

Eidgenössisches Departement für Wirtschaft, Bildung und Forschung WBF

Agroscope

Ammoniak-Emissionen nach Ausbringung von Gülle

Emissions d'ammoniac après épandage de lisier

Ammonia emissions after application of slurry

Bericht auf Deutsch mit Abstracts auf Französisch und Englisch Rapport en allemand avec résumé en français Report in German with an abstract in English

Im Auftrag von
Bundesamt für Landwirtschaft, BLW
Bundesamt für Umwelt, BAFU

Christoph Häni¹, Jörg Sintermann², Thomas Kupper¹, Markus Jocher², Albrecht Neftel²

¹Hochschule für Agrar-, Forst- und Lebensmittelwissenschaften, HAFL ²Agroscope Institut für Nachhaltigkeitswissenschaften INH



Inhaltsverzeichnis

А	DSTracts	6
Ζı	usammenfassung	7
	Ausgangslage, Ziele	7
	Material und Methoden	7
	Versuchsstandorte	7
	NH ₃ Emissionsbestimmung	7
	Validierung der angewendeten Methode zur Bestimmung der Emissi	onen 8
	Extrapolation der kumulierten Emission auf 96 h	8
	Regressionsanalyse und Modellierung der kumulierten Emission	8
	Resultate	
	Genauigkeit der angewendeten Methoden	9
	Einfluss der Parzellengrösse auf die Emissionen	
	Zeitlicher Verlauf der gemessenen Ammoniakemissionen	10
	Kumulierte NH ₃ Emissionen in Abhängigkeit der Ausbringtechniken	sowie
	von Gülleart, Tageszeit der Ausbringung und	
	Trockensubstanzgehalt der Gülle	
	Regressionsanalyse und Modellierung der kumulierten Emission	
	Schlussfolgerungen und Ausblick	
G	lossar	
1	Einleitung	
	1.1 Ausgangslage	
	1.2 Hofdüngerwirtschaft und NH ₃ -Emissionen	
	1.3 Bedeutung der verwendeten Messtechnik	
	1.4 Anforderungen an die Versuchsbedingungen	
2	Material und Methoden	
	2.1 Versuchsstandorte	
	2.2 Standort- und experimentspezifische Parameter	
	2.3 Feldversuche	
	2.3.1 Parzellengrösse	
	2.3.2 Ausbringtechnik, Gülleart, Tageszeit der Ausbringung und TS-	
	Gehalt der Gülle	
	2.4 Konzentrationsbestimmung	
	2.4.1 Low Cost Sammelsysteme (LOCI)	
	2.4.2 Bestimmung der NH ₄ +-Konzentration der Impingerlösung	
	2.4.3 Bestimmung von linienintegrierten Konzentrationen mit miniD Systemen	
	2.5 Wind- und Turbulenz-Messung	
	2.6 Emissionsbestimmung	
	2.6.1 Ausbreitungsmodellierung	
	2.6.2 Berücksichtigung der NH ₃ -Advektion angrenzender	23
	Versuchsparzellen und weiterer umliegender Quellen	26
	2.6.3 Wahl der Messhöhe	
	2.6.4 Integrierter horizontaler Fluss (IHF) Methode	
	2.6.5 ZINST Methode	
	2.7 Zeitlicher Emissionsverlauf und Bestimmung der kumulierten Emissio	
	2.7.1 Einleitung	28
	2.7.2 Extrapolation der kumulierten Emission auf 96 h	28
	2.7.3 Michaelis-Menten Verlauf	30
	2.8 Regressionsanalyse und Modellierung der kumulierten Emission	31
	2.8.1 Kürzung des ursprünglichen Parameter-Sets	31
	2.8.2 Modellierung der extrapolierten Emission nach 96 h	31

3	Resultate und Diskussion	. 32
	3.1 Einfluss des Gill Firmware Fehlers auf die berechneten Emissionen	.32
	3.2 Validierung der angewendeten Methode zur Bestimmung der Emissioner	
	3.2.1 NH, Konzentrationsvergleiche mit unabhängigen Messsystemen	
	3.2.2 Vergleich bLS Methode mit Massenbilanzmethode (IHF)	
	3.2.3 Reproduzierbarkeit	
	3.2.4 Einfluss der Parzellengrösse auf die Emissionen	
	3.2.5 Versuche zur Bestimmung der Wiederfindungsrate mittels	
	künstlicher Quelle	
	3.3 NH ₃ Emissionsbestimmung	
	3.3.2 Einfluss der Tageszeit auf die NH ₃ -Emissionen	.55 .55
	3.3.4 Abschätzung der "versteckten" Emission durch Erhöhung des NH ₃ Kompensationspunktes durch die Düngung	
	3.3.5 Zusammenfassung der gemessenen NH3-Emissionen	
	3.3.6 Einfluss der emissionsmindernden Ausbringtechniken und der Gülleart auf die NH3-Emissionen	t
	3.3.7 Regressionsanalyse und Modellierung der kumulierten Emission	
	nach 24 h	
	3.3.8 Modellierung der extrapolierten Emission nach 96 h	
	3.3.10 Ursachen für die Differenzen zwischen den Resultaten der	.02
	vorliegenden Studie und den Werten der schweizerischen Messungen aus den 1990er Jahren	.63
4	Schlussfolgerungen	. 64
	4.1 Qualität der Messungen	
	4.1.1 Messtechnik	.64
	4.1.2 Ausbreitungsmodellierung	
	4.1.3 Zusammenfassende Beurteilung der Genauigkeit der experimentellen Emissionsbestimmungen im Rahmen der	
	Standardversuche	.64
	4.2 Wichtigste Erkenntnisse aus dem vorliegenden Projekt	
	4.3 Einordnung der bestimmten Emissionen in den internationalen Kontext.	
	4.4 Forschungsbedarf und Ausblick	
	4.4.1 Genauigkeit der Emissionsbestimmung	
	4.4.2 Ausbringung von Gülle	
	4.4.3 Ausbringung von Festmist	
	4.4.4 Weideemissionen	
5	Verdankungen	. 71
6	Literaturverzeichnis	. 72

