabstand ergibt.

Der Mindestabstand (X_{min}) wird dabei von der jährlichen Emissionsrate (Q) und dem Ausbreitungsfaktor (F) bestimmt.

$$X_{min} = \sqrt{F * Q}$$

Zur Berechnung der Quellstärke werden Emissionsfaktoren aus dem Anhang und aus KTBL-Veröffentlichungen (2005, 2006) herangezogen. Die Belastungsgrenze, bei der keine negativen Auswirkungen auf die Umwelt zu erwarten sind, wird mit einer NH₃-Konzentration von 10 µg m⁻³ angegeben.

Des Weiteren gibt die TA-Luft auch einen Wert für die Hintergrundbelastung an. Dieser wurde jedoch nicht in Deutschland, sondern in europäischen Nachbarländern (Großbritannien, Dänemark, Niederlande) ermittelt (LUBW, 2008) und wird ohne regionale Differenzierung mit $3 \mu\text{g m}^{-3}$ ausgewiesen.

Verordnung über das Inverkehrbringen von Düngemitteln

Die erlaubten Mengen, Methoden und Zeitpunkte für die Ausbringung von Wirtschaftsdüngern werden in der DÜNGEMITTELVERORDNUNG (2008) geregelt. Die Emissionen von NH_3 und anderen Stickstoffverbindungen sollen im Rahmen einer guten fachlichen Praxis reduziert werden.

Richtlinie über Industrieemissionen (integrierte Vermeidung und Verminderung der Umweltverschmutzung)

Die Richtlinie 2010/75/EU des Europäischen Parlaments und des Rates vom 24. November 2010 (IVU-Richtlinie) zielt auf eine Vermeidung, Verminderung und bestmögliche Beseitigung der Umweltverschmutzung durch Industrietätigkeiten im Einklang mit dem Verursacher- und Vorsorgeprinzip. Durch ihren integrativen Charakter soll eine Verlagerung der Verschmutzung von einem Umweltmedium (Luft, Wasser, Boden) vermieden werden. Für die Landwirtschaft werden gesonderte Regelungen für die Ausbringung von Dung und Gülle, sowie für die Intensivtierhaltung getroffen. Die Richtlinie beinhaltet umweltrelevante Begriffsbestimmungen, regelt die Genehmigungs- und Änderungsverfahren und liefert Vorgaben zur Inspektion von Anlagen. Die Ziele der Richtlinie sollen hauptsächlich durch den Einsatz der besten verfügbaren Technik (BVT) erreicht werden. Diese Techniken werden in branchenspezifischen BVT-Merkblättern zusammengestellt.

2.2.6 Messmethoden für Ammoniakemissionen

Die Gewinnung von realistischen Messwerten ist das Hauptziel von Emissionsmessungen. Sie sollten daher in Praxisbetrieben durchgeführt werden, da im Labor das Zusammenwirken einzelner Einflussfaktoren nicht vorhergesagt werden kann (BOUWMAN, 1996; MOSIER, 1994). Die Messwerterfassung wird örtlich durch die Lüftungsform (Lage der Zu- und Abluftöffnungen) und zeitlich durch die Wahl eines geeigneten Messintervalls beeinflusst. Eine natürliche Lüftung führt bei ständig wechselnden Windrichtungen häufig zu Schwierigkeiten bei der Festlegung der Messpunkte und bedingt lange Messdauern (BREHME, 2001). Für die Beprobung sollte zudem eine möglichst große Fläche vorgesehen werden, da die emittierenden Substrate oft eine inhomogene Zusammensetzung und Verteilung aufweisen (AMON et al., 1998; KAISER et al., 1996; NGWABI et al., 2009). Die Einbeziehung mehrerer, unabhängiger Praxisbetriebe in die Untersuchung ist dabei wünschenswert (KROODSMA und OGINK, 1997).

Grundsätzlich werden an Messgeräte für NH_3 -Konzentrationen folgende Anforderungen gestellt (NESER, 2001; MÜLLER et al., 1997):

- hohe Genauigkeit bei der Konzentrationsbestimmung,
- hohe zeitliche Auflösung,
- einfache Bedienung,
- gleichzeitige Erfassung weiterer Gase,
- mobil, schnelle Einsatzbereitschaft.

Eine kontinuierliche Messung der Lufrate und der Gaskonzentration sowie Langzeitversuche zur Erfassung von tages- und jahreszeitlichen Effekten sind die Anforderungen, die JUNGBLUTH und BÜSCHER (1996) an die Bestimmung von Emissionsraten stellen.

Ein Überblick über die wichtigsten Ammoniakmessverfahren ist im Folgenden kurz dargestellt.

Denuder (Vgl. Kap. 2.4.6)

Denuder sind laminar durchströmte Rohre oder Ringspalte, an deren Wänden Gase abgeschieden und so aus dem Luftstrom entfernt werden (DÄMMGEN, 2001a). Häufig werden Denuder in Verbindung mit Filtern bei der Probennahme von Stäuben eingesetzt. Die Probennahme kann kontinuierlich oder diskontinuierlich, aktiv mit Pumpen oder passiv mit freier Winddurchströmung betrieben werden.

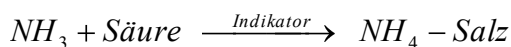
Passiv-Sammler

Bei passiven Sammelverfahren werden die Gase durch Strömung, Diffusion oder Permeation zu Adsorptionsflächen geführt an denen sie abgeschieden und dauerhaft gebunden werden. Anhand der abgeschiedenen Stoffmenge kann dann auf die Konzentration geschlossen werden. (DÄMMGEN, 2001b). Zwei gebräuchliche Bauarten sind radialsymmetrische Passivsammler und der Passivsammler nach Ferm (BIGANZOLI et al., 2007).

Prüfröhrchen

Gasprüfröhrchen werden in der Landwirtschaft vorwiegend zur Kontrolle der Luftqualität in Ställen eingesetzt. Ihr Messbereich liegt zwischen 2 und 80 ppm (GRIMM, 2001). Die zu beprobende Luft wird mittels einer Pumpe durch das Glasröhrchen gesaugt, dass ein Sorptionsmittel und einen Indikator enthält.

Durch die Änderung des pH-Wertes erfolgt eine Farbreaktion, anhand derer die Gaskonzentration abgelesen werden kann (DRÄGER SAFETY AG UND CO. KGAA, 2008).



Die Geräte werden aufgrund ihrer geringen Kosten und der einfachen Handhabung gern verwendet. Sie bringen jedoch durch die Skalierung und der, bei manuellem Pumpen schwer zu definierenden, Gasmenge erhebliche Messunsicherheiten mit sich (NESER, 2001). Eine Weiterentwicklung stellt das Dräger-CMS dar, bei dem die Vorteile der Prüfröhrchen mit denen eines opto-elektronischen Auswertesystems verbunden wurden (DRÄGER SAFETY AG UND CO. KGAA, 2008).

Photoakustische-IR-Spektrometer

Gasmoleküle besitzen die Fähigkeit Infrarot- (IR) Licht zu absorbieren. Jedes Gas sorbiert dabei eine charakteristische Wellenlänge. Die Masse des absorbierten Lichtes ist dabei proportional zur Gaskonzentration. Befindet sich das Gas in der Messzelle, so wird bei der Lichtabsorption Energie in Form von Wärme freigesetzt, die zu einer Druckerhöhung in der Messzelle führt. Durch die Druckschwankungen entsteht ein Schall, der von Mikrofonen aufgezeichnet werden kann (HINZ und SCHRÖDER, 2001). Diese Methode ist am Beispiel des in der vorliegenden Arbeit verwendeten Messgerätes im Kapitel 3.2.1 ausführlich erläutert. Für die Reproduzierbarkeit und Bereichswertdrift geben HINZ und SCHRÖDER (2001) 1 bzw. 2,5 % vom Messwert an. Durch die Verwendung von Mehrpunkttrobennehmern kann es zu einer Verschleppung der Probenluft kommen, wenn die Spülzeit der Messzelle nicht ausreichend lang ist NIEBAUM (2001). In den Arbeiten von SNELL et al. (2003), HÖLSCHER (2006), KRESSE und BÜSCHER (2008), MÜLLER et al. (1997), BÜSCHER und FROSCH (2001), SCHIEFLER et al. (2011), NGWABIE et al. (2009) und HINZ et al. (2010) kamen Geräte auf der Basis der photoakustischen-IR-Spektroskopie zur Anwendung.

FTIR-Spektroskopie

Unter dem Begriff der FTIR-Spektroskopie (Fourier-Transformations-Infrarot-spektrometer) werden die Verfahren der Langweggaszellen-Messung und der Offenpfadmessung zusammengefasst. Bei der Offenpfadmessung wird eine Messstrecke durch den zu beprobenden Raum gelegt, während sich bei der Langweggaszellen-Messung das Probengas in einer Zelle befindet. Bei diesen Verfahren kann der NH_3 -Gehalt der Probenluft kontinuierlich und in Verbindung mit der Analyse weiterer Spurengase gemessen werden. Die FTIR-Spektroskopie arbeitet ebenfalls mit IR-Licht, das auf ein Michelson-Spektrometer geleitet wird, wo die Wellenlängen anhand einer Fourier-Transformation selektiert werden (SCHRÖDER et al., 2001; NESER, 2001; GREMLICH und GÜNZLER, 2003; SCHRADER, 2009).

2.3 Methoden zur Bestimmung des Luftvolumenstroms

Zur die Bestimmung des Luftvolumenstroms in Stallgebäuden kommen verschiedene Verfahren zur Anwendung. Während sich zwangsbelüftete Ställe im Hinblick auf ihren Luftwechsel relativ einfach, mit Hilfe von kalibrierten Messventilatoren, untersuchen lassen, ist die Bestimmung des Volumenstroms in frei gelüfteten Gebäuden wesentlich komplexer und anspruchsvoller. Die Erfassung von Luftvolumenströmen in Stallanlagen wird durch die VDI-RICHTLINIEN 4300 Blatt 7 (2001) und 4285 Blatt 2 (2006) geregelt.

Luftvolumenstrombestimmung mit Messventilatoren

In zwangsbelüfteten Ställen erfolgt die Freisetzung der Stallluft über Abluftschächte im Dach. Über, in den Abluftschächten installierte, Ventilatoren kann der Luftvolumenstrom kontinuierlich oder in Kurzzeitmessungen erfasst werden (BÜSCHER et al., 2001; DEMMERS et al., 1998). Messventilatoren basieren auf dem Prinzip von Flügelradanemometern und erfassen bei Rundkaminen den gesamten Kanalquerschnitt (VRANKEN et al., 1997; BERCKMANNS et al., 1991). Die Drehfrequenz der Ventilatoren entspricht einem bestimmten Luftstrom und kann über Frequenzmessgeräte abgelesen bzw. aufgezeichnet werden.

Tracergasmethode

Tracergase dienen der Markierung der Raumluft, wobei von einer idealen Vermischung des Tracers mit der Stallluft ausgegangen wird (MÜLLER, 2001; BARBER und OGLIVIE, 1982; DEMMERS et al., 2000, 2001; MÜLLER und MÖLLER, 1998).

Als Tracer können Helium (He), Kohlenstoffdioxid (CO₂), Lachgas (N₂O), Schwefelhexafluorid (SF₆) oder das radioaktive Krypton 85 (⁸⁵Kr) eingesetzt werden.

In der Tabelle 2.5 sind die wichtigsten Tracer mit ihren Messmethoden und Nachweisgrenzen dargestellt.

**Tabelle 2.5: Messmethoden und Nachweisgrenzen von Tracergasen
(verändert nach RAATSCHEN, 1995)**

Tracer	Messmethode	Hintergrund (Volumenanteilen)	Detektionsgrenze (Volumenanteilen)
He	thermischer Leitfähigkeitsdetektor	k.A.	$800 \cdot 10^{-6}$
SF ₆	Infrarot-Adsorption, Electron Capture Detector	$0,85 - 1,5 \cdot 10^{-12}$	$1 \cdot 10^{-7}$
⁸⁵ Kr	Geiger-Müller-Zähler	wenige Bq m ⁻³	50 kBq m ⁻³

Die eingesetzten Tracer müssen den folgenden Anforderungen genügen (VDI-RICHTLINIE 4300 Blatt 7, 2001; RAATSCHEN, 1995; SCHNEIDER, 2006; ZENGER et al., 1994):

- ungiftig, umwelt- und gesundheitsverträglich,
- chemisch inert,
- geruchs- und geschmacklos,
- gut messbar,
- Dichteunterschiede zwischen Luft- und Tracergas möglichst gering,
- normalerweise im Raum und in der Außenluft nicht vorhanden,
- keine unbekanntes Quellen und Senken,
- nicht brennbar und nicht explosiv,
- Transporttauglichkeit und einfache Handhabung,
- wirtschaftlich.

Bei der Luftvolumenstrombestimmung mit Tracergasen werden nach MÜLLER (2001) die Abklingmethode, die Anstiegsmethode, die Methode der konstanten Tracerdosierung und die Methode der konstanten Tracerkonzentration unterschieden.

Die *Abklingmethode* basiert auf einer einmaligen Tracergas-Zufuhr mit anschließender Messung der Konzentration in Abhängigkeit von der Zeit.

$$C_i(t) = C_{i=0} e^{-\frac{\dot{V}}{V}t}$$

$\frac{\dot{V}}{V}$ bezeichnet die Luftwechselzahl α .

Bei der *Anstiegsmethode* wird eine Sprungfunktion herbeigeführt, indem nach einer langen Eindosierungsphase die Tracergas-Zufuhr plötzlich abgebrochen wird.

Die *konstante Tracerdosierung* entspricht in den Grundzügen der Anstiegsmethode. Die Tracer-Eindosierung wird hier jedoch nicht unterbrochen, sondern wird fortlaufend konstant gehalten. Der Luftvolumenstrom wird anhand der Konzentrationsdifferenz von Zu- und Fortluft ermittelt (MÜLLER, 2001) und ermöglicht die Abbildung seiner räumlichen und zeitlichen Variabilität (NESER et al., 2006).

Wird der Tracerstrom so gesteuert, dass im Raum die *Tracerkonzentration konstant* gehalten wird, kann anhand der Tracerzufuhr der Volumenstrom bestimmt und zeitlich variabel abgebildet werden.

Bilanzmethoden

Bilanzmethoden kommen vorwiegend in Ställen mit freier Lüftung zur Anwendung, da es wegen der Größe der Lüftungsöffnungen und teilweise geringen Strömungsgeschwindigkeiten dort oft nicht möglich ist, die Zu- und Abluftmengen direkt zu messen. Solche Bilanzen können z. B. für Wasserdampf, CO₂ und Wärme aufgestellt werden. Diese Methoden weisen jedoch hohe Fehler auf, da nicht alle Quellen und Senken im Stall bekannt sind und quantifiziert werden können (HINZ et al., 1995).

Wasserdampfbilanz

Die Wasserdampfbilanz beschreibt die Relation des von den Tieren abgegebenen Wasserdampfes zur Wasserdampfkonzentration in der Stallatmosphäre. Die abgegebene Wasserdampfmenge hängt dabei von der Tierart, Tieraktivität, Tiermasse, Tierleistung und den klimatischen Verhältnissen ab. Die Bezugsfeuchte (Luftfeuchte im Stall) muss dabei so gewählt werden, dass sie einen Querschnitt der Stallverhältnisse darstellt (HINZ et al., 1995).

Kohlendioxidbilanz

Die Gleichung zur Berechnung der CO₂-Bilanz beruht auf der Annahme, dass die im Stall produzierte CO₂-Menge durch die Lüftung vollständig nach draußen abgeführt wird. Vor allem die Berechnung der CO₂-Abgabe durch die Tiere führt bei dieser Methode zu großen Unsicherheiten. Nach SAMER et al. (2011) liegt der Fehler bei dieser Methode um die 20 % da die Stallhülle als Einflussfaktor nur unzureichend betrachtet wird. VAN BUGGENHOUT et al. (2009) vermuten sogar eine Fehlerrate von bis zu 40 %. XIN et al. (2009) konnten in einem in-situ Versuch hingegen keine Abweichung von der kalibrierten Abluftfahne feststellen. Auf eine Anwendung dieser Bilanzmethode sollte in wärmegeämmten Ställen verzichtet werden (PEDERSEN et al., 1998).

Die CIGR (2002) gibt zur Berechnung die folgende Formel auf der Basis von Tagesmittelwerten an:

$$\dot{V} = \frac{0,185}{(c_i - c_a) \cdot 10^{-6}}$$

mit:

0,185 : CO₂-Produktion (in m³ h⁻¹ HPU⁻¹)

\dot{V} : Luftvolumenstrom (in m³ h⁻¹ HPU⁻¹)

c_i : CO₂-Konzentration im Stall (in ppm)

c_a : CO₂-Konzentration außerhalb des Stalles (in ppm).

Wärmebilanz

Bei der Wärmebilanzmethode wird die vom System abgegebene Wärmemenge je Zeiteinheit in einen Bezug zur Außentemperatur und zur Stalltemperatur gesetzt. In der Literatur findet sich eine Vielzahl verschiedener Formeln und Wärmebilanzmodelle, die sich insbesondere im Grad ihrer Vereinfachung unterscheiden (MÜLLER, 2001). Auch hier liegt das Hauptproblem in der Anwendung bei der Bestimmung der Wärmeabgabe durch die Tiere.

2.4 Aerosole

Als *atmosphärische Aerosole* werden zusammenfassend kleinste Partikel bezeichnet (disperse Phase), die in einem gasförmigen Medium (kontinuierliche Phase) suspendiert sind (STIEB, 2009; REIST, 1993). Bei dem Medium handelt es sich üblicherweise um Luft.

Die Aerosole entstehen vorwiegend durch Zerstäubung oder Pulverisierung fester Stoffe (JARNYCH, 1967).

Systeme aus dispersen Stoffen werden charakterisiert durch (STIEB, 2009):

- ihre chemische Zusammensetzung,
- die Beschreibung ihrer dispersen Struktur,
- Wechselwirkungen an den Phasengrenzen und
- weitere Zustandsgrößen.

Durch Luftströmungen oder Vibrationen werden die Partikel in einem Schwebезustand in der Luft gehalten (ANGERSBACH-HEGER, 2002). Aus dieser Eigenschaft zu „schweben“ resultiert auch der umgangssprachlich Begriff des *Schwebstaubs* für sehr kleine Partikel. Das Luft-Partikel-Gemisch beinhaltet auch flüssige Substanzen in Form von Tropfen (Wolken, Nebel, Regen). Dabei handelt es sich bei dieser wässrigen Phase nicht um „reines“ Wasser; sie besteht vielmehr aus einer verdünnten Lösung, die durch Kondensation an festen hygrokopischen Partikeln, so genannten Wolkenkondensationskeimen, in Tropfenform übergeht (Vgl. Kap. 2.4.1) (MÖLLER, 2003).

Am gesamten Luftvolumen nehmen die feste und die flüssige Phase nur einen sehr geringen Anteil ein (Tabelle 2.6); sie beeinflussen jedoch die chemische und physikalische Zusammensetzung der Atmosphäre in bedeutendem Maße (MÖLLER, 2003).

Tabelle 2.6: Konzentrationsgrößenordnung (in Vol- %) und Anzahlkonzentrationen (in $n\ m^{-3}$) der Luftbestandteile (MÖLLER, 2003)

Bestandteil	Substanz / Phase	Konzentrationen	
Hauptbestandteile	Stickstoff	78 %	
	Sauerstoff	21 %	
	Edelgase	0,09 %	
Nebenbestandteile	Wasserdampf	0,001-0,02 %	der feuchten Atmosphäre
	Kohlendioxid	0,035 %	
Wolkenwasser	Flüssigwasser	10^{-4} %	($n \approx 300$)
	gelöste Spezies	$\geq 10^{-4}$ Massen- %	bzgl. Wolkenwasser
Niederschlagswasser	gelöste Spezies	$\leq 10^{-4}$ Massen- %	bzgl. Regenwasser
Spurengase	Methan	$1,6 \cdot 10^{-4}$ %	
	SO ₂ , NO _x	$10^{-9} - 10^{-5}$ %	
	VOC (NMVOC)	$10^{-8} - 10^{-6}$ %	
Aerosolpartikel ($d < 1\mu\text{m}$)	kontinental	10^{-8} % ($50\ \mu\text{g}\ \text{m}^{-3}$)	($n \geq 500$)
	maritim	10^{-10} % ($< 10\ \mu\text{g}\ \text{m}^{-3}$)	($n \geq 100$)
Radikale	OH, HO ₂ , NO ₃	$\leq 10^{-13}$ %	($n \geq 10^7$)

Nach MÜLLER (2002) lässt sich die disperse Aerosolphase in Abhängigkeit vom ihrem Aggregatzustand in die, in Abbildung 2.5 dargestellten, Gruppen „Teilchen und Körner“ für Feststoffe, „Topfen“ für den flüssigen Aggregatzustand und „Blasen“ für gasförmige Partikel einteilen.

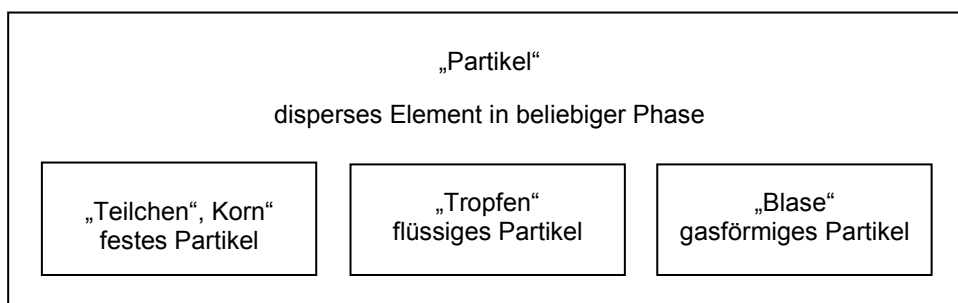


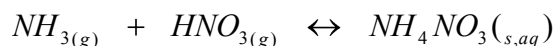
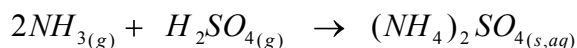
Abbildung 2.5: Bezeichnungen für Aerosole in Abhängigkeit vom Aggregatzustand (nach MÜLLER 2002)

Die Freisetzung von Partikeln aus der Landwirtschaft ist stark heterogen. Neben den unbelebten organischen und anorganischen Bestandteilen werden lebende Mikroorganismen wie Viren, Pilze, Bakterien und deren Endotoxine emittiert. Diese Clusterbildung aus Staub (unbelebte Bestandteile) und biologisch aktiven Organismen wird als *Bioaerosol* bezeichnet (SEEDORF und HARTUNG, 2002) und ist aufgrund ihrer politischen Brisanz Bestandteil zahlreicher Forschungsvorhaben.

2.4.1 Partikelbildung

Hinsichtlich ihrer Entstehung unterscheidet man zwischen primären und sekundär gebildeten Partikeln. Während primäre Partikel direkt in die Luft emittiert werden, entstehen Sekundärpartikel durch komplexe, chemische Reaktionen von gasförmigen Vorläufersubstanzen in der Atmosphäre (SCHNELLE-KREIS et al., 2007). Diese Vorläufer können natürlichen oder anthropogenen Ursprung sein. Zu ihnen zählen SO_2 , NO_x , NH_3 oder NMVOCs (REMUS, 2000; LENZ und COZZARINI, 1998; DÄMMGEN und ERISMAN, 2001).

Das gasförmige NH_3 wird zu 95 % aus landwirtschaftlichen Prozessen emittiert (Vgl. Kap. 2.2.2) und reagiert in der Atmosphäre mit der ebenfalls gasförmigen Schwefel- und Salpetersäure (H_2SO_4 und HNO_3). Diese Säuren sind Oxidationsprodukte von SO_2 und den NO_x . Es entstehen dabei bevorzugt die Salze Ammoniumsulfat ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) und Ammoniumnitrat (NH_4NO_3) sowie deren Lösungen (DÄMMGEN und ERISMAN, 2001).



(Index: g: gasförmig, s: fest; aq: flüssig)

Die Reaktion zwischen H_2SO_4 und NH_3 ist die bevorzugte Reaktion in der Atmosphäre (HUNTZIGER et al., 1980; MCMURRY et al., 1983).

In Abhängigkeit von den atmosphärischen Randbedingungen (Feuchte, Temperatur, Strahlung) und der Konzentration der Vorläufersubstanzen führt die Reaktion von NH_3 mit H_2SO_4 auch zu den stabilen Sulfaten Ammoniumhydrogensulfat (NH_4HSO_4) und Triammoniumhydrogensulfat ($(\text{NH}_4)_3\text{H}(\text{SO}_4)_2$) (DÄMMGEN und ERISMANN, 2001 nach FINLAYSON-PITS und PITTS, 1986 und KOUTRAKIS et al., 1992; GAGNE et al., 2009; NAPARI et al., 2002; HAMED et al., 2009; BAEK et al., 2004).

Bei der Reaktion mit HNO_3 handelt es sich um eine temperatur- und feuchteabhängige Gleichgewichtsreaktion. Bei niedrigen Temperaturen und hohe Luftfeuchten liegt das Gleichgewicht auf der partikulären Seite, wohingegen sich das Gleichgewicht bei hohen Temperaturen und niedrigen Luftfeuchten auf die Seite der gasförmigen Ausgangsstoffe oder in den flüssigen Zustand verschiebt (DÄMMGEN und ERISMAN, 2001; STELSON und SEINFELD, 1982; PRO und HARRISON, 1987; MATSUMOTO und TANAKA, 1996; CHANG et al., 1986; BAEK et al., 2004; BAEK und ANEJA, 2004). So werden nach STELSON und SEINFELD (1982) NH_4NO_3 -Kristalle bei Temperaturen über 25°C und relativen Luftfeuchten über 62 % flüssig. YOSHIZUMI und HOSHI (1985) geben für NO_3^- eine Verflüchtigungsrate von 10 % der Ausgangsmasse bei einer Erhitzung auf 70°C an.

Sekundäre Partikel sind anhand ihrer Größe leicht zu identifizieren. Bis zu einem Teilchendurchmesser von $0,2 \mu\text{m}$ kann mit großer Wahrscheinlichkeit von einer sekundären Bildung ausgegangen werden (COLBECK, 1995).

Der Prozess des Übergangs von der gasförmigen in die feste Partikelphase wird als Nukleation bezeichnet.

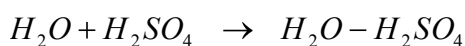
Es gibt vier Arten von Nukleationsprozessen (SCHNEIDER und VOIGT, 2011):

- | | |
|-----------------------------------|---|
| Homogen-homomolekular: | Selbstnukleation einer einzelnen Substanz |
| Homogen-heteromolekular: | Selbstnukleation von zwei oder mehr Substanzen |
| Heterogen-homomolekular: | Nukleation einer Substanz (Kondensation) auf einer anderen Substanz (Nukleationskeim) |
| Heterogen-heteromolekular: | Nukleation zweier oder mehrerer Substanzen (Kondensation) auf einer andern Substanz. |

Eine Neubildung von Partikeln liegt nur bei der homogenen Nukleation vor, Kondensationsprozesse führen dagegen zu einem Anwachsen bereits existierender Teilchen.

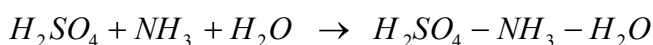
Die *homogene Nukleation* bezeichnet einen spontanen Prozess, bei dem durch den Zusammenstoß von Molekülen eine metastabile Phase, in Form von Clustern (*Embryos*), gebildet wird. Die Clusterbildung kann als Reaktion von Gasen mit sich selbst (z. B. $\text{SO}_3 + \text{SO}_3$), mit Wassermolekülen (z. B. SO_2 und H_2O) oder mit anderen Molekülen ($\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{NH}_3$, $\text{HNO}_3 + \text{NH}_3$) verlaufen (MÖLLER, 2003). Solche Cluster bestehen aus mindestens 20 Molekülen und besitzen einen Radius von 1 nm (KULMALA, 2003). Mit dem Erreichen des so genannten *kritischen Radius* gehen sie von den metastabilen in den stabilen Zustand über. Durch Kondensation von übersättigtem Dampf an diesen „Embryos“ wächst der „Embryo“ zu einem vollwertigen Nucleus heran (REIST, 1993). Er wird dann auch als *Germ* bezeichnet. Andernfalls erfolgt eine Rücküberführung in die Gasphase (MÖLLER, 2003). Die homogene Nukleation findet jedoch nur dann statt, wenn die Gasphase mit der nukleierenden Substanz übersättigt ist. So kann diese auch stattfinden, wenn die einzelnen Substanzen in Bezug auf ihre reine Flüssigkeit untersättigt sind. Ausschlaggebend ist dann der Dampfdruck über der gemischten Substanzlösung (SCHNEIDER und VOIGT, 2011).

Die Homogene-heteromolekulare Nukleation von zwei Substanzen wird auch als **binäre Nukleation** bezeichnet. Das gängigste Nukleationsmodell der binären Reaktion ist die Nukleation von H_2O und H_2SO_4 (KULMALA et al., 1998; RAES et al., 1995).



Um das Auftreten von hohen Nukleationsraten zu erklären, reicht das Modell der binären Nukleation aber oft nicht aus (KULMALA et al., 2002; WEBER et al., 1999).

Eine weitere Variante ist deshalb die **ternäre Nukleation** von H_2SO_4 , H_2O und NH_3 (KORHOHEN et al., 1999; COFFMANN und HEGG, 1995; WEBER et al., 1999).



Durch die Anwesenheit von NH_3 wird der Dampfdruck über der Schwefelsäure erniedrigt und dadurch die Nukleation von H_2SO_4 und H_2O erleichtert (BAUER, 2006; SCOTT und CATTELL, 1979).

Der H₂SO₄-Gehalt der Luft, der für die ternäre Reaktion benötigt wird, liegt um eine Größenordnung tiefer als der Bedarf für die binäre Reaktion (KORHONEN et al., 1999). Die Nukleationsrate J der ternären Nukleation übersteigt die der Binären bei Weitem (BALL et al., 1999; WEBER et al., 1999).

Die Nukleationsrate J (in N cm⁻³ s⁻¹) wird bei der ternären Nukleation von H₂O-NH₃-HSO₄-Clustern nach KULMALA et al. (2002) anhand folgender Gleichung berechnet:

$$J = C \exp \left(-\frac{\Delta G^*}{k_b T} \right)$$

mit C als kinetischem Faktor und ΔG^* als Änderung der Gibbschen freien Energie nach der Formel

$$\Delta G^* = \frac{4}{3} \pi r^{*2} \sigma_{s/a}$$

wobei der Radius des kritischen Clusters r^* und die Oberflächenspannung $\sigma_{s/a}$ einfließen. Typische Neubildungsraten liegen zwischen 0,1 und 10 cm⁻³ s⁻¹ (KULMALA et al., 2004). Für eine exakte Berechnung werden der Gleichgewichtsdampfdruck von H₂O, NH₃ und H₂SO₄ über der flachen Lösungsoberfläche, das Molekularvolumen der Spezies und die Oberflächenspannung der Lösung benötigt (KULMALA et al., 2002). Die klassische Nukleationstheorie sagt voraus, dass die Nukleation stark, nicht linear von der Konzentration der nukleierenden Spezies in der Gasphase abhängt (RAES et al., 2000).

Durch die Abbildung 2.6 wird die Bedeutung des NH_3 für die Höhe der Nukleationsrate graphisch verdeutlicht, da diese mit steigendem NH_3 -Gehalt der Luft stark ansteigt (NAPARI et al., 2002; SCOTT und CATTEL, 1979; COFFMAN und HEGG, 1995; BALL et al., 1999; SITHO et al., 2005). Die durchgezogenen Linien kennzeichnen die vorhandene Schwefelsäurekonzentration bei unterschiedlichen Temperaturen.

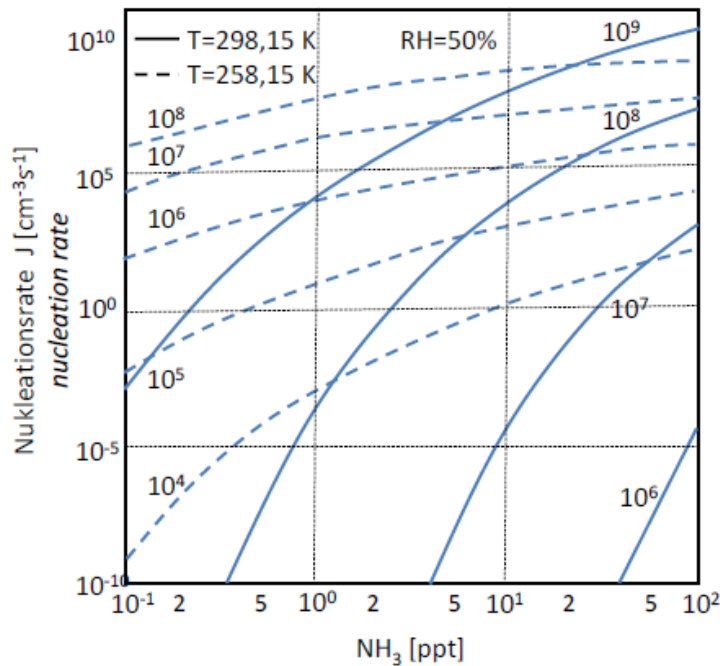


Abbildung 2.6: Nukleationsraten bei verschiedenen NH_3 - und H_2SO_4 -Konzentrationen in Abhängigkeit von der Temperatur (NAPARI et al., 2002)

Partikel mit hygroscopischen Eigenschaften ermöglichen den Stoffübergang (Kondensation) von Wasserdampf in die Partikelphase auch unter atmosphärischen Bedingungen ohne Wasserdampfsättigung infolge adiabatischer Abkühlung. Sie werden deshalb auch als Wolkenkondensationskerne (CCN = cloud condensation nuclei) bezeichnet. Alle Partikel mit wasserlöslichen Oberflächen sind durch einen bestimmten Deliquesenz-Punkt (relative Luftfeuchte bei der ein Stoff „zerfließt“) gekennzeichnet. Ab diesem Punkt werden sie als aktivierte CCN bezeichnet und können Wolkentropfen bilden (MÖLLER, 2003; ASMAN et al., 1998).

Da die vorhandene Wassermenge in der Atmosphäre nicht ausreicht, um alle vorhandenen CCN zu aktivieren und in Wolkentropfen zu überführen, werden Partikel, welche tatsächlich an der Tropfenbildung beteiligt sind, auch kurz als Kondensationskerne (CN) bezeichnet (MÖLLER, 2003). Nach TEN BRINK (2009) fungieren bevorzugt Partikel mit einer Größe von 120-200 nm als CN.

In der Abbildung 2.7 ist der Weg vom Gasmolekül bis zum CCN vereinfacht dargestellt.

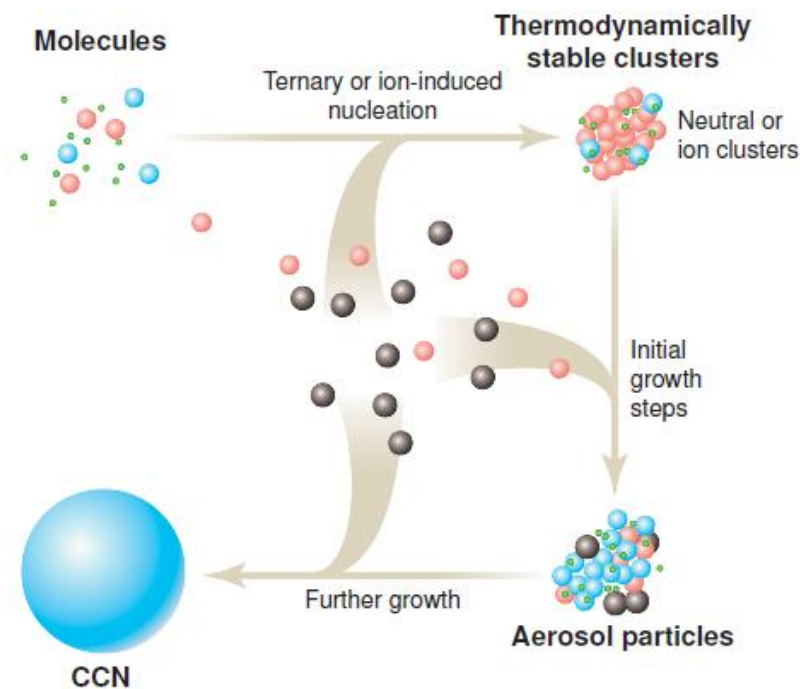


Abbildung 2.7: Entstehung von Wolkenkondensationskernen durch Nukleation und Aerosolwachstum (KULMALA, 2003)

Die Prozesse der Gas-zu-Partikel-Umwandlung in der Atmosphäre laufen teilweise sehr langsam ab. Vor allem die Bildung der Nukleationskeime kann viel Zeit in Anspruch nehmen (SCHNEIDER und VOIGT, 2011). Es muss deshalb davon ausgegangen werden, dass die Partikel, die an einem Standort gemessen werden, nicht als frisch emittiert zu betrachten sind, sondern im Ferntransport in Luftpaketen gebildet wurden (HAINSCH und NEUBAUER, 2004). Wenn die Bildung von Nukleationskeimen erst einmal erfolgt ist, kann das weitere Wachstum der Tröpfchen sehr schnell gehen (SCHNEIDER und VOIGT, 2011).

Bei Messungen in Finnland beschreiben SITHO et al. (2006) Wachstumsraten von $1,2 \text{ nm h}^{-1}$ für frisch nukleierte Partikel. KULMALA (2003) nennt Wachstumsraten von 1 bis 20 nm h^{-1} .

Unter troposphärischen Hintergrundbedingungen benötigen durch Nukleation entstandene Partikel Tage bis Wochen, um auf eine Größe von mehr als $0,1 \text{ }\mu\text{m}$ anzuwachsen. Unter verschmutzten, städtischen Bedingungen kann dieses Wachstum nur einen Tag dauern (RAES et al., 1995). In allen kontinentalen Grenzschichten kann die Neubildung von Partikeln beobachtet werden. In Abhängigkeit von der solaren Strahlung, dem Standort und der Jahreszeit finden solche Bildungsereignisse an 5 bis 50 % (BAUER, 2006) aller Tage, jedoch vorwiegend unter Sommer und Übergangsbedingungen statt (STANIER et al., 2004; VAKKARI et al., 2009; KULMALA et al., 2004). Neben den oben genannten Reaktionspartnern kommen in der Atmosphäre aber auch Substanzen vor, die die Geschwindigkeit der sekundären Partikelbildung beeinflussen. Einen solchen Effekt können Schwermetalle, Protonen oder einfache reaktive Oberflächen ausüben. Bei der Erforschung von Nukleationsvorgängen unter Laborbedingungen werden diese Einflüsse jedoch ausgeschlossen (DÄMMGEN und ERISMAN, 2001).

2.4.2 Eigenschaften fester Partikel

Für die Bewertung von Partikeln im Sinne des Umweltschutzes (Luftreinhaltung) und des Arbeitsschutzes müssen feste Luftbestandteile anhand ihrer Eigenschaften in definierte Klassen hinsichtlich Form, Größe, Topographie der Oberfläche, der chemischen Zusammensetzung (Substanz und Herkunft) (KTBL, 2006) oder nach ihrer Wirkung auf den Organismus (keine, allergene oder toxische Wirkung) eingeteilt werden (HOY, 1998).

Partikelgröße

Jedes Partikel ist hinsichtlich Form, Größe und chemischer Zusammensetzung unterschiedlich. Seine Eigenschaften werden durch die Partikelquelle, dynamische Prozesse wie Koagulation, Impaktion und Sedimentation sowie chemische Reaktionen und wolkenzyklische Prozesse bestimmt. In Abhängigkeit von der stofflichen Zusammensetzung und der Partikelgröße kann das Aerosol in charakteristische Klassen unterteilt werden (MÖLLER, 2003). Partikel werden meist als kugelige Formen angenommen. Ein wichtiger Parameter bei ihrer Einteilung ist der Durchmesser.

Die Angabe des Partikelradius findet sich vorwiegend in theoretischen Diskussionen der Partikeleigenschaften; während der Durchmesser in praktischen Fragestellungen Anwendung findet (REIST, 1993).

Je nach Messverfahren wird dieser als geometrischer Äquivalent-Durchmesser oder statischer Durchmesser (mikroskopische Verfahren), Streulicht-Äquivalentdurchmesser (optische Messgeräte), Beweglichkeitsdurchmesser (elektrische Mobilitätsverfahren) oder aerodynamischer Durchmesser (Impaktoren und Abscheider) definiert.

Für atmosphärischer Partikel erstreckt sich der *aerodynamische Durchmesser* über einen Bereich von 1 nm bis hin zu 1 mm (MÖLLER, 2003) und entspricht dem Durchmesser einer Kugel mit der Dichte von 1 g cm^{-3} , die in ruhender oder laminar strömender Luft die gleiche Sinkgeschwindigkeit wie das Partikel besitzt (HAINSCH und NEUBAUER, 2004).

Der für mikroskopische Betrachtungen herangezogene *geometrische Durchmesser* ist ein Äquivalentdurchmesser für die Vereinheitlichung von unregelmäßig geformten Partikeln durch Annahme einer Kreisform (MÜLLER, 2002). Unterschieden wird dabei in den Durchmesser der volumengleichen Kugel, Durchmesser der oberflächengleichen Kugel und den Durchmesser des projektionsgleichen Kreises (NANNEN, 2007).

Unter dem *Streulich-Äquivalentdurchmesser* wird der optische Durchmesser eines Partikels verstanden, das das gleiche Streulichtspektrum erzeugt wie ein Äquivalentpartikel. Die Streulichtintensität weist dabei eine starke Abhängigkeit von der Anordnung der Partikel im Raum auf (NANNEN, 2007).

Die physikalische Größe des *elektrischer Mobilitätsdurchmesser* bzw. des mobiliäts-äquivalenten Durchmessers findet vor allem in der Aerosoltechnik für ultrafeine Partikel Anwendung. Er beschreibt den Durchmesser d einer Kugel mit der Dichte 1 g cm^{-3} die sich im elektrischen Feld mit der gleichen Geschwindigkeit bewegt wie das gemessene Teilchen (STIEß, 2009).

Einteilung in Größenklassen

Die im Umweltbereich gängige Einteilung fester Teilchen in die Größenklassen PM_{10} , $PM_{2,5}$, PM_1 und $PM_{0,1}$ orientiert sich am aerodynamischen Durchmessers d_{ae} und gibt somit keinerlei Auskunft über die chemische Zusammensetzung und die damit einhergehenden Wirkungen auf die Umwelt und die Gesundheit von Lebewesen.

Die Abkürzung PM steht dabei für particulate matter (Feststoff), die Indices legen den Größenbereich fest. So beinhaltet zum Beispiel die PM_{10} Fraktion alle Partikel für die ein definierter gröbselektierter Lufteinlass der DIN ISO 7708 (1995) eine Abscheidewirksamkeit für Partikel mit 10 μm Durchmesser von 50 % aufweist. Für PM_{10} existiert in Deutschland ein gesetzlicher Grenzwert (Vgl. Kap. 2.4.5) von $40 \mu g m^{-3}$ im Jahresmittel (39. BImSchV). Die WHO (2006) empfiehlt weit niedrigere Grenzwerte von $20 \mu g m^{-3}$ für PM_{10} und $10 \mu g m^{-3}$ für $PM_{2,5}$.

Für die Beurteilung aus humanpathologischer Sicht wird die Staubfraktion nach der DIN EN 481 (1993) wie folgt untergliedert:

Staubfraktion	Merkmale
einatembar	durch Mund und Nase eingeatmet $\leq 100 \mu m$
thorakal	Vordringen bis in die Lunge $\leq 10 \mu m$
alveolengängig	Massenanteil der in die Alveolen vordringt $\leq 4 \mu m$
tracheobronchialer Anteil	Differenz zwischen thorakalem und alveolengängigem Anteil

In der Atmosphärenforschung und auf dem Gebiet der Aerosolphysik werden die Partikelgrößenklassen in den Nukleationsmode, den Akkumulationsmode und den Coarse mode (große Partikel) unterteilt. Die Abbildung 2.8 gibt einen Überblick über die Spannweite dieser Klassen und zeigt Beispiele für ihre Zusammensetzung.

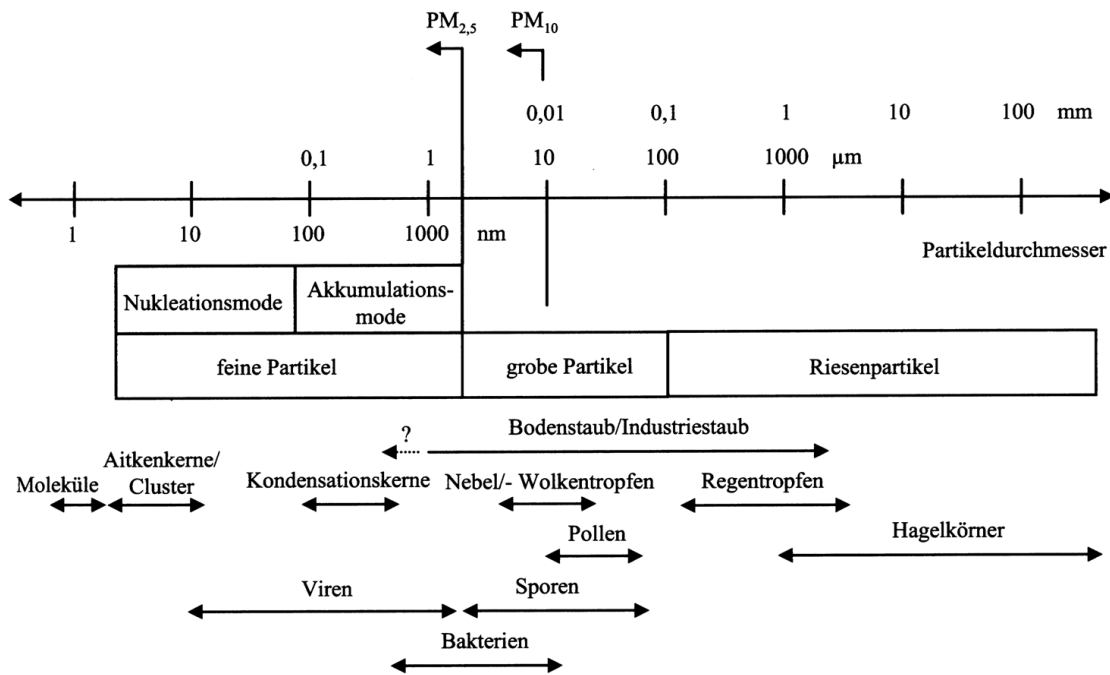


Abbildung 2.8: Größenbereiche und Bezeichnungen für atmosphärisches Aerosol (MÖLLER, 2003)

Der **Nukleationsmode** (oder Aitkenmode) enthält Partikel bis zu einer Größe von ca. 0,1 µm (WHITBY und CANTRELL, 1976; WHITBY und SVENDRUP, 1980; KITTELSON, 1998), die vorwiegend bei Verbrennungsprozessen direkt in die Atmosphäre emittiert werden und Partikel, die sich in der Atmosphäre durch Gas-zu-Partikel-Umwandlung bilden. Diese Partikel werden im allgemeinen Sprachgebrauch auch als ultrafein definiert (DONALDSON et al., 2001). Vor allem nahe der Quelle finden sich hohe Anzahlkonzentrationen in diesem Mode. Da solch kleine Partikel schnell untereinander oder mit Partikeln des Akkumulationsmodes koagulieren, haben sie nur geringe Lebenszeiten. In der Regel ist ein Wachstum über den Akkumulationsmode hinaus ausgeschlossen (HINDS, 1999).

Der **Akkumulationsmode** enthält Partikel aus Verbrennungsprozessen, Smog-Teilchen, sekundäre Partikel aus NH_3 , SO_2 , NO_x und VOCs sowie Nukleationsmode-Partikel, die bereits mit Partikeln des Akkumulationsmode koaguliert sind (HINDS, 1999; SPIRIG und NEFTEL, 2006; WHITBY, 2007). Die Größe der Partikel umfasst einen Bereich von 0,1 bis 1 μm (WHITBY und CANTRELL, 1976; WHITBY und SVENDRUP, 1980; KITTELSON, 1998). Da keine ausreichenden Austragungsmechanismen für diese Größenklasse vorhanden sind, akkumulieren die Partikel in diesem Stadium und geben dem Mode seinen Namen. Der Akkumulationsmode und der Nukleationsmode weisen signifikante Überlappungen auf (HINDS, 1999). Partikel mit einem Durchmesser unter 1 μm haben gewöhnlich eine Konzentration im Bereich von 10 bis 10.000 cm^{-3} (RAES et al., 2000).

Coarse mode Partikel sind größer 1 μm (WHITBY und CANTRELL, 1976; WHITBY und SVENDRUP, 1980; KITTELSON, 1998) und bestehen aus Wind-getragenen Staub, großen Salzkristallen aus der Gischt der Meere und durch mechanische Einwirkung entstandene, anthropogene Teilchen. Aufgrund ihrer Größe sedimentieren diese Partikel schnell oder werden an Oberflächen impaktiert. Ihre Lebensdauer beträgt daher nur wenige Stunden oder Tage. Partikel dieser Größe weisen Konzentrationen von weniger als 10 cm^{-3} auf (RAES et al., 2000). Die Trennlinie zwischen diesem Grobstaub und dem Feinstaub (Nukleations- und Akkumulationsmode) lässt sich nicht genau definieren und liegt situationsspezifisch zwischen 1 und 3 μm (HINDS, 1999).

Partikelgrößenverteilung

Das atmosphärische Aerosol ist polydispers und weist eine große Bandbreite von Partikeldurchmessern auf. Viele Partikeleigenschaften wie ihr Depositionsverhalten und damit ihre Lebensdauer oder ihre Interaktion mit Strahlung sind direkt von ihrer Größe abhängig. Zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung wird die Anzahl der Aerosolpartikel gegen den mittleren Äquivalentdurchmesser der entsprechenden Größenklasse aufgetragen (ROSENTHAL, 2010) und als logarithmische Normalverteilungsfunktion dargestellt (STIEB, 2009; REIST, 1993). Die Partikelgrößenverteilung wird durch die folgende Funktion beschrieben:

$$n(d_p) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot d_p \cdot \ln \sigma_g} \cdot \exp \left[-\frac{(\ln d_p - \ln d_g)^2}{2 \cdot (\ln \sigma_g)^2} \right]$$

mit :

d_p : entsprechender Äquivalentdurchmesser,

d_g : geometrisches Mittel des Äquivalentdurchmessers der Partikelverteilung,

σ_g : geometrische Standardabweichung der Normalverteilung.

Der am häufigsten auftretende Äquivalentdurchmesser bestimmt das Maximum der Funktion:

$$d(n_{\max}) = \exp \ln d_g - (\ln \sigma_g^2).$$

Für die Verteilung der drei Modi auf das atmosphärische Aerosol wird eine dreifach überlagerte Log-Normalverteilung angenommen (WHITBY, 2007).

Messungen der Partikelgrößenverteilung und der –anzahl von Nanopartikeln mit einem Durchmesser von weniger als 0,3 μm im Umfeld und im inneren Bereich von Tierhaltungsanlagen wurden bisher nur sehr selten durchgeführt. ONYENEKE-EDWARDS (2006) und MAHMOUD-YASNI (2006) führten Kurzzeitmessungen zu standortspezifischen Partikelkonzentrationen in Tierhaltungsanlagen für Milchvieh, Schweine und Geflügel durch.

Sie benutzen hierfür einen Wide Range SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) in Kombination mit einem OPC (Optical Particle Counter). Die Partikelanzahl und –größenverteilung von Aerosolen im Bereich von 5 nm bis 20 μm wurde dabei luv- und leeseitig der Stallanlage sowie in den Haltungseinrichtungen erfasst. Aus einer erhöhten Nanopartikelkonzentration im Lee der Betriebe und im Stallinneren schließen sie, dass eine heterogene Nukleation der Vorläuforgase auch schon nahe bzw. direkt in der Quelle stattfindet. LAMMEL et al. (2004) untersuchen Partikelverteilung im Bereich von 0,02 bis 20 μm auf dem Versuchsgut der Universität Hohenheim. Auch hier wurden erhöhte Partikelkonzentrationen im Bereich bis 1 μm im Lee des Betriebs nachgewiesen. Bei Messungen direkt in der Abluffahne eines Güllebehälters wurde ein mittlerer Durchmesser der Partikel von 2 μm bestimmt.

Partikelmasse

Partikelkonzentrationen können als Massenangabe oder als Anzahl bezogen auf eine Volumeneinheit (N m^{-3}) ausgewiesen werden. Der Hauptanteil an der Massenkonzentration liegt bei den großen Partikeln. Ultrafeine Partikel tragen hingegen nur wenig zur Gesamtmasse bei (Abbildung 2.9). Eine Umrechnung der Partikelanzahl auf die Partikelmasse ist mit größenabhängigen Massenfaktoren möglich, wenn die spezifische Dichte der Partikel bekannt ist (NANNEN, 2007).

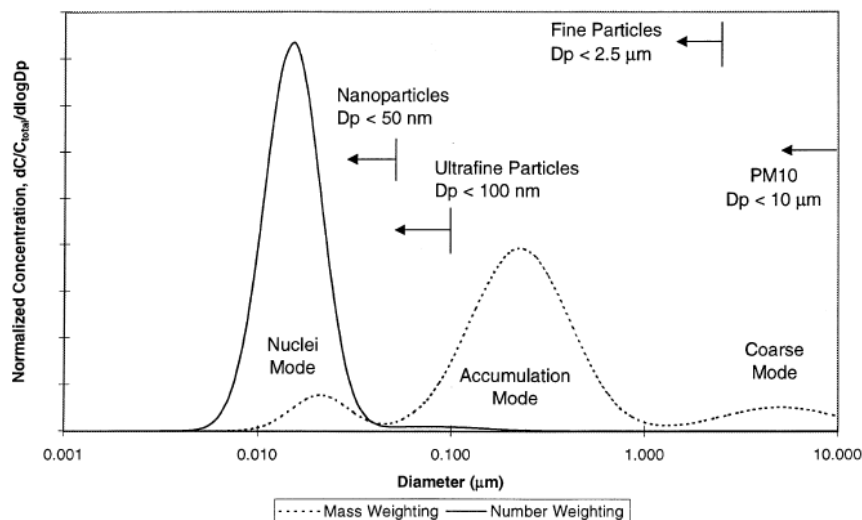


Abbildung 2.9: Größenverteilung von Aerosolen mit der größten Teilchenzahl im Nukleationsmode und der größten Aerosolmasse im Akkumulationsmode (KITTELSON, 1998)

Partikelform

Stäube sind hinsichtlich ihrer Form sehr verschieden, dabei wird dieser Polymorphismus durch Vorgänge wie Agglomeration oder Separation ständig erweitert. Ihre Form kann faserartig, gestreckt, gekrümmt, schuppenförmig oder von sphärischer Gestalt sein (SEEDORF und HARTUNG, 2002). Die Charakterisierung der Formklassen kann anhand eines Formfaktors erfolgen.

Chemische Zusammensetzung von Stäuben

Die chemische Zusammensetzung von Grob- und Feinstäuben ist stark voneinander verschieden. Da zwischen diesen beiden Fraktionen nur ein sehr geringer Massentransfer stattfindet, existieren sie in der Atmosphäre als zwei chemisch verschiedene Aerosole nebeneinander. Die feinen Partikel sind alkalisch und enthalten in hohen Mengen Sulfate, Ammoniumverbindungen, Kohlenwasserstoffe, elementaren Kohlenstoff (Ruß), toxische Metalle und Wasser. Die Grobstäube hingegen sind basisch und bestehen aus Erdkrustenmaterial und dessen Oxiden, wie Silizium, Eisen, Kalzium und Aluminium sowie aus großen Seesalzkristallen und Pflanzenteilen (HINDS, 1999; WILLIAMS und LOYALKA, 1991). LOHMEYER et al. (2003) analysierten die PM₁₀-Staubfraktion aus einem ländlichen und einem städtischen Gebiet in Niedersachsen. Eine Ergebnisauswahl ist in der Tabelle 2.7 dargestellt. Es ist deutlich zu sehen, dass der Anteil der sekundären Partikelbestandteile bei hohen Feinstaubbelastungen ansteigt und so zur Grenzwertüberschreitung beitragen kann.

Tabelle 2.7: Vergleich der chemischen Zusammensetzung von PM₁₀ bei verschiedenen Massenkonzentrationen (verändert nach LOYMEYER et al., 2003)

Gebiet	Inhaltsstoff	SO ₄ ²⁺ +NO ₃ ⁻ +NH ₄ ⁺	EC	OM	Ca+Al	Na+Mg	Fe+Me
		%-PM ₁₀	%-PM ₁₀	%-PM ₁₀	%-PM ₁₀	%-PM ₁₀	%-PM ₁₀
ländlich	> 50 µg m ⁻³	54 %	10 %	18 %	0,8 %	0,5 %	0,9 %
	< 30 µg m ⁻³	34 %	6 %	24 %	1,2 %	4,7 %	1,2 %
städtisch	> 50 µg m ⁻³	42 %	11 %	19 %	1,5 %	0,5 %	1,9 %
	< 30 µg m ⁻³	26 %	8 %	28 %	2,1 %	3,8 %	3,6 %

Weitere Angaben zur chemischen Zusammensetzung von Aerosolen finden sich u.a. in BAEK und ANEJA (2004), DRECHSLER et al. (2006), WANG et al. (2009) und LAMMEL et al. (2004).

2.4.3 Deposition von Partikeln

Im Gegensatz zur Emission, die den Eintrag von Spurenstoffen in die Atmosphäre beschreibt, umfasst der Begriff Deposition alle Prozesse, die zum Austrag von Spurenstoffen, in trockener oder nasser Form, führen. Im Allgemeinen werden durch Deposition Stoffe aus der Atmosphäre an die Erdoberfläche und dort auf Wasser, Boden, Pflanzen, Tiere, Menschen und sonstige Materialien übertragen. Dieser Übergang wird auch als Immission bezeichnet (MÖLLER, 2003).

Die TA-LUFT (2002) definiert Immissionen als: „...auf Menschen, Tiere, Pflanzen, den Boden, das Wasser, die Atmosphäre oder Kultur- und Sachgüter einwirkende Luftverunreinigungen“ und behandelt somit die Substanz und deren Wirkung.

Partikel werden durch Gravitation oder durch Flüsse, die einem Konzentrationsgradienten folgen, aus der Atmosphäre ausgetragen. Die Ausbildung von Konzentrationsgefällen erfolgt dabei überwiegend in die Richtung von Flächen, die chemisch mit dem Aerosol reagieren oder es mechanisch oder elektrostatisch fixieren (Adhäsion) (DÄMMGEN und ERISMAN, 2001).

Die Deposition von Spurenstoffen kann nach MÖLLER (2003) in vier folgende physikalische Prinzipien unterteilt werden:

- a) Sedimentation von Substanz durch die Schwerkraft;
- b) Sorption von Substanz an die Erdoberfläche (trockene Deposition);
- c) Sorption und/oder Impaktion von Substanz an fallende Hydrometeore (nasse Deposition) und
- d) Impaktion von Teilchen an Oberflächen.

Der Prozess der Sedimentation infolge der Gravitation tritt nur bei Aerosolteilchen mit einem Durchmesser $> 5\mu\text{m}$ auf. Sie werden deshalb auch Sedimentationsstaub genannt (MÖLLER, 2003; SCHNEIDER und VOIGT, 2011). Die Sedimentation ist abhängig von dem Dichteunterschied von Fluid und Partikel sowie von der Partikelform und -größe (PETERSMANN, 2004 nach NANNEN, 2007).

Auch das Fallen von Hydrometeoren (z. B. Regentropfen, Schneeflocken, Hagelkörner) wird durch die Gravitation ausgelöst. Die ausgetragenen Hydrometeore beinhalten Spurenstoffe, die bei ihrer Bildung oder durch spätere Sorption innerhalb der Wolkenschicht aufgenommen wurden. Dieser Prozess wird *in-cloud scavenging* genannt. Auf ihrem Weg zur Erdoberfläche entfernen sie aber außerdem Gase und Partikel unterhalb der Wolkenschicht aus der Atmosphäre. Dieser Prozess wird als *sub-cloud scavenging* bezeichnet (MÖLLER, 2003).

Die Depositionsprozesse der Sedimentation und der nassen Deposition sind ausschließlich von atmosphärischen Prozessen abhängig. Für die trockene Deposition und die Impaktion spielen darüber hinaus auch die Eigenschaften der Erdoberfläche eine Rolle. Da die trockene Deposition direkt von der Gasphasenkonzentration der gas- und partikelförmigen Substanzen abhängig ist, spielt sie mengenmäßig vor allem nahe der Quelle (ASMAN et al., 1998) und in ariden Gebieten eine größere Rolle als die nasse Deposition (MÖLLER, 2003).

Trockene Deposition

Von einer Vielzahl Autoren wird diese Form der Deposition als trocken abgelagerte Stoffmenge unter regen- und schneelosen Witterungsbedingungen definiert. SEINFELD und PANDIS (1998) zählen sogar die Sedimentation mit zu diesem Prozess. Für MÖLLER (2003) ist diese Auffassung physikalisch falsch, da der Mechanismus der trockenen Deposition auch bei Regen abläuft und dann oftmals sogar höhere Raten aufweist als bei trockener Erdoberfläche. Er hält die Adjektive *trocken* und *nass* daher für äußerst ungünstig gewählte Beschreibungen. Die Stärke der trockenen Deposition von Aerosolen wird nach SCHNEIDER und VOIGT (2011) von dem Turbulenzgrad der Atmosphäre, der Natur der Oberfläche sowie von Größe, Dichte und Form der Partikel bestimmt.

Nasse Deposition

Die nasse Deposition umfasst den Austrag von Substanz aus der Atmosphäre durch Hydrometeore, der Niederschlag selbst (Wasserdeposition) zählt nicht dazu. Im Unterschied zu den anderen Depositionsprozessen in der Atmosphäre läuft die nasse Deposition nicht stetig ab, sondern ist ein ereignisbezogener Prozess, zu dessen Quantifizierung Kenntnisse über die statistischen Werte von Nassereignissen (z.B. Andauer, Häufigkeit, Verteilung, Tropfenradius und -anzahl) nötig sind.

Die nasse Deposition kann dann anhand einer Nassablagerungsgeschwindigkeit und eines Nassablagerungskoeffizienten parametrisiert werden. Eine exakte Bestimmung ist auch durch Sammeln von Regenwasser mit anschließender chemischer Analyse möglich (MÖLLER, 2003). Die Einfangrate (scavenig rate) entspricht dem Fluss der ausgewaschenen Substanz. Dieser ist proportional zur Konzentration der Substanz (SCHNEIDER und VOIGT, 2011).

Deposition durch Impaktion

Im Gegensatz zu Molekülen und kleinen Partikeln, die sich der Luftströmung entsprechend um ein Hindernis herum bewegen, behalten größere Teilchen aufgrund ihrer Trägheit ihre anfängliche Bewegungsrichtung bei und prallen gegen das Hindernis. Zur Beschreibungen des Partikelverhaltens in einer strömenden Luftmasse kann die *Strokes-Zahl* (Maß für die Beeinflussung der Partikelbewegung durch die Luftströmung) herangezogen werden, die als das Verhältnis der Partikelstopzeit t_a zur turbulenten Übergangszeit t_r definiert ist (HINDS, 1999). Bei sehr kleinen Partikeln muss eine zusätzliche Korrektur mit dem *Cunningham-Faktor* erfolgen.

Die Sammeleffizienz eines Hindernisses (z.B. Nadeln, Baumstamm) wird durch das Verhältnis der Partikelstopdistanz zur charakteristischen Länge (z. B. Größe der Spaltöffnung eines Impaktors, Länge der Nadel) bestimmt und als Impaktionszahl Z_i bezeichnet. Je höher die Impaktionszahl den Wert 1 überschreitet, desto höher ist die Wahrscheinlichkeit, dass alle Partikel eingesammelt werden (MÖLLER, 2003).

2.4.4 Umweltwirkungen

Die in der Luft enthaltenen Spurenstoffe wirken einzeln oder zusammen auf die Atmosphäre selbst oder auf die an sie angrenzenden Reservoir. Als Wirkungspotenziale definiert MÖLLER (2003) das Oxidationspotenzial, das Aziditätspotenzial, die Toxizität und den Klimaantrieb. Sie wirken bei hohen Konzentrationen schädlich auf die Vegetation, die Gesundheit und Baumaterialien, führen sekundär zur Erosion und verändern das Klima.

Klimawirkung

Eine mögliche Änderung des Klimas ist ein regional und global diskutiertes Problem. Die Temperaturverteilung und die Ausprägung der Klimatelemente Bewölkung, Niederschlag und Wind wird durch den Einfall solarer Strahlung und der terrestrischen Strahlung beeinflusst (MÖLLER, 2003). Natürliche und anthropogene Aerosole spielen eine wichtige klimatische Rolle, indem sie Solarstrahlung zurück ins Weltall reflektieren (CHARLSON et al., 1992). Aerosolpartikel in der Troposphäre streuen die einfallende solare Strahlung über zwei Mechanismen zurück ins Weltall. Zum einen kann die Strahlung vom Aerosolpartikel direkt gestreut werden. Zum anderen können, bei einer hohen Zahl an CCN, mehr Wolkenröpfchen gebildet werden, die die Strahlung reflektieren. Eine Erhöhung der CCN führt zu einer vermehrten Wolkenbildung mit kleineren Tropfen, die eine größere Lebensdauer aufweisen. Die Albedo (Rückstrahlung) erhöht sich und führt zu einer Abkühlung der unter den Wolken liegenden Schicht (MÖLLER, 2003; MAKKONEN et al., 2009). Für die Effektivität als CCN spielen dabei die Anzahl der Ionen, in die ein Molekül dissoziiert und die molare Masse, eine Rolle.

Neben $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ (molare Masse = 132 g mol^{-1}) ist beispielsweise auch Natriumchlorid (NaCl , molare Masse $58,5 \text{ g mol}^{-1}$) eine typische CCN-Substanz. $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ergibt bei kompletter Dissoziation 3 Ionen, NaCl bildet 2 Ionen. Der Nettoeffekt von molarer Masse und Dissoziation ergibt, dass NaCl bei gleicher trockener Masse $\sim 1,5$ mal aktiver als CCN ist (SCHNEIDER und VOIGT, 2010).

Beide Effekte führen zu einer Abkühlung der Atmosphäre (HINDS, 1999; HOBBS, 1999; SEINFELD und PANDIS, 1998).

Der wichtigste Parameter der Klimaänderung ist der Klimaantrieb (climate forcing), der in W m^{-2} angegeben wird. Er kann positiv sein, also zu einer Erwärmung der Atmosphäre führen (z. B. durch Treibhausgase), oder bei einer Abkühlung einen negativen Wert annehmen (MÖLLER, 2003; SCHNELLE-KREIS et al., 2007). CHARLSON et al. (1992) berechneten eine Abkühlung (direkter und indirekter Effekt) durch Aerosole in der Atmosphäre von -2 W m^{-2} . Der direkte Effekt von Sulfat-Aerosolen beträgt nach Modellkalkulationen von KIEHL und BRIEGLEB (1993) $-0,3 \text{ W m}^{-2}$. Bei einer gewissen Feuchtigkeit und Sonneneinstrahlung führt die Bildung von sub- μm -Partikeln auch zu einer Verminderung der Sichtweite.

Wirkung auf die Vegetation

Wenn es zur Ablagerung von Ammoniumsalzen auf Pflanzenoberflächen kommt, kann dies aufgrund der hygroskopischen Eigenschaften zu Wasserverlusten der Pflanze führen (BURKHARDT et al., 2001). Vor allem an Standorten, die zu Wassermangel neigen, kann die Beeinflussung des Transpirationsverhaltens von Pflanzenoberflächen gravierende Folgen haben.

Einfluss auf die Gesundheit

Eine Vielzahl von Stäuben wurde im Bereich der Arbeitsmedizin hinsichtlich ihrer Wirkung erforscht. Da es sich in diesem Bereich aber um sehr hohe Konzentrationen handelt, sind die Ergebnisse nur in geringem Maße auf Immissionsschädigungen übertragbar. MORGAN et al. (1998) und DOCKERY et al. (1993) sagen über Modellkalkulationen voraus, dass die menschliche Mortalitätsrate zwischen 1,5 und 10 % zunimmt, wenn die PM_{2,5}-Konzentration um 10 µg m⁻³ steigt. BURINGH (2001 nach MÖLLER, 2003) weist darauf hin, dass die kausalen Wirkungsfaktoren von Stäuben auf die Gesundheit noch weitestgehend unbekannt sind und hohe Tages- und Episodenbelastung an Staub einen geringeren Effekt haben als eine Langzeitbelastung. MÖLLER (2003) ist dabei der Auffassung, dass gegenwärtig in urbanen und ländlichen Gebieten gemessenen Konzentrationen keine humantoxikologische Relevanz aufweisen. Auch NEUBERT (2001) kommt nach einer umfangreichen Literaturstudie im Bezug auf Sulfat-Aerosole zu dem Schluss, dass selbst stark erhöhte Konzentrationen bei einer kurzzeitigen Exposition zu keiner Beeinflussung der Lungenfunktion führen. DONALDSON et al. (2002) betonen die Schwierigkeit eine Trennstelle bezüglich negativer Auswirkungen in Abhängigkeit von der Partikelgröße bei Feinstäuben festzulegen. Sie führen im Zusammenhang mit dem weiten Partikelspektrum an, dass es beispielsweise im Moment keinen Anhaltspunkt für einen unterschiedlichen Effekt von Partikeln mit einem Durchmesser von 90 und 110 nm gibt.

Minderungspotential für Sekundärpartikel

Zum jetzigen Zeitpunkt ist der NH_3 -Gehalt in der Atmosphäre ausreichend, um die Gesamtheit der sauren Vorläufergase zu neutralisieren und in Partikelform zu überführen (SEIDL et al., 1996; LINDBERG et al., 1990; PINDER et al., 2006).

Eine Senkung der Feinstaubbelastung durch sekundäre Aerosole ist nur über eine Reduktion der Vorläufersubstanzen möglich. Die NH_3 -Reduktion erweist sich dabei als effektiver als die Verringerung des Ausstoßes von SO_2 und NO_x . Dennoch ist es nötig, die Emission aller Vorläufersubstanzen im selben Maße zu vermindern, damit die Formation sekundärer Partikel dezimiert werden kann (ERISMAN und SCHAAP, 2003; PINDER et al., 2006). Eine Modellrechnung von SPIRIG und NEFTEL (2006) zeigte, dass eine alleinige Reduktion der NH_3 -Emission um 10 % nur eine geringe Verminderung der Feinstaubbildung um 0,5 % bewirkt. Eine Abnahme der NH_3 -Emission um 50 % führte zu einer Feinstaubreduktion von 3 bis 10 %.

2.4.5 Gesetzliche Rahmenbedingungen

Zum Zweck des Umweltschutzes und zum Schutz der Gesundheit existieren Gesetze und Regelungen, die den Ausstoß von Stäuben und maximal zulässige Partikelkonzentrationen regeln. Diese Regelwerke beziehen sich dabei meist nicht ausschließlich auf Staub, sondern betreffen den Ausstoß von Luftschadstoffen, wie auch NH_3 , in seiner Gesamtheit.

EU- Richtlinie „Luftqualität“

In der RICHTLINIE 1999/30/EG des Rates vom 22. April 1999 setzt zur Erhaltung und Verbesserung der allgemeinen Luftqualität Grenzwerte für SO_2 , NO_2 und NO_x sowie Partikel (PM_{10}) und Blei in der Luft fest. Der PM_{10} -Grenzwert wird ab dem Jahr 2010 auf $20 \mu\text{g m}^{-3}$ im jährlichen Mittel festgelegt. Der 24-Stunden-Grenzwert liegt bei $50 \mu\text{g m}^{-3}$ und darf nicht häufiger als sieben Mal im Jahr überschritten werden. Weiterhin schreibt die Richtlinie die Einrichtung von Messstationen zur Erfassung von $\text{PM}_{2,5}$ -Konzentrationen und die Unterrichtung der Öffentlichkeit vor und regelt die Probenahme und Bewertung der Messdaten.

39. Verordnung zum Bundes-Immissionsschutzgesetz

Die 39. BImSchV (2010) legt neben einem Grenzwert für die NH₃-Emission (Vgl. Kap. 2.2.5) auch Immissionsgrenzwerte für PM₁₀ und PM_{2,5} fest. Die Vorgaben der o.g. EU-Richtlinie wurden teilweise entschärft. So liegt der PM₁₀-Immissionsgrenzwert mit 40 µg m⁻³ im jährlichen Mittel deutlich höher. Auch wird die Überschreitung des täglichen Grenzwertes von 50 µg m⁻³ mit 35 Tagen öfter toleriert.

Für PM_{2,5} wird erstmals ein Immissionsgrenzwert von 25 µg m⁻³ definiert, der ab dem Jahr 2015 einzuhalten ist.

TA-Luft

In der TA-LUFT (2002) (Vgl. Kap. 2.2.5) finden sich die Angaben zum PM₁₀ Grenzwert von 40 µg m⁻³ aus der 39. BImSchV wieder. Daneben wird für Anlagen ein allgemeiner Emissionsgrenzwert für den Gesamtstaub von 20 mg m⁻³ bzw. 15 g m⁻³ (bei einem Massenstrom von < 20 g h⁻¹) angegeben. Der maximale Depositionsgrenzwert beträgt 0,35 g m⁻² d⁻¹.

Maximale Arbeitsplatzkonzentration (MAK-Werte)

Mit der Einhaltung einer maximalen Arbeitsplatzkonzentration, die auch als „Allgemeiner Staubgrenzwert“ bezeichnet wird, sollen unspezifische Wirkungen auf die Atmungsorgane der Beschäftigten vermieden werden (HAHN und MÖHLMANN, 2011). In der MAK- und BAT-Werteliste (DFG, 2011) sind die neuen Grenzwerte für Feinstaub am Arbeitsplatz aufgeführt. Während der Grenzwert für die einatembare Staubfraktion mit 10 mg m⁻³ beibehalten wurde, wurde der Grenzwert für die alveolengänge Fraktion deutlich verschärft. Die ursprünglich erlaubte Konzentration von 3 mg m⁻³ wurde auf 0,3 mg m⁻³ reduziert. Zusätzlich wurden die granulären biobeständigen Stäube in die krebserregende Kategorie 4 aufgenommen.

2.4.6 Probenahme von Partikeln

Die Kenntnis des Gehaltes an Luftspurenstoffen und damit auch der Höhe der Luftbelastung und ihrer Folgen schafft die Voraussetzungen für eine effektive Situationsbewertung. Parameter für die Beschreibung eines Aerosols sind Masse, Anzahl und Zusammensetzung der dispergierten Partikel in der Summe oder differenziert nach der Partikelgröße (MEHLHORN, 1979). Die gängigen Messverfahren lassen sich in *kontinuierliche*, *diskontinuierliche* und *empirische* Verfahren unterscheiden.

Kontinuierliche Verfahren werden zur Beobachtung von zeitlichen Verläufen und ihren Konzentrationsspitzen am Probenahmeort (*on-line Messung*) angewandt (MÖLLER, 2003). Das Messgerät ist in den Abluftstrom integriert und Schwankungen der Messwerte können aufgrund der kurzen Zeitspanne zwischen Probennahme und Auswertung sofort registriert werden (STIEß, 2009). Im Routinebetrieb werden vorwiegend Messgeräte für Substanzen mit gesetzlich vorgeschriebenen Grenzwerten eingesetzt. Viele andere Stoffe werden außerdem zu Forschungszwecken kontinuierlich erfasst. Die zeitliche Auflösung der Messung ist nach unten von der Ansprechzeit des Gerätes begrenzt (MÖLLER, 2003).

Diskontinuierliche Verfahren liefern stichprobenartige Einzelmesswerte. Sie werden häufig für Probennahmen im Gelände mit anschließender Laboranalyse eingesetzt (off-line Messung).

Die Probennahme und Auswertung wird dabei oft durch VDI-Richtlinien oder DIN-Normen festgeschrieben. Im Hinblick auf die gravimetrische Bestimmung der Massenkonzentration sind hier die VDI-RICHTLINIEN 2066 Blatt 1 (2006) und 2463 Blatt 1 (1999) zu nennen.

Da die Zeit zwischen der Probennahme und der Ergebnisausgabe sehr lang ist, sind nur lang andauernde und langsame Veränderungen erfassbar (MÖLLER, 2003; STIEß, 2009).

Für die Abschätzung des Beitrages einzelner lokalisierter Quellen, ist es nötig die Hintergrundkonzentration zu messen. Bei Einzelquellen werden hierfür Luv-Lee-Messungen (Luv - Hintergrundkonzentration, Lee - Hintergrundkonzentration + Quellemission) durchgeführt (MÖLLER, 2003).

Die Erfassung sollte nach der VDI-RICHTLINIE 2066 Blatt 1 (2006) durch ein rotationssymmetrisch gestaltetes Probenahmesystem, das eine Anströmung aus allen Richtungen ermöglicht, optimiert werden.

Filter

Die Erfassung von Aerosolpartikeln auf Filtern ist die am meisten gebräuchliche Methode (HINDS, 1999). Zum Einsatz kommen Faserfilter (z. B. Glas, Zellulose) mikroporöse Membranfilter (z.B. Teflon, Zelluloseacetat) und Kapillar-Membranfilter (z. B. Polycarbonat). Faserfilter und Membranfilter sind Tiefenfilter. Die Partikel werden hier über die gesamte Schichtdicke abgeschieden, wodurch sie eine hohe Sammeleffizienz für alle Partikelgrößen aufweisen. Kapillar-Membranfilter zählen hingegen zu den Oberflächenfiltern. Bei ihnen verbleiben die Partikel auf der Filteroberfläche (MÖLLER, 2003). In der VDI-RICHTLINIE 2463 Blatt 1 (1999) werden die Eigenschaften verschiedener Filtermaterialien und ihr spezifischer Abscheidegrad beschrieben. Filter auf Cellulosebasis weisen zudem auch hohe Rückhaltungsmengen für gasförmige Substanzen (z.B. HNO_3) auf (SHAAP et al., 2002).

Impaktoren

Kenntnisse über die Partikelgrößenverteilung sind z. B. für die Erforschung von Partikelwirkungen und die Herkunftsanalyse eines Aerosols notwendig. Die Grundlage der Auftrennung in die verschiedenen Größenfraktionen bildet die Massenträgheit der Partikel (STIEB, 2009).

Impaktoren eignen sich durch ihre hohe Trennschärfe sehr gut für die Trennung von Aerosol in Fraktionen (MÖLLER, 2003). In ihnen wird der, durch eine Düse beschleunigte, Luftstrom auf eine Prallplatte rechtwinklig abgelenkt.

Dieser scharfen Umlenkung können nur Partikel folgen, deren Massenträgheit nicht zu groß ist. Träge Partikel werden an der Platte abgeschieden (MITCHELL, 1995) und können dann ausgewogen und analysiert werden. Für die Trennung des Aerosols in mehrere Klassen verwendet man so genannte *Kaskaden-Impaktoren* in denen mehrere Stufen mit abnehmender Durchlassgröße hintereinander angeordnet sind. Es können Größenverteilungen zwischen 0,4 und 16 μm (Andersen-Impaktor) und 0,01 bis 16 μm (Bernier-Niederdruck-Impaktor) bestimmt werden (MÖLLER, 2003).

Denudern (Diffusionsabscheider)

Ein Denuder (Vgl. Kap. 2.2.6) besteht in der Regel aus einem Glasrohr in dem sich ein Konzentrationsgradient ausbildet, welcher einen Diffusionsfluss von Gasmolekülen zur Wand bewirkt. Um die Gase an der Wand reversibel zu absorbieren, ist diese mit einem, dem zu entfernendem Gas angepassten, Adsorbtionsmittel beschichtet. Feste Partikel durchströmen das Rohr hingegen und werden am Ende auf einem Filter gesammelt oder einer anderen Probenahmereinrichtung zugeführt (MÖLLER, 2003).

Chromatographische Verfahren

Für die Analyse von komplexen Stoffgemischen, bei der eine Trennung der Komponenten erfolgen muss, wird auf chromatographische Analyseverfahren zurück gegriffen. Der Verteilung der Komponenten zwischen einer stationären und einer daran vorbeiströmenden mobilen Phase bildet dabei der Grundlage des Analyseverfahrens. Je nach mobiler Phase wird von *Gaschromatographie* (GC) und *Flüssigchromatographie* (HPLC = high performance liquid chromatographie) gesprochen. Die GC ist für die Trennung von Gasgemischen geeignet, deren Komponenten sich verdampfen lassen. Mit der GC werden vor allem flüchtige Kohlenwasserstoffe, anorganische Gase und SF₆ detektiert.

Mit der HPLC ist eine Bestimmung schwerflüchtiger organischer und anorganischer Stoffe möglich. Die Ionenchromatographie (IC) mit Leitfähigkeitsdetektion ist eine spezielle Variante der Flüssigchromatographie für die Analyse ionischer Substanzen. Für die Bestimmung des Anionengehaltes von Partikeln spielt sie in der Luftanalytik eine große Rolle. Eine Kopplung an Denuder zur on-line Messung ist mittlerweile möglich (MÖLLER, 2003).

Streulichtspektroskopie

Bei der Streulichtspektroskopie durchquert das Partikel im Messgerät einen Laserstrahl. Das gestreute Licht wird im 90° Winkel abgelenkt und über einen Spiegel auf eine Empfängerdiode geleitet. Anhand des eintreffenden Signals können verschiedene Größenklassen bestimmt werden (GOLZ, 2004).

Kondensationskernzähler (CPC, CNC)

Kondensationskernzähler (CPC= condensation particle counter oder CNC= condensation nucleus counter) werden bevorzugt für die Messung von Aerosolpartikeln $< 0,1 \mu\text{m}$ bei Anzahlkonzentrationen zwischen 500 und $5 \cdot 10^6$ Partikeln cm^{-3} eingesetzt (STIEB, 2009). Die Partikel werden angesaugt und durch einen Dampf aus übersättigtem Alkohol (z. B. Buthanol) geleitet und dabei aufkondensiert. Die entstehenden Tröpfchen sind deutlich größer als das Aerosol und liefern, durch Extinktion oder Streulicht, messbare Signale (HINDS, 1999). Eine Möglichkeit zur kombinierten Messung von Partikelanzahl- und größenverteilung bietet ein elektrostatischer Klassierer (DMA = differential mobility analyser). Er besteht aus einem Ringspalt, in dem ein elektrisches Feld aufgebaut wird. In Abhängigkeit von der stufenweise veränderten Feldstärke ändert sich die Partikelgröße, die abgeführt und dem Kondensationskernzähler zugeführt wird.

Diese Kombination aus CNC und DMA wird auch als SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) bezeichnet und gehört auf dem Gebiet der Aerosolforschung zum Stand der Technik (KULMALA et al., 2004). Das Funktionsprinzip wird in Kapitel 3.2.6 noch einmal, anhand der in dieser Arbeit verwendeten Messtechnik, ausführlich erläutert.

3 Material und Methoden

3.1 Material

3.1.1 Beschreibung der Versuchsbetriebe der NH₃-Messung

Milchviehställe mit Querlüftung

Für die Untersuchungen zum Emissionsverhalten von frei gelüfteten Milchviehställen wurden zwei Versuchsbetriebe ausgewählt, die weitestgehend den üblichen Praxisbedingungen entsprechen.

Liegeboxenlaufstall – Versuchsgut Frankenforst

Die Lehr- und Forschungsstation Frankenforst der Universität Bonn befindet sich in Königswinter, nahe der Stadt Bonn. Im Folgenden wird dieser Stall kurz als Gut Frankenforst bezeichnet. Neben Milchkühen und ihrer Nachzucht werden auf dem Betrieb Schweine, Legehennen und Schafe gehalten. Der zweireihige Liegeboxenlaufstall ist 48,52 m lang und 17,21 m breit. Er beherbergt durchschnittlich 61 Milchkühe (91,5 GV) der Rasse Deutsche Holstein mit einer Milchleistung von 9.292 kg (Stand 2008/2009). In der Breite entfallen 12,54 m der Stallgrundfläche auf den Haltungsraum und 4,67 m auf den Futtertisch an der Südostseite. Die Traufhöhe ist 4,00 m. Die Grundfläche des Haltungsbereiches beträgt 608,44 m², das Stallvolumen 4.180,3 m³. Jeder Kuh steht somit eine Haltungsfläche von 9,97 m² zur Verfügung. Der Stall ist in Südost-Richtung ausgerichtet. Die Nordwest-Seite des Stalles ist bis zu einer Höhe von 1,50 m mit feinmaschigen Windschutznetzen verschlossen. Darüber befindet sich ein weitmaschiges Netz. Die Lüftung kann über mechanisch regelbare Jalousien gesteuert werden. Eine freie Anströmung dieser Seite wird durch das parallel liegende Melkhaus behindert. Die Südostseite des Gebäudes ist komplett offen, hier befinden sich die Futterwiegetröge, über die die Tiere eine TMR ad libitum erhalten. In geringem Abstand zum Futtertisch befindet sich ein offener Flüssigmistbehälter, der eine geschlossene Schwimmdecke aufweist. Hinter diesem Lager grenzt der Sauenstall an.

Die 64 Liegeboxen (Hochboxen) sind an der Nordwest-Seite und in der Stallmitte angeordnete. Sie sind mit Kuhkomfortmatratzen der Firma Kraiburg (Kraiburg GmbH & Co.KG, Waldkraiburg) ausgestattet und werden zusätzlich dünn mit Strohmehl eingestreut.

Angrenzend an die beiden mittleren Liegeboxenreihen befinden sich zwei Transpondergesteuerte Kraftfutterstationen. Der Fußboden ist planbefestigt und besteht aus Beton. Der Laufgang vor den Futtertrögen ist zusätzlich mit Gummimatten ausgelegt. Die Reinigung erfolgt im Normalbetrieb im stündlichen Rhythmus über zwei Flüssigmistschieber, deren Abwurfschächte in den Stall integriert sind. Der Grundriss des Stalles ist in der Abbildung 3.1 dargestellt.

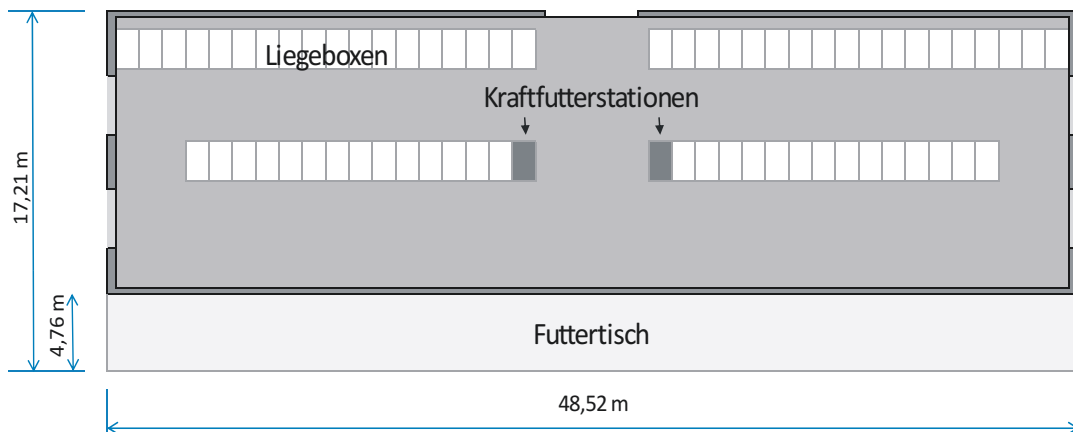


Abbildung 3.1: Grundriss des Milchviehstalles - Gut Frankenforst

Die Herde wird zwei Mal am Tag gemolken. Am Morgen beginnt das Melken um 5.00 Uhr und endet gegen 7.00 Uhr, die abendliche Melkzeit erstreckt sich von 17.00 bis 19.00 Uhr. In den Sommermonaten erhalten die Tiere üblicherweise Weidegang von 11.00 bis 16.00 Uhr auf einer direkt an den Stall angrenzenden Weide. Der Stallbereich ist dabei für die Tiere immer frei zugänglich, so dass Wasser und Kraftfutter aufgenommen werden können. Der Stall ist daher auch während der Weidezeit oft mit einem Teil der Tiere belegt.

Zeitlicher Ablauf der Messungen

Die Messungen in diesem Stall wurden auf die Jahreszeiten Sommer, Übergang und Winter verteilt, um den Einfluss jahreszeitlicher Effekt gezielt darstellen zu können. Die Tabelle 3.1 gibt einen Überblick über den Messzeitraum, die Messtage und die Anzahl der Tagesmittelwerte, die ausgewertet werden konnten.

Neben den Hauptmessperioden, in denen der Flüssigmistschieber im Normalzustand eines stündlichen Rhythmus war, wurden im Sommer und im Übergang ebenfalls Messungen mit einer reduzierten Frequenz durchgeführt.

Tabelle 3.1: Zeitlicher Ablauf der NH₃-Messungen - Gut Frankenforst

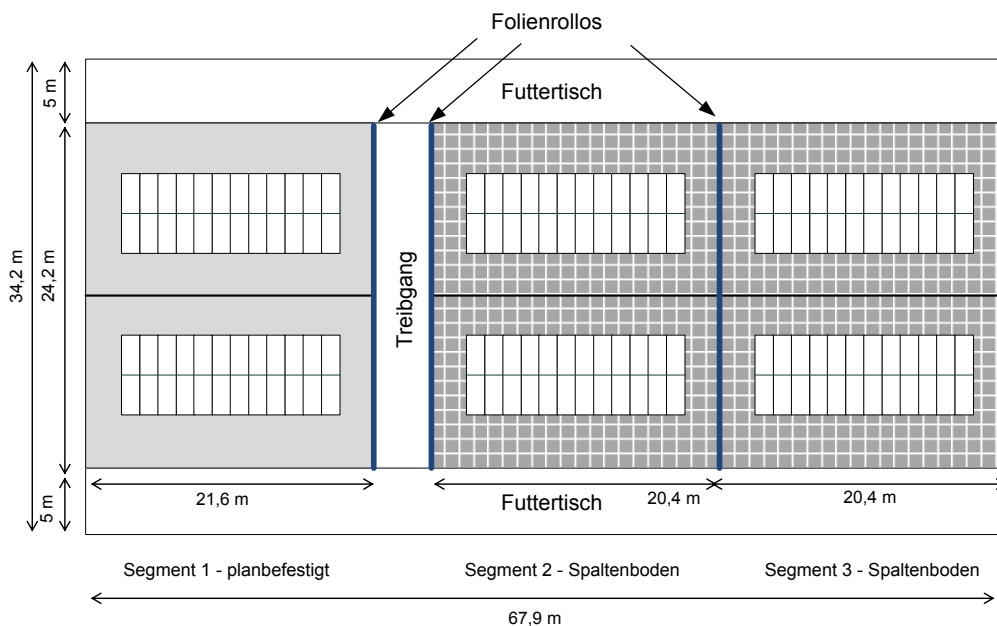
Jahreszeit	Messzeitraum	Messtage	davon Tagesmittelwerte
Sommer – FS stündlich	18.08. - 21.09.2010	33	29
Sommer – FS zweistündig	21.09. - 12.10.2010	22	21
Übergang – FS zweistündig	13.10. - 02.11.2010	21	20
Übergang – FS stündlich	03.11. - 23.11.2010	20	19
Winter	04.01. - 25.01.2011	21	20

FS = Flüssigmistschieber

Liegeboxenlaufstall – Haus Riswick

Das Landwirtschaftszentrum Haus Riswick der Landwirtschaftskammer Nordrhein-Westfalen liegt im Kreis Kleve. Neben Milchkühen und deren Nachzucht werden auf dem Betrieb Schafe, Mastbullen, Ziegen und Dammtiere gehalten. Der Milchviehstall ist ebenfalls frei gelüftet und steht quer zur Hauptwindrichtung West. Da die umliegenden Gebäude einen ausreichenden Abstand aufweisen, ist eine freie Anströmung relativ gut möglich. Zusätzlich besteht die Möglichkeit einer weiteren Lüftung über den First, der nach Bedarf geöffnet und verschlossen werden kann. Einen Grundriss des Stalles zeigt die Abbildung 3.2. Die Breite des Stalles beträgt 67,90 m, die Länge 34,20 m. Die Traufhöhe ist 6,61 m. Die Grundfläche des gesamten Haltungsbereiches beträgt 2.924 m², das Stallvolumen 13.590,72 m³. An den beiden Längsseiten des Stalles befinden sich Futtertische mit 5 m Breite, an denen das Futter (TMR ad libitum) über automatische Wiegetröge zugeteilt wird. Die Zuteilung des Kraftfutters erfolgt über Transpondergesteuerte Kraftfutterstationen. Die Westseite kann witterungsbedingt mit einer Jalousie teilweise oder komplett verschlossen werden.

Der Innenbereich des Stalles ist in drei Segmente unterteilt, Trenngitter unterteilen diese Segmente in jeweils zwei Abteile. Der gesamte Stall wurde für einen Tierbesatz von 144 Milchkühen mit je 48 Kühen pro Segment (72 GV) konzipiert. In jedem Segment stehen der Herde 48 Liegeboxen zur Verfügung, die mit Kuhkomfortmatten ausgelegt und minimal mit Sägespänen eingestreut sind. Durch Folienrollos können die Segmente räumlich komplett voneinander abgegrenzt und so emissionstechnisch einzeln erfasst werden.



**Abbildung 3.2: Grundriss des Milchviehstalles - Haus Riswick
(verändert nach SCHIEFLER et al., 2011)**

Der Fußboden besteht in zwei Segmenten aus Betonspaltenboden und wird durch einen Spaltenreinigungsroboter entmistet. Das Raumvolumen dieser Segmente beläuft sich auf $4.442,12 \text{ m}^3$, die Grundfläche auf $493,68 \text{ m}^2$. Jeder Kuh stehen somit $10,29 \text{ m}^2$ Fläche zu. Die Segmente sind mit 4 Kraftfutterautomaten ausgestattet. Der Boden im dritten Segment ist planbefestigt. Die Reinigung erfolgt stündlich durch einen Flüssigmistschieber. Die Abwurfschächte des Schiebers befinden sich außerhalb des Stalles. Dieses Segment besitzt bei einer Grundfläche $522,72 \text{ m}^2$ ein Raumvolumen von $4704,48 \text{ m}^3$ und ist mit 2 Kraftfutterautomaten ausgestattet. Auf jede Kuh dieses Segments entfällt eine Haltungsfläche von $10,89 \text{ m}^2$.

Alle Gruppen werden zwei Mal täglich gemolken. Das morgendliche Melken beginnt um 5.00 Uhr und endet um 7.00 Uhr. Am Abend ist der Melkbeginn um 16.00 Uhr, die Melkzeit endet gegen 18.30 Uhr. Die Tiere werden hierzu segmentweise vollständig in das angrenzende Melkhaus auf der Ostseite des Stalles getrieben, die Rückkehr erfolgt gruppenweise. Die Milchleistung der Herde lag im Jahr 2010 bei 9.460 kg.

Zeitlicher Ablauf der Messungen

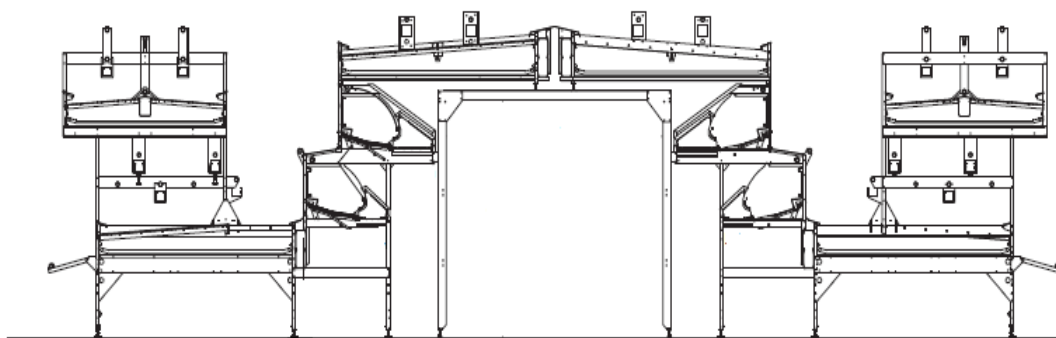
Die Messungen in diesem Stall wurden ebenfalls auf die Jahreszeiten Sommer, Übergang und Winter verteilt. Die Tabelle 3.2 gibt einen Überblick über den Messzeitraum, die Messtage und die Anzahl der Tagemittelwerte die ausgewertet werden konnten.

Tabelle 3.2: Zeitlicher Ablauf der NH₃-Messungen - Haus Riswick

Jahreszeit	Messzeitraum	Messtage	davon Tagesmittelwerte
Sommer	07.06.2011 - 06.07.2011	28	24
Übergang	24.03.2011 - 19.04.2011	26	22
Winter	26.12.2010 - 26.01.2011	23	19

Legehennen - Volierenhaltung

Die Messungen zur NH₃-Emission aus der Geflügelhaltung wurden in einem Legehennenstall im Kreis Dülmen mit einem Tierbesatz von 14.900 Hennen durchgeführt. Die Stallbreite beträgt 12,00 m, die Länge im Tierbereich 65,00 m. Die Gesamtlänge des Stalles ist 70,00 m. Die Legehennen werden in einem NATURA-Nova-Twin-Volierensystem der Firma Big Dutchman[®] gehalten (Abbildung 3.3).



**Abbildung 3.3: Voliersystem NATURA-Nova Twin
(verändert nach BIGDUTCHMAN, 2009)**

Die Nutzfläche ist bei diesem Haltungssystem auf mehrere Ebenen verteilt, die Stallgrundfläche wird zu 100 % als Scharraum genutzt. Die Entmistung erfolgt einmal wöchentlich über belüftete Kotbänder. Als Fütterungssystem kommt eine Kettenfütterung zum Einsatz, die Wasserversorgung wird durch Nippeltränken mit Tropfwasserschalen sichergestellt. An einer Seite des Stalles befindet sich ein angeschleppter Wintergarten, der den Hennen zwischen 13.00 und 23.00 Uhr zur Verfügung steht. Er ist mit Betonboden ausgestattet und wird mit Stroh eingestreut. Der Wintergarten ist an den stallabgewandten Seiten mit Maschendraht-Gittern abgeteilt. Diese werden im Winter mit Planen verhängt, um die Tiere vor Zugluft und großer Kälte zu schützen. Der Ein- und Austritt in den Stallbereich wird den Tieren durch Klappen ermöglicht. Die Klimasteuerung im Stallinnenraum erfolgt durch einen Klimacomputer vom Typ Viper der Firma Big Dutchman[®]. Die Raumlufttemperatur orientiert sich an dem Optimalwert von 20°C. Die Regelung der notwendigen Lüftungsintensität erfolgt über acht Abluftventilatoren. Der zeitliche Ablauf der NH₃-Messungen in der Legehennen-Volierenhaltung ist der Tabelle 3.3 zu entnehmen.

Tabelle 3.3: Zeitlicher Ablauf der NH₃-Messungen - Volierenhaltung

Jahreszeit	Messzeitraum	Messtage	davon Tagesmittelwerte
Sommer	21.06. - 07.07.2011	16	15
Winter	02.02. - 28.02.2011	21	15

3.1.2 Standorte und Zeitablauf der Messungen zur Nanopartikel-Größenverteilung

Die Messkampagne soll Aufschluss über die Verteilung der Konzentration sekundärer Partikel, unter Berücksichtigung der Stallanlage als potentielle Quelle für deren Bildung, liefern. Je nach vorherrschender Windrichtung wurde die Partikelgrößenverteilung anhand von Luv- und Leemessungen sowie Untersuchungen im Stallbereich bzw. auf dem Betriebsgelände bestimmt, um zu ermitteln, ob im Stallbereich höhere Partikelkonzentrationen vorliegen und diese über die Abluft ausgetragen werden. Aufgrund der ungünstigen Lage des Stallkomplexes auf Gut Frankenforst, das teilweise von Hecken und Wäldern gesäumt ist, waren hier nicht für alle Windsituationen Leemessungen möglich. Um vergleichende Aussagen über die Höhe der Belastung im ländlichen Gebiet machen zu können, wurden zusätzlich zwei Messpositionen im städtischen Bereich ausgewählt. Eine Übersicht der Messpunkte mit einer zeitlichen Einteilung findet sich in der Tabelle 3.4, die Lage der Messpunkte zeigen die Abbildungen 3.4 bis 3.6.

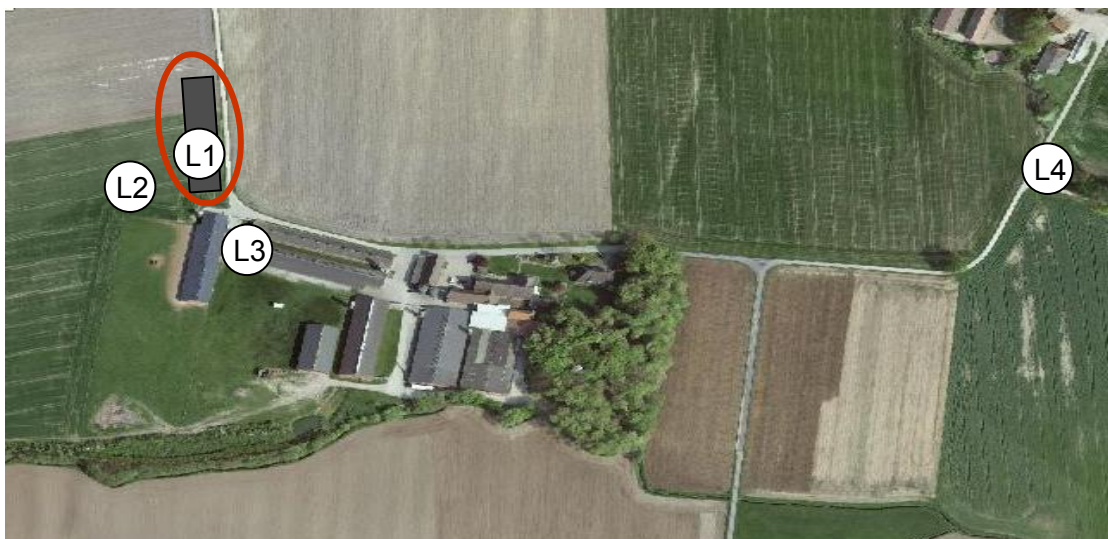
Tabelle 3.4: Standorte und zeitlicher Verlauf der Nanopartikel-Messungen

Datum	Standort		Probennahme
20.05.2011	Gut Frankenforst	F5	Güllemixer
21.05.2011	Gut Frankenforst	F5 F2	Güllemixer Luv
22.05.2011	Gut Frankenforst	F4 F1	Milchviehstall Luv
23.05.2011	Gut Frankenforst	F6 F1 F7	Lee Luv Lee
25.05.2011	Bonn, Institut für Landtechnik		Punktmessung
14.06.2011	Gut Frankenforst	F5 F3 F7	Güllemixer Luv Lee
15.06.2011	Haus Riswick	R2-R4 R1 R5	Milchviehstall nach Segmenten Luv Lee
16.06.2011	Köln Stammheim		Punktmessung
21.06.2011	Dülmen, Legehennen	L1 L2 L3 L4	Stall Luv Hofbereich Lee
25.06.2011	Gut Frankenforst	F4	Milchviehstall (Langzeitmessung)
26.06.2011	Gut Frankenforst	F4 F3	Milchviehstall (Langzeitmessung) Luv (Langzeitmessung)
27.06.2011	Dülmen, Legehennen	L1 L2	Stall Luv





**Abbildung 3.5: Standorte der Nanopartikel-Messungen - Haus Riswick
(verändert nach www.tim-online.nrw.de, 2011)**



**Abbildung 3.6: Standorte der Nanopartikel-Messungen - Legehennenhaltung
(verändert nach www.tim-online.nrw.de, 2011)**

3.1.3 Probenahmeorte und zeitlicher Ablauf der Gesamtstaubmessung

Zur Beurteilung des Gesamtstaubgehaltes der Umgebungsluft in ländlichen Gebieten mit anschließender chemischer Analyse wurden 7 Standorte ausgewählt. Unter diesen Messpunkten befanden sich Standorte auf dem Gelände von Tierhaltungsanlagen, Messplätzen in ländlichen Gebieten ohne direkte Nachbarschaft zu Nutztvieh-haltenden Betrieben und Referenzstandorte im städtischen Bereich. In der folgenden Tabelle 3.5 sind diese Messpunkte kurz mit dem dazugehörigen Messzeitraum charakterisiert. Jeder Messpunkt wurde zwei Mal, im Abstand von mindestens zwei Wochen, beprobt. Zusätzlich wurden 4 Kurzzeitmessungen (20 Stunden) aus einer begleitenden Untersuchung in die Auswertung einbezogen.

Tabelle 3.5: Probenahmestandorte und zeitlicher Ablauf der Gesamtstaubmessung

Messpunkt	Standort	Gebiet	Messzeitraum
1	Köln- Stammheim	städtisch	17.06.-20.06. und 19.08.-23.08.2011
2	Bonn	städtisch	15.08.-17.08. und 31.08.-03.09.2011
3	Gut Frankenforst 1	Tierhaltung	03.08.-05.08. und 25.08.-29.08.2011
4	Gut Frankenforst 2	Tierhaltung	05.08.-09.08. und 03.09.-05.09.2011
5	Betrieb mit Legehennenhaltung	Tierhaltung	23.08.-25.08. und 12.09.-14.09.2011
6	Ratingen	ländlich	11.08.-14.08. und 09.09.-12.09.2011
7	Bitburg	ländlich	29.08.-31.08. und 19.09.-21.09.2011
8	Schneeberg	ländlich	28.06.-29.06.2011 ^k
9	Meerane	ländlich	30.06.-01.07.2011 ^k
10	Zella-Mehlis	ländlich	06.07.-07.07.2011 ^k
11	Eisenach	ländlich	07.07.-08.08.2011 ^k

^k = Kurzzeitmessung

3.2 Methodische Vorgehensweise

3.2.1 Bestimmung der NH_3 -Konzentration

Zur Bestimmung der NH_3 -Abluftkonzentration wurden in den Ställen an mehreren Messpunkten Proben genommen.

Die Probennahme erfolgte über Schläuche, mit einem Innendurchmesser von 8 mm, aus dem sehr reaktionsträgen Kunststoff Polytetrafluorethylen (PTFE), um eine Reaktion von Ammoniak mit den Schlauchwänden, und damit eine etwaige Verfälschung der Messergebnisse zu verhindern. Die Schläuche wurden über eine Kaskadenstruktur miteinander verbunden. Die Ansaugenden wurden mit Filteraufsätzen aus PTFE vor Staubeintritt geschützt.

Die Abluftrichtung in den Milchviehställen wurde durch Nebelproben ermittelt.

Im Milchviehstall Frankenforst wurden 16 Messpunkte im Abstand von 3,00 m auf die windabgewandte (Abluft) Seite des Stallgebäudes verteilt. Die Ansaugpunkte befanden sich 1,00 m unterhalb der Traufe. Die Segmente im Milchviehstall Riswick waren mit jeweils 8 Messpunkten im Abstand von 1,00 m zur Traufe und mit 8 Messpunkten im First ausgestattet. Der Abstand der Ansaugpunkte betrug 2,50 m. Im Legehennenstall wurde die NH_3 -Verteilung im Stall stichprobenartig mit einem Dräger-CMS überprüft und anschließend 4 Messpunkte im Abstand von 15,00 m auf der Längsachse des Stalles verteilt. Die Schläuche mit den Ansaugpunkten wurden auf der obersten Ebene des Portals unter dem Futtertrog angebracht, um auf der einen Seite so dicht wie möglich an den Abluftkaminen zu sein und andererseits einer Manipulation durch die Hennen vorzubeugen.

Das Ansaugen der Stallluft und die Überführung in den Überdruckbehälter zur späteren Probennahme erfolgten durch eine Vakuumpumpe des Typs ME2C der Firma Vacuubrand. Es handelt sich hierbei um eine ölfreie Chemie-Membranpumpe zum kontinuierlichen Pumpen von korrosiven Gasen, deren Membranen aus PTFE gefertigt sind. Die Durchsatzleistung dieser Pumpe beträgt 33 l min^{-1} , wodurch ein ständiger Luftaustausch im Sammelbehälter und aktuelle Messergebnisse gewährleistet werden. Zur Analyse der Luftproben auf Gut Frankenforst und im Legehennenstall wurde der Multigasmonitor Innova 1312 der Firma LumaSense Technologies mit automatischer Probennahme eingesetzt, der nach dem Prinzip der photoakustischen-IR-Spektroskopie arbeitet.

Auf Haus Riswick wurde das Modell 1412 in Kombination mit dem Messstellenumschalter 1309 eingesetzt. (Abbildung 3.7) Die Multigasmonitore sind mit 5 optischen Filtern ausgestattet, die auf verschiedenen Gase kalibriert wurden und besitzt einen weiteren Filter für die Analyse des Wasserdampfgehaltes der Probenluft. Der Multigasmonitor 1312 wurde für Ammoniak (NH_3), Lachgas (N_2O), Methan (CH_4) und Kohlendioxid (CO_2) kalibriert. Das Modell 1412 konnte zusätzlich den SF_6 -Gehalt der Luft analysieren.



Abbildung 3.7: Multigasmonitor 1312 und Messstellenumschalter 1309 (rechts)

Für die Gasanalyse wird Probenluft in die Messkammer des Gerätes gesaugt die anschließend von Ventilen verschlossen wird. Von der IR-Quelle wird Strahlung durch den Chopper (Lichtzerhacker) und die optischen Filter in die Messkammer geleitet, wo sie von den Gasmolekülen absorbiert wird. Bei diesem Prozess entstehen Hitze und Vibrationen. Durch die Chopper-Frequenz kommt es zu wellenartige Druckänderungen, die durch Mikrophone aufgezeichnet werden. Anhand des Mikrophonsignals, das proportional zur Gaskonzentration ist, wird nun das Messergebnis kalkuliert. Die Nachweisgrenze des Gerätes liegt für Ammoniak bei 0,2 ppm. Das Messintervall beträgt ca. 1 Minute, wenn nur eine Messstelle einbezogen wird. Die Daten werden in einer Access-Tabelle im Programmordner abgelegt und können anschließend in das Tabellenkalkulationsprogramm Excel übertragen und weiter bearbeitet werden. Das Funktionsschema eines Multigasmonitors ist in der Abbildung 3.8 dargestellt.

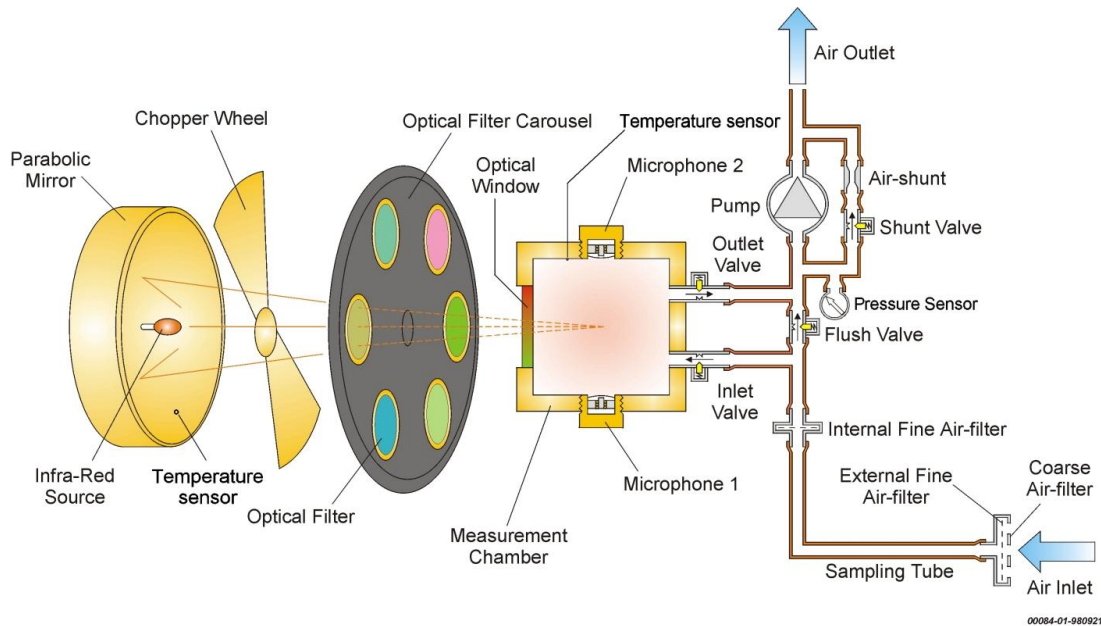


Abbildung 3.8: Funktionsschema des Multigasmonitors
(LUMAsense Technologies, 2010)

Die Hintergrundkonzentration wurde auf Frankenforst und im Legehennenstall stichprobenweise erfasst. Auf Haus Riswick war durch den Einsatz eines Messstellenumschalters eine kontinuierliche Erfassung der Gaskonzentration in der Frischluft möglich.

Statistische Auswertung

Für die statistische Auswertung der NH_3 -Konzentrationen in der Abluft musste für die Messwerte ein einheitliches Intervall für die Datenverarbeitung festgelegt werden. Aufgrund der Ergebnisse der Voruntersuchungen wurde hierfür der 10-Minuten-Mittelwert gewählt. Die Berechnung der durchschnittlichen NH_3 -Konzentrationen erfolgte als Median mit dem Programm SPSS Statistics 17.0. Hierfür wurden alle vorhandenen Datensätze mit einbezogen. Für die Darstellung der Daten wurden Boxplots gewählt. Dabei handelt es sich um eine Darstellung der charakteristischen Lagemaße und der Verteilung eines Merkmals. Abgebildet werden dabei das Minimum und Maximum, der Median, sowie das 25 %- und das 75 %-Quantil. Das Rechteck umfasst somit die mittleren 50 % der Messdaten. Der Abstand des 25 %- und des 75 %-Quantils wird als Interquartilabstand definiert und kann zu Beschreibung der Streuung der Daten verwendet werden.

Zusätzlich können Ausreißer und Extremwerte in Form von Kreisen und Sternchen dargestellt werden. Die Verteilung der Daten wurde mit dem Kolmogorov-Smirnov-Test auf Normalverteilung geprüft. Die Prüfung der Homogenität der Varianzen erfolgte über den Levene-Test. Da die Stichproben einer Normalverteilung folgten und homogene Varianzen aufwiesen, wurden die Unterschiede mittels des Tuckey-Kramer-Test für unterschiedliche Stichprobenumfänge hinsichtlich ihrer Signifikanz getestet. Die Unterschiede wurden als signifikant betrachtet, sofern die Irrtumswahrscheinlichkeit $p \leq 0,05$ betrug. Zur Überprüfung der Signifikanz der Messergebnisse aus der Legehennenhaltung kam der T-Test zur Anwendung. Tagesmittelwerte und deren Standardabweichungen wurden mit MS Excel 2003 errechnet und graphisch dargestellt. Für die Berechnung der Tagesmittel wurden nur Tage einbezogen, die zu mindestens 95 % vollständig aufgezeichnet wurden. Die Regressionsanalysen für die Abhängigkeiten der NH_3 -Konzentration von den Witterungsbedingungen wurden mit den Programmen SPSS 17.0 und OriginPro8 durchgeführt.

3.2.2 Bestimmung des Volumenstroms

Während der Sommer- und Übergangsmonate konnte der Luftvolumenstrom auf Gut Frankenforst mit der Tracergas-Methode bestimmt werden. Auf Haus Riswick kam die Methode nur während der Sommermessung zum Einsatz. Da die Zuluftseiten der Ställe in den Wintermonaten, und auf Haus Riswick auch bei der Übergangsmessung weitestgehend geschlossen gehalten wurden, musste in diesen Jahreszeiten auf die CO_2 -Bilanz-Methode zurückgegriffen werden.

Die Aufzeichnung der Lüftungsintensität im Legehennestall erfolgte kontinuierlich. Hierfür wurde ein Ahlborn ALMEMO 2590 Datenlogger an den Klimacomputer angeschlossen und zeichnete das Lüftungssignal über den Messzeitraum hinweg auf. Zur Kalibrierung des Klimacomputers wurde der Luftvolumenstrom in den Abluftkaminen kurzzeitig mit einem kalibrierten Messventilator (Firma Reventa) kontrolliert und zum Lüftungssignal in Verbindung gesetzt. Der Messventilator wurde hierfür am äußeren Ende der Abluftkamine (hinter dem Abluftventilator) in den Diffusor eingesetzt. Für diese Art der Anbringung werden in der Literatur zwar höhere Fehlerraten angegeben, ein Einbau vor dem Abluftventilator hätte jedoch größerer Umbauarbeiten im Stall bedurft und war für die kurzzeitige Kalibrierung des Lüftungssignals zu aufwendig.

Die Aufzeichnung der Drehzahl des Messventilators erfolgte über einen Datenlogger des Typs ALMEMO 2290-4. Diese wurde anschließend über die im Datenblatt angegebene Kalibrierkurve in den Luftvolumenstrom umgerechnet.

Tracergasmessungen

Die Methodenwahl für die Tracergasmessungen fiel auf die Konzentrationsabkling-Methode mit dem Tracergas SF₆ nach den VDI-RICHTLINIEN 4300 Blatt 7 und 4285 Blatt 2. Bei dieser Methode können relativ geringe Mengen des Tracergases eingesetzt werden. Der Messaufbau ist vergleichsweise einfach und wurde in den Untersuchungen von SCHNEIDER (2006), NANNEN (2007) sowie HENSELER-PABMANN (2010) bereits erfolgreich angewandt.

Die Messzeiträume für den Einsatz der Tracergas-Technik sind in Tabelle 3.6 aufgeführt.

Tabelle 3.6: Zeitliche Einordnung der Luftvolumenstrombestimmung mit SF₆

Ort	Jahreszeit	Messzeitraum
Gut Frankenforst	Übergang	15.10. - 17.10.2010
Gut Frankenforst	Sommer	23.06. - 26.06.2011
Haus Riswick	Sommer	31.07. - 02.08.2011

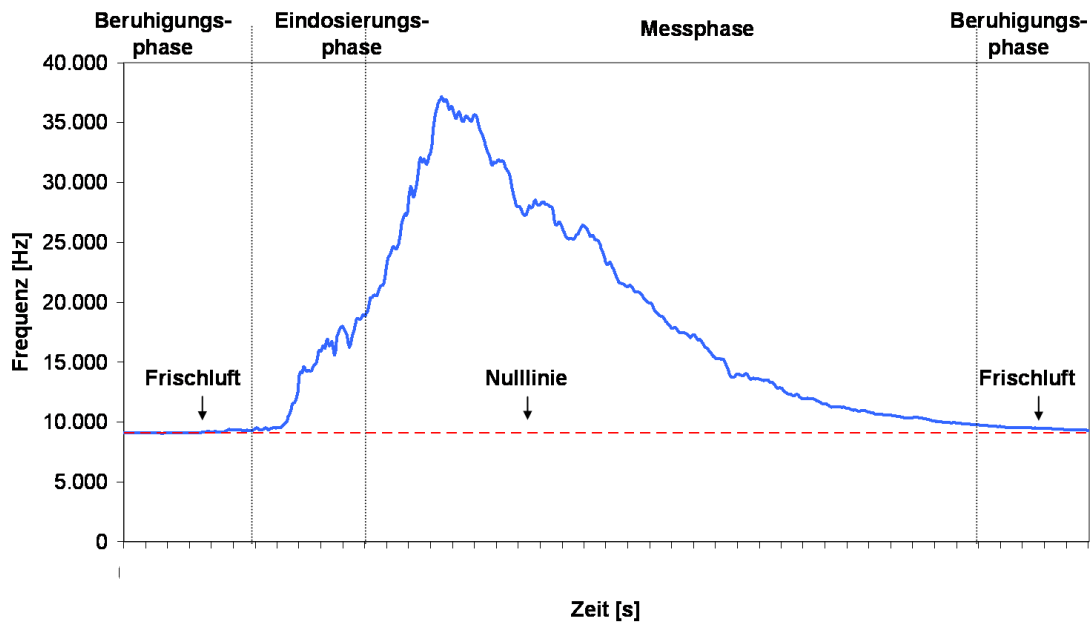
Die Probenahme der Stallluft erfolgte kontinuierlich über das Schlauchsystem, das für die Messung der Ammoniakkonzentration installiert wurde. Die Probenluft wurde mit der oben beschriebenen Vakuum-Membranpumpe angesaugt und in ein Messgefäß gedrückt, aus dem die Sonde des Messgerätes sich Proben entnahm.

Zur Eindosierung des Tracergases SF₆ wurde ein Kaskadensystem aus Polyethylen (PE) – Schläuchen mit einem Innendurchmesser von 4 mm im Zuluftbereich des Stalles installiert. Die Schlauchöffnungen wurden mit so genannten „kritischen Kapillaren“ versehen und hatten einen Abstand von 3,00 m; sodass an 16 Stellen eindosiert wurde.

Eine ideale Vermischung der Raumluft mit dem Tracergas ist eine Voraussetzung für die erfolgreiche Durchführung von Tracergasmessungen. Zu diesem Zweck wurde das SF₆ zusätzlich mit Stickstoff (N) vermischt. So konnten größere Mengen des Gasgemisches über einen längeren Zeitraum eindosiert werden, die Durchmischung der Stallluft mit dem Tracergas wurde dadurch verbessert.