7	Anhänge79
	Messhöhen der durchgeführten Versuche
	Wichtigste Resultate der durchgeführten Versuche80
	A Steckbriefe der einzelnen Versuche
	A.1 Standort Hohenrain82
	A.2 Standort Posieux
	A.2 Standort Tänikon 110
	A.1 Standort Wengi126
	B Material und Methoden150
	B.1 Mittelung der berechneten C/E-Verhältnisse
	B.2 WindTrax und verwendete Turbulenz Parameter
	B.3 Berechnung der Emission grösserer Versuchsparzellen
	B.4 Neuberechnung von ZINST154
	B.5 Parameter-Set der Regressionsanalyse155
	B.6 Regressionsverfahren
	B.7 Informationsbasierte Modellauswahl und Modellauswahl-Inferenzen 160
	B.8 Emissionsgewichtete Mittelung der Meteoparameter160
	C Resultate und Diskussion
	C.1 Anmerkungen zur praktischen Anwendung der ZINST Methodik 161
	C.2 Experimenteller Vergleich zwischen WindTrax, IHF & ZINST 161
	C.3 Abschätzung des Anteil horizontaler turbulenten Dispersion am Advekti-
	onsfluss einer IHF Berechnung162
	D Anhang Meteorologische Versuchsbedingungen165
	E Anhang Produktionstechnik der Versuchsbetriebe166

Abstracts

Die Ausbringung von Gülle ist in der Schweiz die wichtigste Quelle der landwirtschaftlichen Ammoniakverluste. Das Ziel der vorliegenden Studie beinhaltete die Bestimmung der diffusen Emissionen von Ammoniak (NH.) nach Gülleausbringung auf Grasland sowie die Wirkung von emissionsmindernden Ausbringtechniken. Die Bestimmung der Emissionen erfolgte im Rahmen von 17 Feldstudien mittels einer mikrometeorologischen Methode. Dabei wurden Ammoniakkonzentrationen über der begüllten Fläche gemessen und mittels eines Rückwärtstrajektorienmodells die Emissionen geschätzt. Die Emissionen nach Ausbringung von Rindviehgülle mit einem mittleren Trockensubstanzgehalt (TS) von 3.3 % (Bereich: 1.0 - 6.7 % TS) mittels der Referenztechnik Prallteller lagen zwischen 10 % und 47 % TAN (engl.: Total Ammoniacal Nitrogen; Mittelwert: 25 % TAN). Diese Werte liegen tiefer als frühere Versuchsresultate aus der Schweiz. Gegenüber dem Prallteller wurde mit den emissionsmindernden Ausbringtechniken eine Reduktion der Verluste von 51 % (Schleppschlauch), 53 % (Schleppschuh) und 76 % (Gülledrill) erreicht. Diese Reduktionswerte sind etwas höher als Angaben aus der Literatur für den Schleppschlauch bzw. in einem ähnlichen Bereich für die Verfahren Schleppschuh und Gülledrill. In einer Regressionsanalyse erwiesen sich der TS-Gehalt der Gülle und die Lufttemperatur als wichtigste Faktoren für die Höhe der NH, Emissionen. Ein nach Abschluss der Auswertungen kommunizierter Fehler der Ultraschall-Anemometer dürfte zu einer relativen Erhöhung der berechneten Emissionen zwischen 0 - 10 % führen (d.h. eine Multiplikation der Emission mit einem Faktor 1.0 -1.1). Eine genaue Bestimmung der Korrektur erfordert eine Neuberechnung sämtlicher Experimente. Zusätzliche Experimente mit einer künstlichen Ammoniakquelle zeigten Wiederfindungsraten von weniger als 100 % unabhängig von der angewandten Methodik zur Emissionsbestimmung. Weitere Untersuchungen müssen zeigen, ob der beobachtete Minderbefund auf eine Unterschätzung von experimentell bestimmten Emissionen hinweist oder auf Depositionsprozesse zurückzuführen ist.

L'épandage du lisier représente la source principale des pertes d'ammoniac provenant de l'agriculture. Le but de la présente étude était de déterminer les émissions d'ammoniac (NH₂) après l'épandage du lisier sur surfaces herbagères et l'efficacité de techniques d'épandage de lisier réduisant les émissions. La détermination des émissions a été réalisée dans le cadre de 17 études sur terrain en utilisant une méthode micro-météorologique. Les émissions après l'application de lisier bovin avec une teneur moyenne de 3.3 % de matière sèche (1.0 - 6.7 % de matière sèche) épandu avec un déflecteur se situaient entre 10 et 47 % de TAN (anglais : Total Ammoniacal Nitrogen ; moyenne : 25 % TAN). Ces chiffres sont inférieurs par rapport aux résultats précédents issus d'études effectués en Suisse. En comparaison avec le déflecteur les techniques d'épandage de lisier réduisant les émissions ont atteint une diminution de 51 % (rampe d'épandage à tuyaux flexibles), 53 % (injecteur à patins) et 76 % (enfouisseur de lisier). Les taux de réduction trouvés sont un peu plus élevés que les données de la littérature pour la rampe d'épandage à tuyaux flexibles. Pour l'injecteur à patins et l'enfouisseur de lisier la diminution des émissions correspondait bien à la littérature. Une analyse de régression montrait que la teneur du lisier en matière sèche et la température ambiante étaient les facteurs plus importants pour les émissions d'ammoniac. Une erreur dans les anémomètres à ultrasons communiquée après la fin de la mise en valeur des données entraînera une augmentation relative des émissions calculées de 0 à 10 %. Une détermination exacte de la correction à effectuer nécessitera un recalcul de chaque expérience. Des essais avec une source d'ammoniac artificielle ont montré des taux de récupération inférieurs à 100 % quelle que soit la méthode utilisée pour la détermination des émissions. Des investigations supplémentaires sont nécessaires pour démontrer si la différence est due à une sous-estimation des émissions ou à des processus de déposition.

The application of slurry is the most important emission source of the agricultural ammonia (NH.) losses. The objectives of this study were to reevaluate NH, emissions following application of slurry to grassland and to investigate the effectiveness of abatement techniques. In 17 field experiments, $\mathrm{NH}_{_{\mathrm{I}}}$ emissions were measured with a micrometeorological approach. The emissions after application of cattle slurry with an average dry matter content of 3.3% (range between 1.0% and 6.7%) using the reference technique (splash plate) were between 10% and 47% of applied TAN (Total Ammoniacal Nitrogen; mean: 25% TAN) which is lower as compared to earlier Swiss experiments. The use of abatement techniques yielded on average a reduction of 51% for the application with trailing hoses, 53% for trailing shoe and 76% for shallow injection systems relative to the reference technique. These values are somewhat higher for the trailing hose technique but similar for trailing shoe and shallow injection systems as compared to data from the literature. A regression analysis showed that the dry matter content of the slurry and the air temperature are important drivers for NH, emission. A bug of the ultrasonic anemometers communicated after completion of the data analyses will result in a relative increase of the calculated emission by 0 to 10%. A precise determination of the correction factor will require a recalculation of each individual experiment. Additional experiments with an artificial ammonia source showed recovery rates lower than 100% independent from the method used for the determination of the emissions. Further experiments are necessary in order to explore whether these findings are due to an underestimation of emissions or to deposition processes.