Die Eindosierung des Gasgemisches erfolgte über eine Messsoftware. Sie steuerte Magnetventile, die hinter den Druckminderern an den Gasflaschen montiert waren. Wurden die Magnetventile geöffnet, so strömte SF₆ mit einem Durchfluss von 400 ml m⁻¹ (gesteuert über einen mobilen Massendurchflussregler) und N mit einem Durchfluss von 5 l m⁻¹ in eine Mischkammer und von dort aus weiter in den Stall. Eine Messphase bestand jeweils aus einer Probennahme der Frischluft (Hintergrund bzw. Beruhigung) am Anfang der Messung (120 s), der Eindosierung (60 s) und der eigentlichen Messung der Abluftkonzentration. Die letzte Zeitspanne wurde manuell an die bestehende Luftwechselbedingung angepasst.

Die Probennahme der Hintergrundkonzentration ist für eine spätere Nullwertkorrektur nötig. Während der Eindosierungsphase steigt die Konzentration von SF₆ im Stall an und erreicht nach Abschluss der Eindosierung einen maximalen Wert. Während der Messphase der Stallluft erfolgt ein langsames Abklingen der SF₆-Konzentration, anhand dessen die Zeit bis zum vollständigen Luftaustausch berechnet wird. In der Abbildung 3.9 sind die einzelnen Phasen einer Messung dargestellt.



**Abbildung 3.9: Messphasen der Tracer-Abklingmethode
(verändert nach HENSELER-PABMANN, 2010)**

Zur Bestimmung der SF_6 -Konzentration in der Probenluft wurde ein modifiziertes Leakmeter 200 (Meltron Qualitek Messtechnik GmbH, heute: USON, Neuss) verwendet (Abbildung 3.10). Dieses Gerät wurde für die Leckagesuche konzipiert. Über einen Elektroneneinfangdetektor (ECD = electron capture detector) erfolgt der SF_6 -Nachweis.



Abbildung 3.10: SF_6 -Detektor (HENSELER-PABMANN, 2010)

Durch die hohe Elektronegativität der 6 Fluoratome besitzt SF_6 eine starke Elektronenaffinität. Im Gerät wird durch Beta-Strahlung ein Trägergasstrom ionisiert, sodass freie Elektronen entstehen. Diese sammeln sich an einer positiv geladenen Elektrode und erzeugen einen Dauerstrom von geringer Stärke. Binden SF_6 -Moleküle in der Probenluft einen Teil der freien Elektronen, so wird der Strom reduziert. Durch einen Spannungs-Frequenzumwandler, der hinter den Vorverstärker des Leakmeter geschaltet wird, können diese Spannungsänderungen als Frequenz ausgegeben, auf dem Computer gespeichert und als hochaufgelöste Abklingkurven ausgegeben werden. Die zeitliche Auflösung beträgt dabei 1 Sekunde, der Messbereich liegt im Bereich von 0 bis 5 ppm.

Die aufgezeichneten Frequenzdaten wurden im Anschluss an die Messung in das Tabellenkalkulationsprogramm MS Excel übertragen und hinsichtlich ihres Nullwertes korrigiert. Im Folgenden wurden die korrigierten Daten zur Kurvenanpassung mit

$$c_i(t) = c_{t=0} \cdot e^{-\alpha t}$$

in das Programm Microcal Origin Pro8 (Microcal Software Inc., USA) eingelesen.

3.2.3 Berechnung des Emissionsmassenstroms

Die Angabe der gasförmigen Emissionen aus Stallgebäuden erfolgt als Emissionsmassenstrom \dot{m}_{Fo} . Er beschreibt den aus dem Stall emittierten Stoffstrom, der als das Produkt aus der Gaskonzentration in der Fortluft C_{Fo} und dem Volumenstrom der Fortluft \dot{V}_{Fo} definiert ist.

$$\dot{m}_{Fo} = C_{Fo} \cdot \dot{V}_{Fo}$$

mit

$$\dot{m}_{Fo} = \text{Emissionsmassenstrom in g h}^{-1}$$

$$C_{Fo} = \text{Gaskonzentration in der Fortluft in g m}^{-3}$$

$$\dot{V}_{Fo} = \text{Fortluftstrom in m}^3 \text{ h}^{-1}.$$

Soll nur der aus dem Stall entstehende Emissionsmassenstrom berücksichtigt werden, so muss die Hintergrundkonzentration in der Frischluft berücksichtigt werden. Die Formel des Emissionsmassenstroms lautet dann:

$$\dot{m}_{Fo-Fr} = (C_{Fo} - C_{Fr}) \dot{V}_{Fo}$$

mit

\dot{m}_{Fo-Fr} = Emissionsmassenstrom des Stalles in g h^{-1}

C_{Fr} = Gaskonzentration in der Frischluft.

Für die Berechnungen wurde der Median der NH_3 -Konzentration verwendet, da dieser im Gegensatz zu den Mittelwerten robuster gegen Ausreißer in den Messwerten ist.

3.2.4 Erfassung der Wetterdaten

Für den Standort Frankenforst wurden die Wetterdaten vom Geographischen Institut der Universität Bonn bereitgestellt. Die Messung erfolgte an einer Wetterstation die sich in ca. 15 m Abstand vom untersuchten Stallgebäude befindet und frei angeströmt wird.

Diese Station misst im 10-Minuten-Takt die Variablen Lufttemperatur, Luftfeuchte, Luftgeschwindigkeit, Windrichtung, Strahlung, Niederschlag, Luftdruck, Bodentemperatur und den Bodenwärmestrom. Die Luftparameter werden dabei in den Höhen 0,5 m, 2 m und 8 m erfasst, die Bodensensoren messen in den Bereichen -10 cm und -50 cm. Für die vorliegende Arbeit wurden die Variablen Windrichtung und Windgeschwindigkeit in der Höhe von 2 m verwendet, da dieser Bodenabstand der Höhe des Lufteintritts in den Stall sehr nahe kommt.

Die Stallinnentemperatur wurde mit einem, im Minutentakt konfigurierten, Testo-Datenlogger 175-T1 erfasst. Er wurde mittig im Stall in einer Höhe von 2 m angebracht.

Der Milchviehstall auf Haus Riswick wurde mit einem Schalensternsensor und einer Windfahne (Fa. Lambrecht GmbH) ausgestattet, die am Dach der Zuluftseite des Stalles angebracht und in Hauptwindrichtung ausgerichtet waren und die Windrichtung und Windgeschwindigkeit im 5-Minuten-Takt aufzeichneten. Die Temperatur wurde durch einen Testo-Datenlogger 175-T1 ermittelt der sich auf dem Futtertisch der Zuluftseite befand.

Die Erfassung der Luftfeuchtigkeit erfolgte über einen Ahlborn ALMEMO 2590 Datenlogger mit einem Feuchtefühler vom Modell FH A646-E2C.

3.2.5 NH₃-Ausbreitungsrechnung mit Austal2000

Für den Milchviehstall auf Gut Frankenforst wurde eine Ausbreitungsrechnung für NH₃ mit dem Programm Austal2000 durchgeführt, um die Verdünnung und Verteilung des Vorläufergases NH₃ abzuschätzen und die Deposition zu quantifizieren.

Das Programmsystem Austal2000 ist eine Umsetzung des Anhang 3 der TA-LUFT (2002) zur Berechnung der Schad- und Geruchsstoffausbreitung in der Atmosphäre. Die Beschreibung des dem Programm zu Grunde liegenden Modells findet sich in der VDI-RICHTLINIE 3945 Blatt 3 (2000).

Austal2000 beinhaltet unter anderem Zeitreihen- und Statistikrechnungen für beliebig viele Punkt-, Linien-, Flächen- oder Volumenquellen sowie Depositions- und Sedimentationsparameter.

Für die Ausbreitungsrechnung wurde ein Windfeld mit einer Windgeschwindigkeit von $1,8 \text{ m s}^{-1}$ und der Windrichtung Nordwest definiert. Neben dem Stallgebäude wurden das Melkhaus, der Flüssigmistbehälter und der angrenzende Sauenstall in die Geländeplanung einbezogen. Eine Rechenzelle betrug jeweils sieben Meter.

3.2.6 Bestimmung der Nanopartikel-Größenverteilung

Zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung wurde ein SMPS+C (Grimm Aerosol Technik GmbH & Co. KG, Ainring) eingesetzt. Das Messsystem besteht aus einem Kondensationskernzähler (CPC = condensation particle counter) Modell 5403, der die Partikelanzahl in der gesamten Aerosolprobe bestimmt, und einem elektrostatischen Klassierer (DMA = differential mobility analyser) des „Vienna“-Typs, der die Größenbestimmung der Aerosolpartikel vornimmt (Abbildung 3.11).

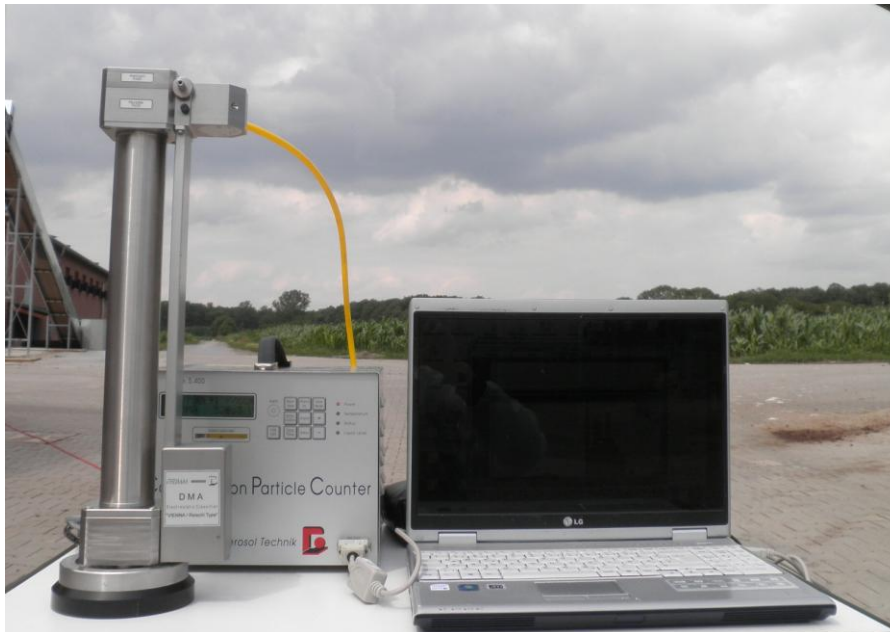


Abbildung 3.11: Messtechnik zur Bestimmung der Nanopartikel-Größenverteilung im Praxiseinsatz

Funktionsprinzip des SMPS+C

Der vorgeschaltete Klassierer schneidet aus der polydispersen Luftprobe Fraktionen monodisperser Partikelgrößen aus. Die Probenluft wird zunächst durch einen Vorimpaktor geführt, der den oberen Abscheidedurchmesser der Partikel bestimmt und gelangt dann in den Neutralisierer, in dem die Teilchen radioaktiv aufgeladen (Quelle: Americium 241 mit einer Aktivität von 3,7 MBq) und dadurch in einen definierten Ladungszustand gebracht werden. Anschließend erfolgt die Auftrennung der Probe in einer elektrostatischen Säule (elektrisches Feld) durch eine stufenweise Änderung der Elektrodenspannung.

Dadurch erreichen nur Teilchen mit einer definierten Ladung und Größe den Probenluftauslass, durch den sie an den CPC überführt werden. In der vorliegenden Arbeit wurde ein so genanntes L-DMA verwendet, das Partikel im Bereich von 10,27 bis 1093,95 nm in 45 Kanälen klassiert.

Im CPC passieren die Partikel zuerst einen Saturator mit einer konstanten Temperatur von 35°C, in dem n-Butanol erhitzt und verdampft wird.

Der Probenluftstrom beträgt $0,3 \text{ l min}^{-1}$. Das Aerosol und der Butanoldampf werden anschließend in den Kondensator überführt. Das Gas-Partikel-Gemisch wird hier auf 10°C abgekühlt, wodurch der Alkoholdampf auf den Partikeln kondensiert und ihre Größe auf ungefähr $10 \mu\text{m}$ erhöht wird. In der nachfolgenden Messzelle werden die Partikel dann gezählt.

Über eine RS-232 Schnittstelle werden die Zählraten als Daten zu einem externen Datenverarbeitungssystem auf einen Computer übertragen und können dort analysiert und für weitere Anwendungen exportiert werden. Die Abbildung 3.12 erläutert das Funktionsprinzip des Messsystems schematisch.

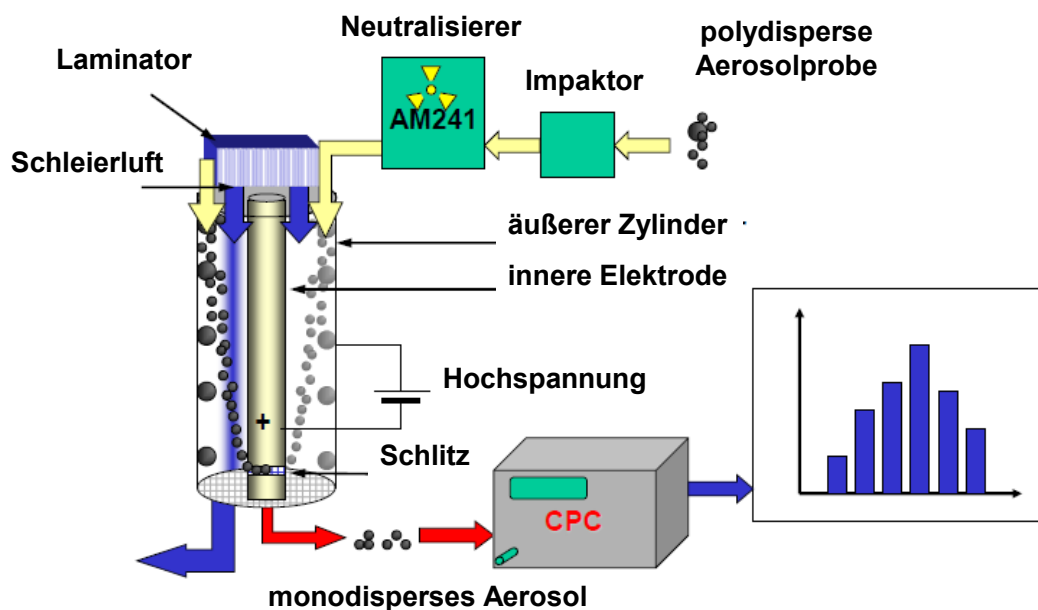


Abbildung 3.12: Funktionsprinzip des Messsystems zur Bestimmung der Nanopartikel-Größenverteilung (verändert nach PESCH, 2009)

Versuchsdurchführung

Vor jedem Einsatz der SMPS+C-Technik wurden eine Dichtigkeitsprüfung des Systems sowie eine Nullpunktkalibration (stellt sicher, dass sich keine Restpartikel mehr in der Messkammer befinden) durchgeführt.

Die Ansaugöffnung der Probennahme befand sich in einer Höhe von 1,20 m. Um die Messbedingungen (Temperatur, Luftfeuchte, Windgeschwindigkeit) möglichst konstant zu halten, wurden pro Messstandort Kurzzeitmessungen von je 5 Scans (ca. 35 min) angesetzt. Nach Abschluss jeder Messung wurden die Messgeräte sofort an den nächsten Standort verlegt, um die Zeitspanne zwischen den einzelnen Probenahmen möglichst kurz zu halten. Aufgrund des Einsatzes unter Praxisbedingungen und plötzliche Wetteränderungen (v.a. Niederschläge) mussten die Messungen teilweise vorzeitig abgebrochen werden, damit keine Verfälschung der Ergebnisse (z. B. durch Kraftfahrzeuge, Erntearbeiten) und keine Schäden an der Messtechnik auftraten. Ergänzend zu diesen Stichproben wurde an Standort Frankenforst Langzeitmessungen durchgeführt, um die Messergebnisse im Hinblick auf ihre Repräsentativität besser einordnen zu können.

Modellierung der Partikelgrößenverteilung

Unter der Annahme, dass Verteilungsfunktionen für Partikel durch die drei verschiedenen Modi Nukleations-, Akkumulations- und Coarsemode charakterisiert werden können, ist es möglich, diese Funktionen anhand eine log-Normalverteilungsfunktion zu modellieren. In den Arbeiten von ONYENENKE-EDWARDS (2006) und MAHMOUD-YASIN (2006) wurde das Verfahren bereits erfolgreich angewendet.

Über die Formel

$$n(D) = \sum_{i=1}^4 \frac{N_i}{\sqrt{2 \cdot \pi} \cdot \log(\sigma_{g,i})} \cdot \exp \left[- \frac{\left(\log \left(\frac{D}{D_i} \right) \right)^2}{2 \cdot \log^2(\sigma_{g,i})} \right]$$

wurden die Verteilungsfunktionen für den Nukleations- und den Akkumulationsmode kalkuliert. Da das SMPS+C-System die Größenklassen des Coarsemode nicht vollständig abdeckt, wurde auf eine entsprechende Modellierung verzichtet.

Jeder Mode wird dabei durch die jeweilige Partikelanzahlkonzentration N_i , den Median des Partikeldurchmessers D_i und die Standardabweichung σ_i beschrieben. Zur Berechnung der Kurvenverläufe wurde ein Arbeitsblatt mit Excel programmiert, in dem die Eingabedaten automatisch in Form eines Diagramms angezeigt werden. Die kalkulierten Verteilungskurven wurden anschließend anhand einer mathematische Fehleranalyse und einer optischen Qualitätskontrolle zu einer bestmöglichen Anpassung an die Messwerte geführt.

3.2.7 Bestimmung der Partikelmassenkonzentration

Die Bestimmung der Gesamtstaubgehaltes (TSP = total suspended particulates) in der Außenluft erfolgte mit 2 Gravimetriesammlern nach der VDI-RICHTLINIEN 2066 Blatt 1 (2006) und 2463 Blatt 1 (1999). Diese bestehen aus einem Ansaugkopf, einer Pumpe, einem Gasvolumenzähler und einer integrierten Kühlstrecke (Abbildung 3.13). In den radialsymmetrischen Messkopf wurde eine Filtermembran aus Nitrocellulose (Millipore) mit einer Porenweite von 8 μm eingelegt.

Dieses Material reagiert, im Gegensatz zu Cellulose, nur zu sehr geringen Anteilen mit den abgelagerten chemischen Verbindungen. und liefert somit exaktere Messergebnisse. Im Vorfeld der Messung wurden die Filter gemäß den o.g. Richtlinien konditioniert. Danach wurde ihre Leermasse mit einer Feinwaage der Firma Satorius bestimmt.

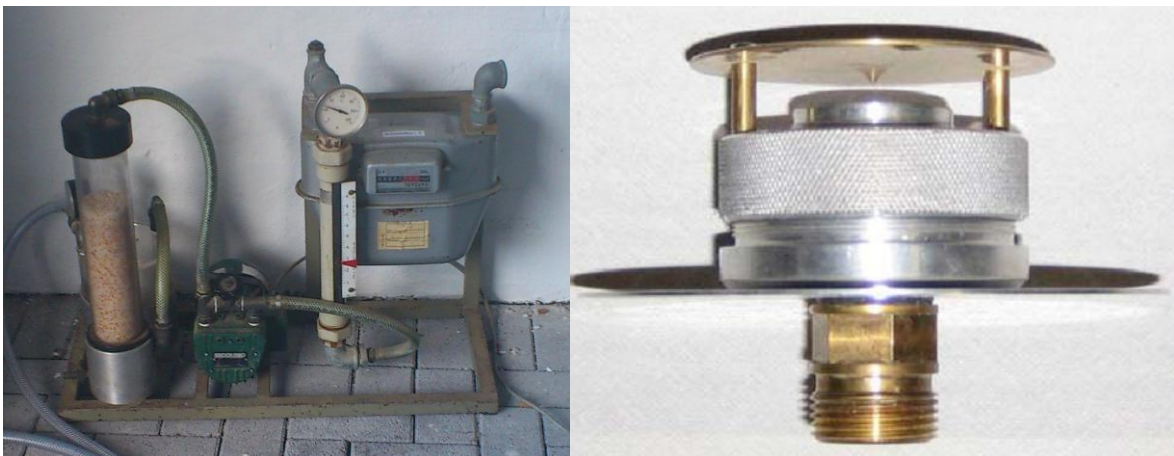


Abbildung 3.13: Gravimetriesammler und Messkopf (rechts)

Die Pumpe des Gravimetriesammlers erzeugt einen Probenluftvolumenstrom von 2,7-2,8 m³ h⁻¹. Durch die Verwendung von Silica Gel (hydrophiles Granulat) als Trocknungsmittel konnte eine gleichbleibende Feuchte der Probenluft gewährleistet werden. Da für die Messungen eine Durchführung im freien Gelände notwendig war, wurden regengeschützte, aber gut durchlüftete Messplätze ausgewählt. Nach Beendigung der Messung wurden die Filter dem Messkopf vorsichtig entnommen und erneut konditioniert. Anschließend wurden sie nochmals gewogen, um die Masse des abgelagerten Staubes zu bestimmen.

Die Partikelmassenkonzentration kann anschließend anhand der Gewichts Differenz der Filter (Leergewicht – Gewicht nach der Beprobung) dividiert durch die durchströmte Luftmenge bestimmt werden.

Die Messungen wurden als Doppelmessung konzipiert, d. h. die Messköpfe der beiden Sammler wurden im Abstand von ca. 30 cm nebeneinander positioniert.

3.2.8 Analyse der chemischen Zusammensetzung

Die Analyse der chemischen Zusammensetzung der Gesamtstaubproben zielte auf die Bestimmung des Anteils der Sekundärpartikel. Aufgrund der verwendeten Messtechnik ist ein Masseverlust bei der Probennahme durch die Beeinflussung des thermodynamischen Gleichgewichts von Ammoniumnitrat nicht auszuschließen. Es wird daher nur auf den thermodynamisch stabilen Anteil sekundär gebildete Stäube an der Gesamtstaubmasse eingegangen, da diese für den Langstreckentransport von besonderer Bedeutung sind.

Im sedimentologisch-geochemischen Labor des Geologischen Instituts der Universität Bonn wurden die Anteile der Ionen NH₄⁺, SO₄²⁻ und NO₃⁻ ionenchromatographisch und fotometrisch gemäß den VDI-RICHTLINIEN 3497 Blatt 3 (1988) und 3869 Blatt 4 (2010) bestimmt.

4 Ergebnisse

4.1 Vorversuche

4.1.1 Messdauer

Um repräsentative Ergebnisse für die unterschiedlichen Messperioden zu erhalten, war es nötig, eine Mindestmessdauer festzulegen. Hierfür wurde der Einfluss jedes zusätzlichen Messtages auf das arithmetische Mittel durch eine Approximation der Mittelwerte untersucht.

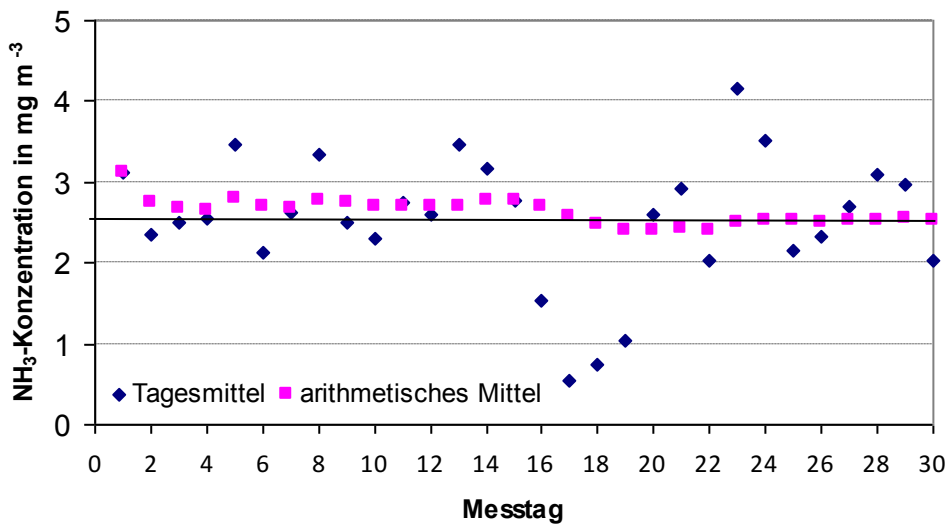


Abbildung 4.1: Einfluss der Messdauer auf den Mittelwert der NH₃-Konzentration in frei belüfteten Milchviehställen

Für die empirische Festlegung der notwendigen Messdauer in frei gelüfteten Milchviehställen wurde die Werte der Sommermessung auf Gut Frankenforst verwendet.

Anhand der Abbildung 4.1 lässt sich die Wirkung einer steigenden Anzahl an Messtagen auf das Endergebnis beschreiben. Die Tagesmittelwerte der NH₃-Konzentration schwanken stark um das Gesamtmittel. In den ersten 16 Messtagen bewirken diese Schwankungen Fluktuationen des arithmetischen Mittelwerts. Danach pegelt sich das arithmetische Mittel auf einen Wert ein, die Schwankungen sind nur noch sehr gering. Aufgrund dieses Ergebnisses wurde für diesen Stalltyp eine Messperiode von mindestens 18 Tagen festgelegt, um die Emission in einer bestimmten Jahreszeit repräsentativ beschreiben zu können.

In der Volierenhaltung von Legehennen ist der Verlauf der NH_3 -Konzentration in großem Maße von der Entmistungsfrequenz geprägt. Bei einer wöchentlichen Entmistung, wie im untersuchten Stall, steigen und fallen auch die Innenraumkonzentrationen im wöchentlichen Rhythmus. In der Abbildung 4.2 ist der Verlauf der Tagesmittelwerte und die daraus resultierende Veränderung des arithmetischen Mittels am Beispiel der Sommermessung dargestellt. Nach der ersten Messwoche ist das arithmetische Mittel in etwa deckungsgleich mit dem Gesamtmittelwert.

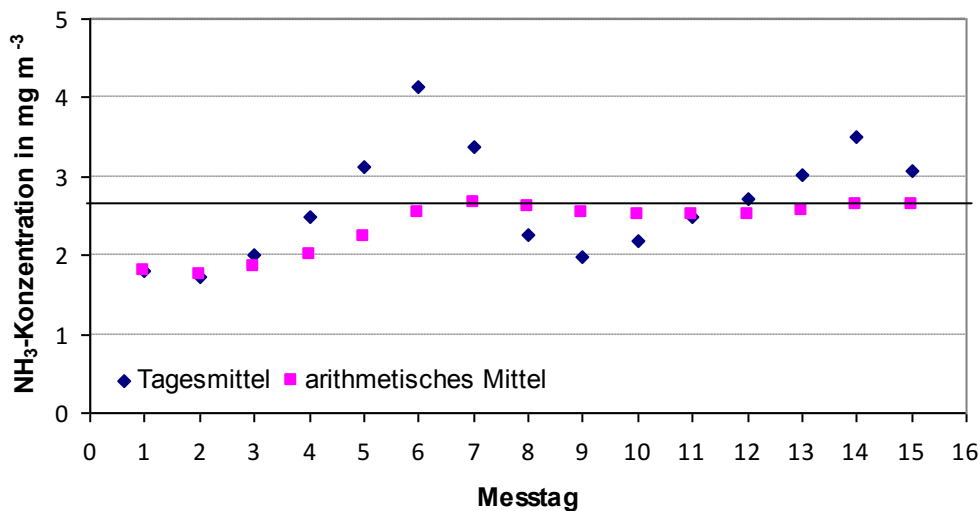


Abbildung 4.2: Einfluss der Messdauer auf den Mittelwert der NH_3 -Konzentration in einem Volierensystem

Eine Verlängerung der Messdauer bewirkt nur noch leichte Änderungen in der Höhe des arithmetischen Mittels. Nach der zweiten abgeschlossenen Messwoche liegt das arithmetische Mittel erneut im selben Bereich wie der Gesamtmittelwert. Aufgrund dieses Ergebnisses kann davon ausgegangen werden, dass für dieses Haltungssystem eine Messdauer von einer Woche, bzw. von einer Entmistungsperiode, als ausreichend angesehen werden kann. Zur besseren Absicherung der Messergebnisse wurde die Messdauer in der vorliegenden Untersuchung auf mindestens 14 Tage ausgedehnt. Da während der Wintermessung häufig Stromausfälle auftraten, was zum Ausfall der Messgeräte führte, wurde darauf geachtet, dass bei der Auswahl der Messtage für die Auswertung, alle Tage aus zwei Entmistungsperioden vertreten waren, auch wenn diese nicht direkt aufeinander folgten.

4.1.2 Messauflösung

Durch den Einsatz des Messstellenumschalters auf Haus Riswick und die unterschiedlichen Aufzeichnungsfrequenzen der Wetterstationen war es nötig, die gemessenen Werte in einem einheitlichen Auswertungsintervall zusammenzufassen. In der Abbildung 4.3 werden anhand der Sommermessung im Legehennestall verschiedene mögliche Intervalle miteinander verglichen.

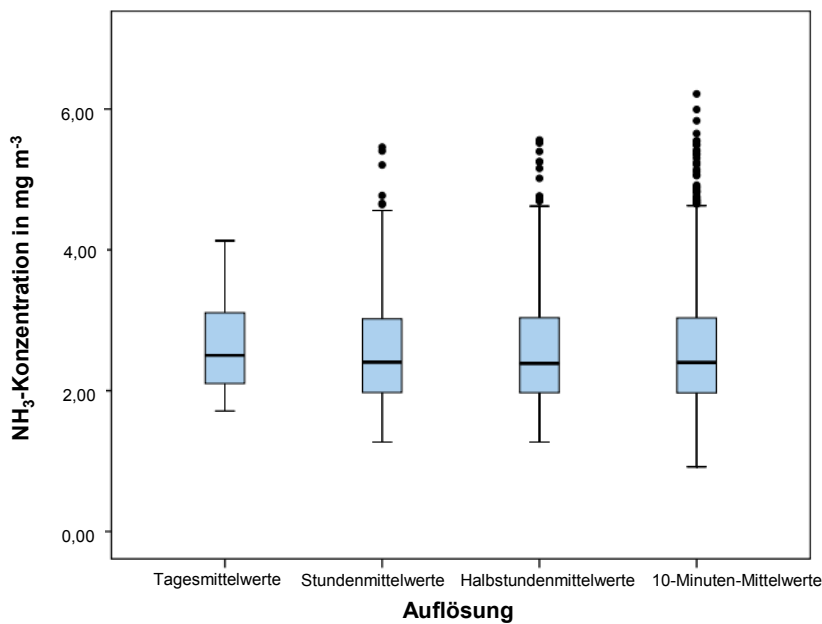


Abbildung 4.3: Vergleich verschiedener Auswertungsintervalle

Eine Verfeinerung der Auflösung führte zu keiner signifikanten Veränderungen beim Mittelwert. Für das dargestellte Beispiel liegt das Mittel der Tagesmittelwerte bei 2,5 und bei 2,4 für die Stunden-, Halbstunden und 10-Minuten-Mittelwerte. Aufgrund dieses Ergebnisses wird die folgende statistische Auswertung anhand der 10-Minuten-Mittelwerte erfolgen, um die Datenbasis möglichst groß zu halten. Infolge der kleiner werdenden Auflösung nimmt die Streuung der Einzelwerte zu.

4.2 Witterungsbedingungen in den Milchviehställen

In den Tabellen 4.1 und 4.2 sind die klimatischen Bedingungen an den Standorten Gut Frankenforst und Haus Riswick während den einzelnen Messperioden dargestellt. Im Jahresverlauf sind in beiden Versuchsbetrieben deutliche Unterschiede in der Temperatur zwischen den Sommer-, Übergangs- und Wintermessungen aufgetreten. Die Hauptwindrichtung zeigte an beiden Standorten nur leichte Veränderungen zwischen den Messperioden. Die Hauptwindrichtung West auf Haus Riswick unterstützt die freie Querlüftung. Durch die Anströmung des Stalles auf Gut Frankenforst aus überwiegend südlicher Richtung war die Möglichkeit einer vollständigen Querlüftung nicht gegeben.

Tabelle 4.1: Witterungsbedingungen auf Gut Frankenforst während der Untersuchungszeiträume

Messperiode	Temperatur in °C	Windrichtung in °	Windgeschwindigkeit in m s ⁻¹	Luftfeuchtigkeit in %
Sommer	14,6	180	1,6	69,6
Sommer	13,2	165	1,6	76,2
FS zweistündig				
Übergang	7,4	180	1,6	76,4
FS zweistündig				
Übergang	8,5	180	1,8	77,9
Winter	4,6	180	1,9	81,6

FS = Flüssigmistschieber

Während die durchschnittliche Windgeschwindigkeit mit Werten zwischen 1,6 und 1,9 m s⁻¹ auf Gut Frankenforst relativ gleich war, wurde in der Sommermessung auf Haus Riswick eine höhere durchschnittliche Windgeschwindigkeit von 2,8 m s⁻¹ erreicht. Die höchsten relativen Luftfeuchtigkeiten wurden an beiden Standorten im Winter gemessen.

Tabelle 4.2: Witterungsbedingungen auf Haus Riswick während der Untersuchungszeiträume

Messperiode	Temperatur in °C	Windrichtung in °	Windgeschwindigkeit in m s ⁻¹	Luftfeuchtigkeit in %
Sommer	19,5	270	2,8	68,8
Übergang	13,1	300	1,6	68,0
Winter	2,2	300	1,9	88,5

4.3 Abschätzung der durchschnittlichen NH_3 -Emissionen - Gut Frankenforst

In der Abbildung 4.4 sind die gemittelten Tagesverläufe der NH_3 -Konzentration in der Abluft während der verschiedenen Messperioden mit stündlichem Einsatz des Flüssigmistschiebers im Liegeboxenlaufstall auf Gut Frankenforst dargestellt.

Die Schwankungen der NH_3 -Konzentration in der Stallluft sind in den Sommermonaten am stärksten ausgeprägt. Die höchsten Konzentrationen finden sich im Sommer am späten Vormittag, bevor die Kühe auf die Weide gelassen werden, am Nachmittag nach der Rückkehr in den Stall und in den frühen Nachtstunden. Zu Beginn der Melkzeiten (5.00 Uhr und 17.00 Uhr) ist der Kurvenverlauf durch einen leichten Abfall der NH_3 -Konzentration gekennzeichnet. Die Konzentration steigt anschließend wieder an, sobald die ersten Tiere in kleinen Gruppen in den Stall zurück kehren. Auch die Weidezeit ist am Verlauf der abgebildeten Kurve deutlich zu erkennen. Zu Beginn der Weidezeit um 11.00 Uhr fällt das vorherige Konzentrationsmaximum stetig ab. Wenn die Tiere sich gegen 16.00 Uhr zurück in den Stall begeben, steigt der NH_3 -Gehalt der Stallluft wieder an.

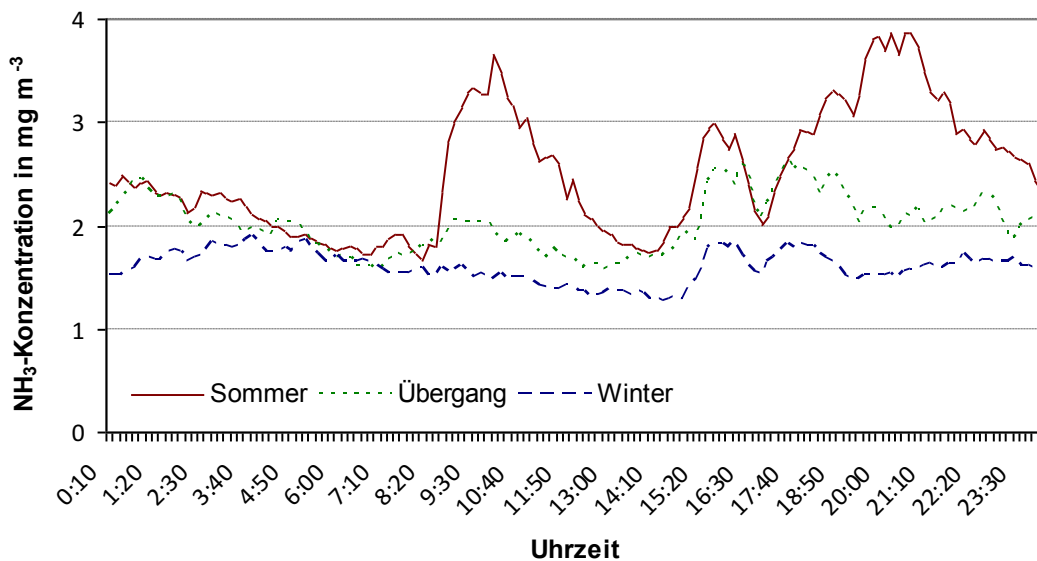


Abbildung 4.4: Vergleich der gemittelten NH_3 -Tagesverläufe - Gut Frankenforst

In der Übergangszeit und während der Wintermonate sind die Schwankungen der NH_3 -Konzentration während eines Tages wesentlich schwächer als im Sommer. Ein leichter Konzentrationsabfall zu den Melkzeiten ist auch im Verlauf dieser beiden Kurven zu erkennen.

Bei der Betrachtung des Zeitfensters von 11.00-16.00 Uhr wird deutlich, dass während diesen Messungen kein Aufenthalt der Tiere auf der Weide stattgefunden hat.

Die hohe Variabilität der Messwerte zeigt sich auch im Vergleich der Tagesmittelwerte. Diese sind mit der dazu gehörenden Standardabweichung der Abbildung 4.5 zu entnehmen

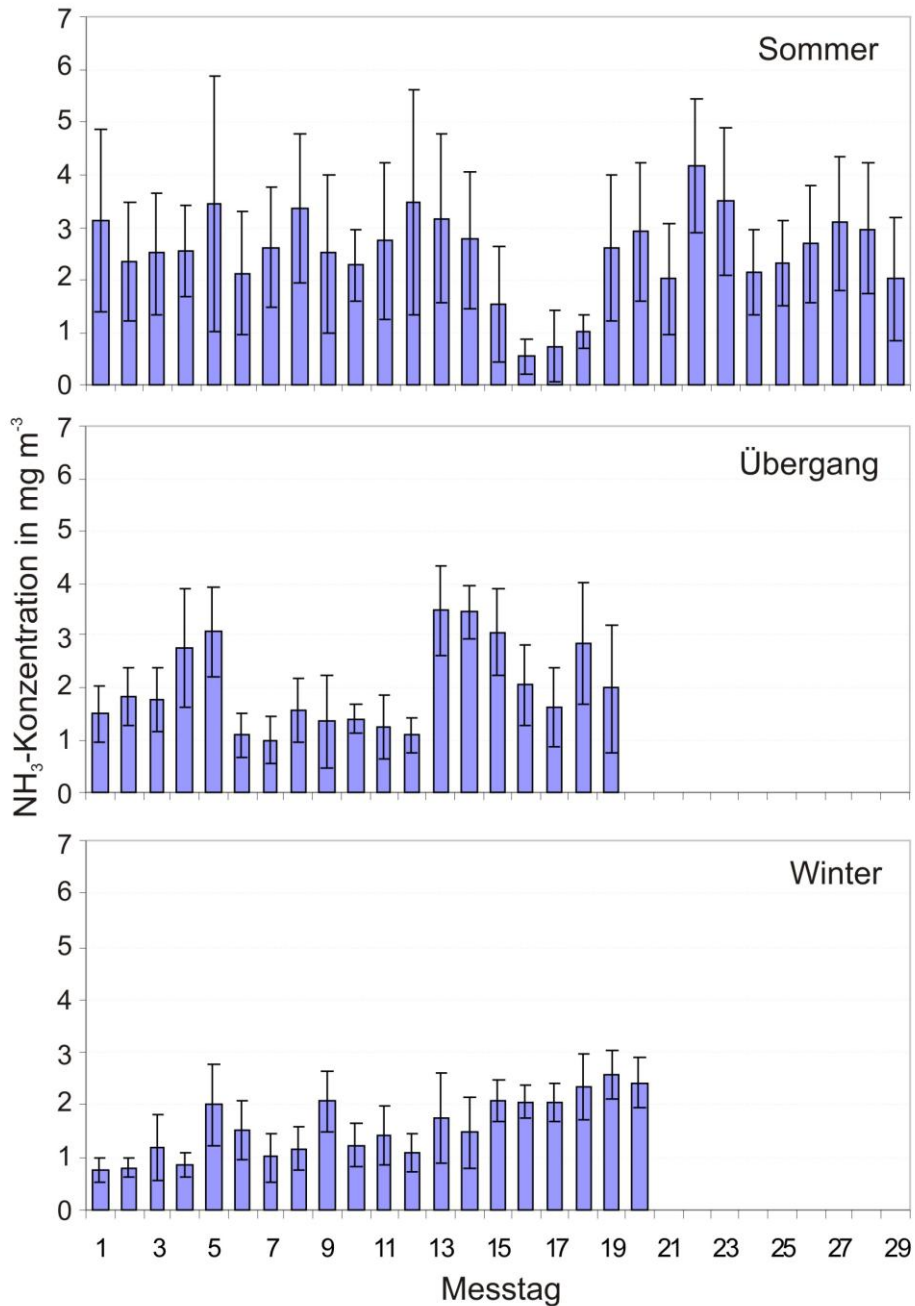


Abbildung 4.5: NH₃-Tagesmittelwerte und Standardabweichungen in den verschiedenen Messperioden - Gut Frankenforst

In allen drei Messperioden sind starke Unterschiede zwischen den einzelnen Tagesmittelwerten zu erkennen. Während der Sommermessung lag der niedrigste Tagesmittelwert bei $0,54 \text{ mg m}^{-3}$, der höchste Tagesmittelwert wurde mit $4,14 \text{ mg m}^{-3}$ gemessen. Die Standardabweichung lag mit Werten zwischen $0,80$ und $2,42 \text{ mg m}^{-3}$ verhältnismäßig hoch. Die Tagesmittelwerte der Übergangsmessung schwankten zwischen $1,01$ und $3,49 \text{ mg m}^{-3}$. Die Standardabweichung reichte von $0,29$ bis $1,22 \text{ mg m}^{-3}$. Die niedrigsten Tagesmittelwerte konnten während der Wintermessung verzeichnet werden. Die durchschnittliche NH_3 -Konzentration reichte von $0,76$ bis $2,58 \text{ mg m}^{-3}$. Die Standardabweichung lag mit $0,19$ bis $0,78 \text{ mg m}^{-3}$ am niedrigsten. Über alle drei Messperioden zeigt sich ein Trend von steigenden Streuungen bei höheren NH_3 -Messwerten.

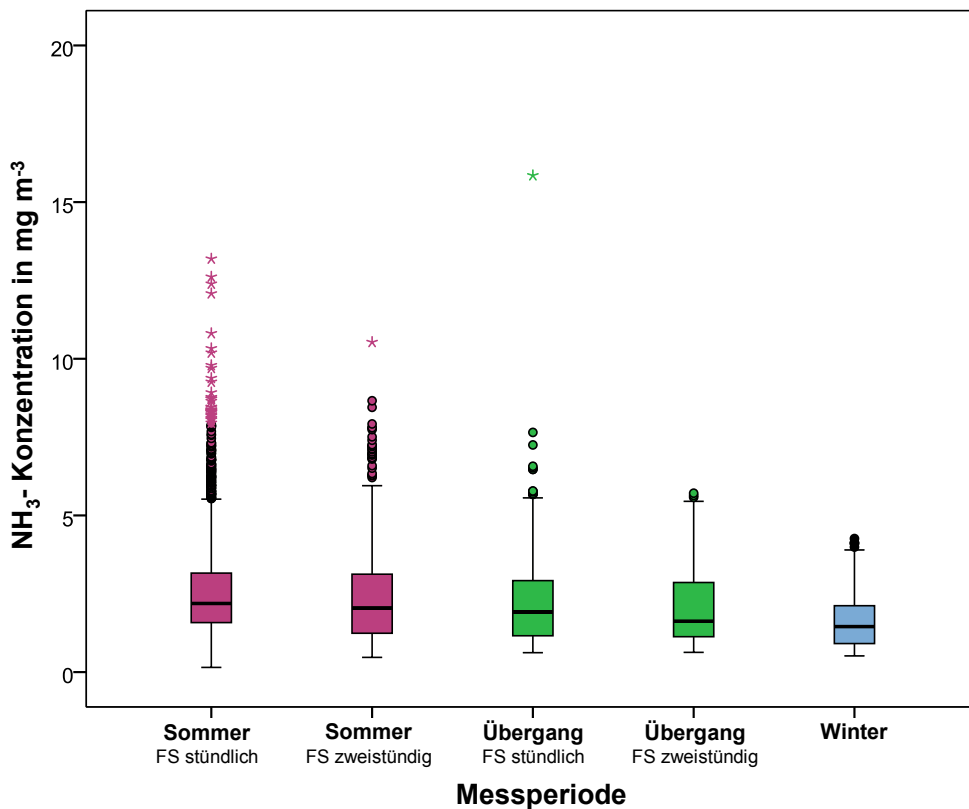
Die minimal sowie die maximal gemessene Konzentration, der Median, die Standardabweichung und der Variationskoeffizient sind für die ausgewählten Messperioden in der Tabelle 4.3 angegeben. Neben dem Normalzustand der stündlichen Entmistung werden hier auch die Ergebnisse der Variation des Flüssigmistschiebers, mit einer zweistündigen Entmistung, einbezogen. Die NH_3 -Konzentration nahm mit vorschreitendem Jahresverlauf sukzessive ab. Ebenfalls konnte eine Abnahme des Variationskoeffizienten beobachtet werden.

Tabelle 4.3: Deskriptive Statistik der NH_3 -Konzentrationen – Gut Frankenforst

Mess- periode	Min	Max	Median	Standardabweichung	Variations- koeffizient
	in mg m^{-3}	in mg m^{-3}	\tilde{x} in mg m^{-3}	σ in mg m^{-3}	VarK in %
Sommer FS stündlich	0,13	13,19	2,19	1,46	57,94
Sommer FS zweistündig	0,47	10,53	2,05	1,30	55,79
Übergang FS stündlich	0,63	5,71	1,61	1,07	53,23
Übergang FS zweistündig	0,62	7,65	1,92	1,13	52,31
Winter	0,52	4,26	1,52	0,73	45,91

FS = Flüssigmistschieber

Die Messergebnisse der verschiedenen Messperioden sind in der Abbildung 4.6, in der zeitlichen Reihenfolge der Datenerfassung, als Boxplot zusammengefasst. Es wird deutlich, dass der Median mit $2,19 \text{ mg m}^{-3}$ im Sommer am höchsten und mit $1,52 \text{ mg m}^{-3}$ im Winter am niedrigsten ist. Im Hinblick auf die Variation der Frequenz des Flüssigmistschiebers konnte keine klare Tendenz der NH_3 -Freisetzung ausfindig gemacht werden. Während der Sommermessung lag der Median der zweistündigen Frequenz mit $2,05 \text{ mg m}^{-3}$ unter dem Median des stündlichen Normalzustandes, bei der Übergangsmessung wurde mit einem Median von $1,92 \text{ mg m}^{-3}$ eine Erhöhung der NH_3 -Konzentration im Vergleich zur stündlichen Frequenz erreicht. Die Mittelwertdifferenz wurde zwischen allen Messperioden auf der Stufe 0,05 als signifikant verschieden getestet. Eine Überblickstabelle 9.7 befindet sich im Anhang.



FS = Flüssigmistschieber

Abbildung 4.6: Boxplot der NH_3 -Konzentrationen in den verschiedenen Messperioden - Gut Frankenforst

Zur Berechnung der jährlichen NH₃-Emission aus dem frei gelüfteten Milchviehstall auf Gut Frankenforst musste zunächst die tatsächliche NH₃-Massenkonzentration berechnet werden, die durch Freisetzung im Stall entsteht. Hierfür wurde der Median der Hintergrundkonzentration vom Median der Abluftkonzentration subtrahiert. Die Zuluftkonzentration wurde stichprobenartig in mehreren über das Jahr verteilten Messtagen bestimmt und gemittelt, so dass für alle Messperioden ein einheitlicher Hintergrundwert von 0,96 mg m⁻³ verwendet werden kann.

Daraus ergab sich eine NH₃-Quellkonzentration von 1,23 mg m⁻³ für den Sommer, 0,65 mg m⁻³ für den Übergang und 0,56 mg m⁻³ für die Wintermessung. Der Versuch mit der stichprobenartig erfassten CO₂-Hintergrundkonzentration eine CO₂-Bilanz für den Luftvolumenstrom im Winter zu erstellen, brachte kein plausibles Ergebnis. Die weitere Berechnung erfolgt daher mit einem Schätzwert, der ungefähr der Hälfte der Sommerlufrate entspricht. Durch Multiplikation des entsprechenden Medians mit dem über die SF₆-Methode errechnetem Luftvolumenstrom von 3.094.573 m³ d⁻¹ für die Sommerperiode und 2.289.285 m³ d⁻¹ für die Übergangszeit und dem geschätzten Luftvolumenstrom von 1.508.925 m³ d⁻¹ für den Winterzeitraum wurde, unter der Annahme dass jeweils 91,25 Tage der Sommer- und Winterzeit sowie 182,5 Tage dem Übergang zugerechnet werden können, ein Emissionsmassenstrom von 7,61 kg GV⁻¹ a⁻¹ für die 61 eingestellten Tiere errechnet.

Für die einzelnen Messperioden sind die Ergebnisse in der Tabelle 4.2 gegenübergestellt.

**Tabelle 4.4: Quellkonzentrationen, Luftvolumenströme und Emissionsraten
- Gut Frankenforst**

Messperiode	Quellkonzentration mg m ⁻³	Luftvolumenstrom m ³ d ⁻¹	Emissionsrate g GV ⁻¹ d ⁻¹
Sommer	1,23	3.094.573 ¹	41,60
Übergang	0,65	2.289.285 ¹	16,26
Winter	0,56	1.508.925 ³ (5.008.925) ²	9,23
Gesamt			20,84

¹ SF₆- Methode, ² CO₂- Bilanz, ³ Schätzwert

Während der Sommermessung wiesen sowohl die Quellkonzentration als auch der Luftvolumenstrom die höchsten Werte auf. Dementsprechend lag auch die Emissionsrate mit $41,60 \text{ g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$ in dieser Jahreszeit am höchsten. Resultierend aus geringeren Quellemissionen und Luftvolumenströmen in der Übergangszeit lag die Emissionsrate mit $16,26 \text{ g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$ deutlich unter dem Sommerwert. Im Winter lag die geschätzte Emissionsrate mit $9,23 \text{ g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$ am niedrigsten. Dieser Wert basiert im Wesentlichen auf dem geringen Luftvolumenstrom. Im jährlichen Mittel konnte für diesen Stall eine NH_3 -Emission von $20,84 \text{ g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$ bestimmt werden.

4.4 Abschätzung der durchschnittlichen NH_3 -Emissionen - Haus Riswick

In der Abbildung 4.7 sind die gemittelten Tagesverläufe der NH_3 -Konzentration während der verschiedenen Messperioden für jedes Segment gegenübergestellt.

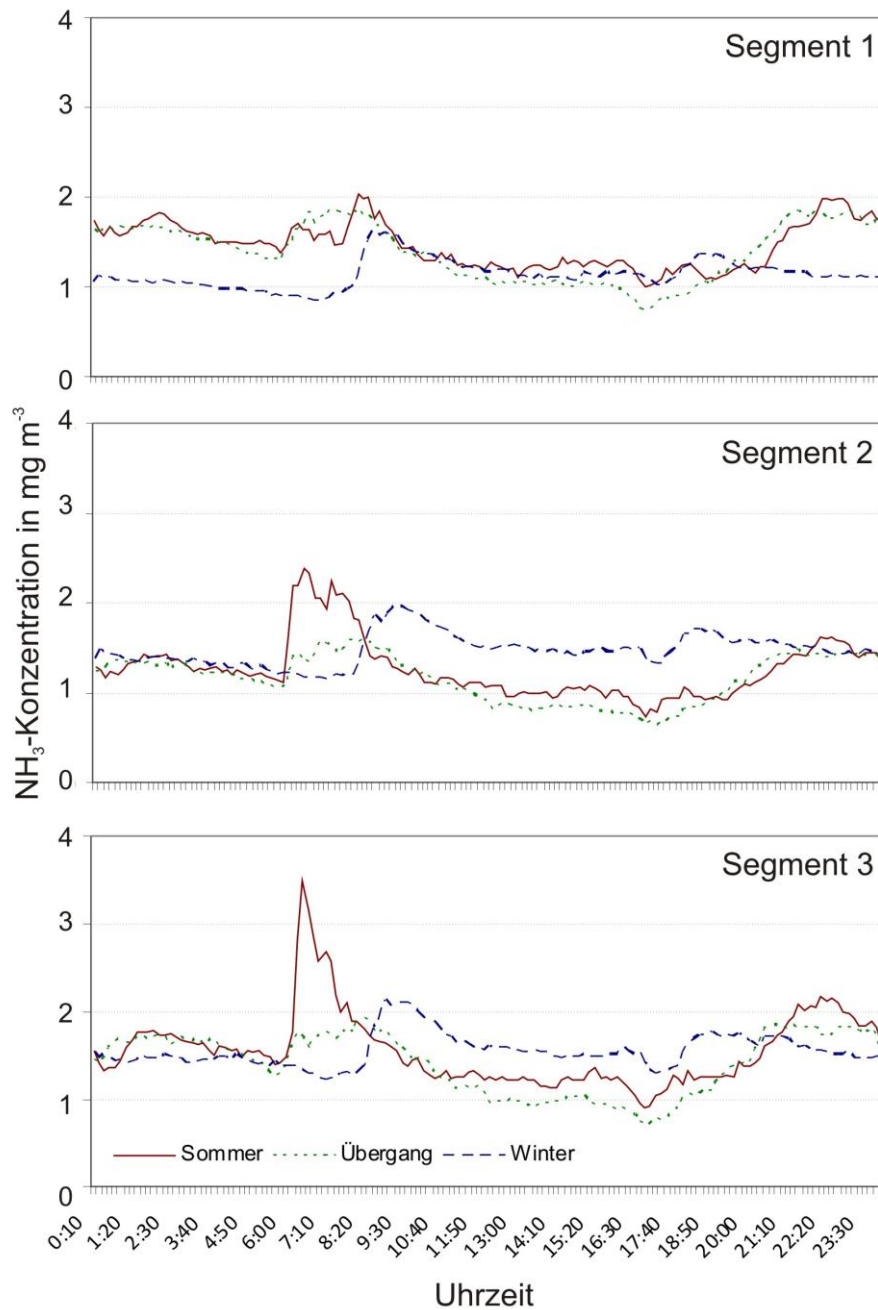


Abbildung 4.7: Vergleich der gemittelten NH_3 -Tagesverläufe bei verschiedenen Messperioden und Segmenten - Haus Riswick

In den Morgenstunden weisen die drei Segmente ein Maximum im Konzentrationsverlauf auf, das im Spaltenbodensegment 3 während der Sommermessung am stärksten ausgeprägt ist und sich im Jahresverlauf zu späteren Uhrzeiten verlagert. An einem leichten Rückgang der NH_3 -Konzentration in der Abluft sind auch bei diesen Ställen die Melkzeiten (5.00 bis 7.00 Uhr und 16.00 bis 18.30 Uhr) zu identifizieren. Während der Übergangs- und Sommermessungen zeigt sich ein erneuter Anstieg der Konzentration während der späten Abend- und frühen Nachtstunden. Im Gegensatz dazu blieb während der Wintermessung die Konzentration in diesem Zeitraum relativ konstant.

Den Abbildungen 4.8 bis 4.10 sowie der Tabelle 4.5 sind die Tagesmittelwerte der einzelnen Messperioden und Segmente sowie die dazugehörige deskriptive Statistik der NH_3 -Messungen auf Haus Riswick zu entnehmen. Auch an diesem Standort schwanken die Ergebnisse zwischen den Messtagen stark. Der Verlauf der Schwankungen ist dabei in allen Segmenten ungefähr gleich.

Für das planbefestigte Segment 1 wurden Tagesmittelwerte von 0,78 bis 2,23 mg m^{-3} bei Standardabweichungen zwischen 0,21 und 0,89 m^{-3} während der Sommermonate, 0,49 und 1,93 mg m^{-3} mit Standardabweichungen von 0,13 bis 0,92 m^{-3} in der Übergangszeit und 0,69 bis 1,44 mg m^{-3} bei Standardabweichungen zwischen 0,14 und 0,58 m^{-3} im Winter ermittelt.

Die Tagesmittelwerte im Segment 2 lagen zwischen 0,59 und 1,95 mg m^{-3} bei einer Standardabweichung von 0,23 bis 0,91 mg m^{-3} im Sommer, 0,42 und 1,86 mg m^{-3} bei Standardabweichungen zwischen 0,11 und 0,72 mg m^{-3} im Übergang und 0,96 und 1,95 mg m^{-3} mit Standardabweichungen von 0,24 bis 0,60 mg m^{-3} während der Wintermessung.

Im Segment 3 lagen die berechneten Tagesmittel zwischen 0,69 und 2,67 mg m^{-3} im Sommer, 0,43 und 2,30 mg m^{-3} in der Übergangszeit und 0,68 und 2,07 mg m^{-3} im Winter. Die Standardabweichung betrug während der Messperioden 0,33 bis 1,16 mg m^{-3} , 0,11 bis 0,91 mg m^{-3} und 0,19 bis 0,59 mg m^{-3} .