Zusammenfassung

Ausgangslage, Ziele

Die diffusen Emissionen von Ammoniak (NH₃) tragen wesentlich bei zur weiträumigen Überschreitung der kritischen Stickstoffeinträge in naturnahe Ökosysteme. Im Jahr 2010 betrugen die Ammoniakemissionen in der Schweiz aus der Landwirtschaft gemäss dem aktuellen schweizerischen Emissionsinventar (Kupper et al. 2013, 2015) rund 48'000 t Stickstoff (N). Dies entspricht 92 % der gesamten anthropogenen Ammoniakemissionen. Innerhalb der Landwirtschaft war die Ausbringung von Gülle mit einem Anteil von 32 % die wichtigste Quelle (Kupper et al. 2013).

Das Modell Agrammon, mit welchem in der Schweiz die landwirtschaftlichen Emissionen modelliert werden, verwendet für die Ausbringung von 1:1 verdünnter Gülle von Rindvieh bzw. Schweinen (entsprechend einem TS-Gehalt von 4.5% bei Rindern und 2.5% bei Schweinen) mit dem Prallteller eine Standard Emissionsrate von 50 % bzw. 35 % der ausgebrachten TAN Menge (engl. Total Ammoniacal Nitrogen). Diese Werte basieren auf international verwendeten Referenzdokumenten sowie den Resultaten der Untersuchungen in der Schweiz der 1990er Jahre. Neuere Arbeiten von Agroscope ART Reckenholz zeigten im Vergleich dazu für Gülle mit tiefen TS-Gehalten deutlich niedrigere Emissionen. Um offene Fragen klären zu können, wurden das Agroscope-Institut für Nachhaltigkeitswissenschaften INH und die Hochschule für Agrar-, Forst- und Lebensmittelwissenschaften HAFL vom Bundesamt für Landwirtschaft (BLW) und dem Bundesamt für Umwelt (BAFU) mit dem vorliegenden Forschungsprojekt beauftragt. Es beinhaltet eine vertiefte Untersuchung und Erweiterung messtechnischer Aspekte und eine Serie von Feldversuchen mit dem Ziel, eine Datenbasis für eine Überprüfung der Emissionsraten zur Modellierung der Ammoniakemissionen nach Ausbringung von Gülle und für eine Diskussion auf internationaler Ebene zur Verbesserung von Grundlagen zur Erstellung von Ammoniak-Emissionsinventaren zu generieren.

Material und Methoden

Versuchsstandorte

Bei der Auswahl der Versuchsflächen wurden Betriebe evaluiert, welche idealerweise ebene Flächen mit der erforderlichen Grösse, einer gut voraussagbaren frei anströmbaren Windrichtung und ohne bedeutende stationäre Emissionsquellen in der Umgebung zur Verfügung stellen konnten. Die Rahmenbedingungen, sowohl bezüglich der meteorologischen Bedingungen als auch hinsichtlich der landwirtschaftlichen Produktion, sollten sich über mindestens drei Tage nach Ausbringung der Gülle nicht ändern. Weiter war die Bereitschaft der Betriebsleiter zur Zusammenarbeit im Rahmen der Versuche entscheidend. Nur Betriebe mit Milchvieh bzw. Schweinen und üblicher Produktionstechnik sowie Produktion von reiner Rindvieh- bzw. Schweinegülle kamen für die Versuche in Frage.

NH, Emissionsbestimmung

Im Rahmen von 14 Versuchen wurden verschiedene Parameter variiert, welche die Grösse der kumulierten NH₃-Emission beeinflussen können.

Die Durchführung der Experimente erfolgte im Frühjahr, Sommer und Herbst, um die ganze Bandbreite der meteorologischen Bedingungen bei der Gülleausbringung abbilden zu können. In den Versuchen wurde Gülle innerhalb von möglichst kurzer Zeit auf zwei bis vier verschiedene Versuchsparzellen (Grasland) mit einer Grösse von ca. 30 m x 30 m ausgebracht.

Zur Bestimmung der Ammoniakkonzentrationen über den Versuchsflächen kam ein in der Mitte der emittierenden Fläche platziertes Low Cost Sammelsystem (LOCI) zum Einsatz, bestehend aus einer Reihe von Impingern auf 2 Höhen mit je 7 Messpositionen, welche sequentiell betrieben wurden. Die ammoniakhaltige Luft wurde dabei durch die Impinger gesaugt, und Ammoniak als Ammonium (NH_4^+) in einer sauren Lösung aufgefangen. Die Berechnung der Ammoniakkonzentration in der Luft erfolgte nachträglich mittels des durch die Impinger gesaugten Luftvolumens und des Gehalts an Ammonium in der Lösung.

Bei den Versuchen zur Bestimmung der Wiederfindungsrate kamen auch linienintegrierte Messungen mittels miniDOAS über eine Pfadlänge von rund 40 Metern zum Einsatz.

Die Umrechnung der erfassten Ammoniakkonzentration in Emissionen wurde mittels eines aktuellen "backward Lagrangian stochastic" (bLS) Dispersionsmodells durchgeführt. Die Erhebung der erforderlichen detaillierten Wind- und Turbulenzinformationen während jedem Experiment erfolgte mittels Ultraschall-Anemometer. Dazu kamen die häufig verwendeten Gill Windmaster Pro Instrumente zum Einsatz. Nach Abschluss der Auswertungen wurde eine Meldung des Herstellers publik, wonach in der internen Berechnung der vertikalen Windkomponente ein Fehler vorliegt. Die positiven Werte werden um 29 % unterschätzt, die negativen Werte um 17 %. Dieser Fehler hat Auswirkungen auf die vorliegenden Emissionen. Erste Abschätzungen der notwendigen Korrekturen ergeben relative Erhöhungen von bis zu 10 %. Diese werden für die einzelnen Experimente unterschiedlich ausfallen. Weitere bei jedem Versuch erfasste Parameter sind die Eigenschaften der eingesetzten Gülle (TS, TAN, Gesamtstickstoff, pH etc.), die Höhe des Bewuchses sowie meteorologische Parameter wie Temperatur oder Globalstrahlung.