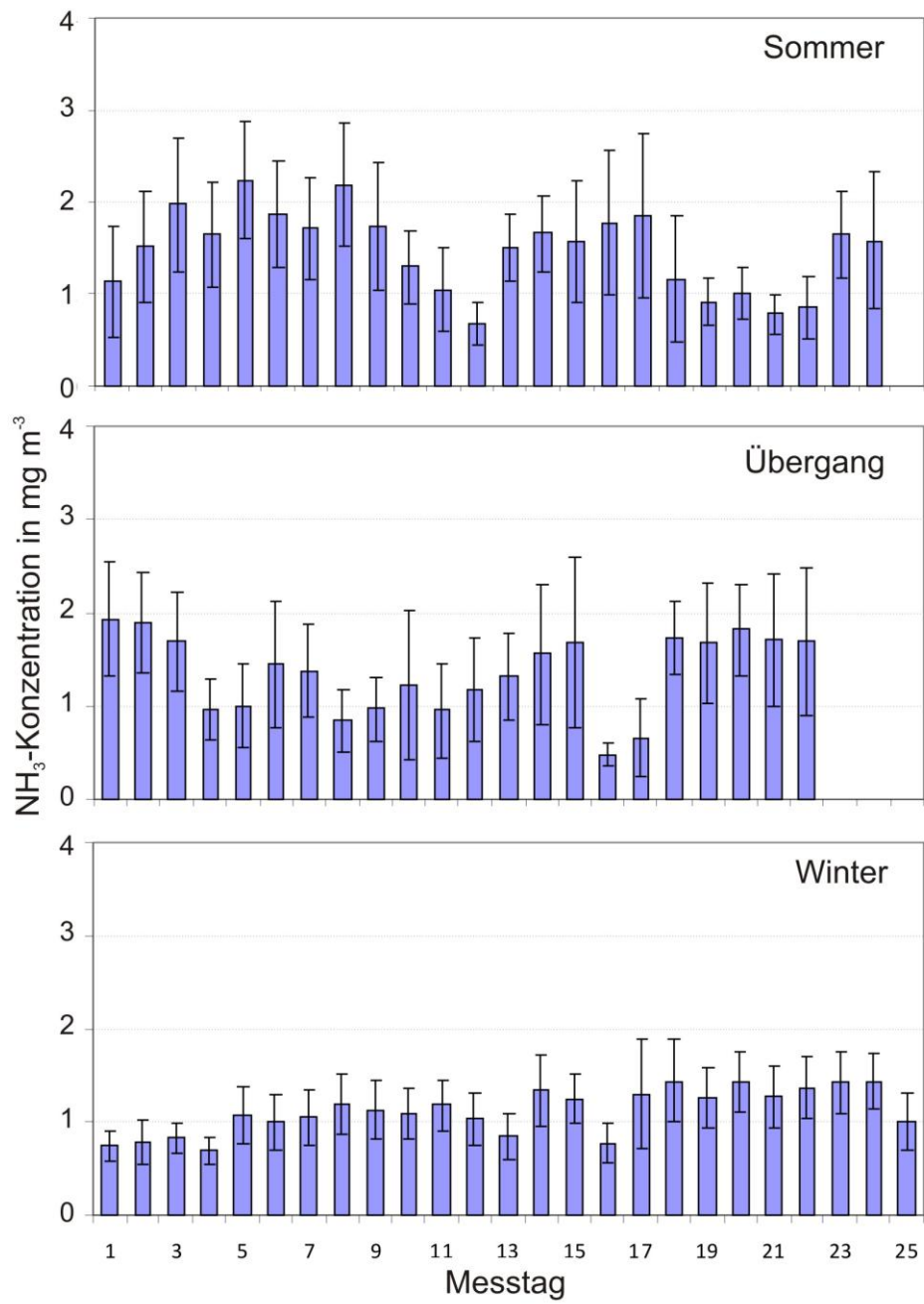


Abbildung 4.8: NH₃-Tagesmittelwerte und Standardabweichungen im Segment 1

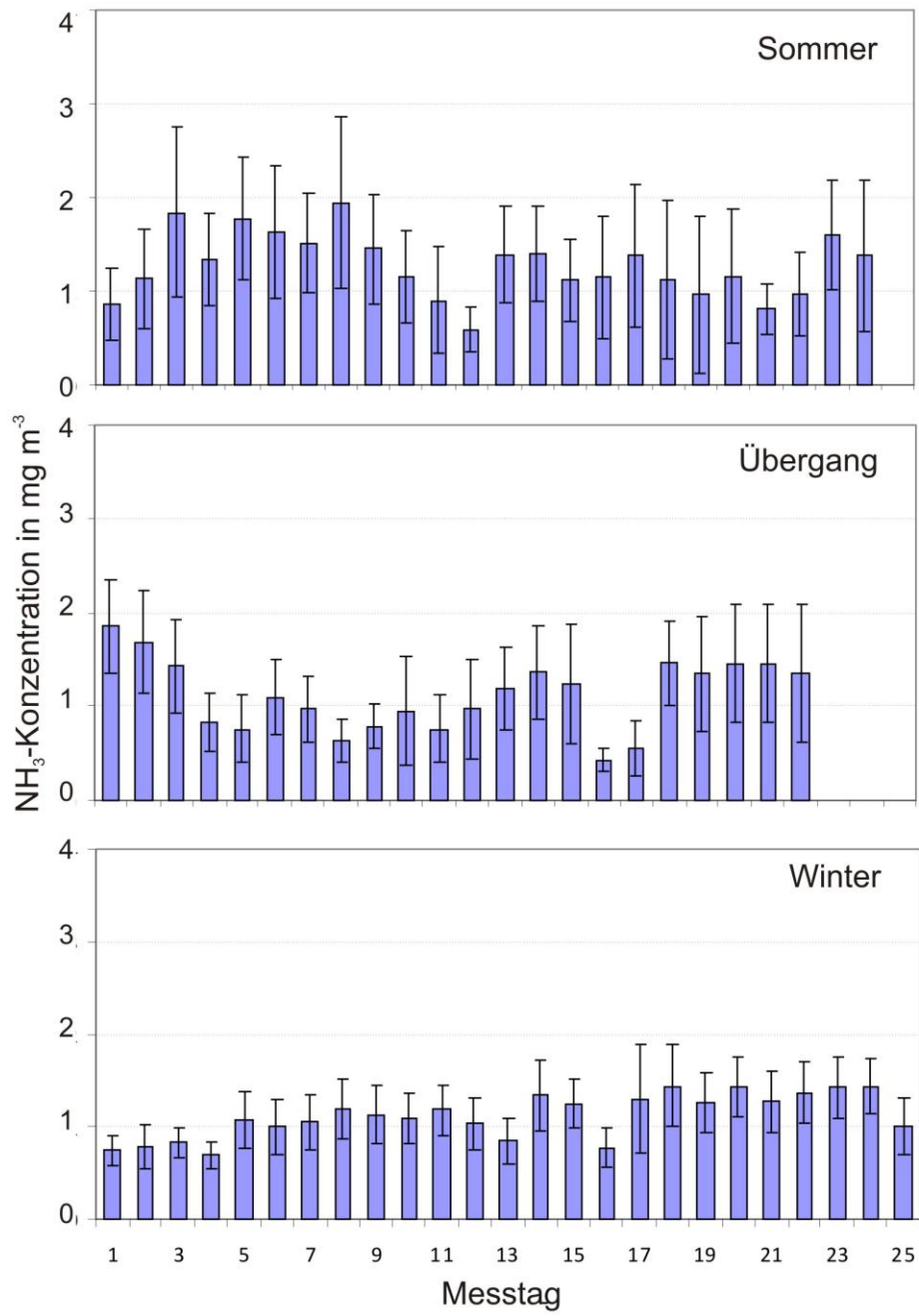


Abbildung 4.9: NH₃-Tagesmittelwerte und Standardabweichungen im Segment 2

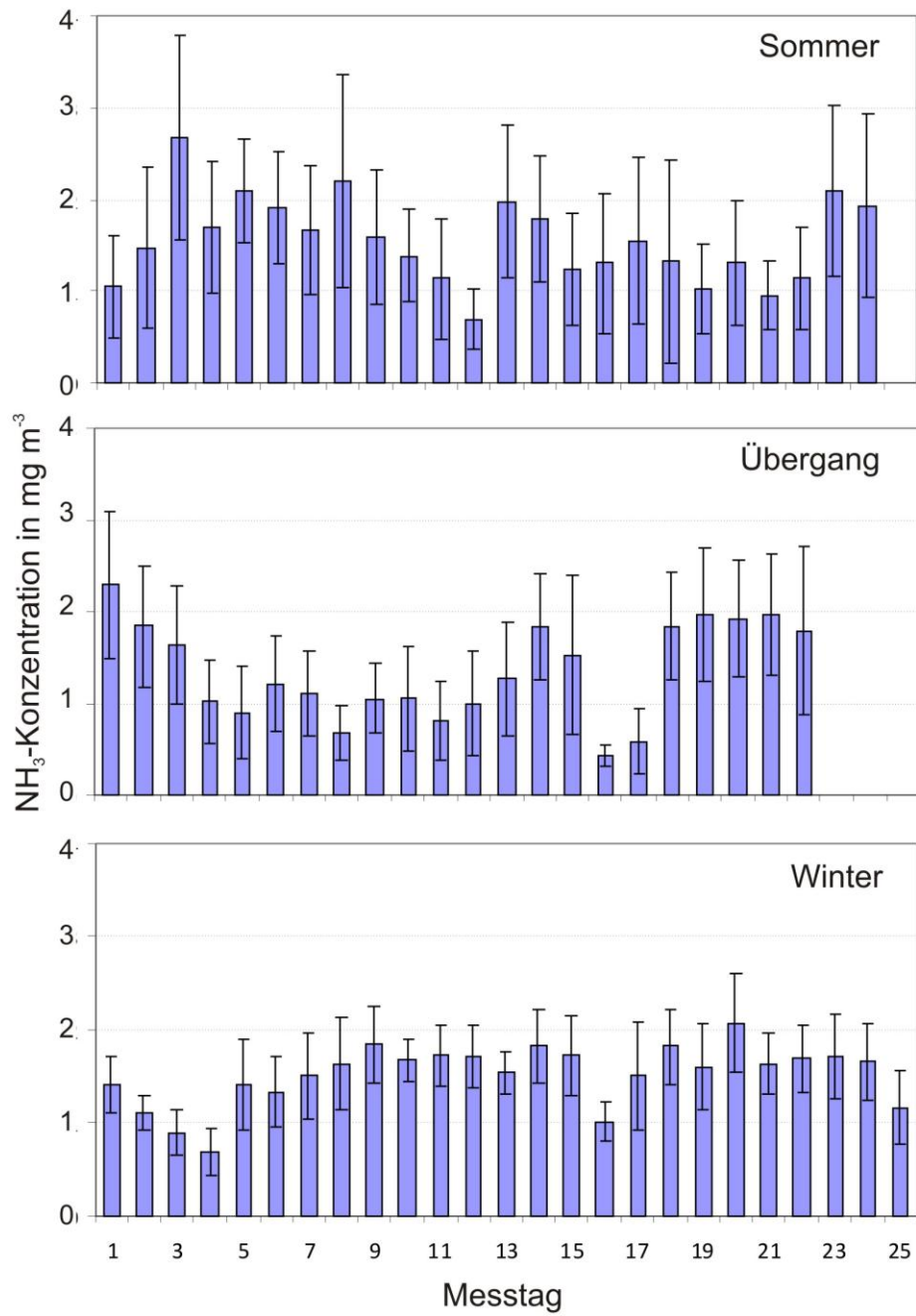


Abbildung 4.10: NH₃-Tagesmittelwerte und Standardabweichungen im Segment 3

Tabelle 4.5: Deskriptive Statistik der NH₃-Konzentrationen - Haus Riswick

Segment	Min	Max	Median	Standardabweichung	Variationskoeffizient
	in mg m ⁻³	in mg m ⁻³	\tilde{x} in mg m ⁻³	σ in mg m ⁻³	VarK in %
Sommer					
1	0,12	4,57	1,34	0,68	46,58
2	0,21	7,06	1,13	0,65	51,18
3	0,20	8,61	1,58	0,86	51,19
Übergang					
1	0,27	4,78	1,26	0,69	50,00
2	0,19	4,26	1,02	0,60	52,17
3	0,24	4,60	1,25	0,79	56,43
Winter					
1	0,36	3,67	1,09	0,38	33,63
2	0,35	4,37	1,46	0,42	28,57
3	0,41	3,55	1,56	0,49	31,62

In der Abbildung 4.11 sind die Ergebnisse der NH₃-Messung auf Haus Riswick zusammenfassend in Form eines Boxplots dargestellt. Während der Sommermessung wies das Segment 3 die höchste NH₃-Abluftkonzentration mit einem Median von 1,58 mg m⁻³ auf, die niedrigste Konzentration wurde im Segment 2 mit einem Median von 1,13 mg m⁻³ gemessen. Während der Übergangsperiode lagen die Mediane der Segmente 1 und 3 mit 1,26 und 1,25 mg m⁻³ sehr eng beieinander. Die niedrigste Konzentration wies in dieser Messperiode wieder das Segment 2 auf. In den Wintermonaten wurde wiederholt die höchste NH₃-Konzentration im Segment 3 gemessen. Der Median lag hier mit 1,56 mg m⁻³ nur knapp unter dem Median der Sommermessung. Die niedrigste NH₃-Konzentration im Winter wurden im Segment 1 mit einem Median von 1,09 mg m⁻³ bestimmt.

Während im planbefestigten Segment 1 ein Abfall der NH₃-Konzentration über die drei Messperioden zu beobachten ist, fällt auf, dass in den Segment 2 und 3 nach einer Verringerung des Medians im Übergangszeitraum ein Anstieg der NH₃-Konzentration in den Wintermonaten erfolgte. Der Winter-Median im Segment 2 lag sogar über dem der Sommermessung.

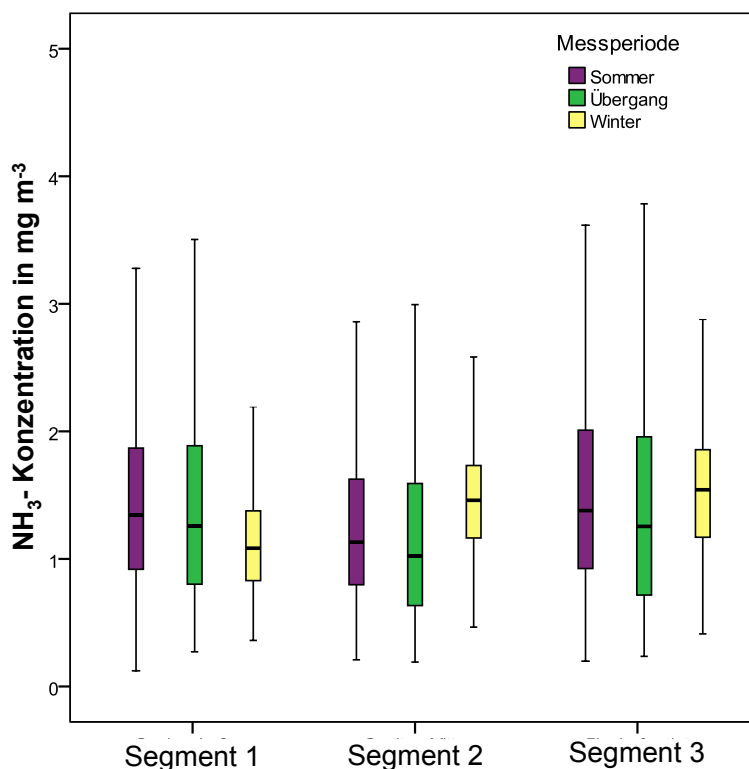


Abbildung 4.11: Boxpot der NH₃-Konzentrationen in den verschiedenen Messperioden und Segmenten - Haus Riswick

Mit einem geeigneten linearen Modell wurden abschließend die Unterschiede in der NH₃-Konzentration bezüglich der Messperiode und des Messortes (Segment) hinsichtlich ihrer Signifikanz getestet. Die Tabellen 9.8 und 9.9 im Anhang geben eine Übersicht der Ergebnisse der Signifikanzanalysen. In der Sommer und Wintermessung waren die Messergebnisse der Segmente auf der Stufe 0,05 signifikant voneinander unterschieden. In der Übergangszeit konnte ein signifikanter Unterschied zwischen den Segmenten 1 und 2 sowie 2 und 3 nachgewiesen werden. Die Mittelwertdifferenz der Segmente 1 und 3 zeigten hingegen keine Signifikanz.

Bei der segmentweisen Betrachtung wurden alle Unterschiede zwischen den Messperioden in den Segmenten 1 und 2 als signifikant voneinander verschieden getestet. Im Segment 3 war hingegen kein signifikanter Unterschied zwischen der Sommer- und Wintermessung nachzuweisen.

Der Berechnung des jährlichen NH_3 -Massenstroms für die einzelnen Segmente des Milchviehstalles auf Haus Riswick ging die Bestimmung der Quellkonzentration voraus. Durch den Einsatz des Messstellenumschalters konnte die Hintergrundkonzentration parallel erfasst und entsprechend für die verschiedenen Jahreszeiten separat berechnet werden. Die erfasste NH_3 -Konzentration im Hintergrund lag mit $0,60 \text{ mg m}^{-3}$ im Sommer, $0,64 \text{ mg m}^{-3}$ im Übergang und $0,45 \text{ mg m}^{-3}$ im Winter deutlich unter der Hintergrundbelastung, die auf Gut Frankenforst bestimmt wurde. Nach der Korrektur der Abluftkonzentrationen um den Hintergrundwert ergaben sich für das planbefestigte Segment 1 Quellkonzentration von $0,74$, $0,62$ und $0,64 \text{ mg m}^{-3}$ für den Sommer, Übergang und Winter. Durch einen hohen Luftvolumenstrom im Sommer entstanden Emissionsraten von $35,72 \text{ g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$ für die Sommerperiode. Im Gegensatz dazu waren die Emissionsraten von $17,87$ und $17,75 \text{ g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$ für die Übergangs- und Winterzeit aufgrund der geringeren Luftvolumenströme vergleichsweise niedrig. Im Mittel lag die tägliche Emission dieses Segments mit $22,30 \text{ g GV}^{-1}$ damit leicht über dem Milchviehstall auf Gut Frankenforst. Im Jahresmittel wurden somit $8,14 \text{ kg GV}^{-1}$ aus dem Segment 1 emittiert. Einen Überblick über die Quellkonzentrationen, Luftvolumenströme und Emissionsraten in den einzelnen Jahreszeiten bieten die Tabellen 4.6 bis 4.8 für die einzelnen Segmente.

Tabelle 4.6: Quellkonzentrationen, Luftvolumenströme und Emissionsraten im Segment 1

Messperiode	Quellkonzentration mg m^{-3}	Luftvolumenstrom $\text{m}^3 \text{ d}^{-1}$	Emissionsrate $\text{g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$
Sommer	0,74	$3.475.526^1$	35,72
Übergang	0,62	$2.075.569^2$	17,87
Winter	0,64	$1.996.834^2$	17,75
Jahresdurchschnitt			22,30

¹ SF_6 - Methode, ² CO_2 - Bilanz

Ein ähnlich niedriger Emissionsmassenstrom von $8,10 \text{ kg GV}^{-1} \text{ a}^{-1}$ bei einer täglichen Emissionsrate von $22,19 \text{ g GV}^{-1}$ wurde für das Segment 2 berechnet. Mit einer Quellkonzentration von $0,52 \text{ mg m}^{-3}$ im Sommer lag dieses Segment ausgesprochen niedrig. Durch den hohen Luftvolumenstrom während dieser Jahreszeit ist die Emissionsrate mit $31,07 \text{ g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$ im Vergleich zu den anderen Messperioden gleichfalls erhöht. Die niedrigste Quellkonzentration in diesem Segment wurde mit $0,38 \text{ mg m}^{-3}$ für die Übergangsperiode bestimmt und führte zu einer Emissionsrate von $18,01 \text{ g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$. Mit $1,01 \text{ mg m}^{-3}$ wurde im Winter die höchste Quellemission in diesem Segment bestimmt. Trotz des vergleichsweise geringen Luftvolumenstroms lag die Emissionsrate dadurch mit $21,66 \text{ g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$ etwas über dem Wert der Übergangsmessung.

Tabelle 4.7: Quellkonzentrationen, Luftvolumenströme und Emissionsraten im Segment 2

Messperiode	Quellkonzentration mg m^{-3}	Luftvolumenstrom $\text{m}^3 \text{ d}^{-1}$	Emissionsrate $\text{g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$
Sommer	0,53	$4.220.986^1$	31,07
Übergang	0,38	$3.413.139^2$	18,01
Winter	1,01	$1.544.401^2$	21,66
Jahresdurchschnitt			22,19

¹ SF₆- Methode, ² CO₂- Bilanz

Für das Segment 3 wurde der höchste NH₃-Massenstrom dieses Stalles mit $11,77 \text{ kg GV}^{-1} \text{ a}^{-1}$ berechnet. Die Emissionsrate von $32,25 \text{ g GV}^{-1} \text{ d}^{-1}$ dieses Segments liegt rund 12 g über der des Milchviehstalles auf Gut Frankenforst. Die Quellkonzentrationen im Sommer und Winter lagen mit $0,98$ und $1,11 \text{ mg m}^{-3}$ relativ nah beieinander. In Folge des hohen Luftvolumenstroms im Sommer ergab sich für diesen Messzeitraum eine sehr hohe Emissionsrate von $53,83 \text{ mg m}^{-3} \text{ d}^{-1}$, während sie im Winter mit $25,59 \text{ mg m}^{-3} \text{ d}^{-1}$ wesentlich geringer war. Durch den höheren Luftvolumenstrom im Übergang wurde mit einer wesentlich niedrigeren Quellkonzentration von $0,61 \text{ mg m}^{-3}$ eine Emissionsrate von $24,79 \text{ g GV}^{-1} \text{ Tag}^{-1}$ ermittelt.

Tabelle 4.8: Quellkonzentrationen, Luftvolumenströme und Emissionsraten im Segment 3

Messperiode	Quellkonzentration mg m^{-3}	Luftvolumenstrom $\text{m}^3 \text{d}^{-1}$	Emissionsrate $\text{g GV}^{-1} \text{d}^{-1}$
Sommer	0,98	3.954.874 ¹	53,83
Übergang	0,61	2.925.483 ²	24,78
Winter	1,11	1.659.985 ²	25,59
Jahresdurchschnitt			32,24

¹ SF₆- Methode, ² CO₂- Bilanz

4.5 Abschätzung der durchschnittlichen NH₃-Emissionen - Legehennen-Volierenhaltung

Ein stark jahreszeitlich geprägtes Bild zeigten die in der Abbildung 4.12 dargestellten, gemittelten Tagesverläufe der NH₃-Konzentration in dem untersuchten Volierenstall für Legehennen. Während in der Wintermessung ein deutlicher Tagesverlauf mit minimalen Werten in den Nachtstunden und einem Anstieg der NH₃-Konzentration bis zum späten Nachmittag beobachtet werden konnte, blieb diese während der Sommermessung weitestgehend konstant.

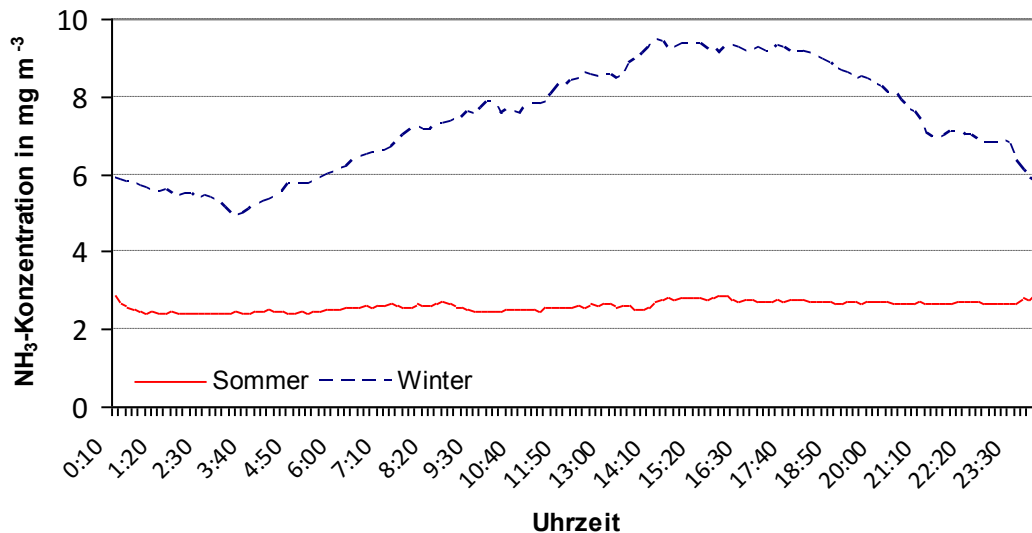


Abbildung 4.12: Vergleich der gemittelten NH₃-Tagesverläufe in der Volierenhaltung

Die Abbildung 4.13 zeigt die Tagesmittelwerte der NH_3 -Konzentration während der Wintermessung. Die Werte schwanken stark in einer polynomischen Form. Die geringste NH_3 -Tagesmittelkonzentration konnte am fünften Messtag mit $4,80 \text{ mg m}^{-3}$ gemessen werden, die höchste NH_3 -Tagesmittelkonzentration wurde am letzten Messtag mit $11,4 \text{ mg m}^{-3}$ erreicht.

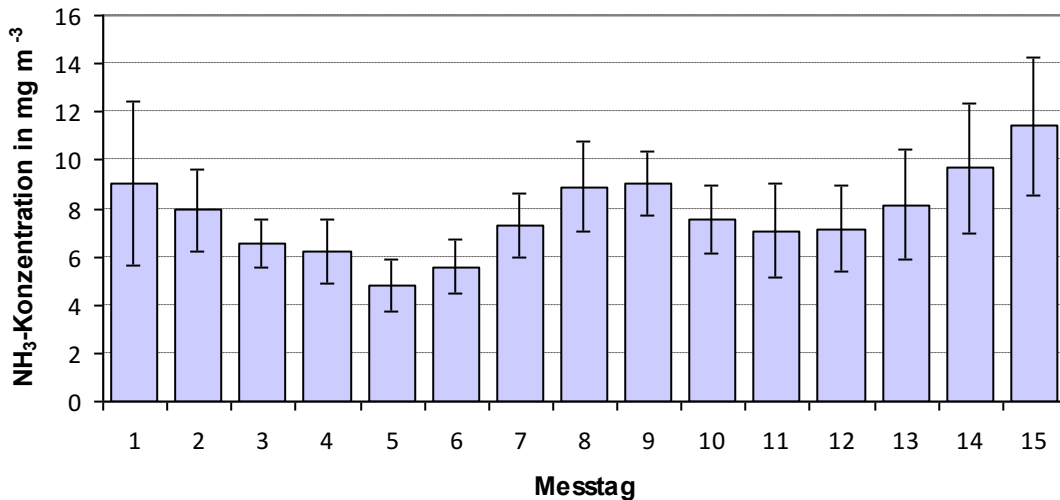


Abbildung 4.13: NH_3 -Tagesmittelwerte und Standardabweichungen in der Volierenhaltung während der Wintermessung

Auch in den Standardabweichungen spiegelt sich die hohe Streuung der Messwerte wieder. Sie liegt während der Wintermessung zwischen $1,10$ und $3,40 \text{ mg m}^{-3}$. Im Durchschnitt weisen hier die Tage mit den höchsten NH_3 -Konzentrationen auch die höchsten Standardabweichungen auf, während Tage mit niedrigen NH_3 -Konzentrationen auch durch geringe Standardabweichungen gekennzeichnet sind.

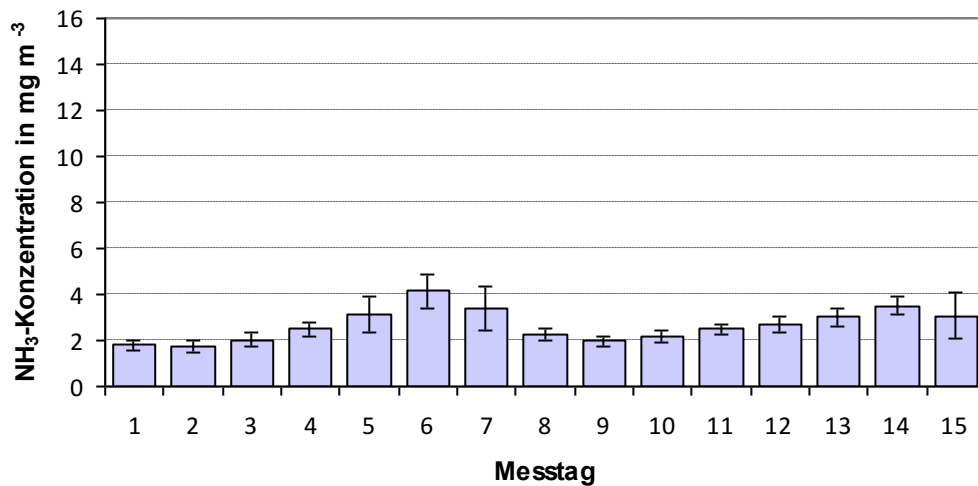
Die minimale NH_3 -Konzentration lag während der Wintermessung bei $2,30 \text{ mg m}^{-3}$, der Maximalwert betrug $15,96 \text{ mg m}^{-3}$, der Variationskoeffizient beträgt $35,1 \%$.

In Tabelle 4.9 werden die Minima und Maxima, der Mittelwert, sowie die Standardabweichung für die Winter- und Sommermessung vergleichend gegenübergestellt.

Tabelle 4.9: Deskriptive Statistik der NH₃-Konzentration in der Volierenhaltung

Mess- periode	Min in mg m ⁻³	Max in mg m ⁻³	Median \tilde{x} in mg m ⁻³	Standardabweichung σ in mg m ⁻³	Variationskoeffizient VarK in %
Winter	2,30	15,96	7,07	2,59	35,1
Sommer	0,92	6,22	2,40	0,82	28,6

Die in der Abbildung 4.14 dargestellten Tagesmittelwerte der NH₃-Konzentration während der Sommermessung zeigen denselben polynomischen Verlauf wie in der Wintermessung. Die geringste Tagesmittelkonzentration trat am zweiten Messtag, mit einer Konzentration von 1,71 mg m⁻³ die höchste Tagesmittelkonzentration von 4,13 mg m⁻³ stellte sich am sechsten Messtag ein.

**Abbildung 4.14: NH₃- Tagesmittelwerte und Standardabweichungen in der Volierenhaltung während der Sommermessung**

Neben den Tagesmittelwerten ist auch in dieser Messperiode die Standardabweichung (bezogen auf die einzelnen Messtage) durch stetige Schwankungen gekennzeichnet. Ihr Wert ist am 1. Messtag mit 0,23 mg m⁻³ am niedrigsten, die höchste Standardabweichung von 0,97 trat am 15. Messtag auf.

Auch hier ist ein Trend von steigenden Standardabweichungen bei höheren Tagesmittelwerten ersichtlich. Während der Sommermessung lagen die minimale und die maximale NH_3 -Konzentration bei 0,92 und 6,22 mg m^{-3} . Der Variationskoeffizient beträgt 28,6 %. Daraus folgt, dass die Streuung der Messwerte in den Sommermonaten im Vergleich zur Wintermessung etwas geringer ist. Die Messergebnisse der Winter- und Sommermessung sind in der Abbildung 4.15 als Boxplot vergleichend gegenübergestellt. Der Median der Wintermessung liegt mit 7,07 mg m^{-3} fast drei Mal so hoch wie der Median der Sommermessung von 2,40 mg m^{-3} .

Mit Hilfe des T-Test wurden die Ergebnisse der beiden Messperioden auf der Stufe 0,05 als signifikant voneinander verschieden getestet. Die entsprechende Signifikanztabelle 9.10 findet sich im Anhang.

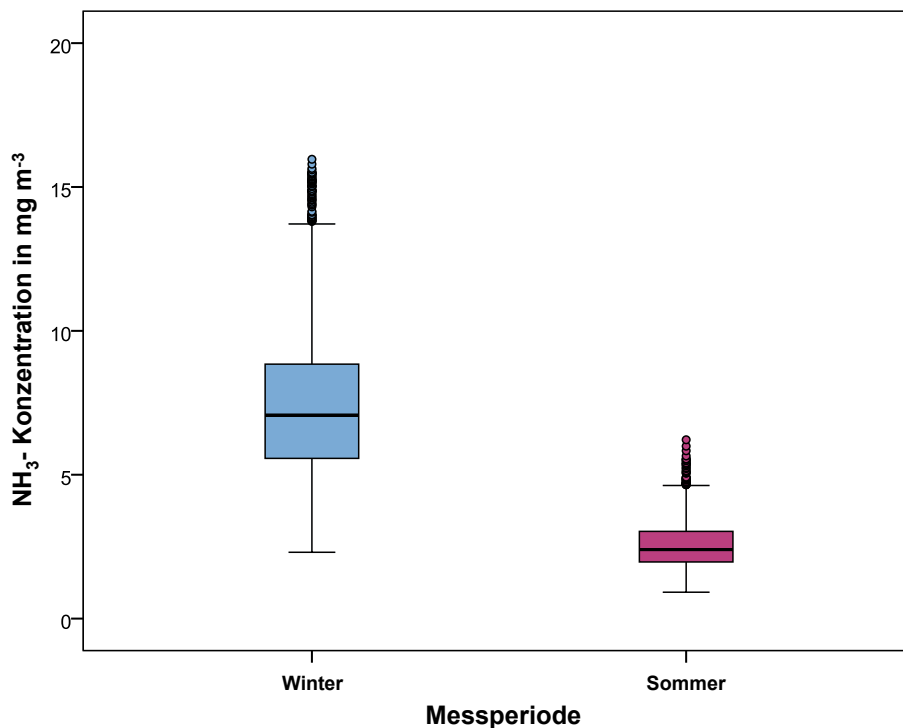


Abbildung 4.15: Boxplot der NH_3 -Konzentration in den verschiedenen Messperioden in der Volierenhaltung

Durch Subtraktion der Hintergrundkonzentration von $0,98 \text{ mg m}^{-3}$ von den Medianen der Messzeiträume ergaben sich Quellkonzentrationen von $6,09 \text{ mg m}^{-3}$ unter Sommer- und $1,42 \text{ mg m}^{-3}$ unter Winterbedingungen. Da für den untersuchten Stall keine Messung unter Übergangsbedingungen stattfand, werden für die beiden Messperioden jeweils die Hälfte der Jahrestage (182,5) veranschlagt. Durch Multiplikation der Luftvolumenströme von $1.075.200 \text{ m}^3 \text{ d}^{-1}$ im Winter und $1.881.600 \text{ m}^3 \text{ d}^{-1}$ im Sommer und der Tagesanzahl sowie anschließender Division durch die 14.900 eingestellten Hennen wurde eine Emission von $112,93 \text{ g Tier}^{-1} \text{ a}^{-1}$ berechnet. Nach Abzug einer Serviceperiode von vier Wochen ergibt sich ein Emissionsfaktor von $103,52 \text{ g Tier}^{-1} \text{ a}^{-1}$.

Die Ergebnisse für die Sommer- und Winterbedingungen sind in der Tabelle 4.10 dargestellt.

Tabelle 4.10: Quellkonzentrationen, Luftvolumenströme und Emissionsraten in der Volierenhaltung

Messperiode	Quellkonzentration mg m^{-3}	Luftvolumenstrom $\text{m}^3 \text{ d}^{-1}$	Emissionsrate $\text{g Tier}^{-1} \text{ d}^{-1}$
Sommer	1,42	1.881.600	0,18
Winter	6,09	1.075.200	0,44
Gesamt			0,31

Die Quellkonzentration in der Wintermessung war viermal höher als die im Sommer. Dem gegenüber steht ein fast doppelt so hoher Luftvolumenstrom in der Sommerzeit. Es zeigt sich, dass die Emissionsrate von $0,44 \text{ g Tier}^{-1} \text{ d}^{-1}$ im Winter fast 2,5-mal höher ist als die tägliche Emission von $0,18 \text{ g Tier}^{-1} \text{ d}^{-1}$ im Sommer. Als durchschnittliche tägliche Emissionsrate kann ein Wert von $0,31 \text{ g Tier}^{-1}$ angegeben werden.

4.6 Einfluss der Wetterbedingungen auf die NH_3 -Konzentration in frei gelüfteten Milchviehställen

4.6.1 Windgeschwindigkeit und NH_3 -Konzentration

Die Abhängigkeit der NH_3 -Konzentration im Offenstall für Milchkühe von der Windgeschwindigkeit wurde anhand einer exponentiellen Regression analysiert. In Abbildung 4.16 wurden die mittleren Messwerte der NH_3 -Konzentration gegen die zeitgleich auftretende Windgeschwindigkeit am Standort Frankenforst aufgetragen. Die Windgeschwindigkeit wurde dafür in 20 Klassen von 0 bis 10 m s^{-1} unterteilt.

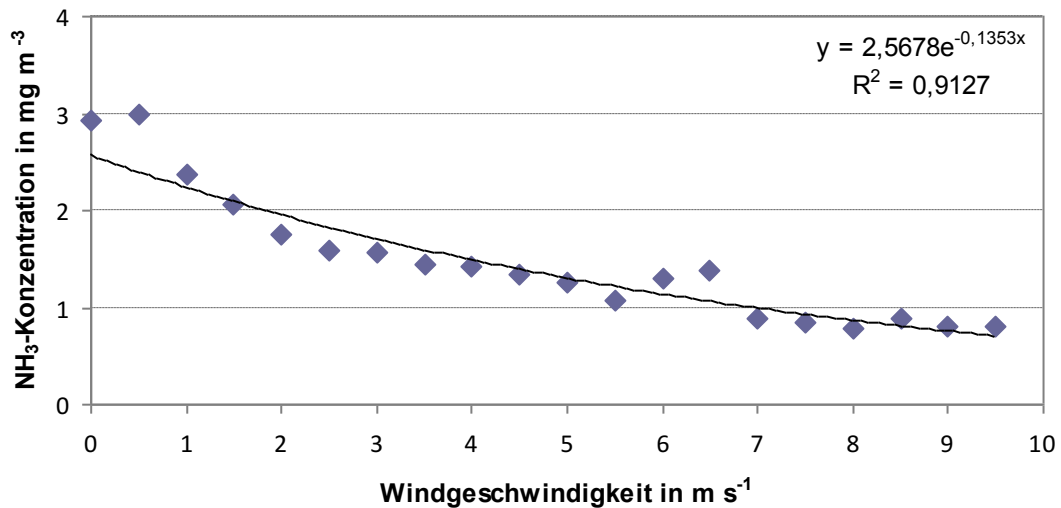


Abbildung 4.16: Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit und der NH_3 -Konzentration im Milchviehstall - Gut Frankenforst

Anhand der Messungen konnte ein sehr enger exponentieller Zusammenhang der Parameter Windgeschwindigkeit und NH_3 -Konzentration, mit einem Bestimmtheitsmaß von 0,91, nachgewiesen werden. Diese Abhängigkeit drückt sich in einem Verdünnungsfaktor der NH_3 -Konzentration von 0,14 bei einer Zunahme der Windgeschwindigkeit um 1 m s^{-1} aus.

Auch die Messergebnisse auf Haus Riswick (Abbildung 4.17 und Abbildungen 9.1, 9.3 und 9.5 im Anhang) zeigen einen engen Zusammenhang mit Bestimmtheitsmaßen von 0,80 im Segment 1, 0,91 im Segment 2 und 0,86 im Segment 3.

Die Abnahme der NH_3 -Konzentration, die durch das Absinken der Windgeschwindigkeit um 1 m s^{-1} hervorgerufen wird, ist mit einem Verdünnungsfaktor von 0,11 geringfügig niedriger als auf Gut Frankenforst.

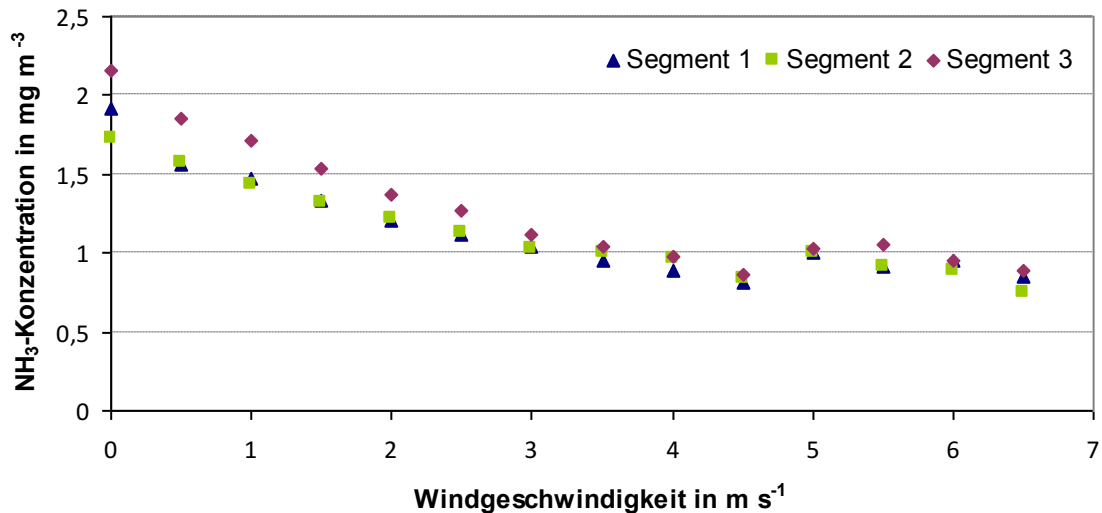


Abbildung 4.17: Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit und der NH_3 -Konzentration im Milchviehstall - Haus Riswick

Da die Messwerte an einer Windgeschwindigkeit von $4,5 \text{ m s}^{-1}$ Abweichungen vom exponentiellen Kurvenverlauf zeigten, wurde zusätzlich eine exponentielle Regression für die Messergebnisse bis zu einer Windgeschwindigkeit von $4,5 \text{ m s}^{-1}$ durchgeführt (Abbildung 9.2, 9.4 und 9.6). Die Bestimmtheitsmaße von 0,99 für alle Segmente zeigten eine deutliche Verbesserung und ergaben Verdünnungsfaktoren von 0,15 bis 0,20 für diesen Bereich.

4.6.2 Windrichtung und NH_3 -Konzentration

In Abbildung 4.18 ist der Zusammenhang zwischen der Windrichtung, und damit der Anströmung des Stalles, und der in der Abluft des Milchviehstalles auf Gut Frankenforst gemessenen NH_3 -Konzentration dargestellt. Die Windrichtung ist dabei als Häufigkeitsverteilung (Balken) dargestellt, die entsprechende NH_3 -Konzentration wird als Mittelwert über ein 15° Intervall angegeben. Es zeigt sich, dass am Standort Frankenforst Winde aus südlicher und südwestlicher Richtung am häufigsten vorkamen. Die Windrichtungen Norden und Osten kamen vergleichsweise selten vor.

Die höchsten NH_3 -Konzentrationen wurden mit 2,7 bis 3,2 mg m^{-3} bei einer Anströmung des Stalles aus Norden und Nordosten gemessen. Bei einer Anströmung aus den Richtungen Süd bis Südwest wurden NH_3 -Konzentrationen zwischen 1,5 und 2,3 mg m^{-3} gemessen. Die niedrigsten Konzentrationen traten auf, wenn der Wind aus östlicher und südöstlicher Richtung kam. Hier lagen die durchschnittlichen Messwerte für die NH_3 -Konzentration bei 1,3 bis 1,7 mg m^{-3} .

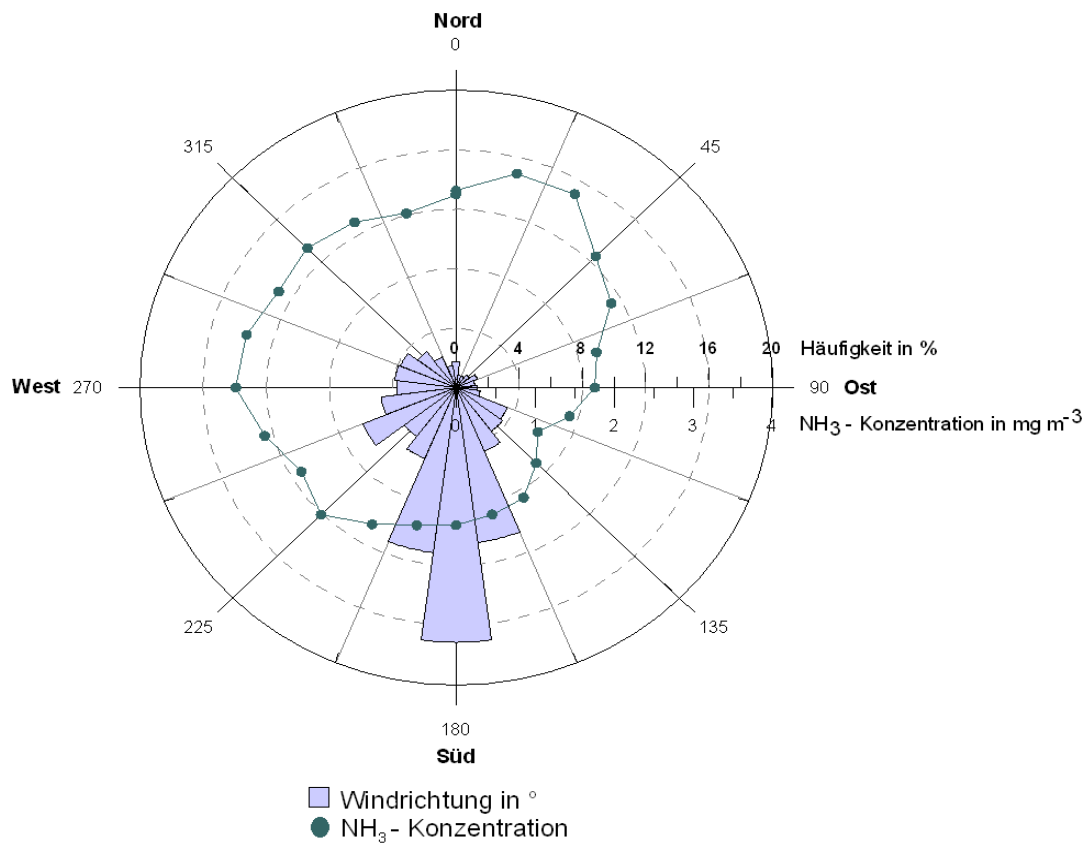


Abbildung 4.18: Zusammenhang zwischen der Windrichtung und der NH_3 -Konzentration im Milchviehstall - Gut Frankenforst

Da die Windrichtung für den Standort Haus Riswick an einer zentralen Stelle gemessen wurde, bildet diese Windrichtungsverteilung die Basis für die Betrachtung aller drei Segmente. Der Abbildung 4.19 ist zu entnehmen, dass alle drei Segmente in ihrem Emissionsverhalten einheitlich auf Änderungen der Windrichtung reagieren. Während die Segmente 1 und 2 in der NH_3 -Konzentration sehr dicht beieinander liegen, wurden für das Segment 3 durchschnittlich um $0,2 \text{ mg m}^{-3}$ höhere Konzentrationen bei derselben Windrichtung aufgezeichnet. Im Vergleich zu Gut Frankenforst ist die Anströmung des Stalles wesentlich inhomogener. Am stärksten vertreten waren dabei Windrichtungen von Südost bis Nordwest. Winde aus nördlicher und nordöstlicher Richtung kamen hingegen kaum vor. Die höchste NH_3 -Konzentration mit $1,6$ bis $1,8 \text{ mg m}^{-3}$ trat bei einer Anströmung aus Norden auf. Für alle anderen Windrichtungen blieb die Konzentration relativ stabil und zeigte nur einen leichten Rückgang bei West-, Nordwest- und Nordostwind.

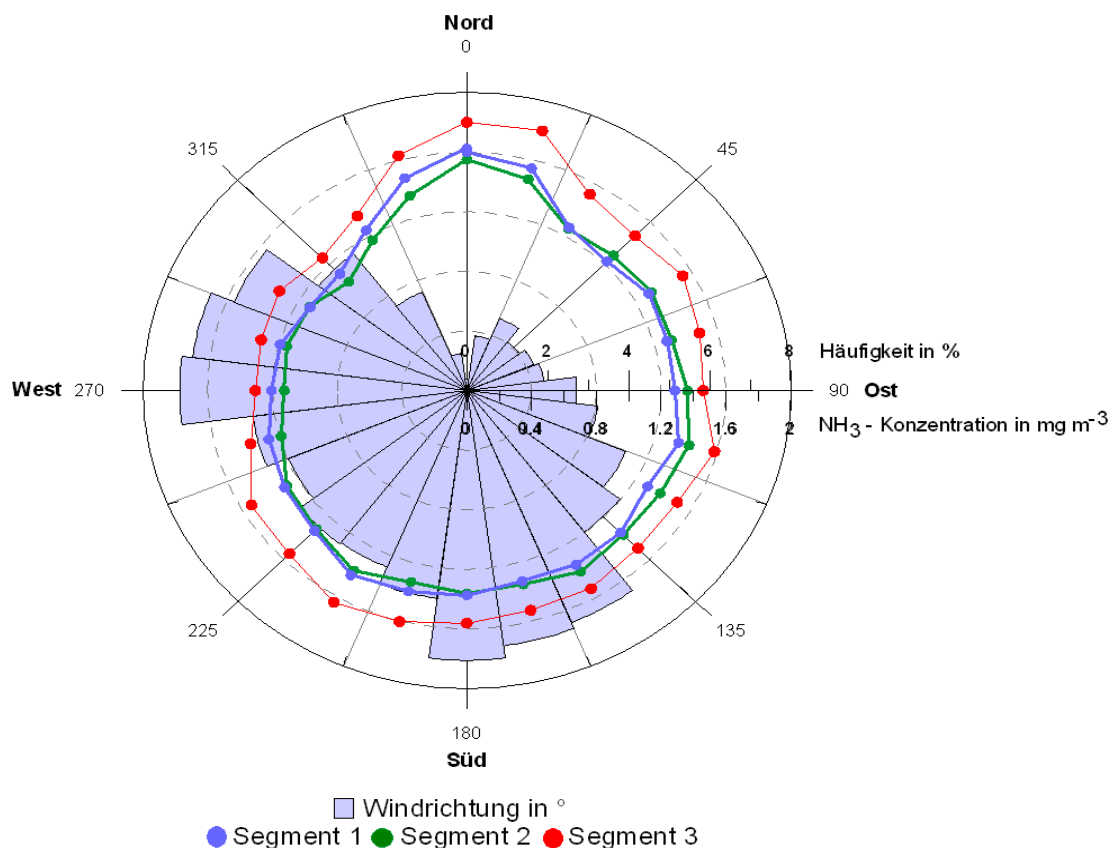


Abbildung 4.19: Zusammenhang zwischen der Windrichtung und der NH_3 -Konzentration im Milchviehstall - Haus Riswick

4.6.3 Temperatur und NH₃-Konzentration

Zur Beschreibung des Zusammenhangs zwischen der Temperatur und der NH₃-Konzentration in der Abluft wurde von einem linearen Zusammenhang der beidem Parameter ausgegangen. Die Messwerte der NH₃-Konzentration wurden dafür auf der Basis der zeitgleich aufgezeichneten Temperatur in Schritten von jeweils einem Grad Celsius zusammengefasst und gemittelt.

Die Abhängigkeit der auftretenden NH₃-Konzentration von der Temperatur im Milchviehstall Frankenforst zeigt die Abbildung 4.20. Das Bestimmtheitsmaß von 0,57 kennzeichnet einen linearen Zusammenhang der beiden Parameter. Als Ergebnis bewirkte ein Temperaturanstieg von 1°C eine Erhöhung der NH₃-Konzentration in der Abluft um 0,04 mg m⁻³.

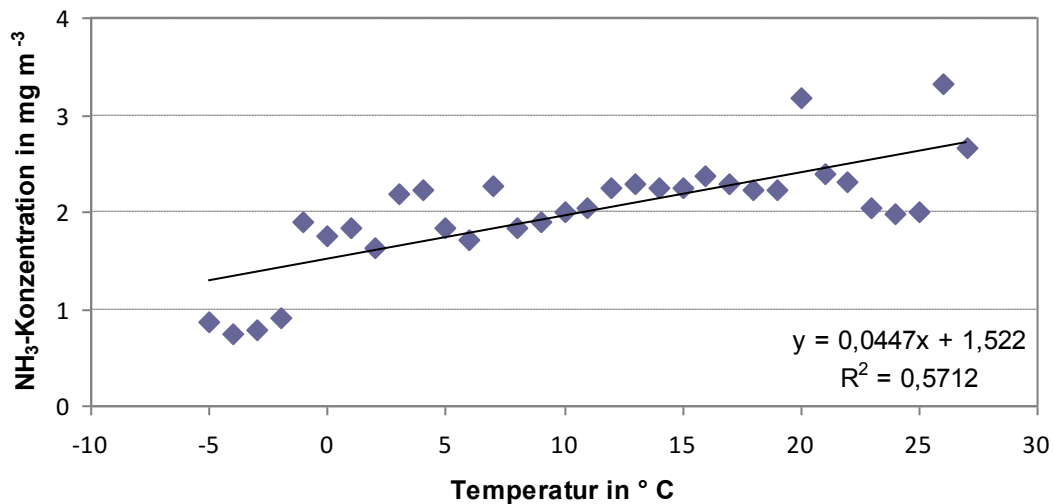


Abbildung 4.20: Zusammenhang zwischen der Temperatur und der NH₃-Konzentration im Milchviehstall - Gut Frankenforst

In der Abbildung 4.21 ist Abhängigkeit der NH₃-Konzentration von der Temperatur über alle Messperioden für die drei Stallsegmente auf Haus Riswick dargestellt. Das planbefestigte Segment 1 weist dabei ebenfalls einen positiven linearen Anstieg der NH₃-Konzentration mit zunehmender Temperatur auf. Das Bestimmtheitsmaß von 0,24 liegt dabei im Vergleich wesentlich niedriger als auf Gut Frankenforst. Im Segment 1 steigt bei einer Temperaturerhöhung von 1°C die NH₃-Konzentration um lediglich 0,01 mg m⁻³ an.

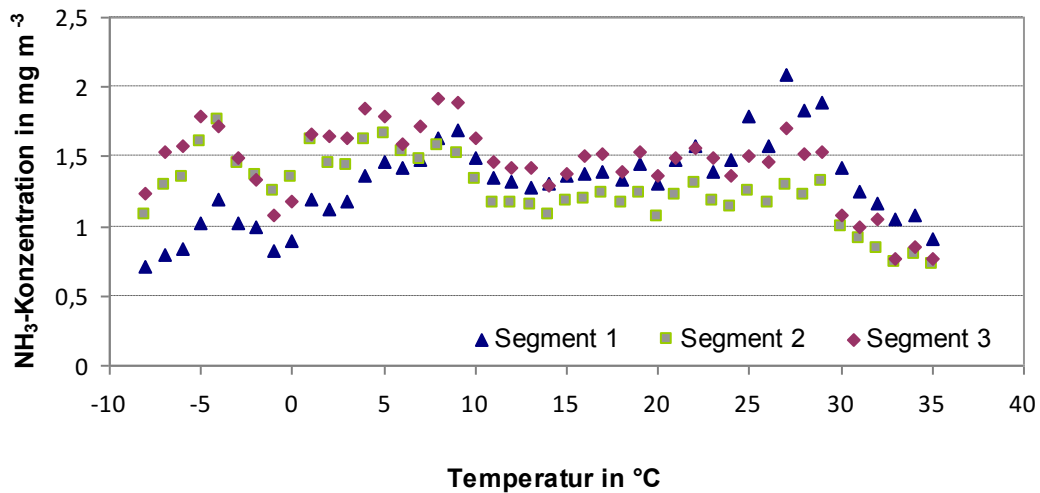


Abbildung 4.21: Zusammenhang zwischen der Temperatur und der NH₃-Konzentration im Milchviehstall - Haus Riswick

Für die Spaltenbodensegmente 2 und 3 sollte ebenfalls ein linearer Zusammenhang der NH₃-Konzentration und der Temperatur nachgewiesen werden. Der Verlauf der Regressionsgerade ist hier jedoch negativ.

In beiden Segmenten nimmt die NH₃-Konzentration der Abluft bei einer Temperaturerhöhung von 1°C um 0,01 mg m⁻³ ab. Das Bestimmtheitsmaß der Regressionsgeraden liegt bei 0,50 für das Segment 2 und 0,24 für das Segment 3. Die Kurven für die einzelnen Segmente mit der dazugehörigen Regressionsgerade finden sich im Anhang (Abbildung 9.7 bis 9.9).

In allen drei Segmenten war bei Temperaturen ab 27°C ein deutlicher Rückgang der NH₃-Konzentration zu erkennen.

4.6.4 Luftfeuchtigkeit und NH₃-Konzentration

Für die Messreihe auf Gut Frankenforst konnte kein direkter Zusammenhang zwischen der relativen Luftfeuchtigkeit und der NH₃-Konzentration nachgewiesen werden. Weder die in Abbildung 4.22 dargestellte lineare Regression, noch eine exponentielle oder polynomische Kurvenanpassung wiesen hier ein ausreichend großes Bestimmtheitsmaß auf.

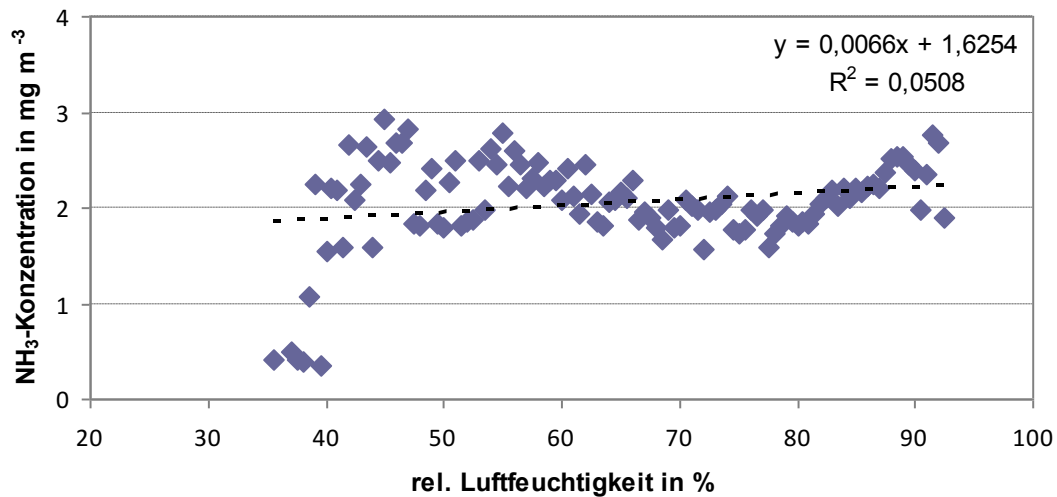


Abbildung 4.22: Zusammenhang zwischen der relativen Luftfeuchtigkeit und der NH₃-Konzentration im Milchviehstall - Gut Frankenforst

Die Wirkung der relativen Luftfeuchtigkeit auf die NH_3 -Konzentration auf Haus Riswick ist der Abbildung 4.23 zu entnehmen. Für das planbefestigte Segment 1 war es ebenfalls nicht möglich eine Kurvenanpassung vorzunehmen (Abbildung 9.10).

Wie in den Abbildungen 9.11 und 9.12 im Anhang dargestellt ist, wiesen die Daten aus den beiden Segmenten mit Spaltenboden hingegen einen sehr guten exponentiellen Zusammenhang auf. Die Bestimmtheitsmaße von 0,67 im Segment 2 und 0,82 im Segment 3 deuten auf einen sehr engen Zusammenhang dieser beiden Parameter für den hier vorhandenen Stallbodentyp hin.

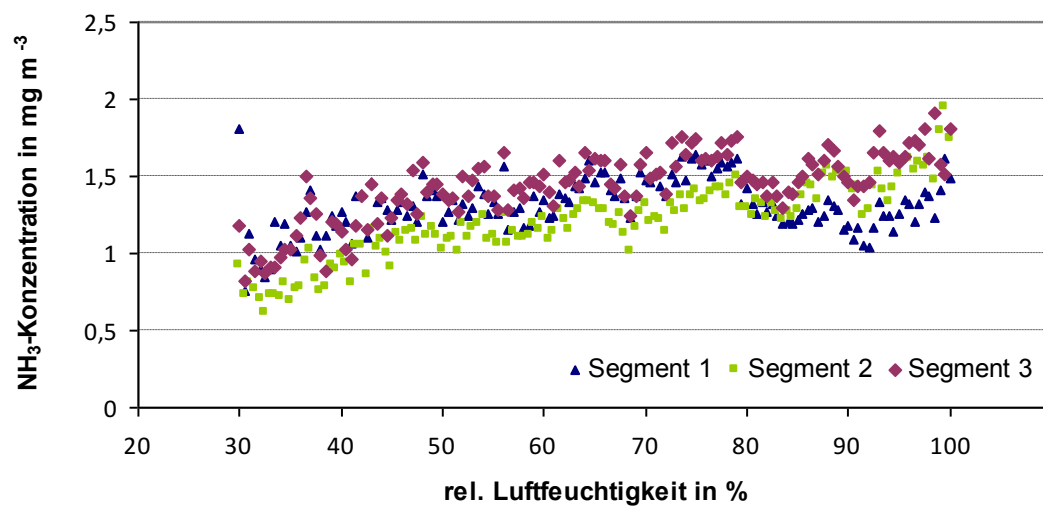


Abbildung 4.23: Zusammenhang zwischen der relativen Luftfeuchtigkeit und der NH_3 -Konzentration im Milchviehstall - Haus Riswick

4.7 NH₃-Ausbreitungsrechnung für den Milchviehstall – Gut Frankenforst

In der Abbildung 4.24 sind die Ergebnisse der Ausbreitungsrechnung mit dem Programm Austal2000 für die Windrichtung Nordwest graphisch dargestellt. Die unterschiedlichen Farben kennzeichnen die Höhe der NH₃-Deposition in Abhängigkeit von der Quellentfernung. Ein Rechenquadrat umfasst 7,00 m. Es ist zu erkennen, dass nahe der Quelle die Deposition am Höchsten ist. Mit zunehmender Entfernung nehmen die Deposition ab und die Breite der Ausbreitungsfahne zu. Die Verdünnung vollzieht sich dabei nahe der Quelle wesentlich schneller als in den weiter abgelegenen Gegenden.

Nach ca. 550 m ist die Deposition von NH₃ aus der betrachteten Quelle unter einen Wert von 2 kg ha⁻¹ gefallen.

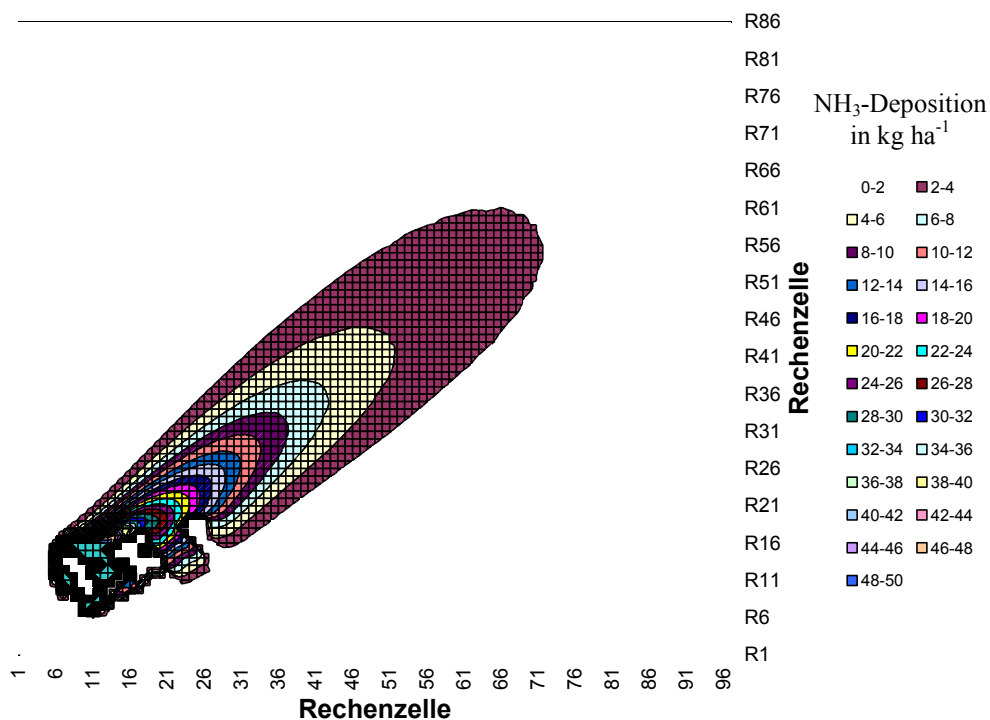


Abbildung 4.24: NH₃-Ausbreitungsrechnung für den Milchviehstall mit Austal2000 – Gut Frankenforst

Durch die umliegenden Gebäude kommt es zu starken Strömungs- und Verwirbelungseffekten. Diese führen zu einer stark inhomogenen Verteilung nahe der Quelle. Nach ca. 200 m sind diese Effekte in den Berechnung nicht mehr zu erkennen.

4.8 Ergebnisse der Nanopartikel-Größenverteilung

Das eingesetzte SMPS+C-System zur größenfraktionierten Probennahme von Nanopartikeln im Bereich von 0,01 bis 1 µm wurde an ausgewählten Messstellen auf Tierhaltungsanlagen sowie zur Referenzmessung im städtischen Gebiet verwendet. Durch Messungen im Zu- und Abluftbereich von Stallanlagen und auf deren Betriebsgelände sollte untersucht werden, ob eine Zunahme von Sekundärpartikeln, die durch den messbaren Größenbereich im Nukleations- und Akkumulationsmode charakterisiert werden, durch die NH₃-Freisetzung aus den Stallanlagen beobachtet werden kann. Durch Referenzmessungen in den Städten Köln und Bonn wurde eine begleitende Beurteilung der Unterschiede in der Partikelbelastung der Luft an Emittenten des Vorläufergases NH₃ und in überwiegend hoch mit Feinstaub belasteten städtischen Regionen ermöglicht.

4.8.1 Vorbetrachtungen zur Variabilität der Messergebnisse

Wie den Abbildungen 4.25 und 4.26 exemplarisch zu entnehmen ist, unterliegen die Messergebnisse starken Schwankungen. Sowohl zwischen den einzelnen Scans als auch zwischen den Ergebnissen verschiedener Messtage treten starke Unterschiede auf. Die Standardabweichung der Scanergebnisse übertraf teilweise sogar den Mittelwert des jeweiligen Messkanals.

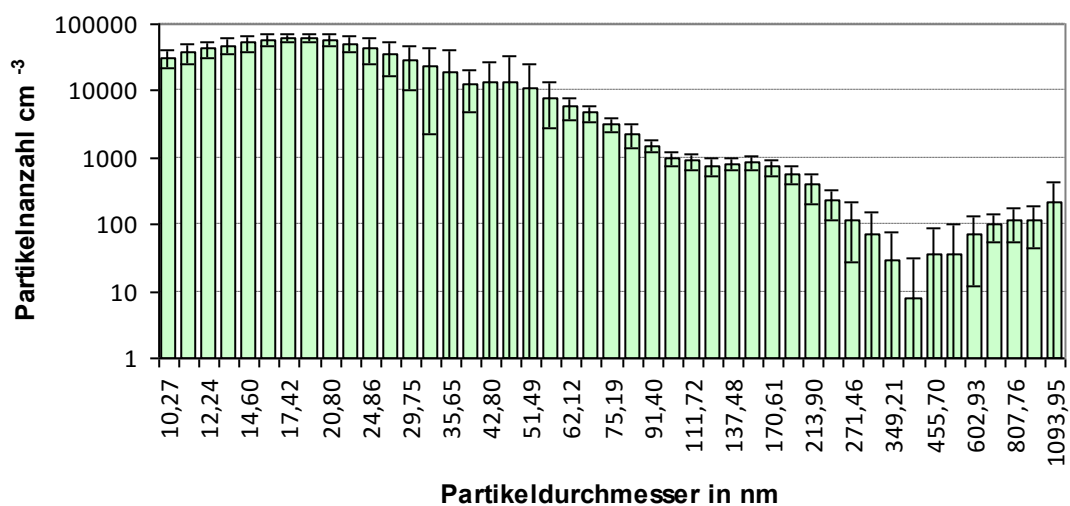


Abbildung 4.25: Mittelwerte aus 17 Scans und Standardabweichungen der Partikelanzahl in der Abluft am 23.05.2011

Beim Vergleich eines Messpunktes an verschiedenen Tagen konnten neben Verschiebungen der Kurvenmaxima sowie –minima auch starke Unterschiede in der Partikelanzahl festgestellt werden. Auf der Grundlage dieser Gegebenheiten ist es nicht sinnvoll, Vergleiche zwischen den aufgezeichneten Partikelgrößenverteilungen verschiedener Messtage durchzuführen.

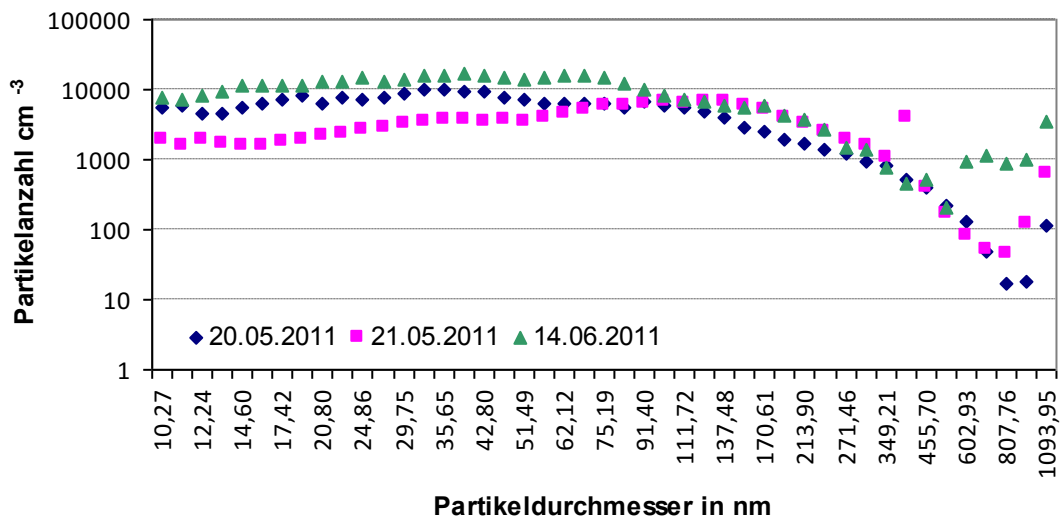


Abbildung 4.26: Nanopartikel-Größenverteilung auf der Anlage an verschiedenen Messtagen

4.8.2 Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst

Auf Gut Frankenforst wurden an verschiedenen Tagen Messreihen mit einer ausgewählten Anzahl an Messpunkten durchgeführt. Aufgrund der jeweiligen Windsituation am Standort und der Arbeiten auf dem Betrieb mussten die Messpunkte und Messdauern den Rahmenbedingungen angepasst werden.

In der Abbildung 4.27 ist die mittlere Partikelgrößenverteilung in der Zuluft und in unmittelbarer Nähe des Milchviehstalles auf Gut Frankenforst am 21.05.2011 dargestellt. Die Messung im Anlagenbereich wurden von 11.00 bis 15.30 Uhr durchgeführt, die der Zuluft im Anschluss von 16.00 bis 17.30 Uhr. Es zeigte sich im Anlagenbereich eine deutlich erhöhte Partikelkonzentration in allen Größenklassen, die die Messergebnisse der Zuluftkonzentration im Durchschnitt um das 10-fache überstieg.

Während das Maximum des Kurvenverlaufs von F5 im kleinsten Größenkanal bei 10,24 nm lag, erreichte die Partikelanzahl von F2 ihr Maximum erst bei 123,81 nm. Das Minima am Punkt F5 lag bei einem Durchmesser von 398,2 nm ebenfalls in einem kleineren Größenbereich als am Messpunktes F2 (807,76 nm).

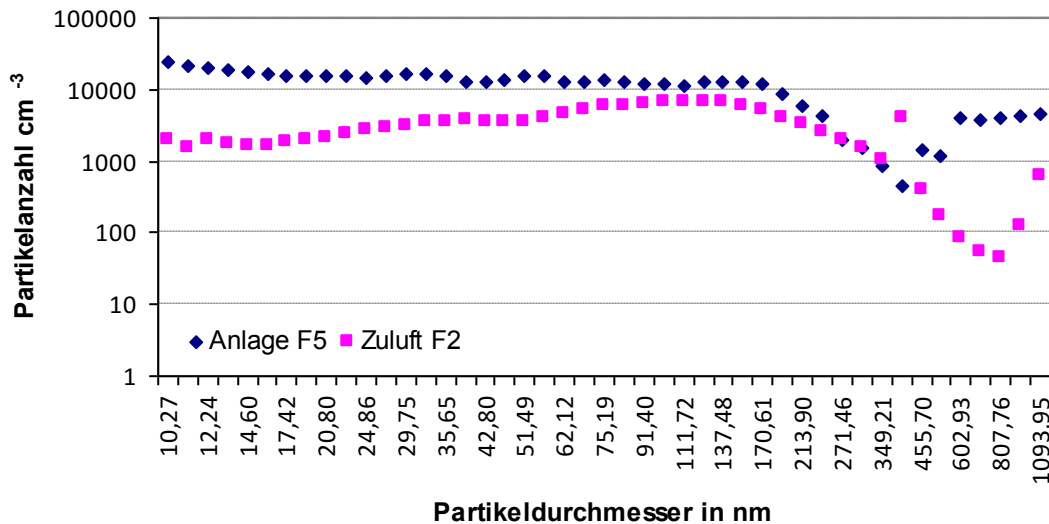


Abbildung 4.27: Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst am 21.05.2011

Am nächsten Tag erfolgte die Messung am Vormittag in der direkten Abluft des Milchviehstalles auf dem Futtertisch sowie anschließend in der Zuluft des Betriebskomplexes in der Mittagszeit (Abbildung 4.28). Die Partikelkonzentration in der Zuluft lag deutlich höher als am Vortag und überstieg in den Größenklassen bis 20,80 nm die Konzentration in der Abluft des Stalles. Partikel mit einem Durchmesser von 20,80 bis 271,46 nm wurden hingegen in der Stallluft vermehrt detektiert. Ab einer Größe von ca. 300 nm ist die Partikelkonzentration an beiden Messstellen nahezu deckungsgleich. Während die maximale Partikelanzahl in der Zuluft bei einem Durchmesser von 12,24 nm lag, war das Maximum im Stallbereich zu einem größeren Durchmesser von 62,12 nm verschoben. Die minimale Partikelanzahl war bei einem Durchmesser von 455,70 nm in der Zuluft und 523,30 nm in der Abluft des Stalles, in dicht beieinander liegenden, Größenbereichen zu finden. Ein sehr ähnliches Bild ergab sich bei der Zuluft- und Stallablufmessung etwa einen Monat später am 26.06.2011 zu ähnlichen Tageszeiten (Abbildung 9.13). Die Partikelkonzentration in der Stallabluf überstieg die Konzentration in der Zuluft in fast identischen Größenklassen zwischen 24,86 und 271,46 nm.

Die Differenz zwischen der Partikelanzahl in den sehr kleinen und in den sehr großen Größenklassen war etwas höher als bei der Messung im Mai. Die maximale Partikelanzahl wurde bei einem Durchmesser von 46,93 nm in der Stallabluft und 62,12 nm in der Zuluft gemessen und unterschied sich damit zwischen den Messpunkten nur leicht. Die minimale Anzahl war am Zuluftmesspunkt bei einem Partikeldurchmesser von 523,30 nm in einem niedrigeren Größenbereich als in der Stallabluft mit minimaler Partikelanzahl bei einem Durchmesser von 938,85 nm zu finden.

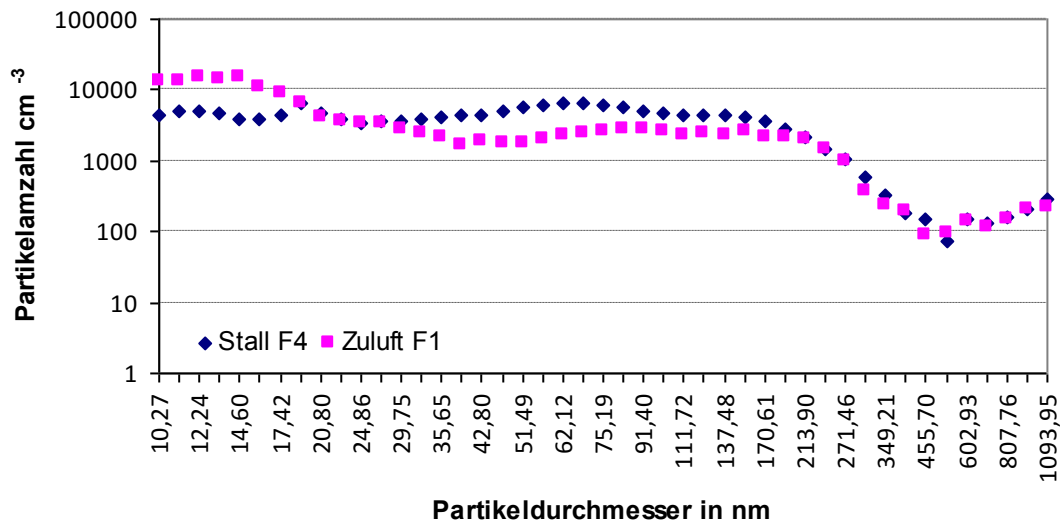


Abbildung 4.28: Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst am 22.05.2011

Am darauffolgenden Tag wurden von Mittag bis in den späten Nachmittag Messungen im Zu- und Abluftstrom des Betriebes durchgeführt. In der Abbildung 4.29 sind die Ergebnisse des Messtages dargestellt. Die Partikelkonzentration in der Abluft wurde direkt an der Grenze des Hofareals (F6) und in einer Entfernung von ca. 120 m (F7) bestimmt. Die Kurvenverläufe dieser beiden Messpunkte zeigen starke Unterschiede bei den Partikeln < 400 nm. Bis zum Schnittpunkt der beiden Kurven bei 35,65 nm konnten in der nahen Abluftfahne der Anlage bis zu 12 mal mehr Partikel nachgewiesen werden, als am entfernten Messpunkt. Während die maximale Partikelanzahl am Messpunkt F6 bei einem Durchmesser von 19,03 nm vorlag, war das Maximum der Partikelanzahl am Punkt F7 zum doppelten Durchmesser von 39,06 nm verschoben. Die Verteilungskurve des Messpunktes in der Zuluft liegt zwischen den beiden Abluftkurven und hat ihr Maximum bei 29,75 nm.

Minimale Partikelzahlen wurden bei einem Durchmesser von 398,20 nm in der Zuluft und am Abluftpunkt F6 sowie bei 455,70 nm am Punkt F7 detektiert und waren somit sehr ähnlich angelegt.

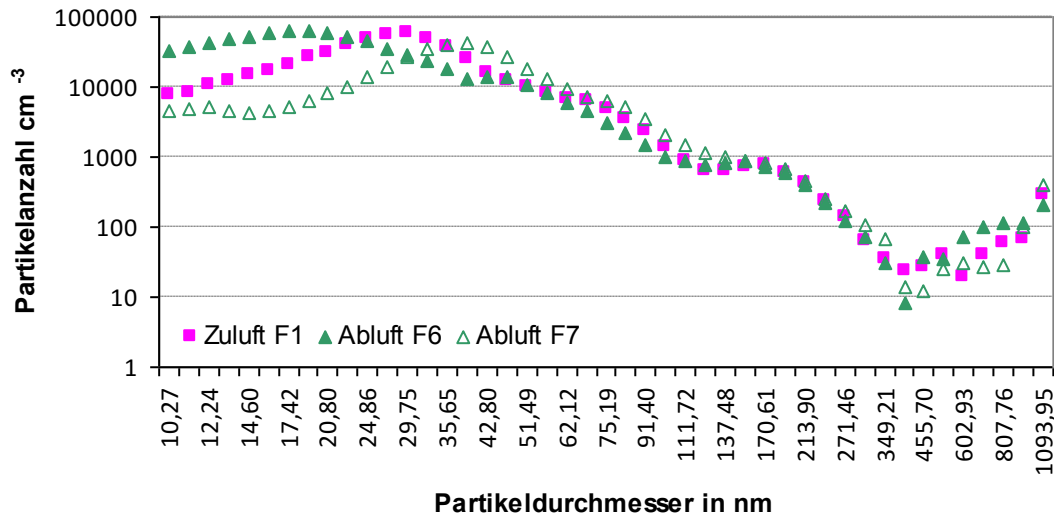


Abbildung 4.29: Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst am 23.05.2011

In der Abbildung 4.30 ist die Messreihe vom 14.06.2011 auf Gut Frankenforst dargestellt. Der Messpunkt F5, im Anlagenbereich zwischen dem Milchviehstall und dem Flüssigmistbehälter gelegen, wurde in dieser Messreihe zweimal, zu Beginn am frühen Nachmittag und zum Ende der Messung am Abend berücksichtigt. Weitere Messstandorte lagen im Zuluft- und im Abluftbereich der gesamten Stallanlage. Ab einer Partikelgröße von 13,63 nm übersteigt die Partikelkonzentration im Anlagenbereich deutlich die Konzentrationen in der Zuluft in allen Größenklassen. Die Partikelkonzentration in der Zuluft war während den Messungen im Vergleich zur Abluftkonzentration leicht erhöht. Zwischen den beiden Messungen am Messpunkt F5 sind Unterschiede im Konzentrationsniveau zu erkennen. Während der ersten Messung am frühen Nachmittag waren deutlich mehr Partikel im Größenbereich von 19,41 bis 155,09 nm in der Luft als während der zweiten Messung am frühen Abend. Die niedrigsten Konzentrationen fanden sich bei allen Messpunkten im Bereich um 500 nm.

Die maximalen Partikelzahlen wurden bei Durchmessern von 27,19 nm während der ersten und 68,31 nm während der zweiten Messung am Punkt F5 und bei 46,93 nm in der Zu- und Abluft gemessen.

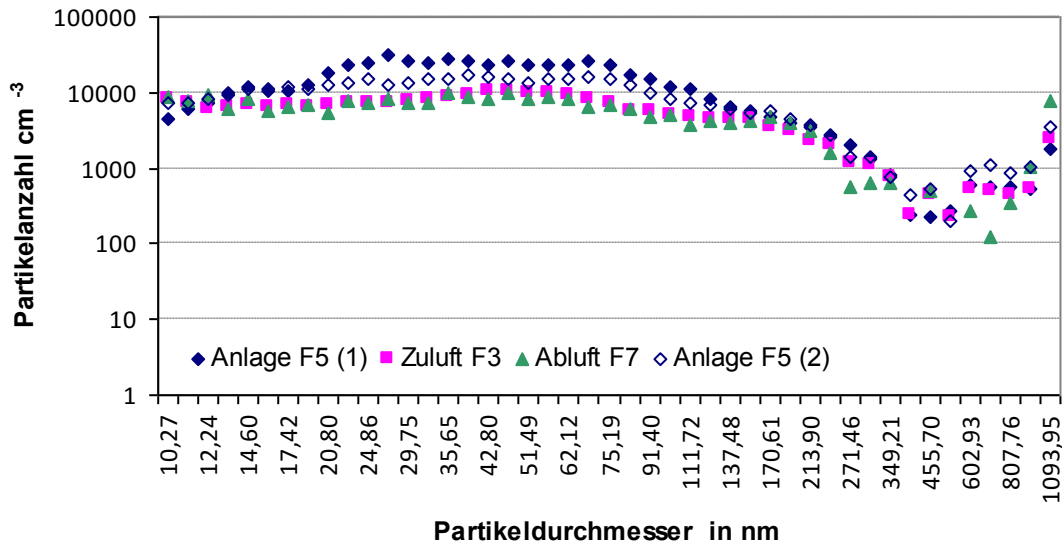


Abbildung 4.30: Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst am 14.06.2011

4.8.3 Nanopartikel-Größenverteilung auf Haus Riswick

Auf dem Versuchsbetrieb Haus Riswick wurde die Partikelkonzentration an Messpunkten im direkten Abluftstrom der einzelnen Segmente des Milchviehstalles (Abbildung 4.31) sowie im Zu- und Abluftstrom des Gesamtbetriebes (Abbildung 4.32) gemessen. Bei der Betrachtung der Kurvenverläufe für die drei Segmente fällt auf, dass die Partikelkonzentration in der Abluft des planbefestigten Segments 1 bis zu einer Partikelgröße von 29,75 nm unter der Partikelkonzentration der Segmente mit Spaltenboden liegt.

Die maximalen Konzentrationen wurden bei Durchmessern von 56,63 nm für das Segment 1, 39,06 nm für das Segment 2 und 75,19 nm für das Segment 3 bestimmt. Die minimalen Konzentrationen der Segment 1 und 3 lagen bei 696,85 und 807,76 nm. Im Segment 2 wurden bei einem Durchmesser von 807,76 keine Partikel registriert.

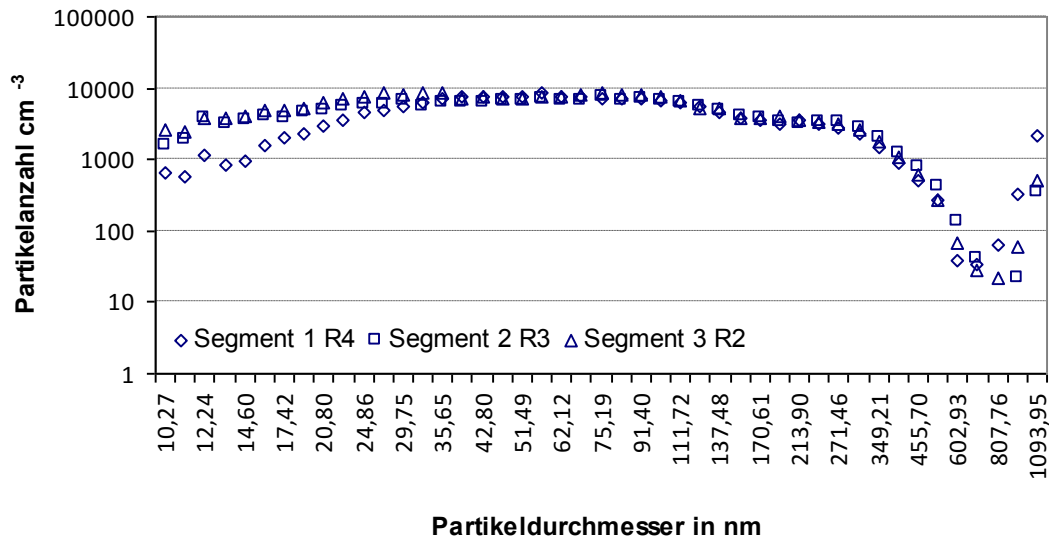


Abbildung 4.31: Nanopartikel-Größenverteilung in der Abluft des Milchviehstalles auf Haus Riswick am 15.06.2011

Bei einem Vergleich der Partikelkonzentration im Zu- und Abluftstrom des gesamten Betriebes konnte keine eindeutige Zunahme der Partikelanzahl in der Abluft festgestellt werden. Nur im Bereich der sehr feinen Partikel bis 35,65 nm und bei den Partikel $> 602,93$ nm war die Konzentration der Nanopartikel in der Abluft leicht erhöht. Die maximale Partikelanzahl lag in der Zuluft bei einem Durchmesser von 75,19 nm. In der Abluft lag sie bei einem Durchmesser von 1093,95 nm.

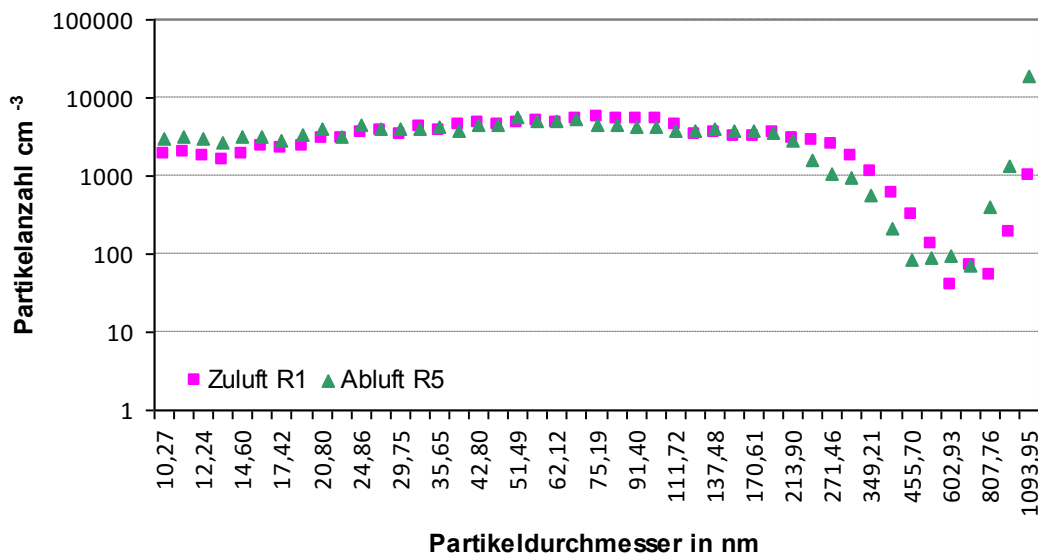


Abbildung 4.32: Nanopartikel-Größenverteilung in der Zu- und Abluft des Betriebes Haus Riswick am 15.06.2011

4.8.4 Nanopartikel-Größenverteilung auf einem Betrieb mit Legehennenhaltung

Für die Legehennenhaltung wurden Messungen an zwei verschiedenen Tagen durchgeführt. Da das Gebäude des untersuchten Volierenstalles als Neubau etwas abseits des restlichen Betriebskomplexes liegt, war es möglich die Messpunkte Luv, Lee und Stall auf einer freien Achse anzuordnen. Die Abbildung 4.33 zeigt das Ergebnis des ersten Messtages. Der Stall wurde wenige Stunden vorher entmistet. Die niedrigste Partikelkonzentration trat im Stallbereich auf und lag teilweise um das 10-fache unter den anderen Messpunkten. Im Größenbereich von 13,36 bis 111,72 nm ist die Partikelanzahl in der Abluft im Vergleich zu den Zuluftwerten erhöht. Die Messwerte des Hofbereiches liegen genau in der Mitte zwischen Zu- und Abluft. Die Partikelkonzentration wies Maximas bei 35,65 nm im Stall, 27,19 nm in der Zu- und Abluft sowie im Hofbereich auf. Das Minimum der Stallluft lag bei einem Durchmesser von 1093,95 nm im größten messbaren Bereich. In der Abluft wurden bei einem Durchmesser von 938,85 nm keine Partikel detektiert. Das Minimum der Zuluft und des Hofbereich lag ebenfalls bei diesem Durchmesser.

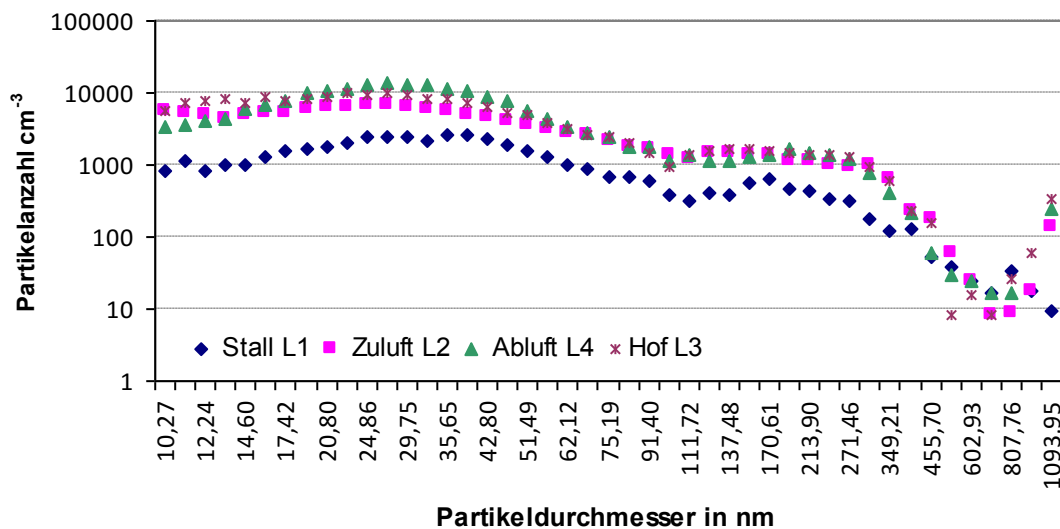


Abbildung 4.33: Nanopartikel-Größenverteilung auf einem Betrieb mit Legehennenhaltung am 21.06.2011

Ab einer Partikelgröße von 100,97 nm verlaufen die Kurven der drei Messstellen im Außenbereich nahezu deckungsgleich.

Die zweite Messung (Abbildung 4.34) fand am Ende einer Entmistungsperiode statt. Aufgrund ungünstiger Windbedingungen konnten nur die Messungen im Stall und in der Zuluft durchgeführt werden. Die Partikelkonzentration lag an beiden Messstellen deutlich höher als in der ersten Messung. In den sehr kleinen Größenbereichen lag die Partikelanzahl in der Zuluft erneut über den Werten im Stallinneren. Zwischen einem Durchmesser von 35,65 bis 523,30 nm überstieg die Partikelanzahl im Stall jedoch die Anzahl der Partikel, die dem Stall zugeführt wurden. Maximale Partikelkonzentrationen wurden bei Durchmessern von 10,27 nm in der Zuluft und 22,74 nm im Stall gemessen. Die minimale Konzentration lag bei 523,30 nm in der Zuluft und bei 938,85 nm im Stall.

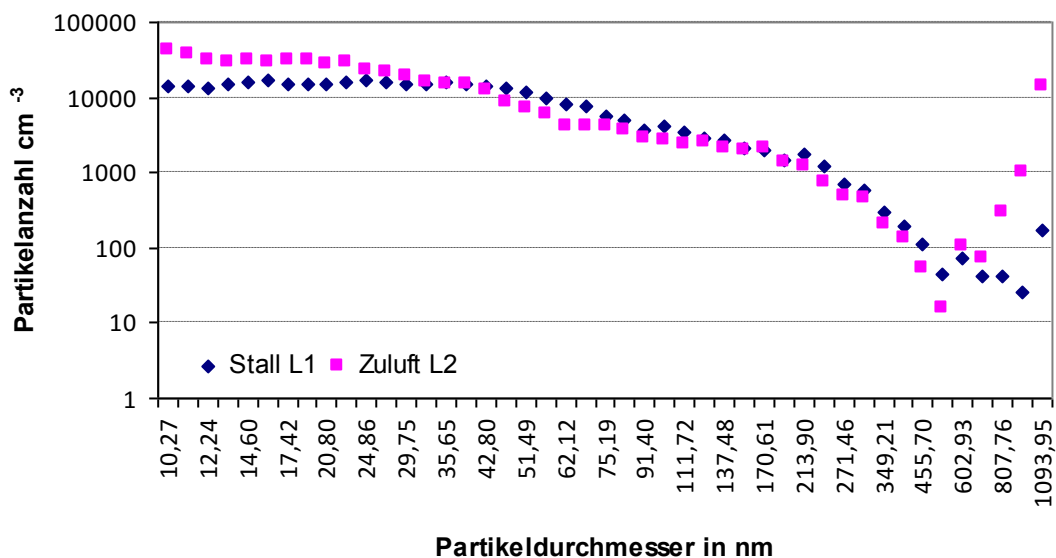


Abbildung 4.34: Nanopartikel-Größenverteilung auf einem Betrieb mit Legehennenhaltung am 27.06.2011

4.8.5 Nanopartikel-Größenverteilung im städtischen Bereich

Um die Messergebnisse der Tierhaltungsanlagen besser einordnen zu können, wurden Vergleichsmessungen an zwei Messpunkten im städtischen Bereich durchgeführt. Die Partikelgrößenverteilung in Köln Stammheim und in Bonn ist in der Abbildung 4.35 dargestellt.

An diesen stark verkehrsbeeinflussten Messstandorten liegt im Vergleich zu den Stallanlagen ein deutlich höheres Konzentrationsniveau vor, das mit zunehmender Partikelgröße nur leicht absinkt. Im Vergleich zum Messpunkt in Köln lag die Partikelkonzentration in Bonn etwas tiefer.

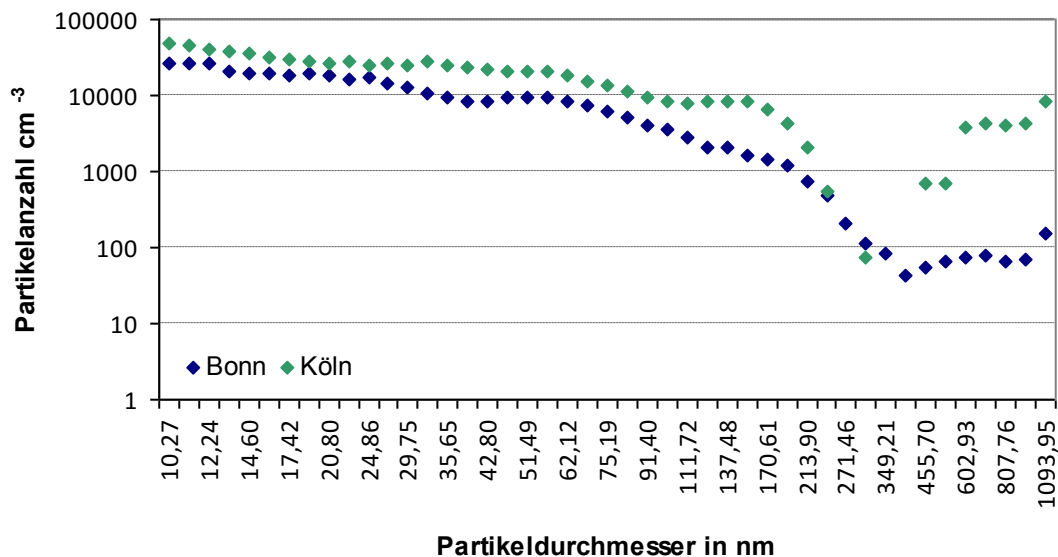


Abbildung 4.35: Nanopartikel-Größenverteilung in Köln Stammheim am 16.06.2011 und in Bonn am 25.05.2011

Das Maximum der Partikelanzahl lag in Köln im kleinsten messbaren Größenbereich bei 10,27 nm, in Bonn bei 12,24 nm. Minimale Konzentrationen wurden in Bonn bei einem Durchmesser von 398,20 nm nachgewiesen. In Köln traten keine Partikel mit Durchmessern von 271,56 nm und von 349,21 bis 398,20 nm auf.

4.8.6 Modellierung der modalen Verteilungsfunktionen

Wie in Kapitel 3.2.6 erläutert wurde, wird für die Partikelgrößenverteilung im Aerosol eine drei-modale Verteilungsfunktion angenommen.

In den Abbildungen 4.36 und 4.37 wurden zwei dieser Modi, der Nukleations- und der Akkumulationsmode als log-Normalverteilungen an die Messwerte des SMPS+C Systems modelliert. Der angenommene Nukleationsmode ist dabei, aufgrund des starken Maximums, in der Abluft auf Gut Frankenforst ($\sigma = 1,32$) wesentlich enger als im Legehennenstall ($\sigma = 1,62$).

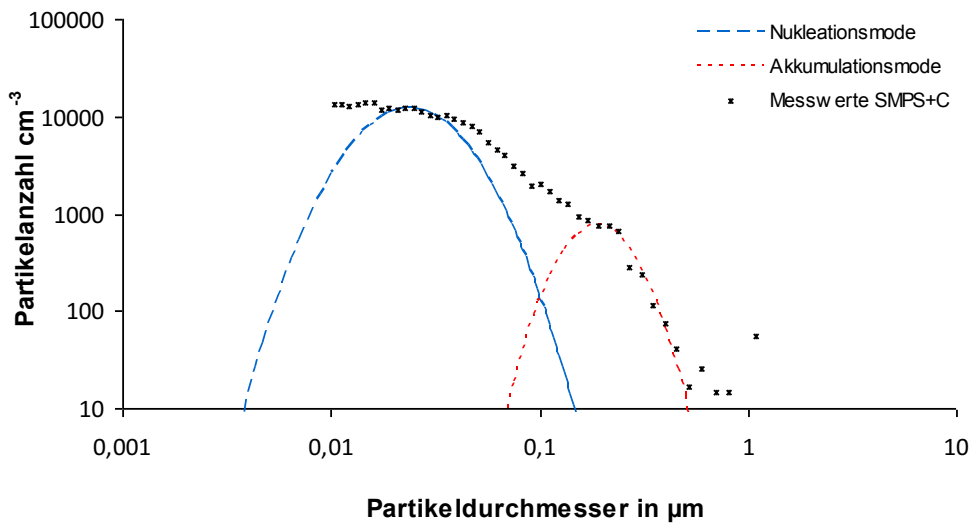


Abbildung 4.36: Verteilung der Partikelanzahl in doppelt-logarithmischer Darstellung mit modellierten Verteilungsfunktionen - Volierenstall für Legehennen am 27.06.2011

Im Akkumulationsmode ist aufgrund verschieden hoher Partikelanzahlen im Maximumsbereich nur die Höhe der Verteilungsfunktion verschieden. Mit $\sigma = 1,4$ ist die Breite der Funktion in beiden Stichproben identisch. Für alle in diesem Projekt gemessenen Partikelgrößenverteilungen war es prinzipiell möglich den Nukleations- und den Akkumulationsmode über die Berechnung der entsprechenden log- Normalverteilungsfunktion zu definieren.

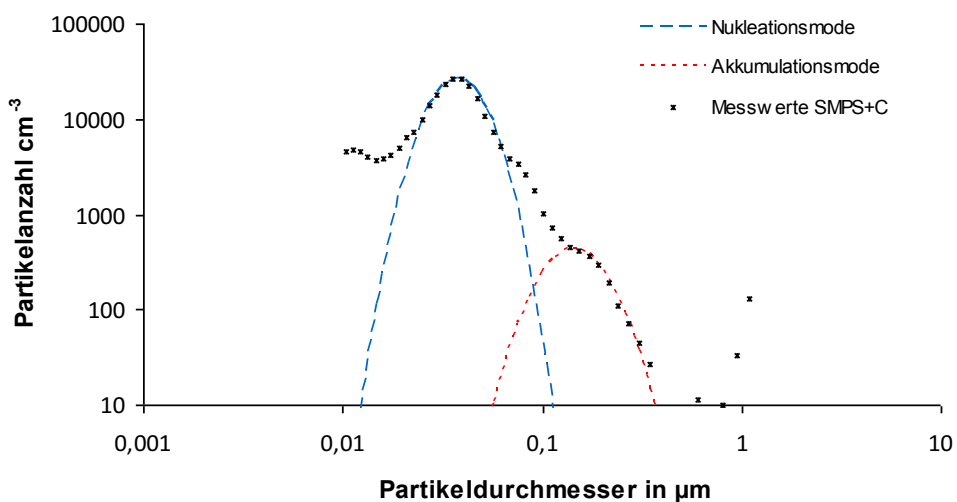


Abbildung 4.37: Verteilung der Partikelanzahl in doppelt-logarithmischer Darstellung mit modellierten Verteilungsfunktionen - Frankenforst, Abluft am 23.05.2011

4.9 Partikelmassenkonzentration und chemische Zusammensetzung

Die Gesamtstaub-Probenahme erfolgte, wie in Kapitel 3.2.7 beschrieben, mit Filtern. Diese zeigten nach der Beprobung unterschiedliche Farbgebungen (Abbildung 4.38). Die Filter aus den Stadtmessungen waren dabei auffällig dunkel gezeichnet. Die Proben aus den ländlichen Gebieten ohne Tierhaltung waren hingegen sehr hell. Die Membrane aus den Tierhaltungsanlagen lagen im Farbton dazwischen. Ein Zusammenhang zwischen der Partikelmasse oder den Inhaltsstoffen und dem Farbton bestand nicht.

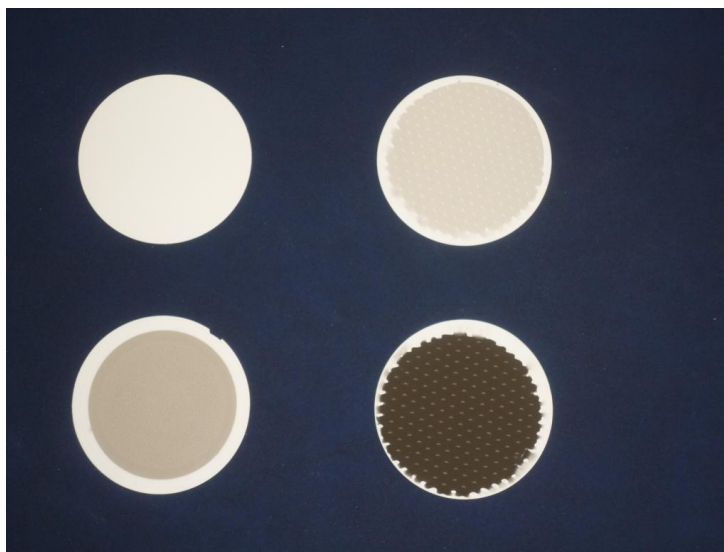


Abbildung 4.38: Intensität der Färbung bei verschiedenen Filterproben

Zur Beurteilung der Partikelmassenkonzentration und der chemischen Zusammensetzung der Stäube an den verschiedenen Standorten wurden die Ergebnisse der Proben gemittelt Tabelle 4.11. Die Einzelergebnisse sind in der Tabelle 9.11 aufgeführt.

Die durchschnittlichen TSP-Gehalte zeigten eine deutliche Abstufung zwischen den untersuchten Gebieten. Mit 14 bis 18 $\mu\text{g m}^{-3}$ lagen sie in den ländlichen Gebieten ohne Tierhaltung am niedrigsten. In den Tierhaltungsanlagen zeigten sich starke Unterschiede. Mit 21 und 23 $\mu\text{g m}^{-3}$ lagen die beiden Messstellen auf Gut Frankenforst relativ dicht beieinander und rund 6 μg über den ländlichen Gebieten.

Der höchste Wert aus der gesamten Messreihe wurde auf dem Betrieb mit Legehennenhaltung mit rund $74 \mu\text{g m}^{-3}$ bestimmt. Dieser lag damit weit über den TSP-Gehalten der Stadtmessungen mit 26 bis $30 \mu\text{g m}^{-3}$.

Tabelle 4.11: Durchschnittliche Partikelmasse-, NH_4^+ -, SO_4^{2-} - und NO_3^- -Konzentrationen an den Messpunkten im städtischen und ländlichen Gebiet sowie auf Tierhaltungsanlagen

Standort	TSP in $\mu\text{g m}^{-3}$	NH_4^+ in $\mu\text{g m}^{-3}$	SO_4^{2-} in $\mu\text{g m}^{-3}$	NO_3^- in $\mu\text{g m}^{-3}$
1 Köln	26,18	0,63	1,82	2,34
2 Bonn	29,74	0,96	2,35	2,97
3 Gut Frankenforst 1	21,46	1,10	2,06	3,21
4 Gut Frankenforst 2	23,61	0,73	1,84	1,93
5 Legehennen	74,24	1,02	2,69	5,17
6 Ratingen	17,64	0,59	1,37	1,63
7 Bitburg	14,90	0,75	1,30	1,95
8 Schneeberg	14	0,42	1,30	0,40
9 Meerane	16	0,56	0,67	0,53
10 Zella-Mehlis	14	0,38	1,61	0,41
11 Eisenach	14	0,34	1,42	0,63

Bezüglich der NH_4^+ -, SO_4^{2-} - und NO_3^- -Gehalte wurden in den ländlichen Gebieten ebenfalls die niedrigsten Konzentrationen bestimmt. Die durchschnittlichen Werte lagen zwischen $0,34$ und $0,75 \mu\text{g m}^{-3}$ für NH_4^+ , $0,67$ und $1,61 \mu\text{g m}^{-3}$ für SO_4^{2-} und $0,4$ und $1,95 \mu\text{g m}^{-3}$ für NO_3^- .

Die höchsten Konzentrationen für alle anorganischen Bestandteile wurden in den Tierhaltungsanlagen nachgewiesen. Mit durchschnittlich $0,73$ bis $1,10 \mu\text{g m}^{-3}$ lagen die NH_4^+ -Konzentrationen leicht über den Ergebnissen aus dem städtischen Bereich ($0,63$ bis $0,96 \mu\text{g m}^{-3}$). Ebenfalls eine leichte Erhöhung auf den Betrieben war mit Werten zwischen $1,84$ und $1,69 \mu\text{g m}^{-3}$ bei SO_4^{2-} festzustellen (Stadt $1,82$ bis $2,35 \mu\text{g m}^{-3}$).

Die NO_3^- -Konzentrationen schwankten in den Proben sehr stark. So wurden durchschnittlich $1,93 \mu\text{g m}^{-3}$ an einer Messstelle auf Gut Frankenforst und $5,17 \mu\text{g m}^{-3}$ auf dem Geflügelbetrieb analysiert. Im Durchschnitt lag die NO_3^- -Konzentration im städtischen Bereich mit $2,34$ und $2,97 \mu\text{g m}^{-3}$ damit unter den Konzentrationen auf den Tierhaltungsanlagen.

Im Mittel ergaben sich die in der Abbildung 4.39 dargestellten Werte für die verschiedenen Untersuchungsgebiete. Die Ergebnisse der einzelnen Messstandorte wurden hierfür zusammengefasst. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Konzentrationen der anorganischen Bestandteile im ländlichen Gebiet an niedrigsten waren. Die NH_4^+ - und SO_4^{2-} -Konzentrationen auf den Tierhaltungsanlagen waren gegenüber dem städtischen Bereich leicht erhöht. Die deutlichste Steigerung zeigte die NO_3^- -Konzentration.

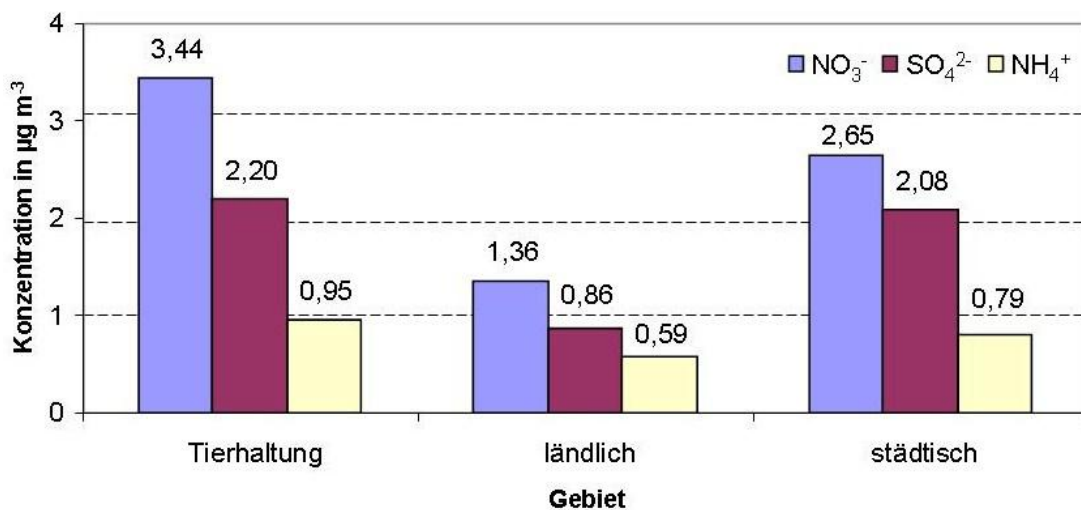


Abbildung 4.39: Mittlere NH_4^+ -, SO_4^{2-} - und NO_3^- -Konzentrationen im städtischen und ländlichen Gebiet sowie auf Tierhaltungsanlagen

Die Abweichungen der beiden verwendeten Gravimetriesammler lagen bei durchschnittlich 9 % für die TSP-Konzentration, 11 % für NO_3^- , 10 % für SO_4^{2-} und 21 % für NH_4^+ .

5 Diskussion

5.1 Eignung der Messstandorte

5.1.1 Eignung der Versuchsbetriebe für Emissionsmessungen

Die ausgewählten Betriebe für die Beurteilung der NH_3 -Emission moderner Haltungsverfahren im Bereich der Milchvieh- und Legehennenhaltung entsprechen im Hinblick auf die Haltungs- und Entmistungseinrichtungen den aktuellen Planungsempfehlungen. In den beiden Milchviehställen wurde die Fütterung der TMR über automatische Wiegetröge geregelt. Diese kommen zum Zeitpunkt der Versuchsdurchführung eher in Versuchseinrichtungen zum Einsatz, als in den landwirtschaftlichen Praxisbetrieben. Von einer Beeinflussung des Emissionsverhaltens durch diese Art der Fütterung ist nicht auszugehen. Als eine weitere Abweichung des Stallmanagements ist die hohe Frequenz der Flüssigmistschieber zu nennen. So wurde beispielsweise in der Untersuchung von SCHRADE (2009) aus der Schweiz von einer normalen Frequenz von zwei Mal am Tag berichtet. Für die genannte Untersuchung wurde die Frequenz auf drei bis vier Mal täglich erhöht. Die Ställe in der vorliegenden Arbeit wurden demnach im Schnitt sechs Mal häufiger entmistet als praxisübliche Betriebe.

Alle untersuchten Ställe waren Teil größerer Betriebskomplexe. Eine Beeinflussung der Messergebnisse durch umliegende Emissionsquellen, bei ungünstiger Windführung, kann daher nicht vollkommen ausgeschlossen werden. Eine grundlegende Betrachtung der Einflüsse auf das Emissionsverhalten war dennoch sehr gut möglich. Aufgrund der hohen, natürlichen Variabilität der klimatischen Einflussfaktoren und ihrem komplexen Zusammenspiel ist die Analyse und Bewertung ihrer Einflussstärke schwierig und führt zu großen Unsicherheiten. Nach BROSE (2000) können daher nur Einflussgrößen mit einer hohen Sensitivität in Praxisuntersuchungen determiniert werden.

5.1.2 Eignung der Standorte zur Untersuchung der Nanopartikel-Größenverteilung

Die Auswahl der Messstandorte auf den landwirtschaftlichen Betrieben erfolgte zeitnah vor Ort, so dass in Abhängigkeit von der aktuellen Windsituation die repräsentativsten Standorte ausgewählt werden konnten. Aufgrund des Landschaftsbildes und der zu beachtenden Grundstücksgrenzen, mussten bei der Auswahl teilweise Kompromisse in Kauf genommen werden.

Bei der ersten Messreihe auf dem Betrieb mit Legehennenhaltung war es möglich die Messpunkte Luv, Lee und Stall, wie von MÖLLER (2003) empfohlen, auf einer freien Achse anzuordnen, die aufgrund der vorherrschenden Strömungsverhältnisse vom restlichen Betrieb unbeeinflusst blieb.

Eine exakte Bestimmung der Abluftfahne auf Gut Frankenforst wurde durch die erhöhte Lage des Betriebskomplexes erschwert. Der Standort F7 lag somit etwas niedriger als die Emissionsquelle. Durch nicht genau bestimmbare Verwirbelungen der Luft kann es daher zum Austausch der Fracht mit anderen „Luftpaketen“ gekommen sein. Weiterhin ist eine leichte Verfälschung der Messergebnisse durch uneinsehbare Arbeiten auf dem Betrieb nicht auszuschließen.

Die Messreihe auf Haus Riswick war durch ungünstige Windverhältnisse gekennzeichnet, die eine freie Querlüftung des Stalles behinderten. Obwohl die Messpunkte so weit wie möglich an den Haltungsbereich der Tiere gelegt wurden, ist eine Beeinflussung durch Partikel aus den umgebenden Stallgebäuden nicht auszuschließen. Als Messpunkt für die Partikelgrößenverteilung in der Zuluft wurde ein Platz am äußersten Rand des Parkplatzes ausgewählt. Eine Verlegung zu einem entfernteren Standort war aufgrund von Einzäunungen und hoher Vegetation nicht möglich. Durch zeitweiligen Kraftfahrzeugverkehr mussten einzelne Scans verworfen werden. Von einer langzeitige Beeinflussung des Standortes durch diese Emissionen muss jedoch ausgegangen werden.

Die Messstandorte im städtischen Bereich weisen durch ihre zentrale Lage in Großstädten eine hohe Repräsentativität auf.

5.1.3 Eignung der Standorte der Gravimetriesammler

Die Standorte für die TSP-Probenahme mit anschließender chemischer Analyse sind durchgängig repräsentativ. Um eine gute Verbindung zu den Ergebnissen der anderen Untersuchungszweige der vorliegenden Arbeit zu gewährleisten, wurden landwirtschaftliche Betriebe und städtischen Messstellen ausgewählt, die bereits in die Bestimmung der NH_3 -Emission oder der Nanopartikel-Größenverteilung Eingang gefunden haben. Zum Schutz der Messtechnik und um Arbeiten auf den Anlagen nicht zu behindern wurden die genauen Standorte etwas verlegt. Alle Messpositionen verfügten über eine sehr gute Durchlüftung und lagen in Bereichen mit einer hohen Abluftbeeinflussung.

Auf staubige Arbeiten und die Bedienung von Kraftfahrzeugen wurde, nach Absprache mit den Betriebsleitern und Grundstücksbesitzern, während der Messzeiten verzichtet.

5.2 Bewertung der verwendeten Messtechnik

5.2.1 Eignung der Gasmesstechnik

Die eingesetzten Multigasmonitore zeichnen sich durch eine hochaufgelöste, gleichzeitige Analyse mehrerer Gase aus und entsprechen, wie in Kapitel 2.2.6 erläutert, dem Stand der Technik. Sie wurden u.a. bei Forschungsvorhaben von SNELL et al. (2003), HÖLSCHER (2006), KRESSE und BÜSCHER (2008), MÜLLER et al. (1997), BÜSCHER und FROSC (2001), SCHIEFLER et al. (2011), NGWABIE et al. (2009) und HINZ et al. (2010) bereits erfolgreich eingesetzt. Bei einer gleichzeitigen Messung von fünf Gaskonzentrationen liegt das Messintervall bei nur einer Minute. Schnelle Änderungen der Gaskonzentration können demnach sehr zeitnah ausgemacht werden. Durch den hohen Durchsatz der eingesetzten Membranpumpe konnten aktuelle Proben gewährleistet und Beeinträchtigungen des Ergebnisses durch vorhandene Reste aus der Vorläuferprobe minimiert werden. Querempfindlichkeiten mit anderen Gasen werden bei diesem Gerät automatisch herausgerechnet und es findet eine Wasserdampfkorrektur statt. Die Nullwertdrift ist im Allgemeinen sehr gering und wurde durch regelmäßige Kalibrierung begrenzt. HINZ und SCHRÖDER (2001) geben für optoakustische-IR-Spektrometer eine Reproduzierbarkeit und Bereichswertdrift von 1 bzw. 2,5 % vom Messwert an. Nach NIEBAUM (2001) kann es bei der Verwendung von Mehrpunktprobennehmern zu einer Verschleppung der Probenluft kommen, wenn die Spülzeit der Messzelle nicht ausreichend ist. Vor allem bei großen Konzentrationsunterschieden kann dieser Effekt von Bedeutung sein. Eine Quantifizierung des zu erwartenden Fehlers ist jedoch nicht möglich. Nach MÜLLER et al. (1997) wird für den Einsatz bei Emissionsmessungen eine mobile, schnell auf- und abbaubare Messtechnik benötigt. Die geringe Größe und das ansprechende Eigengewicht ermöglichen einen einfachen Transport, einen schnellen Einsatz und die Unterbringung auf engstem Raum. Dies war zum Beispiel im Legehennenstall notwendig. Aufgrund der starken Staubentwicklung in der Geflügelhaltung musste die Messtechnik in einer staubdichten Box mit integrierter Filter- und Lüftungsanlage untergebracht werden. Mit einer Nachweisgrenze von 0,2 ppm für NH_3 verfügen die Geräte zudem über eine ausreichend hohe Empfindlichkeit.

Die von NESER (2001) und MÜLLER et al. (1997) (Vgl. Kap. 2.2.6) gestellten Anforderungen für NH₃-Messgeräte wurden damit vollständig erfüllt. Durch die Verwendung von Schläuchen und Filtern aus PTFE sowie der Chemie-Membranpumpe kann eine Reaktion oder Diffusion der Gase an den Wänden und Membranen unterbunden werden.

5.2.2 Eignung der Partikelmesstechnik

Eignung der Technik zur Bestimmung der Nanopartikel-Größenverteilung

Kondensationspartikelzähler und elektrische Klassierer gehören auf dem Gebiet der Aerosolforschung zum Stand der Technik und werden bei fast allen Untersuchungen zur Bildung und zu Wachstumsraten ultrafeiner Partikel in der Atmosphäre eingesetzt (KULMALA et al., 2004). Durch den integrierten Akku, mit einer durchschnittlichen Laufzeit von 5 Stunden, war es möglich das Messgerät für kurze Zeitspannen an Standorte ohne Stromversorgung zu verlegen. Ein ausreichendes Maß an räumliche Flexibilität war somit gegeben. Als nachteilig erwiesen sich das relativ große Eigengewicht der Apparatur und die Tatsache, dass das SMPS+C für den Transport vollständig, d. h. lösen mehrerer Verbindungsschläuche und Einzeltransport der Teile, auseinandergebaut werden musste. Zudem durfte der Transport, zum Schutz der empfindlichen Technik, nur möglichst erschütterungsfrei ablaufen. Da die Wege in landwirtschaftlich genutzten Gebieten jedoch meist über keine ausreichende Befestigung verfügen, war dies nur mit hohen Zeitverlusten durch möglichst langsame und vorsichtige Fahrten mit den Transportfahrzeugen zu realisieren. Aus diesen Gründen und durch die notwendige Neuaufheizung des Saturators nach dem Umschalten in den Standby-Betrieb sowie den Null-Filter-Test kam es zu erheblichen Verzögerungen beim Standortwechsel, die mindestens 30 Minuten betrug. Durch das Vorhandensein der radioaktiven Quelle, mussten bei einem Transport zudem spezielle Sicherheitsbestimmung und Transportvorschriften beachtet werden.

Als besonders positiv hervorzuheben sind der einfache Aufbau und die Bedienerfreundlichkeit der Software. Die Einstellungen sind z. B. durch die Auswahl der Anzahl an Messkanälen und die Variation der Ausgabedaten (auch während der laufenden Messung) optimal an die zu bearbeitende Fragestellung anzupassen.

Eine bessere Verteilung der Messkanäle auf den gesamten Größenbereich wäre jedoch wünschenswert. Die sehr feine Auflösung im unteren Messbereich und die eher grobe Auflösung der oberen Kanäle liefern ein etwas verzerrtes Bild der Verteilung.

Auch eine integrierte Erfassung von Randparametern, wie der Temperatur und der Luftfeuchtigkeit, wären als Erweiterung des Funktionsangebotes hilfreich.

Eignung der gravimetrischen Sammeltechnik

Die gravimetrische Bestimmung von Staubmassen ist ein standardisiertes Verfahren. In der Untersuchung von HENSELER-PABMANN (2010) wurden die eingesetzten Geräte mit den Ergebnissen eines Aerosolspektrometers verglichen. Die beiden Methoden lieferten eine gute Übereinstimmung von über 96 %.

Durch die parallele Messung mit zwei Sammlern konnten der Fehler gering gehalten und Abweichungen der beiden Messgeräte betrachtet werden. Durch Verschleißerscheinungen an der Pumpe konnte mit dem älteren Sammler nur ein Volumenstrom von $2,5 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ realisiert werden, der etwas unter der Anforderung von $2,7 - 2,8 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ liegt.

Durch die Verwendung von Nitrocellulosefiltern wurde eine Reaktion des Filtermaterials mit den abgelagerten Stoffen vermieden. Da es sich zudem um Tiefenfilter handelt, die den abgelagerten Staub im Inneren binden (MÖLLER, 2003), wurden Verluste beim Filterwechsel und während des Transports und den Analysetätigkeiten gering gehalten. Nach der VDI-RICHTLINIE 2463 Blatt 1 (1999) besitzen die eingesetzten Filter einen Abscheidegrad von 92,0-99,9 %. Der Blindwert-Test des Filtermaterials ergab für alle analysierten Stoffe Konzentrationen unterhalb der Nachweisgrenze, so dass keine Korrektur der Analyseergebnisse erfolgen musste.

5.2.3 Eignung der Messtechnik zur Volumenstrombestimmung

Die eingesetzte Messtechnik funktionierte zuverlässig. Eine regelmäßige Kontrolle im 2-Stunden-Takt war aus Gründen der Qualitätssicherung jedoch unerlässlich. So mussten zum Beispiel der Füllstand der Gasflaschen und die reibungslose Schaltung der Magnetventile kontrolliert werden. Weiterhin wurden die Messzeiten manuell den Gegebenheiten angepasst. Neben einem gesteigerten Arbeitsaufwand bedeutete dies auch Ausfälle in Messzeiten oder Datenverluste, wenn die Abklingzeit zu kurz gewählt wurde.