Validierung der angewendeten Methode zur Bestimmung der Emissionen

Im vorliegenden Projekt wurden grosse Anstrengungen unternommen, die Genauigkeit der Messwerte zu bestimmen, und die angewendeten Methoden durch unabhängige Ansätze zu überprüfen. Diese Arbeiten beinhalteten einen Vergleich zwischen dem im Rahmen der Standardversuche gewählten Ansatz (vgl. Abschnitt "NH₃ Emissionsbestimmung" oben), welcher auf einer Emissionsberechnung mittels eines bLS Dispersionsmodells basiert, und aufwändigeren Massenbilanzmethoden. Weiter wurden Versuche zur Bestimmung der Wiederfindungsrate von NH₃ und Methan mittels einer künstlichen Quelle durchgeführt.

Extrapolation der kumulierten Emission auf 96 h

Die Ammoniakemissionen werden als Gesamtverluste nach 96 h angegeben. Aufgrund verschiedener Ursachen, wie z.B. Eintreten von Schlechtwetterlagen oder Eintrag grosser Mengen an NH₃ von angrenzenden Parzellen wegen Ausbringung von Hofdüngern, mussten Versuche vorzeitig abgebrochen werden. Die Emissionen nach 96 h wurden basierend auf den Verläufen bestehender, länger dauernder Versuche berechnet. Zusätzlich wurden die gemessenen Emissionen an eine Michaelis-Menten-Gleichung gefittet und daraus ein Gesamtverlust abgeleitet.

Regressionsanalyse und Modellierung der kumulierten Emission

Weiter erfolgte auf der Grundlage einer Regressionsanalyse die Erarbeitung eines Modells zur Abbildung der kumulierten Emission nach Ausbringung von Rindviehvollgülle mittels Prallteller. Für die Modellierung der Emissionen von Schweinegülle sind nicht genügend Messdaten vorhanden.

Resultate

Genauigkeit der angewendeten Methoden

Die Genauigkeit der prozentualen Verluste von NH₃ setzt sich im Wesentlichen aus drei unabhängigen Fehlerquellen zusammen: i) analytische Konzentrationsbestimmung, ii) verwendete Ausbreitungsmodellierung und iii) Versuchsparameter wie die Ausbringungsmenge, TS- und TAN-Gehalt der Gülle sowie die Geometrie der emittierenden Fläche.

Die analytische Genauigkeit der LOCI Systeme liegt bei \pm 8 %. Die Unsicherheit der Ausbreitungsmodellierung mittels eines bLS Dispersionsmodells beträgt \pm 20 % (2σ) mit Ausnahme von extrem instabilen oder stabilen Wetterbedingungen (Turbulenz), bei welchen die im Ausbreitungsmodell implementierten Annahmen nicht mehr gelten. Die durchgeführten Versuche zur Bestimmung der Wiederfindungsrate von Methan mittels künstlicher Quelle bestätigen diesen Sachverhalt. Es wird angenommen, dass die Unsicherheiten der Versuchsparameter in der gleichen Grössenordnung liegen wie die Genauigkeit der LOCI Systeme. Die Präzision einer Einzelmessung gemäss Standardversuch (vgl. Abschnitt "NH, Emissionsbestimmung") liegt somit bei \pm 30 % (2σ).

Die durchgeführten Versuche zur Bestimmung der Wiederfindungsrate von Ammoniak mittels einer künstlichen Quelle über einer Asphaltfläche liegen für einzelne Punktmessungen zwischen 45 % und 132 % bei den verschiedenen Sensoren auf einzelnen Höhen des Zentralprofils, wobei die Werte mehrheitlich weniger als 100 % betragen. Die mittleren Wiederfindungsraten bei den drei vertrauenswürdigen Messhöhen (0.65 m, 0.91 m und 1.23 m) der LOCI am Zentralmast von 4 Experimenten betragen gemäss bLS Ansatz 89 %, 55 %, 81 % und 90 %, die IHF Methode am Zentralmast eine solche von 82 %, 56 %, 52 % und 90 %. Die Wiederfindungsraten der LOCI Systeme im Lee direkt bei der Quelle betragen 76 %, 80 %, 85 % und 85 %. Weiter von der Quelle entfernte LOCI Messungen ergaben für das erste Experiment 103 % und für das zweite Experiment 105 %. Linienintegrierte DOAS Messungen ergeben Wiederfindungsraten von 88 %, 100 %, 89 % und 96 %. Über abgespritztem Gras (Versuch in Witzwil) wurde mit DOAS Messungen im Lee eine Wiederfindungsrate von durchschnittlich etwa 75 % gefunden.

Bei den Punktmessungen zeigt sich bei einigen Experimenten eine Zunahme der berechneten Emissionen mit der Höhe. Die notwendige Korrektur der vertikalen Windkomponente führt zu einer stärkeren vertikalen Durchmischung im verwendeten Ausbreitungsmodell, womit die beobachtete Höhenabhängigkeit abnimmt oder aufgehoben wird.

Vorliegende Messergebnisse weisen darauf hin, dass bei der verwendeten Versuchsanordnung mit der künstlichen Quelle ein Teil der emittierten NH₃ Moleküle zwischen Quelle und Sensor deponiert wird. Daraus folgt, dass Ammoniak nicht als konservativer Tracer betrachtet werden kann. Ein systematischer Minderbefund ist daher zu erwarten.

In drei Versuchen zeigte die Emissionsbestimmung gemäss Standardversuch auf Messhöhen zwischen 0.6 und 1.0 Meter eine sehr gute Übereinstimmung mit der weitgehend modellunabhängigen IHF-Methode.

Bei Emissionsmessungen von räumlich begrenzten Flächen ist eine linienintegrierte Messung einer Punktmessung prinzipiell vorzuziehen. Die Entwicklung der DOAS Technologie (engl.: Differential Optical Absorption Spectroscopy) überwindet die wichtigsten Limitierungen der bis jetzt üblicherweise verwendeten NH_3 Analytik. Die DOAS Technologie ist berührungsfrei und weist bei hoher Sensitivität eine Zeitauflösung von einer Minute auf. Die Präzision der neuen Generation der DOAS Messsysteme (miniDOAS) beträgt \pm 0.2 µg m $^{-3}$ bei einer Integrationszeit von einer Minute und einer Pfadlänge von 50 m (Distanz Sensor zu Retroreflektor 25 Meter). Der Arbeitsaufwand beim Betrieb ist deutlich kleiner als bei LOCI Systemen. Die in den letzten Jahren entwickelten miniDOAS ermöglichen auch eine ausreichend präzise Erfassung von schwach emittierenden Flächenquellen, wie sie typischerweise bei beweideten Flächen oder bei der Ausbringung von Festmist vorkommen.

Einfluss der Parzellengrösse auf die Emissionen

Die Untersuchungen zum Einfluss der Parzellengrösse auf die Emissionen zeigten, dass sich die Emissionen nach Ausbringung von Gülle bei Experimenten basierend auf Versuchsflächen mittlerer Grösse (ca. 30 m x 30 m) nicht von denjenigen unterscheiden, welche auf Parzellen von praxisüblicher Grösse gemessen werden.

Zeitlicher Verlauf der gemessenen Ammoniakemissionen

Im Durchschnitt aller Versuche mit Rindviehvollgülle und dem Verfahren Prallteller erfolgten 86 % der Emission innerhalb von 24 h nach der Ausbringung (Bereich: 69 bis 99 %). Die emissionsmindernden Ausbringtechniken zeigten einen ähnlichen zeitlichen Emissionsverlauf wie das Referenzverfahren Prallteller.

Kumulierte NH₃ Emissionen in Abhängigkeit der Ausbringtechniken sowie von Gülleart, Tageszeit der Ausbringung und Trockensubstanzgehalt der Gülle

Kumulierte NH_3 Emissionen werden im vorliegenden Bericht als Anteil der ausgebrachten TAN Menge angegeben. Eine praxisübliche N-Menge bei Ausbringung von Gülle entspricht 30 kg TAN pro Hektar. Ein relativer Verlust von 20 % TAN entspricht somit 6 kg N ha⁻¹, 30 % entsprechend 9 kg N ha⁻¹.

Die auf 96 h extrapolierten Ammoniakemissionen nach Ausbringung von Rindviehvollgülle mittels Prallteller (Anzahl Messungen, n=24) betrugen 10 - 47 % (Mittelwert: 25 %) der ausgebrachten TAN Menge. Der TS-Gehalt der Gülle befand sich im Bereich von 1.0 bis 6.7 %. Die maximale Verlustrate von 47 % wurde bei Bedingungen gemessen, welche hohe Emissionen begünstigen (Gülle: 6.7 % TS, hohe Temperatur, Ausbringung am Mittag mittels Prallteller, relativ hohe Windgeschwindigkeit). Die Verluste nach Ausbringung von Rindviehvollgülle mittels Schleppschlauch (n=12), Schleppschuh (n=5) und Gülledrill (n=1) lagen bei 4 - 24 % TAN (TS-Gehalt der Gülle: 1.0 - 5.1 %), 4 - 12 % TAN (TS-Gehalt der Gülle: 1.5 - 3.0 %) bzw. 7 % TAN (TS-Gehalt der Gülle: 2.5 %). Im Vergleich zum Prallteller erreichten die emissionsmindernden Ausbringtechniken eine Reduktion der Verluste von 28 - 67 % (Schleppschlauch), 36 - 71 % (Schleppschuh) und 76 % (Gülledrill). Im Mittel wurden eine höhere Reduktion für den Schleppschlauch bzw. Werte in einem ähnlichen Bereich für die Verfahren Schleppschuh und Gülledrill erzielt im Vergleich zu Angaben aus der Literatur bzw. den im Rahmen der schweizerischen Emissionsmodellierung verwendeten Parameter. In den vorliegenden Versuchen wurde der Schleppschlauch korrekt eingesetzt (Verteiler tief eingestellt und damit Ablage der Gülle auf den Boden, angepasste Ausbringmenge).

Bei Ausbringung von Mastschweinegülle sowie Zuchtschweinegülle mittels Prallteller betrugen die Emissionen 6 - 15 % TAN (Mittelwert: 11 %; TS-Gehalt der Gülle: 1.0 - 3.3 %). Diese Werte stimmen im Verhältnis gut überein mit Daten aus der Literatur.

Zwei Versuche mit Ausbringung von Gülle mit dem Prallteller weisen darauf hin, dass bei Ausbringung am Morgen (ca. 6h00) weniger Ammoniak emittiert wird als bei Ausbringung über Mittag. Für die Ausbringung am Abend (ca. 18h00) ist das Bild uneinheitlich.

Regressionsanalyse und Modellierung der kumulierten Emission

Die wichtigsten Parameter zur Modellierung der Emission für das Referenzsystem (Ausbringung von Rindviehgülle mit Prallteller) sind die Lufttemperatur auf 2 m über Boden (T_{2m}) sowie der Trockensubstanzgehalt der Gülle (TS). Die Höhe des Bewuchses, die Ausbringmenge der Gülle sowie die Windgeschwindigkeit zeigten in der Regressionsanalyse der durchgeführten Versuche keinen wesentlichen Einfluss auf die Emissionshöhe.

Die Beziehung der kumulierten Emission über 96 h zu T_{2m} und TS lässt sich durch die folgende Gleichung beschreiben:

$$V_{96h} = \exp\{1.97 + 0.032 * T_{2m} + 0.18 * TS\}$$

Wobei V_{96h} für die gesamte Emission (in % des ausgebrachten TAN) nach 96 h steht. T_{2m} ist die über 96 h emissionsgewichtet gemittelte Lufttemperatur in °C auf 2 m über Boden und TS der Trockensubstanzgehalt der Gülle in %. Abbildung 1 visualisiert diesen Zusammenhang.

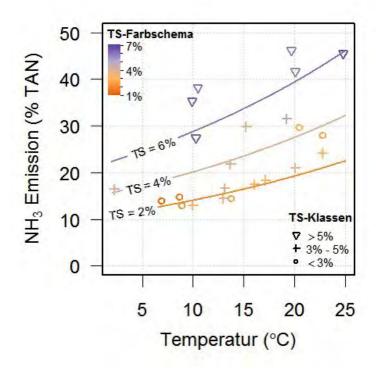


Abbildung 1: Ammoniakemission in Abhängigkeit der emissionsgewichtet gemittelten Lufttemperatur und des TS-Gehaltes der Rindviehgülle. Die ausgezogene Linie zeigt die modellierte Emission entsprechend der oben aufgeführten Gleichung (bzw. Gleichung (8)). Die Symbole stellen die gemessenen Emissionen in drei TS-Klassen (< 3%, 3% - 5%, > 5%) dar.