Eine automatische Nullpunktfindung mit nachfolgender neuerlicher Eindosierung wäre als Erweiterung der bestehenden Software nützlich. Der verwendete SF₆-Detektor verfügt über eine hohe zeitliche Auflösung im Sekundentakt, durch die die exponentiellen Verläufe der Abklingkurven sehr gut dargestellt werden können. Das Messsystem überliegt dadurch anderen Geräten, wie dem Multigasmonitor. Die zeitliche Auflösung von Multigas-Monitoren von mehr als einer Minute muss, besonders im Hinblick auf sehr kurze Abklingphasen, als vollkommen unzureichend bewertet werden.

Während bei SCHNEIDER (2006) und HENSELER-PABMANN (2010) Kurvenanpassungen mit Bestimmtheitsmaßen von durchgehend 0,96 bis 0,97 erzielt wurden, schwankte die Anpassungsgüte in der vorliegenden Untersuchung in einem etwas weiteren Bereich zwischen 0,80 bis 0,98.

5.3 Bewertung der Messmethoden

5.3.1 Bewertung der Messmethode zur Bestimmung der Gaskonzentration

Die Verlegung der Abluftpunkte in den Milchviehställen wurde durch mehrere Nebelproben sorgfältig ermittelt. NGWABIE et al. (2009) stellten in ihrer Untersuchung signifikante Unterschiede zwischen einzelnen Messpunkten der Probennahme fest. Sie empfehlen daher mindesten 7-11 Messpunkte je Stall. Durch die Vielzahl an Messpunkten in dieser Arbeit entstand somit eine Mischprobe, die als repräsentativ für den ganzen Stall angesehen werden kann. Durch dieses Verfahren wurde jedoch ein Verlust der räumlichen Auflösung der Emission hervorgerufen.

Um eine Panik bei den Tieren zu vermeiden, wurde auf ein Ausnebeln des Legehennenstalles verzichtet. Hier wurde mit Stichprobenmessungen eine relative Gleichverteilung der NH₃-Konzentration bestimmt, so dass die Anzahl der Sammelpunkte reduziert werden konnte.

Die Abluftschläuche wurden unter dem Futterband, im Abstand von ca. 2,5 m zur Öffnung der Abluftkamine, verlegt. Da sich darunter das Kotband befindet, ist es wahrscheinlich, dass die NH₃-Abluftkonzentration überschätzt wurde. Eine Anbringung in unmittelbarer Nähe der Abluftkamine war aufgrund der baulichen Gegebenheiten nicht möglich. Zudem wäre es wahrscheinlich gewesen, dass die Tier die frei in der Luft hängenden Schläuche als Sitzstangen genutzt, und durch ihr Gewicht Schäden an der Verschlauchung hervorgerufen, hätten.

Die NH_3 -Konzentration in der Abluft der Ställe war durch eine hohe Variabilität gekennzeichnet. und führte zur Ablehnung von Kurzzeitmessungen, wie sie z. B. von SCHNEIDER et al. (2006), SEIPELT et al., (1999) und SCHRADE (2009) durchgeführt wurden. Durch lange Messzeiten war es in dieser Arbeit möglich, Unsicherheit im Hinblick auf die tatsächliche Emission zu reduzieren.

Um statistisch abgesicherte Aussagen über ein Haltungsverfahren treffen zu können, fordern KROODSMA und OGINK (1997) die Einbeziehung mehrere, unabhängiger Praxisbetriebe in die Betrachtung. Dieser Ansatz wird auch als „Multi-Site-Sampling-Approach“ bezeichnet. Aufgrund der langen Messdauern und der begrenzten Ressourcen konnte dieser Anspruch nur in den Grundzügen umgesetzt werden. Eine Messung von möglichst vielen Standorten bei einer geringen Anzahl von Messtagen erschien, vor dem Hintergrund der starken Variabilität der Ergebnisse in der vorliegenden Untersuchung, zu eng gefasst und nicht sinnvoll.

Mit vier untersuchten Stallsystemen im Verfahren der frei gelüfteten Liegeboxenlaufställe ist die Datengrundlage ausreichend groß. Da sich drei Ställe in einem Gebäude und somit an einem Standort befanden, kann hier jedoch nicht von unabhängigen Betrieben ausgegangen werden. Zudem wurden alle Ställe ähnlich bewirtschaftet. Die praxisübliche Vielfalt war damit eher gering. Da die Untersuchung in den Milchviehställen jeweils über alle drei Jahreszeiten durchgeführt wurden, konnten witterungsbedingte Variationen im Jahresverlauf erfasst und beurteilt werden.

In der Volierenhaltung für Legehennen wurde die Untersuchung aus Ressourcengründen auf einen Stall in zwei verschiedenen Jahreszeit begrenzt. Generelle Aussagen über dieses Haltungssystem sind daher nicht möglich. Für detaillierte Aussagen zum Emissionsverhalten im Jahresverlauf wäre eine weitere Messung in der Übergangszeit wünschenswert gewesen.

5.3.2 Bewertung der Methoden zur Volumenstrombestimmung

Die Luftvolumenstrombestimmung anhand der **SF₆-Tracergas-Abklingmethode** ist ein Standardverfahren für die Erfassung von Luftwechselraten frei gelüfteter Ställe. Sie kam u.a. in Arbeiten von HENSELER-PABMANN (20010), SCHNEIDER (2006), und SNELL et al. (2003) zur Anwendung. SCHNEIDER (2006) erzielte bei der Validierung in einem zwangsgelüfteten Stall eine sehr gute Übereinstimmung im Vergleich mit Messventilatoren. Er merkt jedoch an, dass dieses Ergebnis nicht ohne Weiteres auf die veränderten Strömungsverhältnisse in frei gelüfteten Stallsystemen übertragbar ist.

Durch die Eindosierung des Tracergases über eine hohe Anzahl an Düsen und die Vorvermischung mit Stickstoff konnte die Verteilung des Gases im Stall gleichmäßig erfolgen. Eine große Anzahl von Absaugpunkten und das Zusammenführen zu einer Mischprobe glich Unterschiede in der Tracergaskonzentration aus. Inwieweit der Zustand einer vollständigen Durchmischung realisiert werden konnte, war nicht zu überprüfen. DEMMERS (2001) und BARBER und OGILVIE (1982) gehen davon aus, dass dieser Zustand in Gebäuden für die Tierhaltung eher unwahrscheinlich ist. Als Beleg für eine gute Durchmischung des Tracergases mit der Stallluft gilt nach SCHNEIDER (2006) ein gleichmäßiger, exponentieller Verlauf der Abklingkurven.

Verschiedene Möglichkeiten zum Einsatz von Tracergas zur Luftvolumensbestimmung wurden im Kapitel 2.3 vorgestellt. Die Vor- und Nachteile der einzelnen Methoden werden in der Literatur oft diskutiert. RAATSCHEN (1995) vertritt bezüglich der Abklingmethode die Meinung, es handele sich eher um ein punktuelles Verfahren, das keine ausreichende Auskunft über die Luftverteilung im Raum liefert. Auch BREHME (2000), GARDIN UND FONTAINE (1990) und SCHRADE (2009) sehen in der Anwendung der Abklingmethode zu große Unsicherheiten, die durch instabile Strömungsverhältnisse hervorgerufen werden können. Nach Angaben von SCHNEIDER (2006) und VAN BUGGENHOUT et al. (2009) lag der Messfehler jedoch sowohl in der Praxis als auch im Laborversuch mit 10 % relativ niedrig. Die Voraussetzung für einen geringen Messfehler ist allerdings die exakte Positionierung der Probennahme am Austrittsort der Abluft (DEMMERS et al., 2000; VAN BUGGENHOUT et al., 2009).

Im Vergleich zu anderen Methoden ist die Abklingmethode relativ einfach zu handhaben und benötigt nur geringe Mengen an Tracergas (SNELL et al., 2003; MÜLLER und MÖLLER, 1998). Letzteres ist besonders im Hinblick auf die Wirkung von SF₆ als Treibhausgas und den relativ hohen Anschaffungspreis von besonderer Bedeutung.

Bei der Sichtung der Daten auf Gut Frankenforst wurde, aufgrund der oft als ungünstig zu bezeichnenden Anströmung des Gebäudes aus südlicher Richtung, besonders auf die Verteilung der Windrichtung während der SF₆-Messung geachtet. Es zeigte sich, dass auch während der Bestimmung des Luftvolumenstroms dieselbe Windrichtungsverteilung, mit einem Schwerpunkt aus südlicher Richtung, auftrat. Obwohl erwartet wurde, dass bei dieser Anströmung keine Luftwechselrate, aufgrund einer fehlenden Querlüftung, bestimmt werden kann, wurden eindeutige Abklingkurven aufgezeichnet. Die resultierende Luftwechselrate zeigte keine eindeutige Verringerung des Luftvolumenstroms. Es wird daher davon ausgegangen, dass durch die vorbeiziehende Luft ein Sog auf der Ostseite des Stalles ausgelöst wurde, der wiederum zu einer Lüftung des Stalles führte. Bei einer ausreichenden Windgeschwindigkeit können dadurch wahrscheinlich ähnlich hohe Lüftungsraten wie bei einer druckbedingten Lüftung auftreten. Anhand dieser Beobachtung wurde für die weitere Berechnung der Emissionsraten davon ausgegangen, dass die ermittelten Luftwechselraten, auch bei nicht optimalen Anströmungsverhältnissen, ein relativ genaues Bild der Lüftung des Stalles bieten. Dies begünstigte zudem auch eine Übertragbarkeit der Luftvolumenstrombestimmung, die aus o.g. Gründen nur kurzzeitig erfolgen konnte, auf die betrachtete Messperiode.

Für die Bestimmung des Volumenstroms in den Messperioden in denen die Jalousien der Ställe, für die Anwendung der Tracergasmethode zu weit geschlossen waren, wurde auf die Erstellung einer **CO₂-Bilanz** zurück gegriffen. Da für die Erstellung einer eigenen Gleichung nicht alle nötigen Eingabedaten in ausreichend guter Auflösung verfügbar waren, wurde die vom CIGR (2002) empfohlene Berechnungsformel verwendet, welche von einer fixen CO₂ Produktion von 185 l h⁻¹ HPU⁻¹ ausgeht.

XIN et al. (2009) konnten in einem in-situ Versuch keine signifikanten Unterschiede bei einem Vergleich der CO₂-Bilanz mit kalibrierten Abluftfahnen nachweisen. Im Praxisversuch von SAMER et al. (2011) unterschätzte die CO₂-Bilanz im Mittel die Luftwechselraten, die über den Einsatz von Tracergas bestimmt wurden.

PEDERSEN et al. (1998) weisen darauf hin, dass die CO₂-Bilanz nur bei nicht-isolierten Stallgebäuden, wie sie in der vorliegenden Arbeit untersucht wurden, zur Anwendung kommen sollte. Ein zu großer Unterschied zwischen der Innen- und Außentemperatur würde anderenfalls das Messergebnis zu sehr beeinflussen. Laut SAMER et al. (2011) liegen die Hauptfehlerquellen der CO₂-Bilanz bei der Kalkulation der metabolischen Energie, der produzierten CO₂-Menge pro Energieeinheit, der CO₂-Freisetzung aus dem Flüssigmist und der Bestimmung der Probenahmepunkte. Auf der Basis von Arbeiten von GROOT KOERKAMP et al. (1998a), VAN`T KLOOSTER und HEITLAGER (1994), PEDERSEN et al. (1998), SCHOLTENS und VAN`t OOSTER (1994) und BLANES und PEDERSEN (2005) geben VAN BUGGENHOUT et al. (2009) eine Fehlerquote von 15-40 % für die CO₂- Bilanz an.

Es ist somit davon auszugehen, dass die vorliegenden Luftwechselraten einem nicht genau zu bestimmendem Fehler unterliegen. Durch das Fehlen von Alternativen zur Luftvolumenstrombestimmung bei teilweise oder ganz geschlossenen Zuluftöffnungen, fanden die ermittelten Werte ohne Korrekturen für die weitere Berechnungen Anwendung. Die Ermittlung des Luftvolumenstroms im zwangsgelüfteten Legehennestall erfolgte über einen kalibrierten **Messventilator**. Diese weisen eine hohe Reproduzierbarkeit und eine Messgenauigkeit von bis zu 99,8 % auf (BÜSCHER et al., 2001). Durch den druckseitigen Aufsatz des Messventilators ist von einem höheren Messfehler auszugehen. Bei der Kalibrierung der Drehzahlen konnte ein einheitlicher Lauf aller Ventilatoren festgestellt werden. Die angezeigte Drehzahl an den einzelnen Ventilatoren schwankte nur leicht. Es kann daher auf einen gleichmäßigen Lauf mit einheitlichen Luftvolumenströmen geschlossen werden.

Jeweils nach der Messung von 2 Kaminen wurde die eingestellte Lüftungsrate am Klimacomputer überprüft. Es wurde keine Drift der Lüftungsrate festgestellt.

Da die Einstellungen am Klimacomputer während der gesamten Messperiode nicht verändert wurden, kann die mittlere Lüftungsleistung als Maß für den Luftvolumenstrom verwendet werden. Es war damit nur die Kalibrierung eines exakten Mittelwertes für den Sommer und den Winter nötig, was in einer erheblichen Einsparung an Messtechnik und personellen Aufwand resultierte. Aufgrund der schlechten Wetterverhältnisse am Ende der Sommermessung musste die Bestimmung des Luftvolumenstroms mit einigen Tagen Verzögerung nach Ablauf der NH₃-Messung vorgenommen werden.

Durch die sehr gute Regelbarkeit der Lüftungseinrichtungen im Stall ist eine etwaige Beeinflussung des Messergebnisses aber auszuschließen. Da die Lüftungseinstellungen im untersuchten Betrieb in den Jahreszeiten nicht verändert werden, kann der erfasste Luftvolumenstrom als repräsentativ für die gesamte betrachtete Messperiode angesehen werden.

5.3.3 Bewertung der Methoden der Partikelmessungen

Bewertung der Messungen zur Nanopartikel-Größenverteilung

Die Messreihen wurden als Luv-Anlage-Lee-Messungen auf den landwirtschaftlichen Betrieben, und als Punktmessung im städtischen Bereich konzipiert. Dadurch wurde es möglich, Aussagen zur Partikelbildung und zu deren Austrag an der Quelle der NH_3 -Emission zu treffen. Durch Bebauung, Vegetation und ungünstige Windbedingungen konnte diese Messplanung auf den Betrieben nicht immer vollständig eingehalten werden. Dies führte zum Teil zum Verlust wichtiger Informationen, die den Ein- und Austrag von Partikeln in die untersuchten Betriebe betrafen. Für die Referenzgebiete in den Großstädten wurde eine Punktmessung als ausreichend angesehen, da Sie nur als Vergleich herangezogen werden sollten. Eine Partikelverteilung innerhalb von Stadtgebieten und der Einfluss der Lage sollte nicht untersucht werden. Auf Vergleichsmessungen im ländlichen Gebiet ohne Tierhaltung wurde aufgrund der begrenzten Einsatzzeit des Gerätes verzichtet.

Im Hinblick auf die Reproduzierbarkeit muss der situationsbedingte Wechsel der Messpunkte an einigen Standorten als ungünstig bezeichnet werden. Eine Beibehaltung ursprünglich angedachter Messstandorte bei offenkundiger Beeinflussung der Ergebnisse durch staubintensive Arbeiten, Windrichtungswechseln oder den Aufenthalt von Tieren im Messbereich wäre jedoch nicht vertretbar gewesen. Der Standortwechsel ist somit als Kompromiss zwischen einer exakten Datenerfassung und dem Anliegen einer umfassenden Charakterisierung von standortabhängigen Veränderungen in der Partikelverteilung zu sehen.

Partikelkonzentrationen weisen, bedingt durch die Bildungs- und Transportbedingungen tageszeitliche Veränderungen auf. Um diesen Einfluss auf das Messergebnis zu minimieren, wäre eine zeitgleiche Erfassung der Konzentration und Größenverteilung an den verschiedenen Messpositionen von Vorteil. Aufgrund der immensen Gerätekosten war dies nicht zu realisieren.

Auch eine 24-Stundenmessung, zur Einordnung der gewonnenen Werte in den Tagesverlauf wäre eine denkbare Option zur Erweiterung der Information gewesen. Aufgrund eines fehlenden Wetter- und Diebstahlschutzes wurde hierauf verzichtet.

Bewertung des Einsatzes der Gravimetriesammler

In der Analytik von Luftspurenstoffen und bei Messungen zur Sekundäraerosolbildung an Standorten kommen heute häufig Denuder zum Einsatz. Diese ermöglichen neben der Analyse von Filterabscheidungen auch die Erfassung von Stoffen die aufgrund ihres thermodynamischen Gleichgewichtes wieder in den gasförmigen Zustand übertreten. So geben YOSHIKUNI und HOSHI (1985) für NO_3^- eine Verflüchtigungsrate von 10 % der Ausgangsmasse bei einer Erhitzung auf 70°C an. SHAAP et al. (2002) gehen in diesem Zusammenhang davon aus, dass auch Filter auf Cellulosebasis hohe Mengen HNO_3 absorbieren, und die Verluste durch Evaporation dadurch relativ gering halten.

In der vorliegenden Untersuchung stand nicht die exakte Erfassung der Sekundäraerosolmasse in Vordergrund. Zur Beantwortung der Frage, ob die Bildung von Sekundärpartikeln in Tierhaltungsanlagen nachweisbar ist, zeigte sich der Einsatz der Gravimetriesammler als kostengünstige und einfache Alternative. Die Messdauer von mindestens 2 Tagen ergab sich aus Berechnungen zur Nachweisgrenze der zu bestimmenden Inhaltsstoffe. Anhand von Daten aus dem deutschen Luftmessnetz und aus Angaben von LOHMEYER et al. (2003), LAMMEL et al. (2003) sowie BAEK und ANEYA (2004) zur Konzentration der Stoffe im PM_{10} wurde angenommen, dass für einen PM_{10} Anteil von 1 mg mindestens 48 h Laufzeit der Sammler benötigt werden würde. Die Ergebnisse aus den Kurzzeitmessungen zeigten jedoch, dass auch mit 20 h Laufzeit die Nachweisgrenze der Messgeräte überschritten wurde. Eine Verkürzung der Messzeit hätte zwar zu höher aufgelösten Daten geführt, die längeren Laufzeiten bieten jedoch einen besseren Querschnitt über die Gegebenheiten am Standort.

Über einen wesentlich höheren Volumenstrom, im Vergleich zu Gravimetriesammlern, verfügen sogenannte High-Volume-Sampler. Mit ihnen wären Kurzzeitmessungen, zum Beispiel zur Betrachtung tageszeitlicher Unterschiede, möglich gewesen. Aufgrund fehlender Ressourcen war ein Einsatz solcher Geräte nicht möglich.

Durch Verzögerungen im Arbeitsplan konnten die Messungen nur in einer Jahreszeit durchgeführt werden. Zur Abbildung von jahreszeitlichen Effekten wären Messungen in mindestens einer weiteren Jahreszeit wünschenswert gewesen.

Die gewonnenen Ergebnisse liefern keine Aussagen zu den witterungsbedingten Einflüssen. Hierfür hätte es der Erfassung von Wetterdaten an den Standorten bedurft.

Um statistisch vergleichbare Daten zu erhalten, müssten wesentlich mehr Standorte in die Betrachtung einbezogen werden. In Verbindung mit den Ergebnissen der Messungen zur Nanopartikel-Größenverteilung besitzen die gewonnenen Stichproben dennoch eine hohe Aussagekraft.

5.4 Bewertung der Messergebnisse

5.4.1 NH₃-Emission aus frei gelüfteten Milchviehställen

Die untersuchten Ställe zeigten ein sehr individuelles Emissionsverhalten. Anhand der in Kapitel 4.3 und 4.4 dargestellten mittleren Tagesverläufe ist davon auszugehen, dass, neben baulichen Unterschieden, die Wetterbedingungen am Standort sowie das Stallmanagement die Emission in bedeutendem Maße beeinflussen. Die Maxima auf Gut Frankenforst waren in den Sommermonaten am stärksten ausgeprägt. Für den starken Anstieg der NH₃-Konzentration am späten Vormittag und in den frühen Nachtstunden ist von einer Aktivitätsänderung der Tiere als Ursache auszugehen. Einen ähnlichen, als „morning peak“ bezeichneten Anstieg in den frühen Morgenstunden wurde auch von MEISSNER (2004), AARNIK (1997) und GUARINO et al. (2003) in der Schweinehaltung und von NGWABIE et al. (2009) bei Messungen in einem Milchviehstall beobachtet. Sie erklären das Phänomen mit einem vermehrten urinieren und abkoten der Tiere nach dem Erwachen aus der Nachtruhe. Da der Anstieg in der vorliegenden Arbeit aber nicht direkt nach dem Erwachen und dem anschließenden Gang zum Melken beobachtet wurde, wird eine situationsspezifische Erhöhung der Tieraktivität mit gleichzeitiger Anregung des Kreislaufes und vermehrter Ausscheidung als Ursache angenommen.

Am Vormittag führt wahrscheinlich die Erwartung des Weideaufenthalts zu Unruhe in der Herde, in am späten Abend kann eine Annäherung der Temperatur an den Komfortbereich der Tiere zu einem erneuten Aktivitätsanstieg führen. Auf Haus Riswick sind die Unterschiede in der NH₃-Konzentration zwischen den Jahreszeiten weniger stark ausgeprägt.

Die Segmente 2 und 3 zeigten im Sommer ebenfalls ein ausgeprägtes Maximum in den Morgenstunden. Da diesem kein eindeutiges Ereignis im Management zugeordnet werden kann, wird der helligkeitsabhängigen Biorhythmus der Tiere als Ursache vermutet. Für diese Annahme spräche auch die Verschiebung des Maxima im Jahresverlauf zu späteren Uhrzeiten.

In den Tagesverläufen ist in allen Ställen ein leichter Rückgang der NH_3 -Konzentration während der Melkzeiten zu erkennen. Dieser vollzieht sich jedoch sehr langsam und zeigte keine große Wirkung auf die Gesamtemission. An diesem langsamen und kurzzeitigen Rückgang ist auch deutlich zu erkennen, dass der Hauptteil des NH_3 nicht direkt aus den frischen Exkrementen der Tiere sondern von den verschmutzten Oberflächen freigesetzt wird.

In der TA-LUFT (2002) wird für Liegeboxenlaufställe ein Emissionsfaktor von $14,57 \text{ kg GV}^{-1} \text{ a}^{-1}$ angegeben. Auch SEIPELT et al. (1999) und SCHNEIDER et al. (2006) weisen ähnlich hohe Werte aus. In der vorliegenden Arbeit konnten diese Emissionsfaktoren nicht bestätigt werden. Mit Werten zwischen $7,61$ und $11,77 \text{ kg GV}^{-1} \text{ a}^{-1}$ lagen die Emissionen deutlich tiefer. Auch DEMMERS et al. (2001), NGWABI et al. (2009) und HEIDENREICH et al. (2008) geben mit $8,9$, $7,7$ - $9,9$ und $10,8 \text{ kg GV}^{-1} \text{ a}^{-1}$ niedrigere Emissionsfaktoren für freigelüftete Liegeboxenlaufställe an. Ein Grund für die vergleichsweise niedrigen Emissionsraten kann in der hohen Entmistungsfrequenz der untersuchten Ställe liegen. Eine Verbesserung des Entsorgungsmanagements in den Praxisbetrieben würde damit eventuell zu einer Minderung der Emissionen aus dem betrachteten Haltungsverfahren führen.

In der vorliegenden Arbeit konnte kein Trend zu einer Reduktion der NH_3 -Emission durch eine Erhöhung der Schieberfrequenz auf Gut Frankenforst festgestellt werden. Die langen Messzeiträume und die dadurch unterschiedlichen klimatischen Bedingungen sind für die Bewertung des Ergebnisses nachteilig.

Die Innenraumkonzentration zeigte eine deutliche Abnahme im Jahresverlauf und war damit nicht mehr auf die Frequenz des Flüssigmistschiebers zu beziehen. In einem Versuch von BRAAM et al. (1997) konnte die Erhöhung der Reinigungsfrequenz von 12 auf 96 Schieberläufe je Tag die Emission um lediglich 5 % reduzieren. So hohe Frequenzen sind in der Praxis allerdings nicht zu finden.

Im Vergleich der Bodentypen konnte bei den planbefestigten Ställen keine generelle Erniedrigung der Emissionsraten, wie sie von ZHANG et al. (2005), ROM et al. (2004) und KROODSMA et al. (1993) beschrieben werden, festgestellt werden. Auf Haus Riswick wies das Segment 2 mit Spaltenboden im Durchschnitt die niedrigsten Emissionsraten auf und lag damit auf einem ähnlichen Niveau wie das planbefestigte Segment 1.

Aufgrund von Unterschieden in der Fütterung, der Leistung, den baulichen Grundlagen und im Management kann die große Differenz in den Angaben zu den Emissionen nicht abschließend erklärt werden. Entgegen der Meinung von EURICH-MENDEN et al. (2011) muss jedoch davon ausgegangen werden, dass die NH_3 -Emissionen aus der Haltung von Milchkühen in aktuellen, tiergerechten Verfahren zum Teil erheblich überschätzt werden.

Über die Betrachtung des Einflusses verschiedener Klimaparameter auf das Emissionsverhalten sollten Aussagen zur Abhängigkeit der Bereitstellung von NH_3 , vor allem in Bezug auf die Jahreszeiten, getroffen werden. Eine eindeutige Beeinflussung der NH_3 -Konzentration in der Abluft zeigte die **Windgeschwindigkeit**. In alle untersuchten Ställen nahm, durch den Verdünnungseffekt, die NH_3 -Konzentration mit zunehmender Windgeschwindigkeit ab. Diesen Effekt bestätigen auch SCHRADE (2009), AROGO et al. (1999) sowie MONTENY und ERISMAN (1998). Die gemessenen Windgeschwindigkeiten auf Gut Frankenforst waren im Mittel der Jahreszeiten relativ homogen und lagen mit $1,6\text{-}1,9 \text{ m s}^{-1}$ im gleichen Rahmen wie die Geschwindigkeiten auf Haus Riswick im Frühjahr und Winter. Nur im Sommer wurde hier eine etwas erhöhte Windgeschwindigkeit von $2,8 \text{ m s}^{-1}$ gemessen. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass die Wirkung in allen Jahreszeiten einen ähnlichen Einfluss auf das Emissionsgeschehen hatte. Aufgrund der Abschirmung durch Windschutznetze und Futtertröge muss davon ausgegangen werden, dass die Windgeschwindigkeiten über den Laufflächen weitaus niedriger liegen. Der größte Einfluss des Parameters Windgeschwindigkeit wurde auf Gut Frankenforst mit einem Bestimmtheitsmaß von 0,91 nachgewiesen. Die Bestimmtheitsmaß der Segmente auf Haus Riswick lagen mit 0,75 im Segment 1 und 0,65 bzw. 0,41 in den Segmenten 2 und 3 deutlich darunter. Für die Erklärung dieser Unterschiede kommt das ungleiche Lüftungsmanagement in Betracht. Auf Gut Frankenforst wird die Stellung der Jalousien im Jahresverlauf nur leicht variiert. Zudem befinden sich an der Zuluftseite keine Futtertröge, so dass die Luft relativ ungehindert über die Laufflächen streichen kann.

Auf Haus Riswick war die Jalousie im Winter komplett heruntergelassen und im Übergang halb (von oben nach unten) geöffnet. Dadurch wurden die Laufflächen von der Windeinwirkung abgeschirmt. Die anteilige Öffnung während der Übergangszeit wirkte sich wahrscheinlich eher durch Turbulenzen im oberen Bereich, als durch eine Beeinflussung des Konzentrationsgefälles über den Laufflächen, aus. Weiterhin ist anhand der Ergebnisse zu vermuten, dass der Effekt der Windgeschwindigkeit auf planbefestigten Laufflächen deutlich stärker zum Tragen kommt als auf Spaltenboden. Auffällig war, dass die Werte bei höheren Windgeschwindigkeiten stärker streuten. Es wird daher vermutet, dass Windgeschwindigkeiten über $4,5 \text{ m s}^{-1}$ die Bildung von Turbulenzen im Stall begünstigen.

Neben dem Einfluss der Windgeschwindigkeit weisen u.a. BROSE (2000), SCHRADE (2009), AMON et al. (1998), NGWABI et al. (2009) und ROM et al. (2004) auch die **Temperatur** als bedeutende Einflussquelle aus. In den genannten Arbeiten konnte mit steigender Temperatur auch ein Anstieg der NH_3 -Emission beobachtet werden. Dieser Effekt konnte bei den eigenen Untersuchungen nur teilweise bestätigt werden. Zwar wirkte sich in allen Ställen die Temperatur auf den NH_3 -Gehalt der Luft aus, jedoch konnte die Tendenz von höheren Werten bei zunehmender Temperatur nur in den beiden planbefestigten Systemen bestätigt werden. In den Segmenten mit Spaltenboden führte ein Temperaturanstieg wider erwartend zu einem Absinken der NH_3 -Konzentration. Der Kurvenverlauf zeigte sich nur in Ansätzen linear. Auch ROM et al. (2004) und NGWABIE et al. (2009) gehen von einer Abhängigkeit der Temperaturwirkung vom Bodentyp aus. Es besteht bei Spaltenböden die Möglichkeit, dass eine Beeinflussung des Luftaustausches durch die Spalten, wie sie von MONTENY (2000) und Brose (2000) beschrieben wird, auftrat. Besonders stark kommt dieser Effekt bei großen Unterschieden zwischen der Innen- und Außentemperatur zum Tragen. Da diese beiden Parameter in den untersuchten Segmenten nicht getrennt erfasst wurden, kann die Wirkung nicht quantifiziert werden.

Da in der vorliegenden Arbeit bei niedrigen Temperaturen auffällig hohe NH_3 -Konzentrationen gemessen wurden, ist das Absinken kalter Luft durch die Spalten und der dadurch erhöhte NH_3 -Rückfluss als Ursache für den atypischen Kurvenverlauf anzunehmen. Auf Haus Riswick war außerdem ein Abfall der NH_3 -Konzentration bei Temperaturen über 27°C zu erkennen.

Diese Erscheinung liegt vermutlich in der zeitgleich auftretenden Windrichtung begründet. Zum Zeitpunkt der sehr hohen Temperaturen überwogen Winde aus nördlicher und südlicher Richtung. Die beobachteten Messwerte stammen daher wahrscheinlich aus einer Mischung der Abluft und der Zuluft. Zudem waren die Windgeschwindigkeiten teils sehr niedrig, so dass das Ammoniak an den Grenzschichten langsamer abtransportiert und zu den Messpunkten getragen wurde. Da solch hohe Temperaturen während der Messung eher selten auftraten, ist der Einfluss auf den ermittelten Emissionsfaktor als gering einzustufen. Die Betrachtung der **Windrichtung** in Bezug auf die auftretenden NH_3 -Konzentrationen zeigte kein eindeutiges Ergebnis und war stark standortabhängig. Es wurde erwartet, dass auf Gut Frankenforst die höchsten Konzentrationen bei Winden aus Nordost und Südwest auftreten. Bei diesen Windrichtungen wird der Stall an den geschlossenen Seiten angeströmt, der Luftaustausch müsste dadurch minimiert und die Konzentration erhöht werden. Diese Annahme bestätigte sich nur bei der Windrichtung Nordost. Da diese aber ausgesprochen selten vorkam, kann das Ergebnis nicht als gesichert angesehen werden. Bei südwestlichen Winden war keine Erhöhung der NH_3 -Konzentration im Vergleich zu einer optimalen Anströmung und Durchlüftung bei West- und Nordwestwind zu beobachten. Auf Haus Riswick zeigte sich eine sehr homogene Verteilung der NH_3 -Messwerte, die kaum Schwankungen aufwies. Die Konzentration zeigte einen Anstieg bei Nordwind, dessen Ursache in mangelnder Durchlüftung vermutet wird. Bei einer sehr guten Anströmung aus Westen ist die Konzentration nur leicht verringert. Es muss bei diesen Ställen jedoch davon ausgegangen werden, dass die Windrichtung besonders in der Übergangs- und Winterzeit einen geringeren Einfluss hat, da Jalousien teilweise bis vollständig geschlossen waren und dadurch keine Querlüftung zuließen.

Die Regressionsanalyse für die **Luftfeuchtigkeit** ergab einen exponentiellen Anstieg der NH_3 -Konzentration in den beiden Segmenten mit Spaltenboden auf Haus Riswick. Für die planbefestigten Ställe konnte kein direkter Einfluss nachgewiesen werden. Auch SCHRADE (2009) stellte in ihrer Untersuchung keinen signifikanten Einfluss der Luftfeuchtigkeit auf die NH_3 -Emission fest.

5.4.2 NH₃-Emission aus der Legehennen-Volierenhaltung

Die gemittelten Tagesverläufe der Innenraumkonzentration zeigten zwischen den untersuchten Jahreszeiten deutliche Unterschiede. Während im Winter ein deutlicher Tagesgang mit maximalen Konzentrationen am Nachmittag und minimalen Konzentrationen in der Nacht beobachtet werden konnte, waren bei der Sommermessung kaum Konzentrationsunterschiede zwischen den Tageszeiten feststellbar. Ähnliche Tagesgänge zeigten auch die Arbeiten von HINZ et al. (2010) und ACHILLES et al. (2002). Dies ist auf die höhere Lüftungsrate in den Sommermonaten zurück zu führen. Durch den hohen Luftvolumenstrom wird das NH₃ so schnell abgeführt, dass sich keine hohen Konzentrationen im Raum bilden können. Während der Wintermonate ist der Luftaustausch weitaus geringer. Infolge der Tieraktivität, die durch das herrschende Lichtregime beeinflusst wird, steigt die Konzentration in der Phase erhöhter Aktivität an. Da das NH₃ nur langsam abgeführt wird ist auch ein langsames Abklingen der Spitzenkonzentration mit Eintritt der Ruhephase in den Nachtstunden zu verzeichnen. Die dargestellten Tagesmittelwerte weisen einen deutlichen Wochenrhythmus auf, der dem Entmistungsintervall entspricht. Hier ist besonders auffällig, dass der Abfall der NH₃-Konzentration nicht schlagartig nach der Entmistung auftritt, sondern sich über ein bis zwei Tage hinzieht. Für dieses Phänomen kommen zwei Ursachen in Betracht. Zum einen führt die Bewegung der Kotbänder wahrscheinlich zu einer erhöhten Freisetzung von NH₃ aus dem angesammelten Mist, der sich dann noch über einige Stunden in der Luft hält. Zum Anderen liegen frisch abgesetzte Fäkalien auf den sauberen Kotbändern relativ frei, so dass die aerobe NH₃-Freisetzung unterstützt wird.

Die tägliche Emissionsrate lag im Sommer mit 0,18 g Tier⁻¹ erheblich tiefer als im Winter mit 0,44 g Tier⁻¹. Eine von MÜLLER et al. (1997) beschriebene Steigerung der Emissionsrate durch einen höheren Luftvolumenstrom konnte in diesem Stall nicht beobachtet werden. Während der Luftvolumenstrom ein Verhältnis von ca. 2:1 aufwies war das Verhältnis der Quellemission ca. 1:4. Die niedrigere NH₃-Konzentration während der Sommermessung kann daher nicht allein auf einen besseren Abtransport und größere Verdünnung zurück zu führen sein. Wahrscheinlich ist, dass die höhere Luftwechselrate zusammen mit einer höheren Lufttemperatur zu einer besseren Abtrocknung des Kotes führte.

Zur Bestätigung dieser Vermutung wäre jedoch eine Analyse des Trockensubstanzgehaltes der Exkreme während der Messungen nötig gewesen. Höhere Emissionsraten im Winter wurden auch vom LFL (2004) für zwei Ställe mit Volieren- und Bodenhaltung ermittelt. Ein weiterer Volierenstall zeigte hingegen im Sommer eine höhere Emissionsrate. Der ermittelte Emissionsfaktor von $103,5 \text{ g Tier}^{-1} \text{ a}^{-1}$ liegt etwas über dem Faktor von $91,1 \text{ g}$, der in der TA-LUFT (2002) angegeben wird.

Der von MÜLLER (2003) ermittelte Emissionsfaktor von $112 \text{ g Tier}^{-1} \text{ a}^{-1}$ für einen Stall mit fast identischer Haltungstechnik, Entmistung und ähnlichen Tierzahlen, liegt über dem hier errechneten Faktor. Auch HÖRNIG et al. (2001), MÜLLER (2004) und HINZ et al. (2010) weisen in ihren Studien weitaus höhere Emissionsfaktoren von 130 bis zu $540 \text{ g Tier}^{-1} \text{ a}^{-1}$ aus. Für die Käfighaltung werden in der Literatur wesentlich geringere Werte angegeben. Nach FABBRI et al. (2007) und GROOT KOERKAMP (1998b) liegen die Emissionen aus diesem Haltungsverfahren mit 62 bzw. $35 \text{ g Tier}^{-1} \text{ a}^{-1}$ um die Hälfte bis zwei Drittel niedriger.

5.4.3 Beurteilung der Ergebnisse hinsichtlich des Bildungspotentials für Sekundärpartikeln

Die o.g. Untersuchungen zur Emission von NH_3 aus modernen Haltungsverfahren für Milchvieh und Legehennen zeigen, dass aus diesen tiergerechten Haltungsbedingungen eine vermehrte Emission des Vorläufergases Ammoniak resultiert. Unter der Voraussetzung, dass ausreichend saure Vorläufergase vorhanden sind, fördert eine hohe NH_3 -Konzentration die Bildung neuer Nukleationskeime (SCOTT und CATTEL, 1979; COFFMAN und HEGG, 1995; BALL et al., 1999; SITHO et al., 2005). Aus dieser Tatsache resultiert ein starker Konflikt aus dem Wunsch einer den Bedürfnissen der Tiere optimal angepassten Haltung und den Auswirkungen auf die Umwelt. Nach der Aussage von SPIRIG und NEFLEL (2006) ist in der Atmosphäre derzeit genügend NH_3 vorhanden, um die gesamten sauren Vorläufer in einen partikulären Zustand zu überführen.

Aus einer Modellberechnung der Autoren wird weiterhin ersichtlich, dass auch eine alleinige Reduktion der NH_3 -Emission um 50 % die Feinstaubbelastung nur um 3-10 % senken kann. Daraus folgt, dass in ohnehin stark belasteten Regionen eine erhöhte NH_3 -Freisetzung die Bildung sekundärer Aerosole nicht mehr steigern kann. Im unmittelbaren Nahbereich ist eine Verstärkung der Feinstaubbelastung durch die Bildung von Ammoniumsalzen aber durchaus denkbar.

In der Milchviehhaltung sind vor allem die hohen Emissionsraten während der Sommerzeit als kritisch zu bewerten. Durch hohe Temperaturen und eine gesteigerte Energiezufuhr durch die erhöhte Solarstrahlung in dieser Jahreszeit werden ausgezeichnete Nukleationsbedingungen geschaffen.

Die hier emittierten NH_3 -Mengen werden wahrscheinlich zu einem weitaus größeren Maße in Sekundärpartikel umgewandelt als zu den übrigen Jahreszeiten. Maßnahmen zur Minderung des Ausstoßes von Vorläufergasen sollten daher vor allem in den warmen, strahlungsintensiven Perioden angesiedelt werden. Eine Verminderung des Luftaustausches und die Senkung der Temperaturen an den emittierenden Flächen wären hier als Optionen denkbar. In dem untersuchten Haltungsverfahren für Legehennen traten die höchsten Emissionsraten im Winter auf. Da hier die Nukleationsbedingungen durch niedrige Temperaturen, hohe Luftfeuchtigkeit und niedrige Solarstrahlung ungünstig sind (GAGNE et al., 2009; NAPARI et al., 2002; HAMED et al., 2009; BAEK et al., 2004), kann erwartet werden, dass der überwiegende Anteil des NH_3 trocken oder nass deponiert wird. Eine Neubildung von Partikeln ist eher gering. Diese Annahme wird durch die Arbeiten von STANIER et al. (2004), VAKKARI et al. (2009) und KULMALA et al. (2004) bestätigt. In Messkampagnen wurden hier im Winter nur sehr niedrige Nukleationsraten beobachtet.

Die Emissionsraten je Tier wirken im Sommer auf den ersten Blick gering. Beachtet man aber die geringe Masse der Einzeltiere wird deutlich, dass die Geflügelhaltung zu den emissionsstärksten Bereichen der landwirtschaftlichen Nutztierhaltung gehört. Vor allem in Gebieten mit einer hohen Viehdichte kann die NH_3 -Belastung dadurch stark ansteigen. Im untersuchten Betrieb wurden durch die wöchentliche Entmistung und die Kotbandbelüftung schon Empfehlungen zur Emissionsminderung umgesetzt. Eine weitere Reduzierung der Emission wäre über eine weitere Erhöhung der Entmistungsfrequenz und den Einsatz einer Abluftreinigungsanlage zu erzielen.

Da unter Berücksichtigung der Tierschutzaspekte der Trend in der Nutztierhaltung zu größeren Bewegungsflächen und freigelüfteten Stallsystemen geht, geht das UBA (2005) davon aus, dass auch bei einem gleichbleibenden Tierbestand die höhere NH_3 -Emission zu einer Verschärfung der Staubproblematik führen wird.

Wann und unter welchen spezifischen Bedingungen es zur Bildung von Sekundärpartikeln kommt ist jedoch noch nicht vollständig bekannt und weiter Bestandteil vieler Forschungsvorhaben.

5.4.4 Nanopartikel-Größenverteilung

Während der Messungen auf Gut Frankenforst zeigten die Partikelgrößenverteilungen an den Messtandorten deutliche Unterschiede. Beim Vergleich der Verteilungskurven der Zuluft und der Anlage bzw. dem Stallbereich konnten durchgängig höhere Partikelkonzentrationen auf dem Betrieb nachgewiesen werden. Der Größenbereich mit der stärksten Differenz war jedoch nicht immer gleich. Da diese Überlagerung vor allem bei Partikelgrößen < 200 nm beobachtet wurde, kann davon ausgegangen werden, dass es sich hier um relativ frisch nukleierte Partikel handelt. Die Neubildung von sekundären Aerosolen tritt somit nicht erst, wie z.B. von HAINSCH und NEUBAUER (2004) vermutet, während des Transportes der Vorläufergase, sondern auch schon am Quellort auf. Die Partikelgrößenverteilung am 23.05.2011 zeigte eine deutliche Verschiebung des Maximums zu größeren Partikeln mit zunehmender Entfernung von der Quelle. Hieraus kann geschlussfolgert werden, dass während des Transportes zu der weiter entfernten Messstelle ein Anwachsen der Partikel stattgefunden hat. Anhand der von KULMALA et al. (2004) angegebenen durchschnittlichen Wachstumsraten von $4-10$ nm h^{-1} im Sommer kann die Verschiebung nicht vollständig erklärt werden. Durch die hohe NH_3 -Verfügbarkeit am Standort sind größere Wachstumsraten während der Messung denkbar. Auch LAMMEL et al. (2004) kamen zu wesentlich höheren Wachstumsraten im Umfeld eines viehhaltenden Betriebes und vermuten einen Zusammenhang mit der hohen NH_3 -Konzentration.

Auch die Ergebnisse aus dem Betrieb mit Legehennenhaltung vom 21.06.2011 lassen auf eine Bildung von Sekundärpartikeln nahe der NH_3 -Quelle schließen. Die Partikelkonzentrationen im Hofbereich der Anlage waren gegenüber der Zuluft im Bereich bis 200 nm deutlich erhöht. Am Abluftmesspunkt konnte eine weitere Erhöhung gemessen werden.

Die niedrigen Messwerte dieses Tages im Stall sind hingegen nicht plausibel. Obwohl die NH_3 -Konzentration durch die vorangegangene Entmistung sehr niedrig war, müsste die Partikelkonzentration mindestens im Größenbereich der Zuluft liegen. Dass der Stall eine so stark Senke für feinste Partikel darstellen soll ist nicht erklärbar. Es muss daher vermutet werden, dass die Entmistung zu einem so hohen Aufkommen an Staub geführt hat, dass das Messsystem stark überlastet war und nicht richtig messen konnte. Am zweiten Messtag wurde auch hier im Stall eine erhöhte Partikelkonzentration im Bereich von 35 bis 523 nm nachgewiesen.

Die höhere NH_3 -Konzentration im Stall am Ende der Entmistungsfrequenz scheint hier nicht nur zu Nukleation sondern auch verstärkt zur Akkumulation der Partikel geführt zu haben.

Auch auf Haus Riswick kann von einer Nukleation am Quellort ausgegangen werden. die Partikelkonzentration war in der Abluft des Milchviehstalles deutlich erhöht. In der Abluft des Gesamtbetriebes konnte nur in den Größenklassen bis 35 nm ein Anstieg der Partikelzahl beobachtet werden.

Im Vergleich der Messkurven auf den landwirtschaftlichen Betrieben mit denen der städtischen Referenzmessungen wird deutlich, dass die charakteristischen Partikelgrößenverteilung unterschiedliche Formen aufweisen. Während die Kurven der Tierhaltungsanlagen einen gekrümmten Verlauf zeigen sind die Verteilungskurven im städtischen Bereich monoton fallend. In beiden städtischen Kurven lag das Maximum im kleinsten Größenkanal, was auf eine sehr hohe Nukleationsrate hinweist. Ausgelöst wird diese wahrscheinlich Verbrennungsprozesse und durch die Freisetzung von NO_x aus Kraftfahrzeugen. Die gemessene Partikelkonzentration übersteigt die Konzentration auf den Anlagen um ein Vielfaches.

An fast allen Messtagen wurden im Bereich von 120 bis 200 nm Partikelkonzentrationen von $> 1.000 \text{ cm}^{-3}$ gefunden. Diese Partikel sind im Hinblick auf den indirekten Aerosoleffekt von besonderer Bedeutung, da sie nach TEN BRINK (2009) bevorzugt als CN fungieren. An manchen Standorten wird durch die sekundäre Partikelbildung die Bereitstellung von Wolkenkonzentrationskeimen um mehr als das Doppelte erhöht (KULMALA, 2003). An der Mehrheit der Messtage war die Konzentration der Partikel dieses Größenbereichs auf den Betrieben ähnlich der Konzentration in städtischen Bereich. (3.000 bis 10.000 cm^{-3}). Die Freisetzung klimawirksamer Aerosole ist damit in Gebieten intensiver Tierhaltung wahrscheinlich ähnlich hoch wie in urbanen Regionen.

Die teilweise beobachteten starken Schwankungen in der Partikelkonzentration und Größenverteilung lassen auf den Einfluss sich ändernder meteorologischer Bedingungen und die dadurch bedingte Verlagerung von Luftmassen schließen (SITHO et al., 2006).

Die hier gemessenen Partikel weisen aufgrund ihrer geringen Masse sehr lange Verweilzeiten in der Atmosphäre auf (Vgl. Kap. 2.4.3). Sie können daher im Ferntransport über lange Strecken transportiert werden und führen so zu einer überregionalen Beeinflussung der Feinstaubbelastung.

5.4.5 Partikelmassenkonzentration und chemische Zusammensetzung

Sowohl in der Partikelmassenkonzentration als auch in der chemischen Zusammensetzung der Proben aus den verschiedenen Gebieten bestehen große Unterschiede.

Die Proben aus den Tierhaltungsbetrieben zeigten die höchsten Gehalte an den Ionen NH_4^+ -, SO_4^{2-} - und NO_3^- . Diese werden oft direkt den sekundären Partikeln zugeordnet. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass die Partikelbildung, wie auch schon im Kapitel 5.4.4 vermutet, direkt mit der Freisetzung des Vorläufergases NH_3 beginnt. Wie die ebenfalls hohen Konzentrationen im städtischen Bereich belegen, ist jedoch auch die Bildung während der Transmission von großer Bedeutung. Die erhöhte Bereitstellung der sauren Vorläufergase aus Verbrennungsprozessen führt zu einem großen Bildungspotential in diesen Regionen.

Im Vergleich zu den anderen Messstellen wies der Betrieb mit Legehennenhaltung sehr hohe Ionen-Konzentrationen auf. Das emissionsintensive Verfahren der Geflügelhaltung weist damit vermutlich auch ein gesteigertes Bildungspotential für Sekundärpartikel auf. Es ist jedoch zu beachten, dass die Messergebnisse auf Grund der Nähe zur niederländischen Grenze und durch die Einbettung in eine der viehstärksten Regionen Deutschlands durch Einträge aus dem Langstreckentransport stark beeinflusst werden.

Betrachtet man die Verhältnisse der Ionen genauer, so fällt auf, dass die SO_4^{2-} - und NO_3^- -Gehalte mengenmäßig weit über NH_4^+ -Gehalten liegen. Daran wird deutlich, dass diese Stoffe nicht allein an NH_4^+ gebunden sind.

Durch die Verwendung der Gravimetriesammler mit geringem Luftvolumenstrom und ohne gleichzeitige Erfassung gasförmiger Substanzen ist ein Vergleich mit Messergebnissen anderer Autoren nicht möglich.

Eine übergreifende Tendenz zu höheren Konzentrationen sekundärer Aerosole in Tierhaltungsanlagen oder Gebieten mit intensiver Tierhaltung ist jedoch durchaus nachweisbar.

5.5 Fazit und Ausblick

Das Ziel der Arbeit war die Bestimmung der Quellemissionen des Vorläufergases NH_3 aus aktuellen Haltungsverfahren für Milchvieh und Legehennen zur gezielten Ergänzung der vorhandenen Datenbasis. Um die Bildung von sekundären Partikeln aus der landwirtschaftlichen Tierhaltung in Prognosemodellen abschätzen zu können, werden Daten zu NH_3 -Emissionsfaktoren und Tierbeständen bereit gestellt.

Durch den Einsatz eines größenklassierten Kondensationspartikelzählers sowie einer chemischen Analyse des Gesamtstaubes wurde die Betrachtung der Bildung von Sekundärpartikeln und ihres „Wachstums“ am Quellort von NH_3 und in der unmittelbaren Umgebung ermöglicht.

Durch Messungen der NH_3 -Emission zu verschiedenen Jahreszeiten konnte neben tageszeitlichen Verläufen auch die Variabilität der Ergebnisse im Jahresverlauf betrachtet werden. Im jährlichen Mittel zeigten die untersuchten Ställe niedrigere Emissionen als in der Literatur ausgewiesen werden. Dennoch zeigten sie höhere Emissionen als konventionelle, wenig tiergerechte Haltungsverfahren und können so vermehrt zur Sekundärpartikelbildung beitragen. In den untersuchten Tierhaltungsanlagen konnten sowohl eine Erhöhung der Partikelanzahl in den spezifischen Größenklassen als auch der Konzentration an typischen Bestandteilen von Sekundärpartikeln nachgewiesen werden.

Inwieweit die Eingliederung eines Stalles in den Betriebskomplex das Immissionsgeschehen und die Wirkungsweise der klimatischen Randbedingungen verändert, wurde im Praxismaßstab noch nicht untersucht. Zur Verbesserung der rechnergestützten Simulations- und Ausbreitungsmodelle besteht hier grundlegender Forschungsbedarf. Neben dem Zusammenwirken einzelner Parameter wäre auch der Einfluss der Größe der Lüftungsöffnung auf die Strömungsverhältnisse im Stall von Interesse.

Die Bestimmung des Luftvolumenstroms mit dem Tracergas SF_6 konnte aufgrund des hohen Aufwandes nur kurzzeitig erfolgen. Zur Anpassung der vorhandenen Technik wäre es deshalb wünschenswert eine Einordnung der kurzzeitigen Luftvolumenströme über eine Langzeituntersuchung vorzunehmen. Als Schlussfolgerung wäre hier eine Aussage über den mindestens erforderlichen Stichprobenumfang je Tag oder Jahreszeit hilfreich.

Die erfassten Nanopartikel-Größenverteilungen unterliegen starken zeitlichen Schwankungen. Eine tiefer gehende Betrachtung der Bildungs- und Austragungsprozesse ist demnach nur mit einer zeitgleichen Betreibung mehrerer Messsysteme an den verschiedenen Messpunkten möglich. Eine Einbeziehung von direkten Standorten in den Ställen könnte weitere Anhaltspunkte hinsichtlich des Bildungsortes der Partikel liefern. Durch eine Erfassung der klimatischen Randparameter wie Temperatur, Luftfeuchte und Strahlungsintensität könnten weitere Aussagen über die Bildungsbedingungen getroffen werden. Auf Grundlage dieser Messungen könnten Prognosemodelle für die Feinstaubbelastung und den Ferntransport optimiert werden.

6 Zusammenfassung

In der landwirtschaftlichen Nutztierhaltung vollzieht sich ein Wandel zu tierfreundlichen Haltungsverfahren mit großem Bewegungsangebot. Den positiven Auswirkungen auf das Tier stehen jedoch gesteigerte NH_3 -Emissionen gegenüber. Belastbare Emissionsdaten zu diesen Haltungsformen sind noch nicht in ausreichendem Maße ermittelt worden und weisen zudem starke Schwankungen und Unsicherheiten auf. Vor allem die NH_3 -Emissionen wirken nicht nur direkt auf die Menschen, Tiere und die Vegetation sondern können potentiell über komplexe Prozesse in der Atmosphäre zur Bildung von Sekundäraerosolen und somit zu einer erhöhten Feinstaubbelastung beitragen. Weiterhin können sie einen Einfluss auf die Vegetation und den Wärmehaushalt der Erde nehmen.

In der vorliegenden Arbeit sollte deshalb die Quellemissionen des Vorläufergases NH_3 aus aktuellen Haltungsverfahren für Milchvieh und Legehennen bestimmt werden, um damit die Bildung von sekundären Partikeln aus der landwirtschaftlichen Tierhaltung abschätzen zu können.

Die Emissionsmessungen im Bereich der Milchviehhaltung erfolgten in vier frei gelüfteten Liegeboxenlaufställen. Zwei Ställe verfügten über planbefestigte Laufflächen. Die Laufflächen der beiden anderen Ställe waren mit Spaltenböden ausgestattet. Die Reinigung der Laufgänge erfolgte im Normalbetrieb im stündlichen Rhythmus über stationäre Schieber oder Spaltenreinigungsroboter. In einem Stall wurde die Schieberfrequenz für eine zusätzliche Untersuchung in zwei Jahreszeiten auf einen zweistündigen Rhythmus reduziert. Die Herdengröße betrug in diesem Stall 61 Tiere. Die drei anderen Ställe wiesen eine Bestandesgröße von jeweils 48 Kühen auf. Die Messungen erfolgten in allen Ställen in drei Jahreszeiten (Sommer, Übergang, Winter). Die Messdauer betrug mindestens 18 Tage.

Im Bereich der Legehennenhaltung wurde ein Volierenstall mit belüftetem Kotband und wöchentlicher Entmistung untersucht. Der Tierbesatz betrug 14.900 Hennen. Es wurden zwei Jahreszeiten (Sommer, Winter) mit einer Messdauer von mindestens 14 Tagen berücksichtigt.

Die Bestimmung der NH_3 -Abluftkonzentration erfolgte mittels photoakustischer-IR-Spektroskopie. Über ein Kaskadensystem aus PTFE-Schläuchen wurden die Einzelproben der Ansaugpunkte zu einer Mischprobe zusammengeführt und zum Messgerät weitergeleitet.

Da in den Ställen unterschiedliche Aufzeichnungsfrequenzen der Messgeräte verwendet wurden, erfolgte eine Vereinheitlichung der Messwerte in Form des 10-Minuten-Mittelwertes.

Zur Erfassung des Luftvolumenstroms kamen in den frei gelüfteten Milchviehställen die Methoden der SF_6 -Tracergas-Abklingkurve und der CO_2 -Bilanz zum Einsatz. Im zwangsgelüfteten Legehennenstall wurde der Luftvolumenstrom mit Hilfe eines Messventilators kalibriert.

Um die Einflussgrößen auf die Emission frei gelüfteter Milchviehställe charakterisieren zu können, wurden die Wetterparameter Temperatur, Windgeschwindigkeit, Windrichtung und Luftfeuchtigkeit erfasst.

Zur Untersuchung der Wirkung hoher NH_3 -Konzentrationen auf die Bildung und das Wachstum von Sekundärpartikeln in Tierhaltungsanlagen wurden Nanopartikel-Größenverteilungen im Luv und Lee der Betriebe sowie auf der Anlage mit einem größenklassiertem Kondensationspartikelzähler erfasst und miteinander verglichen.

Abschließend wurde eine chemische Analyse von Gesamtstaubproben aus ländlichen und städtischen Regionen sowie aus der direkten Umgebung der Ställe durchgeführt und hinsichtlich der Hauptbestandteile der Sekundärpartikel (NH_4^+ , SO_4^{2-} , NO_3^-) bewertet.

Alle untersuchten Haltungssysteme zeigten charakteristische Tagesgänge, die in Abhängigkeit von der Jahreszeit unterschiedlich stark ausgeprägt waren.

Auch in den berechneten täglichen Emissionsraten zeigte sich ein deutlicher jahreszeitlicher Effekt. In allen untersuchten Milchviehställen war die Emission im Sommer mit 31,07 bis 53,83 g GV^{-1} Tag^{-1} am höchsten. Die Emissionsraten der Übergangs- und Wintermonate lagen zwischen 16,26 und 24,78 g GV^{-1} Tag^{-1} während der Übergangszeit und 9,23 und 25,59 g GV^{-1} Tag^{-1} im Winter. Die errechneten Emissionsfaktoren liegen bei 7,61 und 8,14 kg GV^{-1} a^{-1} für die beiden Ställe mit planbefestigten Laufflächen und bei 8,10 und 11,77 kg für die Ställe mit Spaltenböden. Diese Werte liegen deutlich unter den Literaturangaben.

Die Einflüsse der witterungsbedingten Randparameter auf die gemessene NH_3 -Konzentration zeigten sich sehr variabel und standortabhängig. Hier sind weitere Untersuchungen, vor allem im Hinblick auf das Zusammenspiel der Einzelkomponenten nötig.

Mit $0,44 \text{ g Tier}^{-1} \text{ Tag}^{-1}$ wurde während der Wintermessung aus dem untersuchten Legehennenstall deutlich mehr NH_3 emittiert als mit $0,18 \text{ g Tier}^{-1} \text{ Tag}^{-1}$ während der Sommermessung. Im jährlichen Mittel wurde ein Emissionsfaktor von $103,52 \text{ g Tier}^{-1}$ für diesen Stall ermittelt, der unter den in der Literatur genannten Werten liegt.

Die untersuchten Haltungssysteme weisen höhere NH_3 -Emissionen auf als konventionelle Systeme. Durch die erhöhte Bereitstellung des Vorläufergases NH_3 können die Partikelbildung in der Atmosphäre gefördert und die regionale Feinstaubbelastung erhöht werden.

Die analysierten Partikelgrößenverteilungen zeigten charakteristische Formen in Bezug auf den Standort des Messsystems (städtisch oder Tierhaltung). In den Anlagen zur Nutztierhaltung konnte eine Erhöhung der Partikelanzahl in den Größenklassen bis 200 nm detektiert werden. Die chemische Analyse der Staubproben zeigte eine deutliche Erhöhung der Bestandteile von Sekundärpartikeln in den Betrieben mit Tierhaltung und im städtischen Bereich. An ländlichen Standorten ohne Tierhaltung wurden wesentlich geringere Konzentrationen detektiert. Diese Ergebnisse lassen vermuten, dass eine Partikelbildung auch schon an der Quelle auftritt und nicht ausschließlich im Ferntransport. Die Bildungs- und Wachstumsbedingungen müssen in weiteren Forschungsarbeit noch genau determiniert werden.

Die gewonnenen Daten zur NH_3 -Emission aus den, noch unzureichend untersuchten, aktuellen Haltungsverfahren stellen eine Ergänzung zu vorhandenen Datenbanken, z. B. des KTBL und des sächsischen Landesamtes für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie, dar. Zahlen über die Tierbestände werden auf Bundeslandebene von den betreffenden Landesämtern (z.B. RHESE und SCHMITZ, 2008 für Nordrhein-Westfalen) oder vom Statistischen Bundesamt herausgegeben und regelmäßig aktualisiert. In Prognosemodellen können Sie zur Vorhersage der Feinstaubbelastung auf regionaler Ebene dienen.

7 Schlussfolgerungen für die Umsetzung der Ergebnisse in die Praxis

Aus den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit lassen sich folgende Schlussfolgerungen für die Umsetzung in der Praxis und den Wissenstransfer ableiten.

Alle Maßnahmen mit dem primären Ziel der Verminderung von NH_3 -Emission aus Tierställen, tragen nachgeordnet auch zur Minderung der Sekundärpartikelbildung bei.