Schlussfolgerungen und Ausblick

Aus den Resultaten des vorliegenden Projekts folgt, dass die hier gemessenen NH₃-Emissionsraten nach Ausbringung von Gülle mittels Prallteller tiefer sind als im Rahmen der schweizerischen Emissionsmodellierung Agrammon verwendeten Werte, welche auf Messungen in den 1990er Jahren beruhen.

Aufgrund der Analyse und Neumodellierung detaillierter Datensätze der schweizerischen Versuche aus den 1990er Jahren liessen sich drei Faktoren identifizieren, die zu einer systematischen Überschätzung der daraus abgeleiteten Emissionsraten führten:

- 1. Overspeeding der Schalenanemometer bei windarmen Bedingungen.
- 2. Nicht Berücksichtigung der gegenseitigen Beeinflussung der Ammoniakkonzentrationen durch die verwendeten Versuchsflächen.
- 3. Der bei den Experimenten aus den 1990er Jahren verwendete Skalierungsfaktor, anhand welchem sich die Emissionsstärke über das Produkt der gemessenen NH₃-Konzentration und der Windgeschwindigkeit berechnen lässt, hat sich bei Neuberechnungen mit einem verbesserten Ausbreitungsmodell als zu klein herausgestellt.

Die Experimente mit einer künstlichen Ammoniakquelle zeigten in 4 Experimenten bei den drei vertrauenswürdigen Messhöhen (0.65 m, 0.91 m und 1.23 m) der LOCI am Zentralmast auf Asphalt mittlere Wiederfindungsraten gemäss bLS Ansatz von 89 %, 55 %, 81 % und 90 %. Eine Wiederfindungsrate von ca. 75 % wurde bei den Versuchen mit einer künstlichen Quelle über abgespritztem Gras und linienintegrierter Messung im Lee gefunden. Die Wiederfindungsraten gemäss bLS- und IHF-Ansatz stimmten gut überein. Weitere Untersuchungen müssen zeigen, ob der beobachtete Minderbefund auf eine Unterschätzung von experimentell bestimmten Emissionsraten hinweist, oder auf Depositionsprozesse zurückzuführen ist.

Bei einer 1:1 verdünnten Rindviehgülle (TS-Gehalt: 4.5 %; TAN-Gehalt: 1.15 g/L), Ausbringmenge: 30 m³/ha, Temperatur: 12 °C resultieren die folgenden Emissionen: 26.1 % TAN gemäss dem vorliegenden Regressionsmodell (96 h) (vgl. Gleichung (9), 50.6 % TAN gemäss Menzi et al. (1998) und 49.4 % TAN gemäss ALFAM (Søgaard et al., 2002).

Die relative Reduktion von Ammoniakemissionen, welche in den vorliegenden Versuchen auf Grasland mittels Schleppschuh und Gülledrill im Vergleich zum Prallteller erreicht wurde, entspricht in etwa den Daten aus der Literatur. Für den Schleppschlauch wurde eine in der Tendenz höhere Emissionsminderung im Vergleich zu den Literaturdaten gefunden.

Die von der vorliegenden Forschungsarbeit abgeleiteten Emissionsraten für die Ausbringung von Gülle sind niedriger als die in der Emissionsmodellierung auf internationaler Ebene verwendeten Werte. Die Eigenschaften der Gülle (relativ niedriger TS-Gehalt) kombiniert mit den meteorologischen Verhältnissen (tiefe mittlere Windgeschwindigkeit: oft unter 1 m/s) der Schweiz, lassen relativ niedrige Emissionsraten für Gülle als plausibel erscheinen. Die Modellierung der Ausbringemissionen mittels gebräuchlicher Modelle (z.B. ALFAM Modell) führt zu Zahlen, die höher liegen als die im vorliegenden Projekt gemessenen Werte. Allerdings bestehen diesbezüglich Widersprüche und Lücken, welche international zumindest teilweise erkannt wurden. Die Erarbeitung eines verbesserten Modells für Emissionen nach Ausbringung von Gülle soll im Rahmen des Projekts ALFAM II erfolgen. Die Daten und alle damit verbundenen Unsicherheiten aus dem vorliegenden Projekt sowie das daraus resultierende Knowhow werden in die Aktivitäten von ALFAM II eingebracht.

Jede Umsetzung gemessener Konzentrationen in eine Emissionsrate bedingt die Anwendung eines Modells. Die dabei verwendeten Modellparameter vereinfachen die realen Verhältnisse zwangsläufig. Die Ausbreitungsmodellierung mit dem hier verwendeten Ansatz ist wissenschaftlich anerkannt und wird international breit angewendet. Trotz bedeutender methodischer Fortschritte verbleibt eine Unsicherheit von \pm 30 % (2 σ). Problematisch sind mögliche nicht erkannte systematische Abweichungen, welche die Unsicherheit erhöhen können. Der nach Abschluss der Auswertungen kommunizierte Fehler des verwendeten Ultraschall Windmessgerätes ist ein Beispiel dafür. Die in diesem Bericht angegebenen Emissionsraten werden sich aufgrund der notwendigen Neuberechnungen relativ um bis zu 10 % erhöhen. Auf die ausgebrachte TAN Menge bezogene Ver-

luste können beispielsweise von 30 % TAN auf 33 % TAN zunehmen. Eine genaue Bestimmung der Korrektur erfordert eine Neuberechnung sämtlicher Experimente.

Eine potentielle Fehlerquelle ist die Wahl der Messhöhe. Die Messpunkte müssen einen Mindestabstand zu den Quellen von ca. 50 cm aufweisen, damit genügend Zeit für eine turbulente Durchmischung der emittierten Moleküle mit der über der emittierenden Oberfläche liegenden Luftschicht bleibt. Die Messung darf auch nicht in zu grosser Höhe erfolgen, da in diesem Falle die emittierende Quellfläche nur zu einem sehr geringen Teil den Fluss an der Messstelle widerspiegelt. Die in den vorliegenden Standardversuchen gewählten Messhöhen zwischen 0.6 m und 1.5 m führen gemäss eigenen Untersuchungen sowie den Studien von Laubach (2010) und Yang et al. (2016) zu keiner systematischen Unter- oder Überschätzung der Emissionen. Die Korrektur des systematischen Fehlers des Ultraschall-Anemometers vermindert die beobachtete Tendenz einer Zunahme der mit dem bLS-Modell berechneten Emissionen mit der Messhöhe.

Die Quantifizierung der Höhenabhängigkeit basierend auf Versuchen zur Bestimmung der Wiederfindungsrate mittels künstlicher Quelle ist für Ammoniak schwierig, insbesondere aufgrund der zu erwartenden Deposition in der unmittelbaren Quellenumgebung. Um diese zu quantifizieren, wäre die Integration eines Depositionsalgorithmus in das verwendete Ausbreitungsmodell erforderlich, welcher mit Messungen validiert werden muss. Die Bedeutung der Deposition liesse sich experimentell mit einer Serie von vertikalen Profilmessungen untersuchen, die windabwärts einer emittierenden Fläche im Abstand von 0.5 bis 10 mal der Quellenausdehnung durchgeführt werden. Die Deposition ist für die Bestimmung der Emissionen von Weiden oder der Ausbringung von Festmist relevant, da in diesen Fällen auf den untersuchten Flächen gleichzeitig Emission und Deposition stattfinden

Idealerweise müsste eine quantitative Messung von Emissionen die Flüsse durch alle Seitenwände und das Dach einer Box über einer emittierenden Fläche erfassen. Dies würde die Kombination von horizontalen Flussmesssystemen, beispielsweise linienintegrierte Messungen mittels miniDOAS, kombiniert mit einer Windgeschwindigkeitsmessung und vertikalen Flussmessungen (Eddy Korrelationssystemen) bedeuten. Ein experimenteller Ansatz dieser Art erfordert einen grossen Aufwand.

Vertikale Transportmechanismen, die in dem verwendeten Ausbreitungsmodell nicht erfasst werden, lassen sich prinzipiell nicht ausschliessen. Solche Prozesse sind aber nur sehr schwer messbar, da deren vertikale Ausbreitung nicht bekannt ist. Um abzuschätzen, ob solche Phänomene eine wichtige Rolle spielen, können mittels der miniDOAS Systeme windauf – und windabwärts auf einer Höhe, die mindestens dreimal der Quellenausdehnung in Längsrichtung des Windes entspricht, hochaufgelöste Konzentrationsreihen gemessen werden. Die Höhe wird dabei so gewählt, dass Ammoniakmoleküle bei normalen Turbulenzbedingungen diese nicht erreichen. Eine messbare Zunahme der Konzentration windabwärts gegenüber der Konzentration windaufwärts würde auf solche Prozesse hinweisen.

Glossar

ALFAM	Akronym des Projekts ALFAM (Ammonia Loss from Field-applied Animal Manure) und dem daraus resultierenden Modell (Søgaard et al., 2002)
AR	Applikationsrate (= ausgebrachte Güllemenge pro Fläche) in t/ha
bLS	engl.: backward Lagrangian Stochastic model. Typ eines Ausbreitungsmodells zur Modellierung von Gasemissionen.
С	Konzentration eines Spurenstoffs in der Luft
$\mathcal C$ sowie $ar c$	zeitlicher Mittelwert von c
CET	engl.: Central European Time (deutsch: Mitteleuropäische Zeit MEZ)
d	aerodynamische Verschiebungshöhe
Depositions geschwindig keit	Die Depositionsgeschwindigkeit ist der Proportionalitätsfaktor zwischen der atmosphärischen Konzentration eines Schadstoffs in einer bestimmten Referenzhöhe und dem dazugehörigen Depositionsfluss; sie entspricht somit dem Kehrwert des Gesamtwiderstandes (Builtjes et al., 2011).
DOAS	engl.: Differential Optical Absorption Spectroscopy (Methode zur Bestimmung der Ammoniakkonzentration in der Luft)
E	Emissionsfluss, d.h. Massenfluss pro Zeit- und Flächeneinheit
Emissionsfaktor	Anteil eines Flusses von TAN oder N_{tot} , welcher auf einer bestimmten Emissionsstufe unter Berücksichtigung von Korrekturfaktoren aufgrund der Produktionstechnik in Form von Ammoniak emittiert wird. Der Emissionsfaktor ist ein Resultat der Emissionsmodellierung. Er entspricht der Emission pro Tier einer bestimmten Tierkategorie total oder pro Emissionsstufe.
Emissionsrate	Anteil eines Flusses von TAN oder N _{tot} , welcher auf einer bestimmten Emissionsstufe in Form von Ammoniak emittiert wird. Die Emissionsrate ist ein Modellparameter der Emissionsmodelle (in der englischen Fachliteratur wird nicht zwischen Emissionsrate und Emissionsfaktor unterschieden; man verwendet generell den Begriff "Emission factor").
Emissionsstufe	Stufe in den Emissionsmodellen, auf welcher Ammoniak emittiert wird: Weide, Stall/Laufhof, Hofdüngerlagerung, Hofdüngerausbringung
Fetch, Fetchlänge	Luv-seitige Wirklänge des Windes
$h_{Bestand}$	Mittlere Wuchshöhe des Bestandes in cm
IHF Methode	engl.: "Integrated Horizontal Flux" Methode
Impinger	Ein Impinger (=Waschflasche oder Gaswaschflasche) ist ein Gerät, welches in einen Gasfluss eingeschaltet wird, wobei das Gas mittels eines Tauchrohres gezwungen wird, durch eine Flüssigkeit zu perlen, bevor es den Behälter wieder verlässt. Es dient dazu, Gase zu reinigen ("waschen"). Die Flasche ist mit einem Lösungsmittel gefüllt, in welches das gaszuführende Röhrchen eintaucht¹. Die hier verwendeten Impinger sind mit einer sauren Lösung gefüllt, in welcher das in der zugeführten Luft enthaltene Ammoniak in Form von Ammonium zurückgehalten wird.
K_m	Aus Michaelis-Menten-Fit abgeleitete Dauer, bis die Emission die Hälfte der Gesamtemission N_{\max} erreicht.
L	Obukhov-Länge
	Wind abgewandte Seite

Definition nach Wikipedia (http://de.wikipedia.org/wiki/Waschflasche)