Zu den weniger kostenintensiven Maßnahmen im Produktionsmanagement gehören die eiweißangepasste Fütterung, die Erhöhung der Sauberkeit von Laufflächen, die Reduktion von Luftraten und die Vermeidung großer Wärmeeinträge in den Innenraum durch eine verbesserte Dämmung der Gebäude. Kostenintensive Maßnahmen, wie zum Beispiel der Einsatz von Urease-Inhibitoren oder die Abluftreinigung, haben deutlich höhere Minderungswirkungen.

Zwischen dem Interessen des Umweltschutzes und des Tierschutzes kommt es im Hinblick auf die Sekundärpartikelbildung zu einem Zielkonflikt. Gesteht man den Tieren weitere Aktivitätsflächen zu, werden die NH_3 -Emissionen und die Bildung von Sekundärpartikeln steigen.

Von einem Einfluss der Nutztierhaltung auf die Sekundärpartikelbildung ist auszugehen. Regional kann die Feinstaubbelastung, in Folge der höheren Bereitstellung des Vorläufergases NH_3 , bei großen Tierkonzentrationen erhöht werden. Durch Straßenverkehr und Industrie ist jedoch die Grundbelastung mit Feinstäuben ($\text{PM}_{2,5}$) in den Städten deutlich höher als in ländlichen Regionen. Vor allem von Rußpartikeln aus der Verbrennung von Treibstoffen gehen hier gesundheitsschädliche Wirkungen aus. Für Ammoniumsalze konnten derartige Wirkungen bislang nicht nachgewiesen werden.

Die NH_3 -Emissionsdatenbanken konnten durch die eigenen Untersuchungen erweitert werden. Zahlen zur NH_3 -Emission und aktuelle Daten zu Tierbeständen können für die Simulations- und Prognosemodelle der Atmosphärenphysik zur Verfügung gestellt werden. Umfassende Angaben zur NH_3 -Emission und zu Tierzahlen liefern z.B. Veröffentlichungen des KTBL, des Sächsischen Landesamtes für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie, REHSE und SCHMITZ (2008) für Nordrhein-Westfalen sowie das statistische Bundesamt.

8 Literaturverzeichnis

33. BIMSCHV (2004): Verordnung zur Verminderung von Sommersmog, Versauerung und Nährstoffeinträgen. Dreiunddreißigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes vom 13. Juli 2004 (aufgehoben).
39. BIMSCHV (2010): Verordnung über Luftqualitätsstandards und Emissionshöchstmengen. Neununddreißigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes vom 2. August 2010.
- AARNIK, A.J.A. (1997): Ammonia emission from houses for growing pigs as affected by pen design, indoor climate and behaviour. Dissertation, Wageningen.
- ACHILLES, W.; FÖLSCH, D.W., FREIBERGER, M.; GOLZE, M.; HAIDN, B.; HILLER, P.; HÖRNING, B., JANZEN, A.; KLEMM, R.; LEOPOLD, A.; NAJATI, M., TREI, G.; VAN DEN WEGHE, H. UND VAN DEN WEGHE, S. (2002): Tiergerechte und umweltverträgliche Legehennenhaltung – BMVEL-Modellvorhaben. KTBL-Schrift 339. Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e. V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt.
- ADAM, T. (1973): Toleranzgrenzen für gasförmige Umweltfaktoren. Züchtungskunde 45 (3), 162-178.
- AL-MASHADDANI, E.H. UND BECK, M.M. (1985): Effect of atmospheric ammonia on the surface ultrastructure of the lung and trachea of broiler chicks. Poultry Science 64 (11), 2056-2061.
- AMON, B.; AMON, T. UND BOXBERGER, J. (1998): Untersuchung der Ammoniakemissionen in der Landwirtschaft Österreichs zur Ermittlung der Reduktionspotentiale und Reduktionsmöglichkeiten. Forschungsprojekt Nr. L883/94, Im Auftrag des Bundesministeriums für Land- und Forstwirtschaft, Hrsg. Universität für Bodenkultur, Institut für Land-, Umwelt und Energietechnik, Wien.
- ANGERSBACH-HEGER, S. (2002): Untersuchungen zur Emission und Verfrachtung luftgetragener Mikroorganismen von der Auslauffläche einer Legehennenfreilandhaltung. Dissertation, Hannover.
- AROGO, J.; ZHANG, R.H.; RISKOWSKI, G.L.; CHRISTIANSON, L.L. UND DAY, D.L. (1999): Mass transfer coefficient of ammonia in liquid swine manure and aqueous solutions. Journal of Agriculture Engineering Research 73, 77-86.
- ASMAN, W.A.H., SUTTON, M.A. UND SCHØRRING, J.K. (1998): Ammonia: emission, atmospheric transport and deposition. New Phytologist 139, 27-48.
- BAEK, B.H. UND ANEJA, V.P. (2004): Measurement and analysis of the relationship between ammonia, acid gases, and fine particles in Eastern North Carolina. Journal of the Air & Waste Management Association 54, 623-633.

- BAEK, B.H., ANEJA, V.P. UND QUASOMG, T. (2004): Chemical coupling between ammonia, acid gases, and fine particles. *Environmental Pollution* 129, 89-98.
- BALL, S.M.; HANSON, D.R.; EISELE, F.L. UND MCMURRY, P (1999): Laboratory studies of particle nucleation. Initial results for H₂SO₄, H₂O and NH₃ vapours. *Journal of Geophysical Research* 104 (23), 709-718.
- BARBER, E.M. UND OGLIVIE, J.R. (1982): Incomplete mixing ventilated airspaces, part I. - Theoretical considerations. *Canadian Agricultural Engineering* 24 (1), 25-29.
- BAUER, S. (2006): Partikelneubildung und Wachstum ultrafeiner Partikel in Peking, China. Diplomarbeit im Fach Meteorologie, Universität Leipzig, Fakultät für Physik und Geowissenschaften.
- BAYLFU - BAYERISCHES LANDESAMT FÜR UMWELTSCHUTZ (2004): Ammoniak und Ammonium. URL: <http://www.lfu.bayern.de/umweltwissen/luft/index.html> (25.02.2010).
- BDU-BERATERGRUPPE BODEN DÜNGUNG UMWELT UND LBL-LANDWIRTSCHAFTLICHE BERATUNGSZENTRALE (2005): Ammoniakverluste aus der Landwirtschaft. *UFA-Revue* 5/2005.
- BERCKMANN, D.; VANDENBROECK, P. UND GROEDSEELS, V. (1991): Sensors for continuous measurements of the ventilation rate in livestock buildings. *Indoor Air* 3, 323-336.
- BIGANZOLI, K., BULLINGER, M., KLINK, J., DUTZI, R. UND LUMPP, R. (2007): Messverfahren für Ammoniak in der Außenluft. Validierung von Langzeitdenudern und Passivsammlern. VDI, Braunschweig.
- BIGDUTCHMAN (2009): NATURA - Das moderne Volierensystem für Legehennen in Boden- und Freilandhaltung.
- BLANES, V. UND PEDERSEN, S. (2005): Ventilation flow in pig houses measured and calculated by carbon dioxide, moisture and heat balance equations. *Biosystems Engineering* 92 (4), 483-493.
- BOBBINK, R.; BOXMAN, D.; FREMSTAD, E.; HEIL, G., HOUDIJK, A., ROELOFS, J. (1992): Critical loads from nitrogen eutrophication of terrestrial and wetland ecosystems based upon changes in vegetation and fauna. In: Grennfelt, P. und Thörnclöf, E. (Hrsg.) *Critical loads for nitrogen*, Report Nord 1992:41, Nordic Council of Copenhagen, Dänemark.
- BOUWMAN, A. (1996): Direct emission of nitrous oxide from agricultural soils. *Nutrient Cycling in Agroecosystems* 46, 53-70.
- BOUWMAN, A.F.; LEE, D.S.; ASMAN, W.A.H.; DENTENER, F.J.; VAN DER HOEK, K.W. UND OLIVIER, J.G.J. (1997): A global high-resolution emission inventory for ammonia. *Global Biochemical Cycles* 11, 561-587.

- BRAAM, C.R.; KETELAARS, J.J.M.H. UND SMITS, M.C.J. (1997): Effect of floor design and floor cleaning on ammonia emission from cubicle houses for dairy cows. *Netherlands Journal of Agricultural Science* 45, 49-64.
- BREHME, G. (2000): Quantifizierung des Luftvolumenstromes in frei gelüfteten Rinderställen mit Hilfe der Kompartimentierungsmethode zur Bestimmung umweltrelevanter Massenströme. Dissertation, Göttingen, VDI-MEG-Schrift 365.
- BREHME, G. (2001): Örtliche und zeitliche Probennahme. In: Messmethoden für Ammoniakemissionen. KTBL-Schrift 401, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 26-36.
- BROSE, G. (2000): Emissionen von klimarelevanten Gasen, Ammoniak und Geruch aus einem Milchviehstall mit Schwerkraftlüftung. Dissertation, Hohenheim, VDI-MEG-Schrift 362.
- BRUNSCH, R. UND MÜLLER, H.-J. (2005): Emissionsfaktoren der Geflügelhaltung und deren Dynamik. *Agrartechnische Forschung* 11 (3), 18-28.
- BURKHARDT, J.M; KOCH, K. UND KAISER, H. (2001): Deliquescence of deposited atmospheric particles on leaf surfaces. *Water, Air and Soil Pollution: Focus* 1, 313-321.
- BÜSCHER, W.; NESER, S. UND GRONAUER, A. (2001): Messmethoden zur Luftvolumenstromermittlung in zwangsbelüfteten Ställen. In: Messmethoden für Ammoniakemissionen. KTBL-Schrift 401, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 110-121.
- BÜSCHER, W. UND FROSCH, W. (2001): Erfahrungen mit Messventilatoren zu Luftvolumenstrombestimmung. *Landtechnik* 56, 96-97.
- CHANG, Y.S.; CARMICHAEL, G.R.; KURITA, H. UND UEDA, H. (1986): An investigation of the formation of ambient NH_4NO_3 aerosol. *Atmospheric Environment* 20, 1969-1977.
- CHARLSON, R.J.; SCHWARTZ, S.E.; HALES, J.M.; CESS, R.D.; COAKLEY, J.A.; HANSEN, J.E. UND HOFMANN, D.J. (1992): Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science* 255, 423-430.
- CIGR (2002): Climatization of animal houses. Fourth report of working group.
- COFFMANN, D.J. UND HEGG, D.A. (1995): A preliminary study of the effect of ammonia on particle nucleation in the marine boundary layer. *Journal of Geophysical Research* 100, 7147-7169.
- COLBECK, I. (1995): Particle emissions from outdoor and indoor sources. In: Airborne particulate matter. Kouimitzi, T. und Samara, C. (Hrsg.), Volume 4, Part D, Springer Berlin, 1-34.

- DÄMMGEN, U. (2001a): Konzentrationsbestimmungen mit Denudern. In: Messmethoden für Ammoniakemissionen. KTBL-Schrift 401, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 49-59.
- DÄMMGEN, U. (2001b): Messung mittlerer Ammoniak-Konzentrationen mit Passiv-Sammlern. In: Messmethoden für Ammoniakemissionen. KTBL-Schrift 401, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 61-68.
- DÄMMGEN, U. UND ERISMAN, J.W. (2001): Transmission und Deposition von Ammoniak und Ammonium. In: Emissionen der Tierhaltung – Grundlagen, Wirkungen, Maßnahmen. KTBL/UBA Symposium 3.-5. Dezember 2001 Bildungszentrum Kloster Banz, KTBL-Schrift 406, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 50-62.
- DÄMMGEN, U. UND SUTTON, M.A. (2001): Die Umwelt-Wirkungen von Ammoniak-Emissionen. KTBL-Schrift 402, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 14-25.
- DÄMMGEN, U.; LÜTTICH, M.; HÄNEL, H.-D.; DÖHLER, D.; EURICH-MENDEN, B. UND OSTERBURG, B. (2006): Landwirtschaftliche Emissionsinventare in Deutschland. In: Emissionen in der Tierhaltung. KTBL-Schrift 449, , Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 24-36.
- DEATON, J.W.; REECE, F.N. UND LOTT, B.D. (1982): Effect of atmospheric ammonia on laying hen performance. Poultry Science 61 (9), 1815-1817.
- DEKOCK, J.; CLAES, S.; CNOCKAERT, H.; VRANKEN, E.; BART, S. UND BERCKMANS, D. (2004): Estimation of Ammonia emissions from poultry housing systems. Proceedings of AgEng 2004: engineering the future, 12-16.09.2004 Kuleuven, Belgien.
- DEMMERS, T.G.M.; BURGESS, L.R.; SHORT, J.L.; PHILLIPS, V.R.; CLARK, J.A. UND WHATES, C.M. (1998): First experiences with methods to measure ammonia emission from naturally ventilated cattle buildings in the U.K. Atmospheric Environment (Ammonia Special Issue) 32, 285-293.
- DEMMERS, T.G.M.; BURGESS, L.R.; PHILLIPS, V.R.; CLARK, J.A. UND WHATES, C.M. (2000): Assessment of techniques for measuring the ventilation rate, using an experimental building section. Journal of Agricultural Engineering Research 76, 71-81.
- DEMMERS, T.G.M.; PHILLIPS, V.R.; SHORT, L.S.; BURGESS, L.R.; HOXEY, R.P. UND WATHES, C.M. (2001): Validation of ventilation rate measurement methods and the ammonia emission from naturally ventilated dairy and beef buildings in the United Kingdom. Journal of Agricultural Engineering Research 79 (1), 107-116.
- DFG-DEUTSCHE FORSCHUNGSGEMEINSCHAFT (1986): MAK-Begründung Ammoniak. Deutsche Forschungsgemeinschaft, Senatskommission zur Prüfung gesundheitsschädlicher Arbeitsstoffe, Wiley-VDH Verlag, Weinheim.

- DFG - DEUTSCHE FORSCHUNGSGEMEINSCHAFT (2011): MAK und BAT-Werte Liste 2011. Deutsche Forschungsgemeinschaft, Senatskommission zur Prüfung gesundheitsschädlicher Arbeitsstoffe, Mitteilung 47, Wiley-VCH-Verlag GmbH & Co. KGaA..
- DIN EN 481 (1993): Arbeitsplatzatmosphäre; Festlegung der Teilchengrößenverteilung zur Messung luftgetragener Partikel. VDI Verein Deutscher Ingenieure, Beuth-Verlag, Berlin.
- DIN ISO 7708 (1995): Luftbeschaffenheit – Festlegung von Partikelgrößenverteilungen für die gesundheitsbezogene Staubprobenahme. VDI Verein Deutscher Ingenieure, Beuth-Verlag, Berlin.
- DOCKERY, D.W.; POPE, C.A.; XU, X.; SPENGLER, J.D.; WARE, J.H.; FAY, M.E.; FERRIS, B.G. UND SPEIZER, F.E. (1993): An association between air pollution and mortality in six U.S. cities. *New England Journal of Medicine* 329, 1753-1759.
- DÖHLER, H.; DÄMMGEN, U.; EURICH-MENDEN, B.; OSTERBURG, B.; LÜTTICH, M.; BERG, W.; BERGSCHMIDT, A. UND BRUNSCH, R. (2002): Anpassung der deutschen Methodik zur rechnerischen Emissionsermittlung an internationale Richtlinien sowie Erfassung und Prognose der Ammoniak-Emissionen der deutschen Landwirtschaft und Szenarien zur Minderung bis zum Jahre 2010. *BMVEL/UBA (Hrsg.), UBA-Texte 5/2002*.
- DONALDSON, K.; STONE, V.; CLOUTER, A.; RENWICK, L. UND MACNEE, W. (2001): Ultrafine Particles. *Journal of Occupational and Environmental Medicine* 58, 211-261.
- DONHAM, K. UND CUMBRO, D. (1999): Setting maximum dust exposure levels for people and animals in livestock facilities. In: *Proceedings of the international symposium on Dust Control in animal Production facilities, Aarhus 5/6 1999*, 93-110.
- DRÄGER SAFETY AG UND CO. KGAA (2008): Dräger-Röhrchen und CMS Handbuch. Boden-, Wasser- und Luftuntersuchungen sowie technische Gasanalyse. 15. Ausgabe, Lübeck.
- DRECHSLER, S.; AHRENS, D.; LUMPP, R.; HOLST, T. UND UHRNER, U. (2006): Hohe Feinstaubbelastungen in Folge sekundärer Aerosolbildung. *Immissionsschutz* 2/2006, 56-62.
- DÜNGEMITTELVERORDNUNG (2008): Verordnung über das Inverkehrbringen von Düngemitteln, Bodenhilfsstoffen, Kultursubstraten und Pflanzenhilfsmitteln (Düngemittelverordnung–DüMV) vom 16.12.2008.
- ELZING, A. UND MONTENY, G.-J. (1997): Modelling and experimental determination of ammonia emission rates from a scale model dairy cow house. *Transactions of the ASAE* 40, 721-726.
- ERISMAN, J.W. UND SCHAAP, M. (2003): The need for ammonia abatement with respect to secondary PM reduction in Europe. *Environmental Pollution* 129, 159-163.

- EURICH-MENDEN, B.; DÖHLER, H. UND VAN DEN WEGHE, H. (2010): Ammoniakemissionsfaktoren im landwirtschaftlichen Emissionsinventar – Teil 1: Milchvieh. *Landtechnik* 65 (6), 434-436.
- EURICH-MENDEN, B.; DÖHLER, H. UND VAN DEN WEGHE, H. (2011): Ammoniakemissionsfaktoren im landwirtschaftlichen Emissionsinventar – Teil 2: Geflügel und Mastschweine. *Landtechnik* 66 (1), 60-63.
- FANGMEIER, A.; HADWIGER-FANGMEIER, A.; VAN DER EERDEN, L. UND JÄGER, H.-G. (1994): Effects of atmospheric ammonia on vegetation – a review. *Environmental Pollution* 86, 43-82.
- FABBRI, C.; VALLI, L.; GUARINO, M.; COSTA, A. UND MAZZOTTA, V. (2007): Ammonia, methane, nitrous oxide and particulate matter emissions from two different buildings for laying hens. *Biosystems Engineering* 97, 441-455.
- FINLAYSON-PITTS, B.J. UND PITTS, J.N. (1986): *Atmospheric Chemistry: Fundamentals and Experimental Techniques*. Wiley-Verlag, New York.
- GAGNE, S.; KURTÉN, T.; NIEMINEN, T.; BOY, M.; PETÄJÄ, T.; LAAKSO, L. UND KULMALA, M. (2009): Factors influencing the ion-induced nucleation in a Finnish boreal forest. *European Aerosol Conference 2009, Karlsruhe, Abstract T041A05*.
- GARDIN, P. UND FONTAINE, J.R. (1990): General ventilation characterisation. In: *Roomvent '90, Engineering aero- and thermodynamics of ventilated room. Second International Conference, 13.-15.06.1990, Oslo, Norwegen*.
- GOLZ, U. (2004): Funktionsprinzip eines Aerosolspektrometers. *Grimm Aerosoltechnik GmbH, Ainring*.
- GREMLICH, H.-U. UND GÜNZLER, H. (2003): *IR-Spektroskopie: Eine Einführung*. 4. Auflage, Wiley-VCH-Verlag.
- GRIMM, E. (2001): Prüfröhrchen. In: *Messmethoden für Ammoniakemissionen. KTBL-Schrift 401, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 69-72*.
- GRONAUER, A. (2001) Ammoniak-Emissionen der Geflügelhaltung und Minderungsmaßnahmen. In: *Emissionen der Tierhaltung – Grundlagen, Wirkungen, Minderungsmaßnahmen, KTBL-Schrift 406, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 94-105*.
- GROOT KOERKAMP, P.W.G. (1994): Review on emissions of ammonia from housing systems for laying hens in relation to source, process, building design and manure handling. *Journal of Agricultural Engineering Research* 59, 73-87.

- GROOT KOERKAMP, P.W.G.; METZ, J.H.M.; UENK, G.H.; PHILLIPS, V.R.; HOLDEN, M.R.; SNEATH, R.W.; SHORT, J.L.; WHITE, R.P.; HARTUNG, J.; SEEDORF, J.; SCHRÖDER, M.; LINKERT, K.H.; PEDERSEN, S.; TAKAI, H.; JOHRSEN, J.O. UND WHATES, C.W. (1998a): Concentrations and Emissions of Ammonia in Livestock Buildings in Northern Europe. *Journal of Agricultural Engineering Research* 70, 79-95.
- GROOT KOERKAMP, P.W.G. (1998b): Ammonia emissions from aviary housing systems for laying hens - inventory, characteristics and solutions. Dissertation, Wageningen, IMAG-DLO.
- GUARINO, M.; FABBRI, C.; NAVAROTTO, P.; VALLI, L.; MOSCATELLI, G.; ROSETTI, M. UND MAZOTTA, V. (2003): Ammonia, Methane and nitrous oxide emissions and particulate matter concentrations in two different buildings for fattening pigs. In: *International Symposium on Gaseous and Odour Emissions from Animal Production Facilities*, 1.-4. Juni 2003 in Horsens, Dänemark, 140-149.
- HAHN, J.-U. UND MÖHLEMANN, C. (2011): Neuer A-Staub-Grenzwert – Aspekte für dessen Anwendung. *Gefahrstoffe – Reinhaltung der Luft* 71 (10), 429-432.
- HAHNE, J.; HESSE, D. UND VORLOP, K.D. (1999): Spurengasemissionen aus der Mastschweinehaltung. *Landtechnik* 3, 190-181.
- HAINSCH UND NEUBAUER (2004): Feinstaubimmissionen in Mecklenburg-Vorpommern. *Materialien zur Umwelt, Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie Mecklenburg-Vorpommern (Hrsg.), Güstrow*.
- HAMED, A.; KORHONEN, H.; SITHO, S.L.; JOUTSENSAARI, J.; JÄRVINEN, H.; LEHTINEN, K.E.J.; KULMALA, M. UND LAAKSONEN, A. (2009): Why does high relative humidity suppress continental nucleation events? *European Aerosol Conference 2009, Karlsruhe, Abstract T041A07*.
- HARTUNG, J. (1990): Wirkungen von Ammoniak auf Nutztiere. In: *Ammoniak in der Umwelt. Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 14.1.-14.11*.
- HARTUNG, E. (1995): Entwicklung einer Messmethode und Grundlagenuntersuchung zur Ammoniakfreisetzung aus Flüssigmist. Dissertation, Hohenheim, VDI-MEG-Schrift 275.
- HARTUNG, E. UND BÜSCHER, W. (1995): Ammoniak-Einflussfaktoren auf den Stoffübergang aus Flüssigmist. *Landtechnik* 3, 164-165.
- HARTUNG, E. (2001): Ammoniak-Emissionen der Rinderhaltung und Minderungsmaßnahmen. In: *Emissionen der Tierhaltung – Grundlagen, Wirkungen, Minderungsmaßnahmen, KTBL-Schrift 406, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 63-72*.

- HEIDENREICH, T.; LIPPMANN, J.; HÖFERTH, C. UND WANKA, U. (2008): Quantifizierung von Emissionen aus der Rinderhaltung. Schriftenreihe des Landesamtes für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie, Heft 33/2008.
- HEJ, G.J. UND ERISMAN, J.W. (1997): Research into acid atmospheric deposition and its effects on terrestrial ecosystems in the Netherlands. Elsevier Science B.V., Amsterdam.
- HENSELER-PABMANN, J. (2010): Untersuchungen zur Emission und Transmission von Feinstäuben aus der Rinderhaltung. Dissertation, Bonn, VDI-MEG-Schrift 490.
- HINDS, W.C. (1999): Aerosol technology. Properties, behaviour and measurement of airborne particles. 2. Auflage, John Wiley & Sons.
- HINZ, T.; KRAUSE, K.H. UND MÜLLER, H.J. (1995): Luftwechselraten in Louisiana-Ställen. Landtechnik 51 (4), 232-233.
- HINZ, T. UND SCHRÖDER, O. (2001): Optoakustisches-IR-Spektrometer. In: Messmethoden für Ammoniakemissionen. KTBL-Schrift 401, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 73-76.
- HINZ, T.; WINTER, T. UND LINKE, S. (2010): Luftfremde Stoffe in und aus verschiedenen Haltungssystemen für Legehennen - Teil 1: Ammoniak. Landbauforschung-vTI Agriculture and Forestry Research 3/2010, 60, 139-150.
- HOBBS, P.V. (1999): Effects of aerosol on the clouds radiation. In: Browning; K.A. und Gurney, R.S. (Hrsg.) Global energy and water cycles, 91-98.
- HÖLSCHER, R. (2006): Nachrüstlösungen zur Emissionsminderung dezentral entlüfteter Stallungen zur Schweinemast. Dissertation, Bonn, VDI-MEG.Schrift 446.
- HONGWEI, X.; DE SHAZER, J.A. UND BECK, M.M. (1987): Post effect of ammonia on energetics of laying hens at high temperatures. Transactions of the ASABE 30 (4), 1121-1125.
- HÖRNIG, G.; BRUNSCH, R.; STOLLBERG, U.; JELINEK, A.; PLIVA, P. UND ČEŠPIVA, M (2001): Ammonia, Methane and Carbon Dioxide Emissions from laying hens kept in battery cages and aviary systems. In: Proceedings of the 2nd Agricultural Engineering Conference of Central and East European Countries. Prag, 2001, 36-42.
- HOY, S. (1998): Nur etwas Staub und sonst nichts? DGS Spezial, August 1998, 27-30.
- HUNTZICKER, J.J.; CARRY, R.A. UND LING, C.S. (1980): Neutralisation of sulphuric acid aerosol by ammonia. Environmental Science and Technology 14, 819-824.
- IFA-INSTITUT FÜR ARBEITSSCHUTZ DER DEUTSCHEN GESETZLICHEN UNFALLVERSICHERUNG (2011): Eintrag zu Ammoniak, GESTIS Stoffdatenbank URL: <http://biade.itrust.de/biade/lpext.dll?f=templates&fn=main-hit-h.htm&2.0> (14.04.2011).

- IHLE, P. (Hrsg.) (2001): Atmosphärische Depositionen. Schriftenreihe des Institute für Energetik und Umwelt, Leipzig, Verlag Teubner, Stuttgart, Leipzig, Wiesbaden.
- ISERMANN, K. (1994): Ammoniak-Emissionen der Landwirtschaft, ihre Auswirkungen auf die Umwelt und Ursachenorientierte Lösungsansätze sowie Lösungsaussichten zur hinreichenden Minderung. In: Studienprogramm Landwirtschaft, Band 1. Landwirtschaft. Enquête-Kommission Schutz der Erdatmosphäre des Deutschen Bundestages, Economica Verlag GmbH (Hrsg.), Bonn.
- IVU-RICHTLINIE (2010): Richtlinie 2010/75/EU des Europäischen Parlaments und des Rates vom 24. November 2010 über Industrieemissionen (integrierte Vermeidung und Verminderung von Umweltverschmutzung), Neufassung.
- JAENICKE, R. (1998): Atmospheric size distribution. In: Harrison, R.M und Van Grieken, R. (Hrsg.) Atmospheric Particles, 1-29.
- JARNICH, V.S. (1976): Aerosole in der Veterinärmedizin. VEB, Deutscher Landwirtschaftsverlag.
- JUNGBLUTH T. UND BÜSCHER, W. (1996): Reduzierung der Ammoniakemissionen aus Stallanlagen – Bewertung von Maßnahmen. KTBL-Arbeitspapier 233, Darmstadt.
- KAISER, E.; EILAND, F.; GERMAN, J.; HEINEMEYER, O.; HENAULT, C.; LIND, A.; MAAG, M. UND SAGUER, E. (1996): What predicts nitrous oxide emissions and denitrification N-loss from european soils? Zeitschrift für Pflanzenernährung und Bodenkunde 159, 541-547.
- KIEHL, J.T. UND BRIEGLEB, B.P. (1993): The relative roles of sulfate aerosols and greenhouse gases in climate forcing. Science 260, 311-314.
- KIRCHGESSNER, M. (1997): Tierernährung: Leitfaden für Studium, Beratung und Praxis. 10. Auflage, DLG-Verlag, Frankfurt (M).
- KITTELSON, D.B. (1998): Engines and Nanoparticle, A Review. Journal of Aerosol Science 29, 575-588.
- KORHONEN, P.; KULMALA, M.; LAAKSONEN, A.; VILISANEN, Y.; MCGRAW, R. UND SEINFELD, J.H. (1999): Ternary nucleation of H₂SO₄, NH₃ and H₂O in the atmosphere. Journal of Geophysical Research. 104 (26), 349-353.
- KOUTRAKIS, P.; THOMPSON, K.M.; WOLFSON, J.M.; SPENGLER, J.D.; KEELER, G.J. UND SLATER, J.L. (1992): Determination of aerosol strong acidity losses due to interactions of collected particles: results from laboratory and field studies. Atmospheric Environment 26A, 987-995.
- KRAUSE, K.-H. UND LINKE, S. (2005): Emissionsfaktoren - tierplatz- und tiermassebezogen. Landtechnik 60 (5), 296.

- KRESSE, A. UND BÜSCHER W. (2008): Minderung von Geruchs-, Ammoniak- und Methanemissionen aus Ställen mit Flüssigmistmischung durch Flüssigmistbelüftung, Unterflurabsaugung und Abluftwäsche. Landwirtschaftliche Fakultät der Universität Bonn, Schriftenreihe des Lehr- und Forschungsschwerpunktes USL, Nr. 155.
- KROODSMA, W.; HUIS IN 'T VELD, J.W.H. UND SCHOLTENS, R. (1993): Ammonia emissions and its reduction from cubicle houses by flushing. *Livestock Production Science* 35, 290-302.
- KROODSMA, W. UND OGINK, N.W.M. (1997): Volatile emissions from cubicle houses and its reduction by immersion of the slats with acidified slurry. Ammonia and odour control from animal production facilities. *Proceedings of the International Symposium, Vinkeloord, Niederlande, 6.-10.10.1997*, 475-483.
- KRUPA, S.V. (2003): Effects of atmospheric ammonia (NH₃) on terrestrial vegetation: a review. *Environmental Pollution* 124, 179-221.
- KTBL-KURATORIUM FÜR TECHNIK UND BAUWESEN IN DER LANDWIRTSCHAFT E.V. (Hrsg.) (2005): *Faustzahlen für die Landwirtschaft*. 13. Auflage, Darmstadt.
- KTBL-KURATORIUM FÜR TECHNIK UND BAUWESEN IN DER LANDWIRTSCHAFT E.V. (Hrsg.) (2006): *Nationaler Bewertungsrahmen Tierhaltungsverfahren*. KTBL-Schrift 446, Darmstadt.
- KULMALA, M.; LAAKSONEN, A. UND PIJOLA, L. (1998): Parameterization of sulphuric acid/water nucleation rates. *Journal of Geophysical Research* 103, 8301-8308.
- KULMALA, M.; KORHONEN, P.; NAPARI, I.; KARLSOSON, A., BERRESHEIMEIM, H. UND O'DOWD, C.D. (2002): Aerosol formation during PARFORCE: Ternary nucleation of H₂SO₄, NH₃ und H₂O. *Journal of Geophysical Research* 107 (D19), 15-1 – 15-11.
- KULMALA, M. (2003): How particles nucleate and grow. *Science* 302, 1000-1001.
- KULMALA, M.; VEHKAMÄKI, H.; PETÄJÄ, T.; DAL MASO, M.; LAURI, A.; KERMINEN, V.-M.; BIRMILLI, W. UND MCMURRY, P.H. (2004): Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations. *Journal of Aerosol Science* 35 (2), 143-176.
- LAI-LÄNDERAUSSCHUSS FÜR IMMISSIONSSCHUTZ (Hrsg.) (1995): *Bewertung von Ammoniak- und Ammonium-Immissionen: Bericht des Unterausschusses „Wirkungsfragen“ des LAI, vom LAI verabschiedet in seiner 89. Sitzung vom 25.-27.10.1995 im Mainz*. Erich Schmidt Verlag, Berlin.
- LAMMEL, G.; SCHNEIDER, F.; BRÜGGEMANN, E.; GNAUK, T.; RÖHRL, A. UND WIESER, P. (2004): Aerosols emitted from a livestock farm in southern germany. *Water Air and Soil Pollution* 154, 313-330.

- LENZ, H.P. UND COZZARINI, C. (1998): Emission und Luftqualität. VDI-Forschungsberichtreihe 12, Nr. 356, VDI-Verlag, Düsseldorf.
- LF L-BAYERISCHE LANDESANSTALT FÜR LANDWIRTSCHAFT (Hrsg.) (2004): Evaluierung alternativer Haltungsformen für Legehennen. Schriftenreihe der Bayerischen Landesanstalt für Landwirtschaft, 9. Jahrgang, Heft 8.
- LINDBERG, S.E.; BREDEMEIER, M.; SCHAEFFER, D.A. UND QI, L. (1990): Atmospheric concentrations and deposition of nitrogen and major ions in continental forests in the Unites States and Federal Republic of Germany. *Atmospheric Environment* 24 (8), 2207-2220.
- LOEHR, R.C. (1984): *Pollution Control for Agriculture*. 2. Auflage, Academic Press, Orlando, Florida.
- LOHMEYER, A.; BÄCHLIN, E.; KUHMBUSCH, T.; DREISEIDLER, A.; BAUMBACH, G.; GIESEN, K.-P.; MÜLLER, W.J.; KLASMEIER, E.; SCHMIDT, H. (2003): Aerosolbudget in einem landwirtschaftlich geprägten Gebiet in Niedersachsen. 3. Materialienband für Maßnahmen nach der EU-Richtlinie zur Luftqualität, Im Auftrag des Niedersächsischen Landesamt für Ökologie NLO, Hannover.
- LUBW-LANDESANSTALT FÜR UMWELT, MESSUNGEN UND NATURSCHUTZ BADEN-WÜRTTEMBERG (Hrsg.) (2008): *Ammoniak in der Umwelt*. 1.Auflage.
- LUMASSENSE TECHNOLOGIES (2010): Photoacoustic Gas Monitor INNOVA 1412. URL.: <http://lumasenseinc.com/DE/produkte/gasueberwachung/gasueberwachung-887/photoacoustic-gas-monitor-innova-1412.html> (15.03.2010).
- MAHMOUD-YASIN, N. (2006): *Measuring Aerosol Particle Emission from Swine and Poultry using Wide Range SMPS and OPC*. Masterarbeit, TU München.
- MAKKONEN, R.; ASMI, A.; KERMINEN, V.-M.; AMETH, A.; HARI, P. UND KULMALA, M. (2009): New Particle formation in past, present and future conditions. European Aerosol Conference 2009, Karlsruhe, Abstract T034A05.
- MANNEBECK, H. UND OLDENBURG, J. (1991): Comparison of the effects of different systems on ammonia emissions. In: *Odour and ammonia emissions from livestock farming*. Nielsen, V.; Voorburg, J. und L'Hemite, P. (Hrsg.), Elsevier Applied Science, London und New York, 42-49.
- MATSUMOTO, K. UND TANAKA, H. (1996): Formation and dissociation of atmospheric nitrate and chloride: an approach based on phase equilibrium. *Atmospheric Environment* 30, 639-648.
- MCMURRY, P.H.; TAKANO, H. UND ANDERSON, G.R. (1983): Study of the ammonia (gas) – sulphuric acid (aerosol) reaction rate. *Environmental Science & Technology* 17 (6), 347-352.

- MEHLHORN, G. (1979): Lehrbuch der Tierhygiene, Bd. 1, Gustav Fischer Verlag, Jena.
- MEISSNER, P. (2004): Analyse und Bewertung des Emissionsverhaltens eines einstreulosen Mastschweinstalles mit Spülmistung im Vergleich zur Güllelagerung im Stall. Dissertation, Göttingen, VDI-MEG-Schrift 425.
- MITCHELL, J.P. (1995): Particle Size Analysers: Practical procedures and laboratory techniques. In: Bioaerosol Handbook, Cox, C.S. und Wathes, C.M. (Hrsg.), CRC Press, Boca Raton, Florida, USA, 5-14.
- MOISER, A. (1994): Nitrous oxide emission from agricultural soils. Fertilizer Research 37, 191-200.
- MÖLLER, D. (2003): Luft. Verlag Walter de Gruyter, Berlin, New York.
- MORGAN, G.; CORBETT, S.; WLODARCZYK, J UND LEWIS, P. (1998): Air Pollution and daily mortality in Sidney, Australia, 1989 through 1993. American Journal of Public Health 88, 759-764.
- MONTENY, G.-J. UND ERISMAN, J.W. (1998): Ammonia emissions from dairy cow buildings: a review of measurement techniques, influencing factors and possibilities for reduction. Netherlands Journal of Agricultural Science 46, 225-227.
- MONTENY, G.-J. (2000): Modelling of Ammonia emissions from dairy cow houses. Dissertation, Wageningen, Niederlande.
- MÜLLER, H.-J.; KRAUSE, K.-H. UND ECKHOF, W. (1997): Emissions- und Immissionsverhalten von Geflügelställen. Landtechnik 2, 92-93.
- MÜLLER, H.-J. UND MÖLLER, B. (1998): Weiterentwickelte Luftwechselmesstechnik mit Tracer-Anwendung in Tierhaltungen. Landtechnik 53 (2), 326-327.
- MÜLLER, H.-J. (2001): Bilanzmethoden zur Luftvolumenstromermittlung in frei gelüfteten Ställen. In: Messmethoden für Ammoniakemissionen. KTBL-Schrift 401, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 122-133.
- MÜLLER, W. (2002): Skript zur Vorlesung mechanische Grundoperationen, SS 2002, Fachhochschule Düsseldorf, Fachbereich Maschinenbau und Verfahrenstechnik.
- MÜLLER, H.-J. (2003): Stallluftqualität und Emissionen - Untersuchungen in Legehennenställen mit verschiedenen Haltungssystemen. Landtechnik 3, 198-199.
- MÜLLER, H.-J. (2004): Gasemissionen aus Geflügelhaltungen - Langzeituntersuchungen. Landtechnik 59 (4), 230-231.

- NANNEN, C. (2007): Staubemissionen aus Schweineställen – Bestimmung von Einflussfaktoren auf die Partikelfreisetzung und deren Zusammensetzung. Dissertation, Bonn, VDI-MEG-Schrift 461.
- NAPARI, I.; NOPPEL, M.; VEHKAMÄKI, H. UND KULMALA, M. (2002): An improved model for ternary nucleation of sulfuric acid-ammonia-water. *Journal of Chemical Physics* 116 (10), 4221-4226.
- NEC-RICHTLINIE (2001): Directive of the European Parliament and the Council on National Emission Ceiling (NEC) for Certain Atmospheric Pollutants. EG-Richtlinie 2001/81/EG vom 23.10.2001.
- NESER, S. (2001): Gasförmige Emissionen aus Haltungssystemen für Legehennen. Dissertation, TU München.
- NESER, S.; RATTINGER, K.; SCHNEIDER, F. UND EICHSELER, R. (2006): Emissionen aus freigelüfteten Ställen – Entwicklung von Messmethoden und erste Ergebnisse aus Feldmessungen. In: *KTBL-Schrift 449: Emissionen in der Tierhaltung*. Bildungszentrum Kloster Banz 5.-7.06.2006, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), 115-137.
- NEUBERT, D. (2001): Gutachten zur Feinstaub-Expositionen (Außenluft) und Morbidität (Mortalität) - Zusammenstellung von Daten zur biologischen Wirkung von Sulfat-Aerosolen und Versuch einer medizinischen Risikoabschätzung. FU-Berlin.
- NGWABIE, N.M.; JEPSSON, J.-H., NIMMERMARK, S.; SWENSSON, C UND GUSTAFSSON, G. (2009): Multi-location measurements of greenhouse gases and emission rates of methane and ammonia from a naturally ventilated barn for dairy cows. *Biosystems Engineering* 103, 68-77.
- NIEBAUM, A. (2001): Quantifizierung gasförmiger Emissionen aus quergelüfteten Außenklimaställen für Mastschweine mithilfe der Tracergas-Technik. Dissertation, Göttingen, VDI-MEG-Schrift 370.
- ONYENENKE-EDWARDS, H.C. (2006): Measuring Aerosol Particle Emissions from Cattle using Wide Range SMPS and OPC. Masterarbeit, TU München.
- OOSTHOEK, J.; KROODSMA, W. UND HOEKSMÄ, P. (1990): Betriebliche Maßnahmen zur Minderung von Ammoniakemissionen. In: *Ammoniak in der Umwelt, Kreisläufe, Wirkungen und Minderungen*. Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.) Darmstadt, 29.1.-29.23.
- PEDERSEN, S.; TAKAI, H.; JOHNSON, J.O.; METZ, J.H.M.; GROOT KOERKAMP, P.W.G.; UENK, G.H.; PHILLIPS, V.R.; HOLDEN, M.R.; SNEATH, R.W.; SHORT, J.L.; WHITE, R.P.; HARTUNG, J.; SEEDORF, J.; SCHRÖDER, M.; LINKERT, K.H. UND WHATES, C.M. (1998): A comparison of three balance methods for calculating ventilation rates in livestock buildings. *Journal of Agricultural Engineering Research* 70 (1), 25-37.

- PEDERSEN, S.; MONTENY, G.; XIN, H. UND TAKAI, H. (2004): Progress in research into ammonia and greenhouse gas emissions from animal production facilities. Agricultural Engineering International: CIGR Journal of Scientific Research and Development. Invited overview Paper, Vol. VI August, 2004.
- PESCH, M. (2009): Kontinuierliche Messung der Partikelgrößenverteilung (wide range) am Hohenpreißenberg.
URL:http://www.analyticjournal.de/fachreports/grimm_nano_tubln_07_09/grimm_nano_pesch.pdf (24.06.2011).
- PETERSMANN, M. (2004): Vorlesungsunterlagen, Lehrstuhl für Partikeltechnologie und Partikeldesign, Universität Bochum.
- PINDER, R.W.; GILLILAND, A.B. UND DENNIS, R.L. (2006): The Impact of Winter NH₃ Emission Reductions on Inorganic Particulate Matter under Present and Future Regulated Conditions. Proceedings of the Workshop on Agricultural Air Quality, 5.-8. Juni, Maryland, USA, 348-349.
- PRO, C.A. UND HARRISON, R.M. (1987): Vapour pressure of ammonium chloride aerosols: effect of temperature and humidity. Atmospheric Environment 21, 2711-2715.
- RAATSCHEN, W. (1995): Tarcergasmessungen in der Gebäudetechnik. Gesundheitsingenieur 116, Heft 2, 78-87 und Heft 3, 129-138.
- RAES, F.; WILSON, J. UND VAN DINGENEN, R. (1995): Aerosol dynamics and its implication for the global aerosol climatology. In: Charson, R.J. und Heintzenberg, J. (Hrsg.): Aerosol forcing of Climate. Wiley, New York.
- RAES, F.; DINGENEN, R.V.; VIGNATI, E.; WILSON, J.; PUTAUD, J.-P.; SEINFELD, J.H. UND ADAMS, P. (2000): Formation and cycling of aerosols in the global troposphere. Atmospheric Environment, 34, 4215-4240.
- RHESE, P. UND SCHMITZ, S. (2008): Zahlen zur Landwirtschaft in Nordrhein-Westfalen. Landwirtschaftskammer Nordrhein-Westfalen (Hrsg.), Bonn.
- REIST, P.C. (1993): Aerosol Science and Technology. McGraw-Hill, Inc., USA, 2.Auflage.
- REMUS, R. (2000): Entstehung und Quellen der Feinstaub-Emissionen – Neue gesetzliche Regelungen für Feinstaub. In: Feinstaub – Die Situation in Deutschland nach der EU-Tochter-Richtlinie, Bericht über ein Symposium am 26. und 27. Juni 2000, Umweltbundesamt, WaBoLu 2/00, 99-108.
- RICHTLINIE 1999/30/EG des Rates vom 22. April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickdioxid und Stickoxide, Partikel und Blei in der Luft.
- ROELOFS, J.G.M.; KEMPERS, A.J.; HOUDIJK, A.L.F.M. UND JANSEN, J. (1985): The effect of airborne ammonium sulphate on *pinus nigra var. maritima* in The Netherlands. Plant and Soil 84, 45-56.

- ROM, H.B.; ZHANG, G.Q. UND WANG, V. (2004): Survey of ammonia emissions from naturally ventilated housing facilities for cattle. In: European Society of Agricultural Engineers. International Conference on Agricultural Engineering. 12-16.09.2004, Leuven, Belgien.
- ROSENTHAL, E. (2010): Verfahren zur Validierung von Feinstaubausbreitungsverfahren durch Einbringung fluoreszierender Tracerpartikel. Dissertation, Bonn.
- SAMER, M.; MÜLLER, H.-J.; FIEDLER, M.; AMMON, C.; GLÄSER, M.; BERG, W.; SANFTLEBEN, P. UND BRUNSCH, R. (2011): Developing the ^{85}Kr tracer gas technique for air exchange rate measurements in naturally ventilated animal buildings. Biosystems Engineering (2011), doi:10.1016/j.biosystemseng.2011.04.008.
- SCHAAP, M.; MÜLLER, K. UND TEN BRINK, H.M. (2002): Constructing the European aerosol nitrate concentration field from quality analysed data. Atmospheric Environment 36 (8), 1323-1335.
- SCHLESINGER, W.H. UND HARTLEY, A.E. (1992): A global budget for atmospheric NH_3 . Biochemistry 15, 191-211.
- SCHIEFLER, I., HENSELER-PABMANN, J., STANDKE, K. UND BÜSCHER, W. (2011): Langzeitmessung zum Ausstoß umwelttoxischer und klimarelevanter Gase aus einem frei gelüfteten Milchviehstall. Forum angewandte Forschung in der Rinder- und Schweinefütterung vom 06.-07.04.2011 in Fulda. Beiträge zur Veranstaltung, 21-24.
- SCHNEIDER, F.; EICHSELER, R. UND NESER, S. (2006): Emissionen aus frei belüfteten Ställen – Entwicklung von Messmethoden und Ergebnisse der Feldmessungen. Schriftenreihe der Bayerischen Landesanstalt für Landwirtschaft, 15/2006, 145-157.
- SCHNEIDER, T. (2006): Untersuchungen zur Partikelemission eines frei gelüfteten Putenstalls mit Hilfe der Tracergasmethode. Dissertation, Bonn, VDI-MEG-Schrift 439.
- SCHNEIDER, J. UND VOIGT, C. (2010): Vorlesungsunterlagen zum Fach: The physics and chemistry of aerosols and ice clouds. Universität Mainz, SS 2010, URL: <http://www3.mpch-mainz.mpg.de/~schneid/vorlesung/Aerosol/2010/index.html> (31.05.2010).
- SCHNELLE-KREIS, J.; SKLORZ, M.; HERRMANN, H. UND ZIMMERMANN, R. (2007): Atmosphärische Aerosole: Quellen, Vorkommen, Zusammensetzung. Chemie unserer Zeit 41, 200-210.
- SCHOLTENS, R. UND VAN'T OOSTER, C. (1994): Application of the carbon dioxide balance method to evaluate ventilation rates in livestock buildings. In: Proceedings of the XII World Congress on Agricultural Engineering, Milano, Italien, 1-13.
- SCHRADE, S. (2009): Ammoniak- und PM10-Emissionen im Laufstall für Milchvieh mit freier Lüftung und Laufhof anhand der Tracer-Ratio-Methode. Dissertation, Kiel, VDI-MEG-Schrift 483.

- SCHRÖDER, O.; DEPTA, G. UND KRAHL, J. (2001): FTIR-Spektroskopie (Langweggaszellen- und Offenpfad- Messung). In: Messmethoden für Ammoniakemissionen. KTBL-Schrift 401, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt, 77-85.
- SCOTT, W.D. UND CATTELL, F.C.R. (1979): Vapour pressure of ammonium sulphates. *Atmospheric Environment* 13, 307-317.
- SEEDORF, J. UND HARTUNG, J. (2002): Stäube und Mikroorganismen in der Tierhaltung. KTBL-Schrift 333, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.), Darmstadt.
- SEIDL, W.; BRUNNEMANN, G.; KINS, L.; KÖHLER, E.; REUSSWIG, K. UND DLUCGI, R (1996): On the ionic composition of aerosol particles and related gas phase species at two sites during the SANA 2 campaign. *Meteorologische Zeitschrift* 5, 257-268.
- SEINFELD, J.H. UND PANDIS, S.N. (1998): *Atmospheric Chemistry and Physics*. Wiley, New York.
- SEIPELT, F.; ROß, A.; STEFFENS, G. UND VAN DEN WEGHE, H. (1999): Quantifizierung gasförmiger Emissionen aus frei gelüfteten Milchviehställen mittels Tracergaseinsatz nach der Abklingmethode. 4. Tagung: Bau, Technik und Umwelt in der landwirtschaftlichen Nutztierhaltung, Institut für Landtechnik der TU München-Weihenstephan (Hrsg.), 69-74.
- SITHO, S.-L.; KULMALA, M.; KERMINEN, V.-M.; DAL MASO, M.; PETÄJÄ, T.; RÜPINEN, I.; KORHONEN, H.; ARNOLD, F.; JANSON, R.; BOY, M.; LAAKSONEN, A. UND LEHTINEN, K.E.J. (2006): Atmospheric sulphuric acid and aerosol formation: implications from atmospheric measurements for nucleation and early growth mechanisms. *Atmospheric Chemistry and Physics* 6, 4079-4091.
- SNELL, H.G.J.; SEIPELT, F. UND VAN DEN WEGHE, H.F.A. (2003): Ventilation rates and gaseous emissions from naturally ventilated dairy houses. *Biosystems Engineering* 86 (1), 67-73.
- SPIRIG, C. UND NEFTEL, A. (2006): Ammoniakemissionen aus der Landwirtschaft und Feinstaub. *AGRARForschung* 13 (9), 392-397.
- STANIER, C.O.; KHLYSTOV, A.Y. UND PANDIS, S.N. (2004): Nucleation events during the Pittsburgh Air Quality Study: Description and relation to key meteorological, gas phase and aerosol parameters. *Aerosol Science and Technology* 38, 253-264.
- STELSON, A.W. UND SEINFELD, J.H. (1982): Relative humidity and temperature dependence of the ammonium nitrate dissociation constant. *Atmospheric Environment* 16, 983-992.
- STIEß, M. (2009): *Mechanische Verfahrenstechnik – Partikeltechnologie*. 13. Auflage, Springer-Verlag.

- TA-LUFT (2002): Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft) vom 24.07.2002, GMBI. 2001, Heft 25-29, 511-605.
- TEN BRINK, H.M.; OTJES, R. UND JONGEJAN, P. (2009): Nitrate and the regional Indirect Aerosol Effect. European Aerosol Conference 2009, Karlsruhe, Abstract T044A17.
- UBA-UMWELTBUNDESAMT (2002): Luftreinhaltung 2010. Nationales Programm zur Einhaltung von Emissionshöchstmengen für Luftschadstoffe nach der Richtlinie 2001/81/EG (NEC-RL).
- UBA-UMWELTBUNDESAMT (2005): Hintergrundpapier zu Thema Feinstaub.
- UBA-UMWELTBUNDESAMT (2009): Ammoniak (NH₃)-Emissionen. URL: <http://www.umweltbundesamt-daten-zur-umwelt.de/umweltdaten/public/theme.do?nodeIdent=3574> (18.04.2011).
- UBA-UMWELTBUNDESAMT (2011): Nationale Trendtabelle für die deutsche Berichterstattung atmosphärischer Emissionen seit 1990 (Stand 15.04.2011) URL: <http://www.umweltbundesamt-daten-zur-umwelt.de/umweltdaten/public/document/downloadImage.do?ident=20689> (26.09.2011).
- VAKKARI, V.; LAAKSO, H.; MABASO, D.; MOLEFE, M.; KGABI, N.; KULMALA, M. UND LAKKSO, L. (2009): Aerosol particle characteristics in a semi-clean savannah environment. European Aerosol Conference 2009, Karlsruhe, Abstract T041A12.
- VAN BUGGENHOUT, S.; VAN BRECHT, A.; ÖZCAN, S.E.; VRANKEN, E.; VAN MALCOT, W. UND BERCKSMANS, D. (2009): Influence of sampling positions on accuracy of tracer gas measurements in ventilated spaces. Biosystems Engineering 104, 216-223.
- VAN DER EERDEN, L.J.M.; DE VRIES, W. UND VAN DOBBEN, H.F. (1998): Effect of ammonia deposition on forests in The Netherlands. Atmospheric Environment (Ammonia Special Issue) 32, 491-498.
- VAN'T KLOOSTER, C.E. UND HEITLAGER, B.P. (2004): Determination of minimum ventilation rate in pig houses with natural ventilation based on carbon-dioxide balance. Journal of Agricultural Engineering Research, 57 (4), 279-287.
- VDI-RICHTLINIE 2066 Blatt 1 (2006): Messen von Partikeln – Staubmessungen in strömenden Gasen – Gravimetrische Bestimmung der Staubbelastung. VDI Verein Deutscher Ingenieure, Beuth Verlag, Berlin.
- VDI-RICHTLINIE 2463 Blatt 1 (1999): Messen partikelgebundener Anionen in der Außenluft – Analyse von Chlorid, Nitrat und Sulfat mittels Ionenchromatographie mit Suppressortechnik nach Aerosolabscheidung auf PTFE-Filtern. VDI Verein Deutscher Ingenieure, Beuth Verlag, Berlin.

- VDI-RICHTLINIE 2497 Blatt 3 (1988): Messen von Partikeln - Gravimetrische Bestimmung der Massenkonzentration von Partikeln – Grundlagen. VDI Verein Deutscher Ingenieure, Beuth Verlag, Berlin.
- VDI-RICHTLINIE 3782 (2004): Depositionsparameter, Umweltmeteorologie, Atmosphärische Ausbreitungsmodelle. VDI Verein Deutscher Ingenieure, Beuth Verlag, Berlin.
- VDI-RICHTLINIE 3869 Blatt 4 (2000): Messen von Ammoniak in der Außenluft – Probennahme mit Passivsammlern – Fotometrische und ionenchromatographische Analyse. VDI Verein Deutscher Ingenieure, Beuth Verlag, Berlin.
- VDI-RICHTLINIE 3945 Blatt 3 (2000): Umweltmeteorologie, Atmosphärische Ausbreitungsmodelle, Partikelmodell. VDI Verein Deutscher Ingenieure, Beuth Verlag, Berlin.
- VDI-RICHTLINIE 4287 BLATT 2 (2006): Messtechnische Bestimmung der Emission diffuser Quellen – Industriehallen und Tierhaltungsanlagen. VDI Verein Deutscher Ingenieure, Beuth Verlag, Berlin.
- VDI-RICHTLINIE 4300 Blatt 7 (2001): Messungen von Innenraumluftverunreinigungen – Bestimmung der Luftwechselzahl in Innenräumen. VDI Verein Deutscher Ingenieure, Beuth Verlag, Berlin.
- VOGELS, G.D. UND VAN DER DRIFT, C. (1976): Degradation of purines and pyrimidines by microorganisms. *Bacteriological Reviews* 40, 403-468.
- VRANKEN, E.; BERCKMANN, D. UND GOEDSEELS, V. (1997): Development of low cost ventilation rate sensor for micro-environmental control in agricultural building. *Bau, Technik und Umwelt in der landwirtschaftlichen Nutztierhaltung*, Kiel, 466-475.
- WANG, W.; CHI, W UND MAENHAUT, W. (2009): Chemical Characterisation of PM_{2,5} aerosols collected during a summer 2007 campaign at a forested site in Brasschaat, Belgium. *European Aerosol Conference 2009, Karlsruhe*, Abstract T022A01.
- WEBER, R.J.; MCMURRY, P.H.; MAULDIN, R.L.; TANNER, D.J.; EISELEN, F.L.; CLARKE, A.D. UND KAPUSTIN, V. (1999): New particle formation in the remote troposphere: A comparison of observations at various sites. *Geophysical Research Letters* 26, 307-310.
- WHITBY, K.T. UND CANTRELL, B. (1976): Atmospheric aerosols – Characteristics and measurement. *International Conference on Environmental Sensing and Assessment*, Las Vegas, NV, USA, 1 29-1 - 6 29-1.
- WHITBY, K.T. UND SVENDRUP, G.M. (1980): California aerosols: their physical and chemical characteristic. *Advances in environmental science and technology* 9, 477-517.
- WHITBY, K.T. (2007): The physical characteristics of sulfur aerosols. *Atmospheric Environment* 41, 25-49.

- WHO-WORLD HEALTH ORGANISATION (2006): WHO Air quality guidelines for particulate matter, ozone, nitrogen dioxide und sulphur dioxide. Global update 2005.
- WILLIAMS, M.M.R. UND LOYALKA, S.K. (1991): Aerosol Science – Theory and Practice. Pergamon Press.
- XIN, H.; LI, H.; BURNS, R.T.; GATES, R.S.; OVERHULTS, D.G. UND EARNEST, J.W. (2009): Use of CO₂ concentration differences or CO₂ balance to assess ventilation rate of broiler houses. Transaction of the ASABE, 52 (4), 1353-1351.
- YOSHIKUMI, K. UND HOSHI, A. (1985) Size distribution of ammonium nitrate and sodium nitrate in atmospheric aerosols. Environmental Science and Technology 19 (3), 258-261.
- ZENGER, A.; RÜHLING, A.; BÄCHLIN, W. UND LOHMEYER, A. (1994): Tracergasuntersuchungen zur naturgetreuen Simulation von atmosphärischen Transport und Mischungsvorgängen im Rahmen von Umweltverträglichkeitsprüfungen. In: Staub, Reinhaltung der Luft 54, Springer Verlag, 51-54.
- ZHANG, G.; ROM, H.B.; LI, B.; STRØM, J.S.; MORSING, S.; DAHL, P.; WANG, C.; HANSEN, A.G. UND RASMUSSEN, J.B. (2004): Emission of ammonia and other contaminant gases from naturally ventilated dairy cattle buildings. Proceedings of the international symposium of the CIGR 2nd Technic Section: New trends in farm buildings, Portugal, 232.
- ZHANG, G.; STRØM, J.S.; LI, B.; ROM, H.B.; MORSING, S.; DAHL, P. UND WANG, C (2005): Emission of ammonia and other contaminant gases from naturally ventilated dairy cattle buildings. Biosystems Engineering 92 (3), 355-364.
- ZHANG, Y.; WU, S.-Y.; KRISHNAN, S.; WANG, K.; QUEEN, A.; ANEJA, V.P. UND ARYA, A.P. (2008): Modelling agricultural air quality: Current status, major challenges, and outlook. Atmospheric Environment 42, 3218-3237.

9 Anhang

**Tabelle 9.1: Rinderhalter und Rinder am 3. Mai 2007 in NRW
(REHSE und SCHMITZ, 2008)**

Verwaltungsbezirk	Rinderhalter		Kälber bis	Rinder 1/2 bis		Rinder 1 bis unter		Rinder 2 Jahre und älter				insgesamt
	insgesamt	dar. Milch- kuhhalter	unter 1/2	unter 1 Jahr alt		2 Jahre alt		männlich	Färsen	Milchkühe	sonstige Rinder *)	
			Jahr alt	männlich	weiblich	männlich	weiblich					
Düsseldorf, Stadt	13	2	66	.	37	13	90	49	.	.	110	.
Duisburg, Stadt	29	6	175	66	109	.	43	16
Essen, Stadt	27	6	.	171	66	.	.	39
Krefeld, Stadt	15	10
Mönchengladbach, Stadt	54	39	.	37	.	95	224	3.082
Mülheim a.d. Ruhr, Stadt	8	1
Oberhausen, Stadt	8	2	.	63
Remscheid, Stadt	25	13	279	.	147	59	49	22	135	.	.	.
Solingen, Stadt	25	6	.	49	.	56	31	.	41	.	.	.
Wuppertal, Stadt	48	17	230	.	.	358	447	76	.	.	.	2.724
Kleve	880	594	13.463	4.972	11.360	6.806	19.387	1.109	7.337	41.516	4.265	110.215
Mettmann	100	45	592	217	448	282	724	93	.	.	.	4.648
Rhein-Kreis Neuss	95	46	.	.	517	.	214	92	526	.	.	6.108
Viersen	303	221	3.100	1.239	2.638	1.532	4.427	.	1.367	13.829	.	29.277
Wesel	770	421	.	5.069	6.953	6.706	11.777	689	5.043	21.731	5.086	.
Reg.-Bez. Düsseldorf	2.400	1.429	30.186	13.075	23.108	17.176	39.521	2.675	15.310	84.628	11.900	237.579
Aachen, Stadt	109	74	1.037	109	921	149	1.579	82	.	.	.	9.725
Bonn, Stadt	6	1
Köln, Stadt	7	1
Leverkusen, Stadt	19	6	.	28	.	30	231
Aachen	248	150	1.850	253	1.686	271	3.012	161	.	7.692	.	17.227
Düren	283	153	1.674	329	1.442	321	2.686	150	1.072	6.146	1.092	14.912
Rhein-Erf-Kreis	57	28	.	179	114	494	176	33	137	.	.	.
Euskirchen	606	276	5.129	1.165	3.231	1.479	5.645	450	2.733	11.535	3.605	34.972
Heinsberg	398	265	3.222	2.036	3.143	.	1.032	322	.	.	.	32.843
Oberbergischer Kreis	639	361	5.638	1.142	4.463	1.216	7.967	434	3.484	18.809	2.897	46.050
Rheinisch-Bergischer Kreis	260	136	2.185	488	1.811	435	2.985	266	1.323	.	.	18.007
Rhein-Sieg-Kreis	533	269	4.673	1.141	3.351	1.438	5.744	422	2.904	12.966	3.171	35.810
Reg.-Bez. Köln	3.165	1.720	25.825	6.890	20.304	8.415	35.551	2.345	15.811	83.838	14.683	213.662
Rheinland	5.565	3.149	56.011	19.965	43.412	25.591	75.072	5.020	31.121	168.466	26.583	451.241
Botrop, krfr. Stadt	31	12	767	254	395	282	3.886
Gelsenkirchen, krfr. Stadt	13	6	.	42	76	40
Münster, krfr. Stadt	138	47	.	2.240	558	2.919	1.204	691
Kreis Borken	1.923	926	53.329	24.665	11.897	30.553	19.194	3.089	.	38.323	.	190.155
Kreis Coesfeld	731	284	8.952	9.023	3.720	12.705	6.368	1.327	.	12.012	.	57.577
Kreis Recklinghausen	344	140	4.585	4.285	2.020	5.677	3.325	543	.	6.232	.	28.998
Kreis Steinfurt	1.648	534	21.749	24.828	6.137	36.141	10.259	2.486	3.140	17.232	4.580	126.552
Kreis Warendorf	992	394	10.652	11.229	4.291	16.784	7.304	1.749	1.818	12.715	1.772	68.314
Reg.-Bez. Münster	5.820	2.343	101.519	76.566	29.094	105.101	48.514	9.930	13.300	89.858	14.007	487.889
Bielefeld, krfr. Stadt	71	29	362	176	309	.	.	37	155	1.080	.	.
Kreis Gütersloh	1.029	472	8.203	5.386	4.858	9.361	8.247	1.046	2.438	17.591	2.000	59.130
Kreis Herford	156	43	2.541	678	449	.	.	111	.	1.404	.	.
Kreis Höxter	769	277	4.440	2.470	2.862	3.196	4.891	693	1.861	9.087	2.956	32.456
Kreis Lippe	375	147	2.086	910	1.456	1.262	2.479	342	.	5.336	.	16.394
Kreis Minden-Lübbecke	733	343	5.894	3.587	3.141	4.952	5.538	715	1.777	10.587	2.452	38.643
Kreis Paderborn	902	358	8.334	5.503	3.662	7.122	6.138	732	1.794	10.745	3.224	47.254
Reg.-Bez. Detmold	4.035	1.669	31.860	18.710	16.737	26.989	28.517	3.676	9.334	55.830	12.688	204.341
Bochum, krfr. Stadt	11
Dortmund, krfr. Stadt	35	4
Hagen, krfr. Stadt	41	9	.	41	.	64	325	28
Hamm, krfr. Stadt	145	50	946	712	701	1.224	1.074	72	.	.	.	7.293
Herne, krfr. Stadt	5	.	.	31
Ennepe-Ruhr-Kreis	240	97	1.444	519	1.020	779	1.969	196	989	4.027	1.067	12.010
Hochsauerlandkreis	1.199	503	9.006	3.192	6.395	4.070	10.631	786	4.128	20.622	5.647	64.477
Märkischer Kreis	440	198	3.574	877	2.584	1.160	4.489	385	1.702	11.077	1.976	27.824
Kreis Olpe	434	124	3.279	724	1.741	854	3.013	241	.	4.543	.	18.601
Kreis Siegen-Wittgenstein	644	179	3.045	655	1.588	850	2.972	367	1.264	4.020	3.347	18.108
Kreis Soest	656	264	5.780	3.636	3.167	4.769	5.687	783	1.945	8.927	2.844	37.538
Kreis Unna	235	74	1.801	1.974	939	2.941	1.651	242	.	2.150	.	13.052
Reg.-Bez. Arnsberg	4.085	1.502	29.265	13.042	18.435	17.496	32.013	3.183	12.119	57.764	19.700	203.017
Westfalen-Lippe	13.940	5.514	162.644	108.318	64.266	149.586	109.044	16.789	34.753	203.452	46.395	895.247
Nordrhein-Westfalen	19.505	8.663	218.655	128.283	107.678	175.177	184.116	21.809	65.874	371.918	72.978	1.346.488

*) Ammen- und Mutterkühe sowie Schlacht- und Mastkühe

**Tabelle 9.2: Schweinehalter und Schweine am 3. Mai 2007 in NRW
(REHSE und SCHMITZ, 2008)**

Verwaltungsbezirk	Schweinehalter		Ferkel unter 20 kg	Jungschweine bis unter 50 kg Lebendgewicht	Mastschweine 50 und mehr kg	Zuchtsauen	Zuchteber	Schweine insgesamt
	insgesamt	dar. Zucht- sauenhalter						
Düsseldorf, Stadt	3	3						
Duisburg, Stadt	9	1						
Essen, Stadt	12	2						
Krefeld, Stadt	9	4						
Mönchengladbach, Stadt	10	2						
Mülheim a.d. Ruhr, Stadt								
Oberhausen, Stadt	4	2						
Remscheid, Stadt	4	1						
Solingen, Stadt	2	1						
Wuppertal, Stadt	9	1						387
Kleve	450	233	81.605	73.630	104.151	30.204	657	290.247
Mettmann	33	10	203					3.191
Rhein-Kreis Neuss	52	17	5.479					
Viersen	128	50						
Wesel	303	124	27.002	29.510	46.364			113.505
Reg.-Bez. Düsseldorf	1.028	451		131.414	194.260			
Aachen, Stadt	3	1						
Bonn, Stadt	2							
Köln, Stadt	7	1		126				
Leverkusen, Stadt	1	1						
Aachen	16	5		574				
Düren	36	11	3.093	760				
Rhein-Erft-Kreis	31	9		2.220	4.139			
Euskirchen	72	16						
Heinsberg	91	48		8.048	12.891		66	37.441
Oberbergischer Kreis	39	11	469	614				
Rheinisch-Bergischer Kreis	24	7						2.251
Rhein-Sieg-Kreis	60	18	1.582	2.453				7.457
Reg.-Bez. Köln	382	128		16.172	26.718			
Rheinland	1.410	579	151.437	147.586	220.978	55.749	1.098	576.848
Bottrop, krfr. Stadt	24	10						
Gelsenkirchen, krfr. Stadt	7	3						
Münster, krfr. Stadt	144	40	13.929	25.991		5.712	59	88.412
Kreis Borken	1.530	649	222.817	195.861	329.765	80.975	885	830.303
Kreis Coesfeld	1.196	455		200.533		54.479	2.035	
Kreis Recklinghausen	301	114		39.894	69.058		163	153.737
Kreis Steinfurt	1.678	813	250.814	220.734	351.813	93.525	1.200	918.086
Kreis Warendorf	1.321	444	153.171	203.264	404.616	54.679	690	816.420
Reg.-Bez. Münster	6.201	2.528	829.238	891.559	1.631.111	303.879	5.050	3.660.837
Bielefeld, krfr. Stadt	51	15	4.761	4.749	8.582			19.492
Kreis Gütersloh	670	187	46.757	61.800	141.400	16.364	254	266.575
Kreis Herford	260	97	21.965	19.922	48.062	7.273	94	97.316
Kreis Höxter	691	214	38.388	73.159	138.420	14.344	290	264.601
Kreis Lippe	315	118	26.262	30.588	56.733			122.654
Kreis Minden-Lübbecke	1.036	527	98.234	82.912	156.422	34.269	759	372.596
Kreis Paderborn	658	259	69.094	81.859	152.051	24.402	285	327.691
Reg.-Bez. Detmold	3.681	1.417	305.461	354.989	701.670	106.897	1.908	1.470.925
Bochum, krfr. Stadt	6	1						
Dortmund, krfr. Stadt	14	4						
Hagen, krfr. Stadt	9	2						
Hamm, krfr. Stadt	104	25			27.531	4.741	43	
Herne, krfr. Stadt	8	3						
Ennepe-Ruhr-Kreis	42	15						
Hochsauerlandkreis	235	55	11.524			4.557	59	50.229
Märkischer Kreis	106	35		9.478	16.732			
Kreis Olpe	41	8						
Kreis Siegen-Wittgenstein	108	10						
Kreis Soest	670	256	72.611	88.253	167.029	24.029	354	352.276
Kreis Unna	246	93	26.195	28.691	58.241	10.094	143	123.364
Reg.-Bez. Arnsberg	1.589	507	137.674	159.060	301.863	50.174	698	649.469
Westfalen-Lippe	11.471	4.452	1.272.373	1.405.608	2.634.644	460.950	7.656	5.781.231
Nordrhein-Westfalen	12.881	5.031	1.423.810	1.553.194	2.855.622	516.699	8.754	6.358.079

**Tabelle 9.3: Legehennenhalter und Legehennen am 3. Mai 2007 in NRW
(REHSE und SCHMITZ, 2008)**

Verwaltungsbezirk	Legehennenhalter mit ... Legehennen 1/2 Jahr und älter									
	1 - 99		100 - 999		1000 - 2999		3000 und mehr		insgesamt	
	Halter	Tiere	Halter	Tiere	Halter	Tiere	Halter	Tiere	Halter	Tiere
Düsseldorf, Stadt	2	.	5	1.900	1	.	2	.	10	.
Duisburg, Stadt	9	358	2	.	.	.	1	.	12	.
Essen, Stadt	10	208	6	1.555	3	6.900	.	.	19	8.663
Krefeld, Stadt	8	8	.
Mönchengladbach, Stadt	12	.	7	.	4	4.400	.	.	23	.
Mülheim a.d. Ruhr, Stadt	3	58	5	1.485	.	.	2	.	10	.
Oberhausen, Stadt	4	46	1	5	.
Remscheid, Stadt	3	.	5	1.100	.	.	3	.	11	.
Solingen, Stadt	2	.	3	.	1	.	1	.	7	.
Wuppertal, Stadt	13	265	3	.	1	.	1	.	18	.
Kleve	164	2.984	21	8.110	5	8.310	3	67.640	193	87.044
Mettmann	43	.	13	4.150	4	6.800	3	.	63	105.913
Rhein-Kreis Neuss	46	.	23	7.090	4	8.103	3	.	76	.
Viersen	36	.	12	3.175	4	8.400	3	.	55	29.107
Wesel	173	.	28	9.735	14	22.256	5	.	220	124.708
Reg.-Bez. Düsseldorf	528	11.217	134	41.690	41	70.759	27	401.739	730	525.405
Aachen, Stadt	14	.	9	2.545	23	.
Bonn, Stadt	4	4	.
Köln, Stadt	5	.	3	.	3	5.152	.	.	11	.
Leverkusen, Stadt	5	181	1	.	.	.	2	.	8	.
Aachen	44	686	8	.	3	.	2	.	57	.
Düren	56	1.115	10	.	1	.	4	.	71	58.105
Rhein-Erft-Kreis	25	.	15	6.030	6	10.658	4	.	50	.
Euskirchen	105	1.836	6	.	4	8.988	4	.	119	37.224
Heinsberg	52	.	16	8.126	4	6.300	5	.	77	65.885
Oberbergischer Kreis	177	.	15	.	6	13.400	2	.	200	35.015
Rheinisch-Bergischer Kreis	65	.	18	5.200	4	7.400	3	.	90	33.589
Rhein-Sieg-Kreis	124	.	21	.	8	12.715	2	.	155	29.942
Reg.-Bez. Köln	676	12.840	122	46.883	39	70.713	28	223.339	865	353.775
Rheinland	1.204	24.057	256	88.573	80	141.472	55	625.078	1.595	879.180
Bottrop, krfr. Stadt	4	.	4	.	1	.	2	.	11	.
Gelsenkirchen, krfr. Stadt	4	124	1	5	.
Münster, krfr. Stadt	27	.	6	.	1	.	2	.	36	22.487
Kreis Borken	286	.	32	14.986	22	35.265	13	.	353	349.474
Kreis Coesfeld	173	.	18	6.544	7	12.250	8	.	206	329.587
Kreis Recklinghausen	113	.	24	7.976	3	.	3	10.487	143	26.814
Kreis Steinfurt	384	5.951	22	8.029	11	19.280	15	304.316	432	337.576
Kreis Warendorf	313	.	33	9.113	13	22.200	14	.	373	194.030
Reg.-Bez. Münster	1.304	21.785	140	50.178	58	98.525	57	1.099.327	1.559	1.269.815
Bielefeld, krfr. Stadt	39	854	7	2.520	46	3.374
Kreis Gütersloh	306	5.086	51	18.998	29	49.755	22	193.051	408	266.890
Kreis Herford	114	.	15	.	1	.	1	.	131	12.950
Kreis Höxter	243	.	8	.	1	.	1	.	253	11.862
Kreis Lippe	188	3.582	17	.	6	.	2	.	213	22.818
Kreis Minden-Lübbecke	373	6.506	19	.	4	6.400	6	.	402	124.617
Kreis Paderborn	248	.	24	8.030	6	13.432	12	.	290	176.845
Reg.-Bez. Detmold	1.511	26.564	141	46.416	47	81.201	44	465.175	1.743	619.356
Bochum, krfr. Stadt	8	186	3	.	1	.	.	.	12	.
Dortmund, krfr. Stadt	12	.	8	.	4	6.016	.	.	24	.
Hagen, krfr. Stadt	20	.	1	21	.
Hamm, krfr. Stadt	35	.	12	3.390	.	.	2	.	49	44.972
Herne, krfr. Stadt	3	.	2	5	.
Ennepe-Ruhr-Kreis	97	.	15	4.927	5	9.436	2	.	119	133.177
Hochsauerlandkreis	210	3.531	14	.	9	16.220	3	.	236	38.820
Märkischer Kreis	134	.	25	8.956	6	.	2	.	167	.
Kreis Olpe	67	.	18	5.670	5	7.750	2	.	92	.
Kreis Siegen-Wittgenstein	218	.	10	.	.	.	1	.	229	.
Kreis Soest	240	.	32	11.590	5	8.640	7	.	284	.
Kreis Unna	89	.	18	8.517	5	8.314	4	.	116	.
Reg.-Bez. Arnsberg	1.133	22.014	158	56.419	40	67.930	23	343.035	1.354	489.398
Westfalen-Lippe	3.948	70.363	439	153.013	145	247.656	124	1.907.537	4.656	2.378.569
Nordrhein-Westfalen	5.152	94.420	695	241.586	225	389.128	179	2.532.615	6.251	3.257.749

**Tabelle 9.4: Pferdehalter und Pferde am 3. Mai 2007 in NRW
(REHSE und SCHMITZ, 2008)**

Verwaltungsbezirk	Pferdehalter		Ponys und Kleinpferde	Pferde				insgesamt
	insgesamt	dar. Pony- und Klein- pferdehalter		andere Pferde				
				unter 1 Jahr alt (Fohlen)	1 bis unter 3 Jahre alt	3 bis unter 14 Jahre alt	14 Jahre und älter	
Düsseldorf, Stadt	40	17	90	15	26	495	245	871
Duisburg, Stadt	28	12	66	.	.	282	107	.
Essen, Stadt	54	22	167	15	63	549	313	1.107
Krefeld, Stadt	27	8	34	11	24	349	140	558
Mönchengladbach, Stadt	35	13	44	.	27	263	122	.
Mülheim a.d. Ruhr, Stadt	31	17	189	.	40	489	181	.
Oberhausen, Stadt	11	8	44	.	.	51	.	146
Remscheid, Stadt	26	15	78	.	.	94	.	.
Solingen, Stadt	24	12	70	.	.	203	103	.
Wuppertal, Stadt	62	25	108	17	62	393	225	805
Kleve	411	167	548	181	522	1.622	629	3.502
Mettmann	172	84	447	94	183	2.051	837	3.612
Rhein-Kreis Neuss	139	77	347	.	181	1.606	624	.
Viersen	160	67	300	55	.	1.055	390	.
Wesel	422	190	690	107	296	2.113	889	1.095
Reg.-Bez. Düsseldorf	1.642	734	3.222	.	.	11.615	4.883	22.038
Aachen, Stadt	68	24	.	.	.	411	99	.
Bonn, Stadt	12	5	.	.	.	129	55	.
Köln, Stadt	27	12	42	28	43	303	178	594
Leverkusen, Stadt	27	15	42	.	.	287	132	471
Aachen	145	57	343	38	180	805	246	1.612
Düren	161	62	191	31	110	632	340	1.304
Rhein-Erft-Kreis	97	39	155	70	179	1.019	368	1.791
Euskirchen	316	108	770	135	248	1.073	458	2.684
Heinsberg	148	58	270	33	108	693	226	1.330
Oberbergischer Kreis	378	165	760	100	236	1.265	637	2.998
Rheinisch-Bergischer Kreis	190	76	466	55	133	1.081	534	2.269
Rhein-Sieg-Kreis	370	159	1.174	80	230	1.795	1.037	4.316
Reg.-Bez. Köln	1.939	780	4.356	.	.	9.493	4.310	20.337
Rheinland	3.581	1.514	7.578	1.238	3.258	21.108	9.193	42.375
Botrop, krfr. Stadt	40	26	102	.	16	.	80	.
Gelsenkirchen, krfr. Stadt	21	11	61	.	35	.	60	.
Münster, krfr. Stadt	159	61	227	70	185	619	218	1.319
Kreis Borken	596	267	749	150	357	1.306	344	2.906
Kreis Coesfeld	587	278	1.247	289	708	1.778	536	4.558
Kreis Recklinghausen	325	144	653	141	425	.	711	.
Kreis Steinfurt	788	313	845	320	824	2.047	604	4.640
Kreis Warendorf	595	252	807	184	477	1.798	530	3.796
Reg.-Bez. Münster	3.111	1.352	4.691	1.169	3.027	9.673	3.083	21.643
Bielefeld, krfr. Stadt	79	34	93	26	57	421	211	808
Kreis Gütersloh	525	178	547	157	377	1.549	685	3.315
Kreis Herford	160	55	131	77	124	593	231	1.156
Kreis Höxter	370	146	437	84	244	630	299	1.694
Kreis Lippe	327	125	458	75	191	1.178	472	2.374
Kreis Minden-Lübbecke	425	158	486	105	245	941	402	2.179
Kreis Paderborn	360	118	358	70	218	1.133	359	2.138
Reg.-Bez. Detmold	2.246	814	2.510	594	1.456	6.445	2.659	13.664
Bochum, krfr. Stadt	34	16	62	24	40	438	116	680
Dortmund, krfr. Stadt	68	27	97	.	.	486	219	.
Hagen, krfr. Stadt	44	19	89	.	.	212	.	.
Hamm, krfr. Stadt	88	41	111	35	35	295	.	.
Herne, krfr. Stadt	13	8	50	.	.	182	.	.
Ennepe-Ruhr-Kreis	255	112	439	77	234	1.283	537	2.570
Hochsauerlandkreis	449	182	705	86	184	1.153	429	2.557
Märkischer Kreis	336	156	587	54	193	1.296	634	2.764
Kreis Olpe	216	64	221	36	.	490	.	.
Kreis Siegen-Wittgenstein	253	89	398	38	100	663	312	1.511
Kreis Soest	381	148	352	316	428	1.267	367	2.730
Kreis Unna	233	116	454	68	197	1.281	421	2.421
Reg.-Bez. Arnsberg	2.370	978	3.565	756	1.611	9.046	3.407	18.385
Westfalen-Lippe	7.727	3.144	10.766	2.519	6.094	25.164	9.149	53.692
Nordrhein-Westfalen	11.308	4.658	18.344	3.757	9.352	46.272	18.342	96.067

**Tabelle 9.5 : Schafhalter und Schafe am 3. Mai 2007 in NRW
(REHSE und SCHMITZ, 2008)**

Verwaltungsbezirk	Schafhalter insgesamt	Schafe				insgesamt
		unter 1 Jahr alt (einschl. Lämmer)	1 Jahr und älter		Hammel und übrige Schafe	
			zur Zucht benutzte			
			weibl. Schafe ¹⁾	Schafböcke		
Düsseldorf, Stadt	4					
Duisburg, Stadt	8	743	1.288			
Essen, Stadt	14		625	25	44	
Krefeld, Stadt	4		136			
Mönchengladbach, Stadt	9	46				
Mülheim a.d. Ruhr, Stadt	5					
Oberhausen, Stadt	1					
Remscheid, Stadt	10		85			
Solingen, Stadt	5		110			
Wuppertal, Stadt	26		561	14	26	
Kleve	125	2.533	2.834	96	149	5.612
Mettmann	29	359	391	21	31	802
Rhein-Kreis Neuss	22	1.352	2.860			4.332
Viersen	37	1.148				2.879
Wesel	126		5.739	121	647	
Reg.-Bez. Düsseldorf	425		18.093	430	1.044	
Aachen, Stadt	14	510	1.512	19		2.041
Bonn, Stadt	6		459			
Köln, Stadt	4			7		
Leverkusen, Stadt	6					
Aachen	47	1.007	1.267	42		
Düren	46	2.105	3.814	55	29	6.003
Rhein-Erft-Kreis	17	551	1.178			
Euskirchen	102	3.284	6.224	161	410	10.079
Heinsberg	31	958	3.052			4.651
Oberbergischer Kreis	109	2.068	2.565	96	72	4.801
Rheinisch-Bergischer Kreis	65	859	1.318	44	173	2.394
Rhein-Sieg-Kreis	105	2.167	4.421	83	216	6.887
Reg.-Bez. Köln	552		26.661	662	1.519	
Rheinland	977	26.518	44.754	1.092	2.563	74.927
Bottrop, krfr. Stadt	4					32
Gelsenkirchen, krfr. Stadt	5					
Münster, krfr. Stadt	37		473			
Kreis Borken	207	2.879	3.514	195	217	6.805
Kreis Coesfeld	217	2.087	2.322	130		
Kreis Recklinghausen	76		1.951	52	66	
Kreis Steinfurt	205	2.312	3.061	157	133	5.663
Kreis Warendorf	213	2.837	3.604	533	148	7.122
Reg.-Bez. Münster	964	11.773	14.972	1.114	647	28.506
Bielefeld, krfr. Stadt	29	881	1.491	51	103	2.526
Kreis Gütersloh	124	1.322	1.536	87	81	3.026
Kreis Herford	57		983	36	24	
Kreis Höxter	161	4.740	7.091	229	485	12.545
Kreis Lippe	113		4.278	117	295	
Kreis Minden-Lübbecke	88	2.260	2.671	95	70	5.096
Kreis Paderborn	183	6.950	9.182	195	390	16.717
Reg.-Bez. Detmold	755	20.389	27.232	810	1.448	49.879
Bochum, krfr. Stadt	7			4	16	858
Dortmund, krfr. Stadt	9	44				
Hagen, krfr. Stadt	8					
Hamm, krfr. Stadt	25		231	13	32	
Herne, krfr. Stadt	1					
Ennepe-Ruhr-Kreis	77		1.411	75	64	
Hochsauerlandkreis	172	4.279	6.757	170	114	11.320
Märkischer Kreis	91		1.984	51	92	
Kreis Olpe	54	911	1.307		46	
Kreis Siegen-Wittgenstein	97	1.740	2.917	86	35	4.778
Kreis Soest	178	5.509	8.462	180	145	14.296
Kreis Unna	70	2.314	2.990	83	33	5.420
Reg.-Bez. Arnsberg	789	17.652	27.391	719	688	46.450
Westfalen-Lippe	2.508	49.814	69.595	2.643	2.783	124.835
Nordrhein-Westfalen	3.485	76.332	114.349	3.735	5.346	199.762

¹⁾ einschl. Jährlingen

**Tabelle 9.6: Gänse, Enten und Truthühner am 3. Mai 2007 in NRW
(REHSE und SCHMITZ, 2008)**

Verwaltungsbezirk	Gänse		Enten		Truthühner	
	Halter	Tiere	Halter	Tiere	Halter	Tiere
Reg.-Bez. Düsseldorf	328	20.462	171	.	60	.
Reg.-Bez. Köln	203	4.604	130	.	36	.
Rheinland	531	25.066	301	4.493	96	592.102
Reg.-Bez. Münster	264	10.619	190	23.222	81	412.339
Reg.-Bez. Detmold	248	50.194	237	90.308	54	177.886
Reg.-Bez. Arnsberg	206	8.246	190	7.154	46	173.743
Westfalen-Lippe	718	69.059	617	120.684	181	763.968
Nordrhein-Westfalen	1.249	94.125	918	125.177	277	1.356.070

Tabelle 9.7: Signifikanzanalyse der NH₃-Messungen - Gut Frankenforst

Messperiode (I)	Messperiode (J)	Mittelwertdifferenz (I-J)	Standardfehler	Signifikanz
Sommer FS stündlich	Sommer FS zweistündig	0,1962*	0,03217	0,000
	Übergang FS stündlich	0,4276*	0,02973	0,000
	Übergang FS zweistündig	0,2704*	0,03071	0,000
	Winter	0,8971*	0,02564	0,000
Sommer FS zweistündig	Übergang FS stündlich	0,3146*	0,03068	0,000
	Übergang FS zweistündig	0,1602*	0,03163	0,000
	Winter	0,7673*	0,02674	0,000
Übergang FS stündlich	Übergang FS zweistündig	0,1544*	0,02914	0,000
	Winter	0,4527*	0,02375	0,000
Übergang FS zweistündig	Winter	0,6071*	0,02496	0,000

* Die Mittelwertdifferenz ist auf der Stufe 0,05 signifikant.

FS = Flüssigmistschieber

Tabelle 9.8: Signifikanzanalyse des Einflusses der Segmente auf die Ergebnisse der NH₃-Messung - Haus Riswick

Messperiode (I)	Messperiode (J)	Mittelwertdifferenz (I-J)	Standardfehler	Signifikanz
Segment 1				
Sommer	Übergang	-0,0793*	0,01607	0,000
	Winter	0,3335*	0,01263	0,000
Übergang	Winter	0,2542*	0,01318	0,00
Segment 2				
Sommer	Übergang	-0,1183*	0,01460	0,000
	Winter	0,1984*	0,01253	0,000
Übergang	Winter	-0,3187*	0,01217	0,000
Segment 3				
Sommer	Übergang	0,1553*	0,01919	0,000
	Winter	0,0265	0,01589	0,973
Übergang	Winter	-0,1288*	0,01562	0,000

*Die Mittelwertdifferenz ist auf der Stufe 0,05 signifikant

Tabelle 9.9: Signifikanzanalyse des Einflusses der Jahreszeit auf die Ergebnisse der NH₃-Messung - Haus Riswick

Messperiode (I)	Messperiode (J)	Mittelwertdifferenz (I-J)	Standardfehler	Signifikanz
Sommer				
Segment 1	Segment 2	-0,1891*	0,01527	0,000
	Segment 3	-0,0980*	0,01762	0,000
Segment 2	Segment 3	-0,2871*	0,01731	0,000
Übergang				
Segment 1	Segment 2	0,2289*	0,01544	0,000
	Segment 3	-0,0220	0,01778	1,000
Segment 2	Segment 3	-0,2502*	0,01679	0,000
Winter				
Segment 1	Segment 2	-0,3482*	0,00914	0,000
	Segment 3	-0,4050*	0,01008	0,000
Segment 2	Segment 3	-0,0622*	0,01049	0,000

*Die Mittelwertdifferenz ist auf der Stufe 0,05 signifikant.

Tabelle 9.10: Signifikanzanalyse des Einflusses der Jahreszeit auf die Ergebnisse der NH₃-Messung in der Legehennen- Volierenhaltung

Messperiode (I)	Messperiode (J)	Mittelwertdifferenz (I-J)	Standardfehler- differenz	Signifikanz
Winter	Sommer	0,77988*	0,05657	0,000

*Die Mittelwertdifferenz ist auf der Stufe 0,05 signifikant

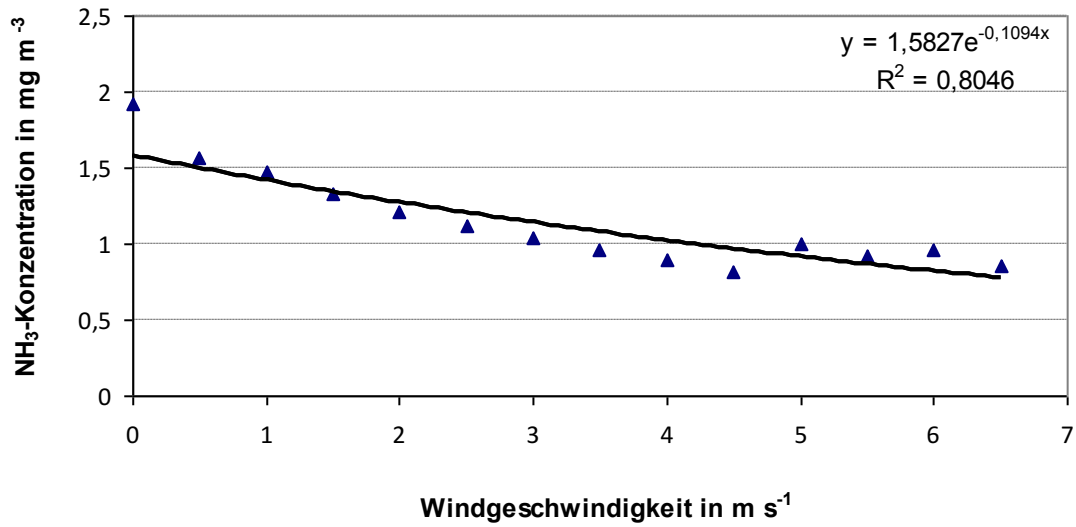


Abbildung 9.1: Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit ($0-6,5 \text{ m s}^{-1}$) und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 1

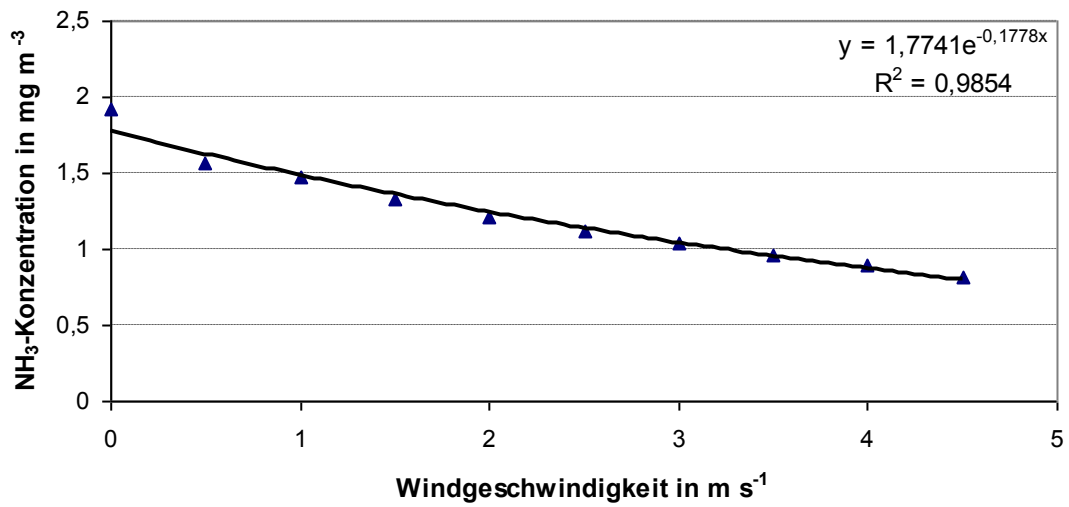


Abbildung 9.2: Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit ($0-4,5 \text{ m s}^{-1}$) und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 1

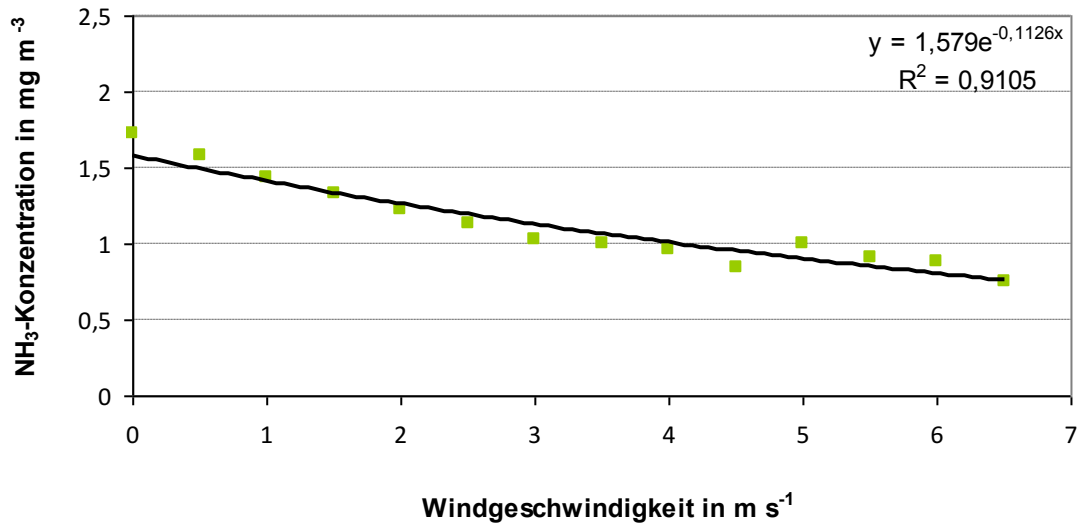


Abbildung 9.3: Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit (0-6,5 m s⁻¹) und der NH₃-Konzentration - Haus Riswick Segment 2

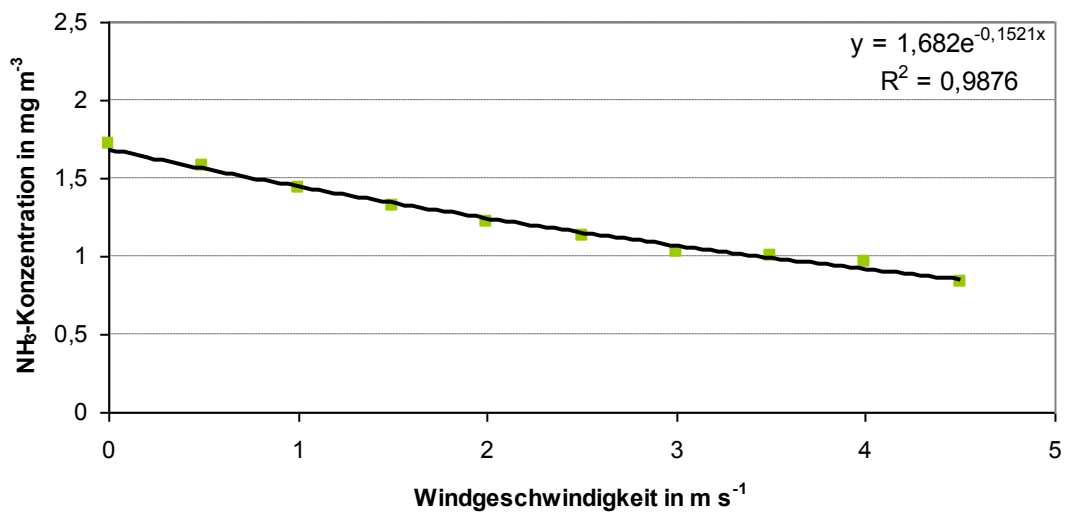


Abbildung 9.4: Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit (0-4,5 m s⁻¹) und der NH₃-Konzentration - Haus Riswick Segment 2

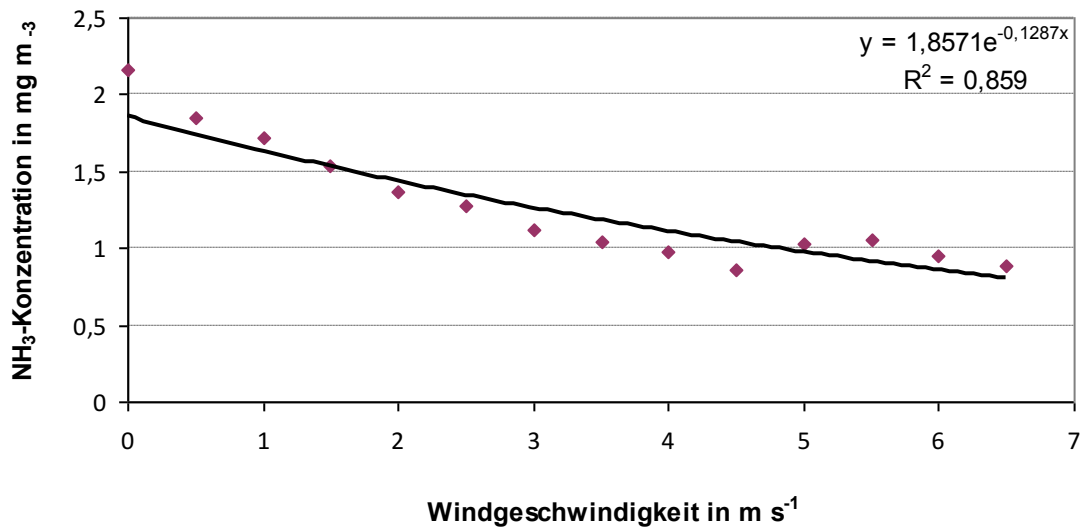


Abbildung 9.5: Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit ($0-6,5 \text{ m s}^{-1}$) und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 3

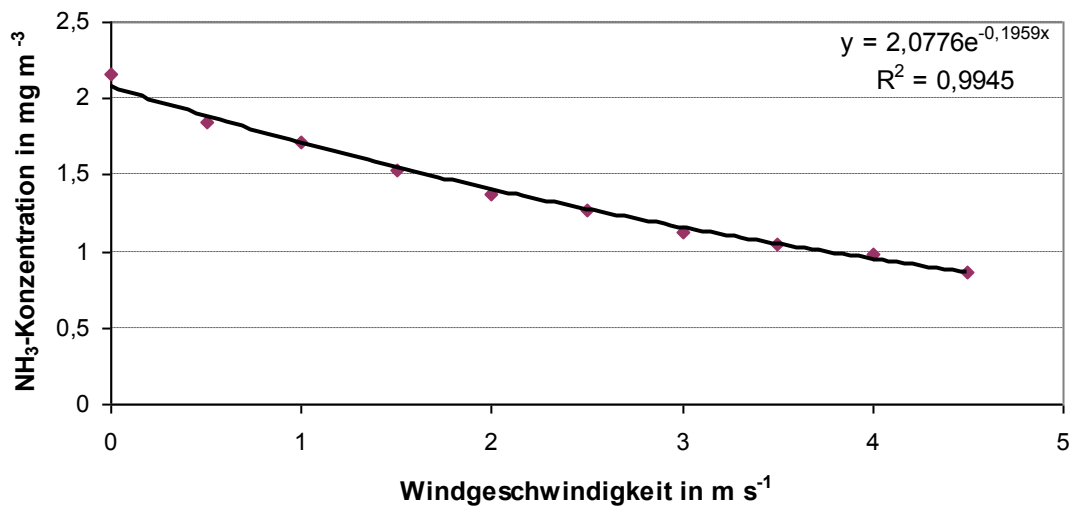


Abbildung 9.6: Zusammenhang zwischen der Windgeschwindigkeit ($0-4,5 \text{ m s}^{-1}$) und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 3

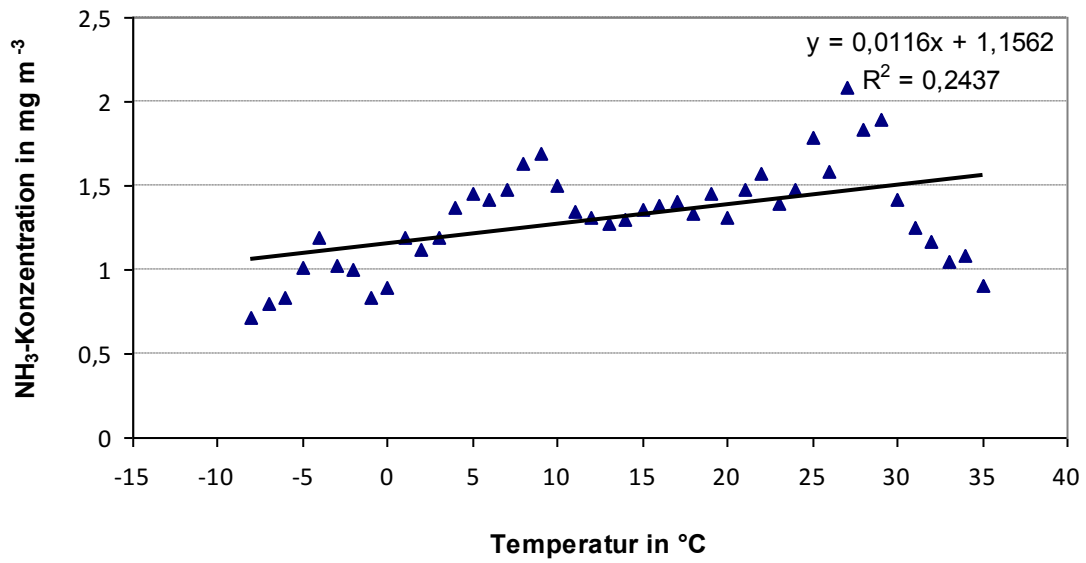


Abbildung 9.7: Zusammenhang zwischen der Temperatur und der NH₃-Konzentration - Haus Riswick Segment 1

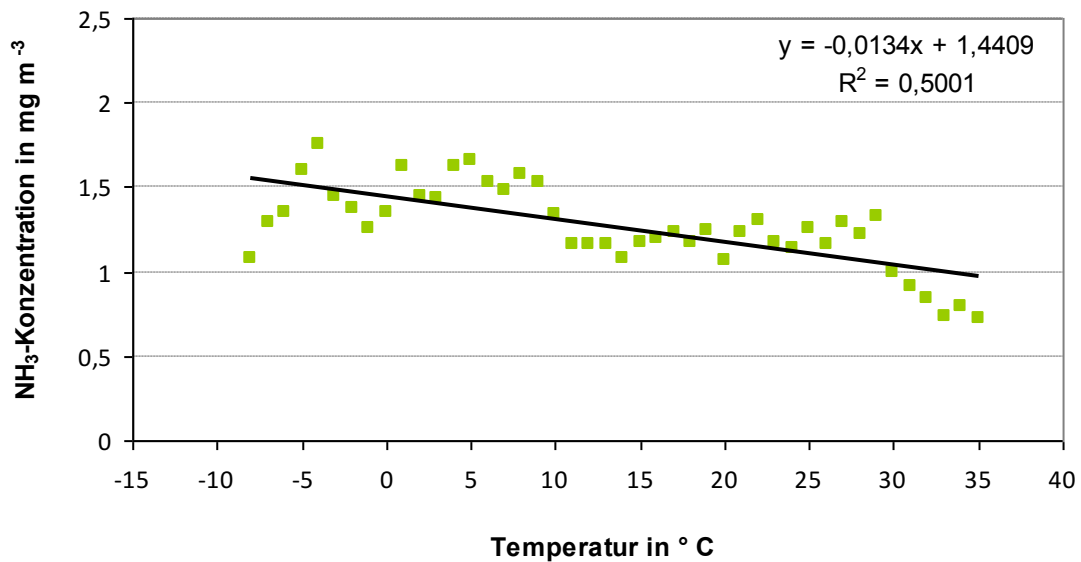


Abbildung 9.8: Zusammenhang zwischen der Temperatur und der NH₃-Konzentration - Haus Riswick Segment 2

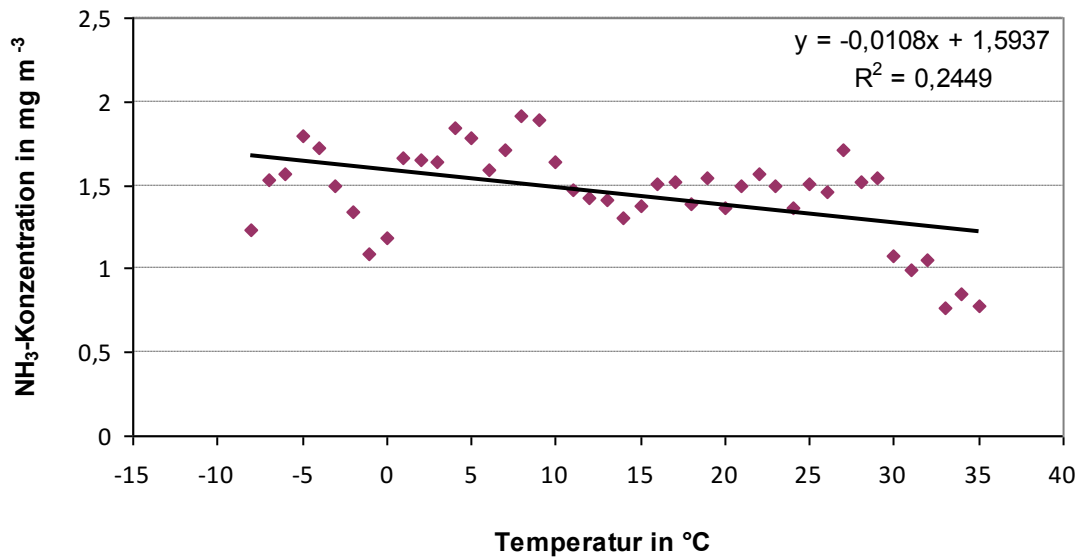


Abbildung 9.9: Zusammenhang zwischen der Temperatur und der NH₃-Konzentration - Haus Riswick Segment 3

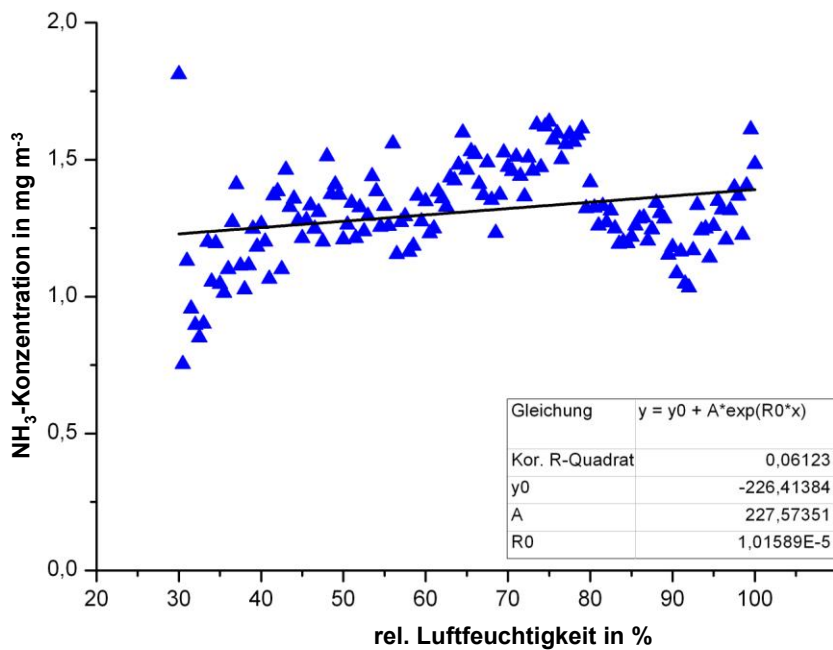


Abbildung 9.10: Zusammenhang zwischen der relativen Luftfeuchtigkeit und der NH₃-Konzentration - Haus Riswick Segment 1

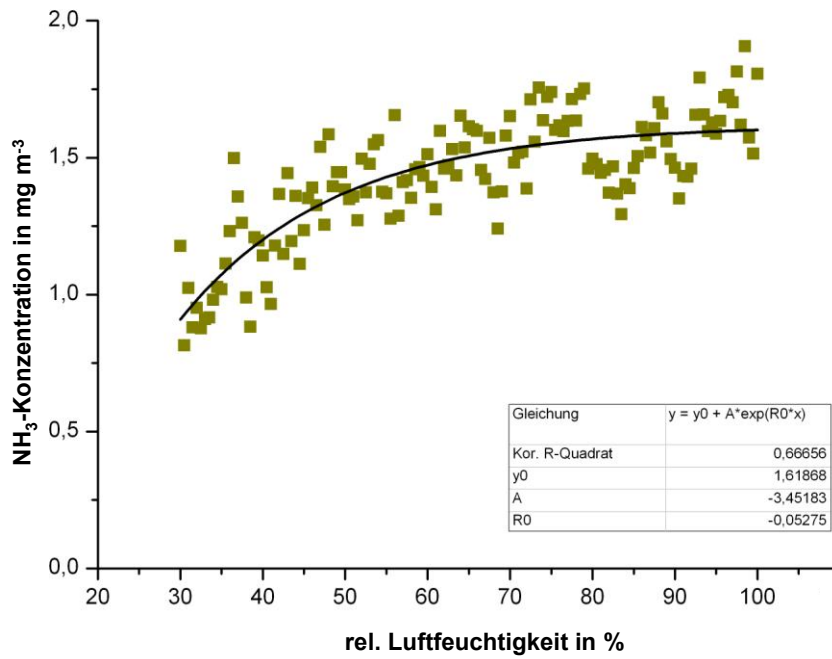


Abbildung 9.11: Zusammenhang zwischen der relativen Luftfeuchtigkeit und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 2

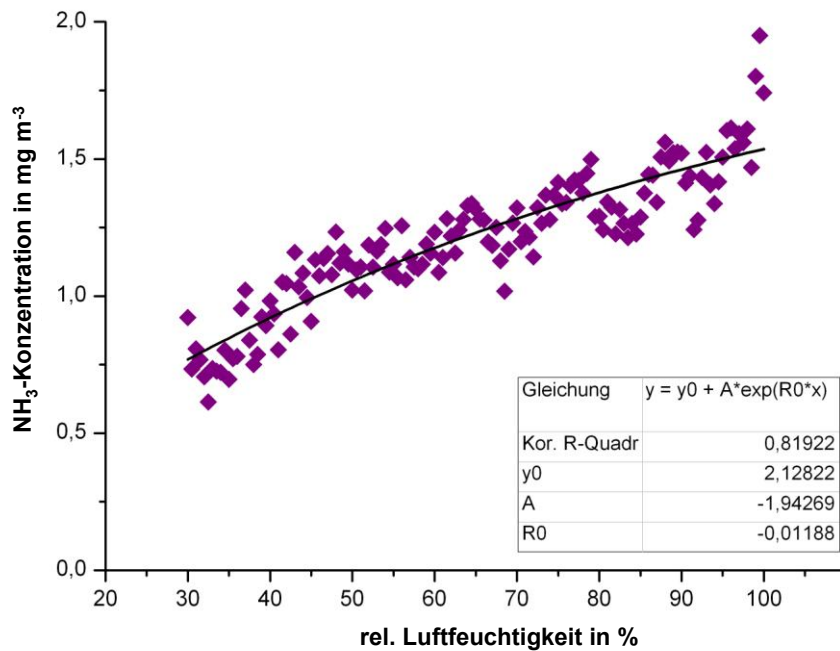


Abbildung 9.12: Zusammenhang zwischen der relativen Luftfeuchtigkeit und der NH_3 -Konzentration - Haus Riswick Segment 3

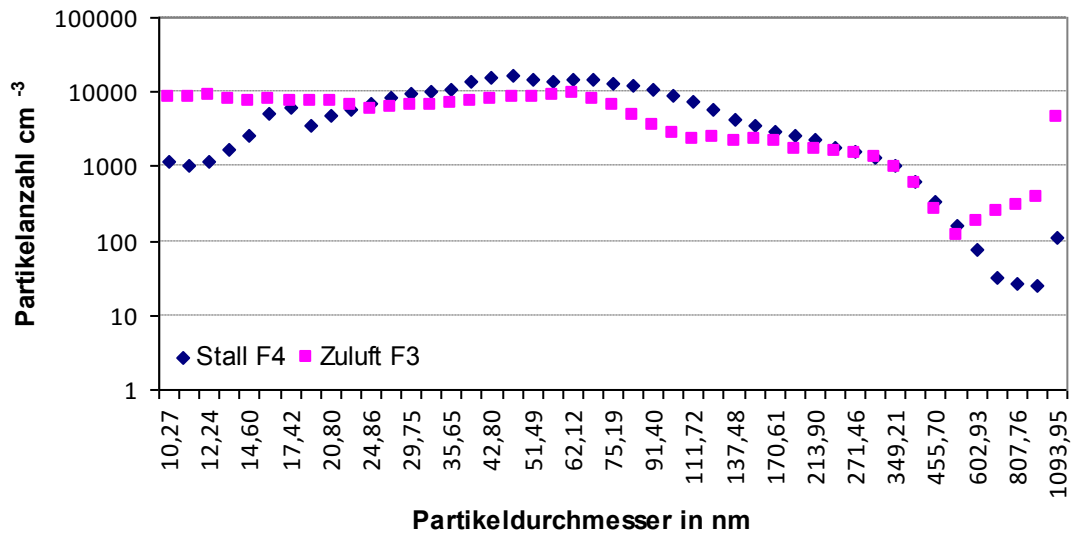


Abbildung 9.13: Nanopartikel-Größenverteilung auf Gut Frankenforst am 26.06.2011

Tabelle 9.11: Ergebnisse der Partikelmasse-, NH_4^+ -, SO_4^{2-} - und NO_3^- -Bestimmung an den verschiedenen Messpunkten

Messpunkt	Messung 1				Messung 2			
	TSP in $\mu\text{g m}^{-3}$	NH_4^+ in $\mu\text{g m}^{-3}$	SO_4^{2-} in $\mu\text{g m}^{-3}$	NO_3^- in $\mu\text{g m}^{-3}$	TSP in $\mu\text{g m}^{-3}$	NH_4^+ in $\mu\text{g m}^{-3}$	SO_4^{2-} in $\mu\text{g m}^{-3}$	NO_3^- in $\mu\text{g m}^{-3}$
1 Köln	24,33/34,56	0,23/0,28	1,27/1,55	1,17/1,44	21,85/23,97	0,92/1,08	2,07/2,39	3,13/3,60
2 Bonn	24,93/28,25	0,66/0,70	1,76/1,90	2,10/2,34	34,13/31,64	1,37/1,11	3,06/2,69	4,08/3,35
3 Gut Frankenforst 1	29,36/21,77	1,68/1,11	2,67/2,84	5,50/3,44	18,80/15,90	0,94/0,66	1,49/1,24	2,46/1,43
4 Gut Frankenforst 2	23,83/20,97	0,67/0,40	1,88/1,77	1,50/1,37	24,42/25,20	0,82/1,01	1,82/1,88	2,34/2,50
5 Legehennen	67,09/69,55	1,25/1,85	3,38/3,48	7,99/8,02	76,04/84,29	0,44/0,53	1,87/2,04	2,21/2,45
6 Ratingen	19,32/19,29	0,58/0,59	1,54/1,51	1,67/1,77	14,67/17,29	0,54/0,65	1,17/1,25	1,44/1,62
7 Bitburg	14,39/15,41	0,79/0,85	1,38/1,37	2,20/2,21	n.b.	0,59/0,75	1,11/1,34	1,59/1,79
8 Schneeberg	14*	0,42	1,30	0,40	-	-	-	-
9 Meerane	16*	0,56	0,67	0,53	-	-	-	-
10 Zella-Mehlis	14*	0,38	1,61	0,41	-	-	-	-
11 Eisenach	14*	0,34	1,42	0,63	-	-	-	-

* zum Wiegen wurde auf eine Waage mit einer Auflösung im mg-Bereich zurück gegriffen
n.b. = nicht bestimmbar

10 Liste über Veröffentlichungen

STANDKE, K. UND BÜSCHER, W. (2010): Sekundärpartikelbildung aus Gasemissionen von Tierställen. Landtechnik 5, 325-328, Secondary particle formation from gaseous emissions from livestock buildings, landtechnik.net.

SCHIEFLER, I., HENSELER-PABMANN, J., STANDKE, K. UND BÜSCHER, W. (2011): Langzeitmessung zum Ausstoß umwelttoxischer und klimarelevanter Gase aus einem frei gelüfteten Milchviehstall. Forum angewandte Forschung in der Rinder- und Schweinefütterung vom 06.-07.04.2011 in Fulda. Beiträge zur Veranstaltung, 21-24.

STANDKE, K. UND BÜSCHER, W. (2011): Auswirkungen der Sekundärpartikel aus gasförmigen Emissionen aus Tierhaltungsanlagen auf die Feinstaubbelastung in NRW. 10. Tagung: Bau, Technik und Umwelt in der landwirtschaftlichen Nutztierhaltung, Beiträge zur Tagung (Poster), 245-250.

11 Kurzfassung in Deutsch und Englisch

Ammoniakemissionen aus Tierställen als Vorläufersubstanz für die sekundäre Partikelbildung

Gegenstand dieser Arbeit ist die Bestimmung der Quellemission des Vorläufergases NH_3 aus aktuellen Haltungsverfahren für Milchvieh und Legehennen um damit die Bildung von sekundären Partikeln aus der landwirtschaftlichen Tierhaltung abschätzen zu können.

Die Emissionsmessungen im Bereich der Milchviehhaltung erfolgten in vier frei gelüfteten Liegeboxenlaufställen mit planbefestigten Laufflächen oder Spaltenboden. Im Bereich der Legehennenhaltung wurde ein Volierenstall untersucht.

Die Bestimmung der NH_3 -Abluftkonzentration erfolgte mittels photoakustischer-IR-Spektroskopie. Der Luftvolumenstrom wurde mit SF_6 , über eine CO_2 -Bilanz sowie durch einen kalibrierten Messventilator ermittelt. Zur Untersuchung der Wirkung hoher NH_3 -Konzentrationen auf die Bildung und das Wachstum von Sekundärpartikeln in Tierhaltungsanlagen wurden Nanopartikel-Größenverteilungen im Luv und Lee der Betriebe sowie auf der Anlage mit einem größenklassiertem Kondensationspartikelzähler erfasst und miteinander verglichen. Abschließend wurde eine chemische Analyse von Gesamtstaubproben aus ländlichen und städtischen Regionen sowie aus der direkten Umgebung der Ställe durchgeführt und hinsichtlich der Hauptbestandteile der Sekundärpartikel (NH_4^+ , SO_4^{2-} , NO_3^-) bewertet.

Die errechneten Emissionsfaktoren für die untersuchten Haltungssysteme liegen deutlich unter den Literaturangaben. Die Einflüsse der witterungsbedingten Randparameter auf die gemessene NH_3 -Konzentration zeigten sich sehr variabel und standortabhängig. Die untersuchten Haltungssysteme weisen höhere NH_3 -Emissionen als konventionelle Systeme auf. Durch die erhöhte Bereitstellung des Vorläufergases NH_3 können die Partikelbildung in der Atmosphäre gefördert und die regionale Feinstaubbelastung erhöht werden.

In den Anlagen zur Nutztierhaltung konnte eine Erhöhung der Partikelanzahl in den Größenklassen bis 200 nm detektiert werden. Die chemische Analyse der Staubproben zeigte eine deutliche Erhöhung der Bestandteile von Sekundärpartikeln in den Betrieben mit Tierhaltung und im städtischen Bereich. Diese Ergebnisse lassen vermuten, dass eine Partikelbildung auch schon an der Quelle auftritt und nicht ausschließlich im Ferntransport.

Ammonia emissions from livestock buildings as precursor chemicals for the secondary particle formation

The objective of this study is to determine the source emission of the precursor gas NH_3 from current housing systems for dairy cattle and laying hens.

The measurement of emissions in the field of dairy cattle husbandry was carried out in four naturally ventilated cubicle houses with solid or slatted floors. In the field of chicken husbandry an aviary system was examined.

Photoacoustical-IR-spectroscopy was used to determine the concentration of NH_3 in the exhaust air. The SF_6 decay method, a CO_2 -Balance and a calibrated fan were used to measure the volumetric flow rate of the air. To determine the impact of high NH_3 concentrations on the formation and growth of secondary particles in animal husbandry facilities, a size classified condensation particle counter was used to record the size distribution of nano-particles upwind and downwind of the sources and on the farms. The gathered data was then compared. Finally, a chemical analysis of total dust samples from rural and urban areas as well as from the direct surroundings of animal barns was performed to evaluate the main constituents of secondary particles (NH_4^+ , SO_4^{2-} , NO_3^-).

The calculated emission factors for the investigated husbandry systems were found to be lower than the values given by the literature. The impact of the ancillary parameters caused by the weather was found to be very variable and dependent on the location. The examined husbandry systems showed higher NH_3 emissions than conventional systems.

With rising supply of the precursor gas NH_3 the particle formation in the atmosphere can intensify and the regional fine dust burden can increase.

On the farms, an increase in the particle number in the size classes up to 200 nm could be detected. The chemical analysis of the dust samples showed a considerable elevation of the constituents of secondary particles on farms with livestock husbandry and at the urban sites. These results imply that the particle formation also occurs near the source and not exclusively on long-range transport.