LOCI	Low cost sampling instrument (Messinstrument zur Bestimmung der Ammoniakkonzentration in der Luft)		
Luv	Wind zugewandte Seite		
miniDOAS	Messinstrument zur Bestimmung der Ammoniakkonzentration in der Luft, das auf der differenziellen optischen Absorptionsspektro- skopie basiert		
MOST	engl.: Monin-Obukhov Similarity Theory		
MSG	Gülle von Mastschweinen		
N _{tot}	Gesamtstickstoff		
NH¸	Ammoniak		
NH,+	Ammonium		
N _{max}	Aus Michaelis-Menten-Fit abgeleiteter Gesamtverlust an Stickstoff		
RVG	Rindviehvollgülle		
SG	Schweinegülle		
T	Lufttemperatur		
T_{2m}	24h-Mittelwert der Lufttemperatur auf 2 m über Boden in °C		
TAN	engl. Total Ammoniacal Nitrogen (Summe von NH,+ und NH,)		
TS	Trockensubstanz-Gehalt der Gülle in %		
u, v, w	Komponente der Windgeschwindigkeit in einem kartesischen Koordinatensystems mit $x,\ y,\ z$ Richtung, wobei x entlang der mittleren Windrichtung und z parallel zur Oberfläche (d.h. $\bar{v}=\overline{w}=0$) rotiert sind.		
\bar{u} , \bar{v} , \bar{w}	zeitliche Mittelwerte von u , v , w		
u_*	Schubspannungsgeschwindigkeit		
θ	Windrichtung		
WS	24h-Mittelwert der Windgeschwindigkeit auf 1 m über Boden in m/s		
X	Kreisradius		
V_{24h}	gemessene, kumulierte Emission nach 24 h		
V_{96h}	extrapolierte, kumulierte Emission nach 96 h		
Z	Messhöhe (je nach Definition: über Bodenoberfläche oder aerody- namischer Verschiebungshöhe)		
z_0	Rauhigkeitslänge		
ZINST	Höhe mit Stabilitäts-unabhängigem horizontalen Fluss gemäss Wilson et al. (1982)		
ZSG	Gülle von Zuchtschweinen		

1 Einleitung

1.1 Ausgangslage

Die diffusen Emissionen von Ammoniak (NH,) tragen wesentlich zu einer weiträumigen Überschreitung der kritischen N-Einträge in verschiedene Ökosysteme (EKL, 2005) bei. Im Jahr 2010 wurden gemäss Ammoniakinventar der Schweiz aus der Landwirtschaft 48'300 t Stickstoff (N) als Ammoniak emittiert (Kupper et al., 2013, 2015). Dies entspricht 92 % der gesamten Ammoniakemissionen von 52'800 t N. Innerhalb der Landwirtschaft war die Ausbringung von Gülle 2010 mit 15'600 t N die wichtigste Quelle von Ammoniakverlusten. Dies entspricht einem Anteil von 32 % der landwirtschaftlichen Ammoniakemissionen. Das Modell Agrammon, mit welchem die schweizerischen landwirtschaftlichen Emissionen modelliert werden, verwendet für die Ausbringung von 1:1 verdünnter Rindviehvollgülle bzw. Schweinegülle (4.5 % TS Gehalt bzw. 2.5 % TS Gehalt; Flisch et al., 2009) mittels Prallteller eine Standard Emissionsrate von 50 % bzw. 35 % TAN². Diese Werte basieren auf dem Leitfaden über Techniken zur Vermeidung und Verringerung von Ammoniakemissionen der UNECE (UNECE, 2014) sowie auf den Resultaten der Untersuchungen in der Schweiz der 1990er Jahre (Menzi et al., 1998) und auf dem ALFAM Modell (Søgaard et al., 2002). Messungen von Ammoniakverlusten nach Ausbringung von Gülle im Rahmen des FP 6 Projektes "NitroEurope" am Standort Oensingen in den Jahren 2006 und 2007 (Spirig et al., 2010) ergaben deutlich tiefere Werte als diejenigen des Ammoniakemissionsmodells ALFAM (Søgaard et al., 2002) oder des Modells von Menzi et al. (1998). Diese Messungen erfolgten mittels des Aerodynamischen Gradienten Ansatzes und wurden durchgeführt, um die N-Bilanz des Graslandsystems des NitroEurope-IP Standortes Oensingen zu erfassen (Flechard et al., 2010; Spirig et al., 2010). Bei den Versuchen in Oensingen wurde die vorhandene Gülle des Betriebes mit TS-Gehalten von 0.8 - 4 % TS eingesetzt (Spirig et al., 2010). Diese Werte sind niedrig (vgl. Kapitel 1.2), und deshalb kann die Aussagekraft der gemessenen Verluste für mittlere schweizerische Emissionswerte in Frage gestellt werden.

Das resultierende tiefe Niveau der gemessenen Emissionen wurde kontrovers diskutiert und löste weitere umfangreiche wissenschaftliche Arbeiten aus, welche in der Dissertation von Jörg Sintermann ausführlich dargestellt sind (Sintermann et al., 2011a, 2012, 2011b). Diese Arbeiten bestätigten die gemessenen Werte am Standort Oensingen. Sintermann et al. (2012) führten eine Analyse der veröffentlichten europäischen Emissionswerte durch und wiesen eine Inkonsistenz zwischen Resultaten nach, welche auf Untersuchungsflächen mittlerer Grösse, typisch Kreisflächen von 20 bis 25 m Radius, und grösseren Flächen, typisch 0.5 bis 1 ha, beruhen. Die festgestellte systematische Diskrepanz liess sich nicht erklären und auf mögliche Messartefakte schliessen. Dank der finanziellen Unterstützung des Bundesamts für Landwirtschaft (BLW) und des Bundesamts für Umwelt (BAFU) konnte ein mehrjähriges Forschungsprojekt realisiert werden. Die Arbeiten wurden gemeinsam von Agroscope - Institut für Nachhaltigkeitswissenschaften INH und von der Hochschule für Agrar-, Forst- und Lebensmittelwissenschaften HAFL durchgeführt. Das Projekt beinhaltete eine vertiefte Untersuchung und Erweiterung messtechnischer Aspekte sowie eine Serie von Feldversuchen, welche zum Ziel hatten, die kumulierten Emissionen nach Ausbringung von Gülle zu bestimmen, die zu einer allfälligen neuen Festlegung der Emissionsraten zur Modellierung der Ammoniakemissionen nach Ausbringung von Gülle auf internationaler Ebene und im Rahmen des schweizerischen NH, Inventars beitragen können.

1.2 Hofdüngerwirtschaft und NH₃-Emissionen

1990 betrugen die landwirtschaftlichen NH_3 -Emissionen 57'300 t N gemäss schweizerischem Emissionsinventar. Bis 2010 erfolgte gemäss Emissionsmodellierung eine Abnahme um 13 % auf 48'300 t N (Kupper et al., 2013). Innerhalb der Landwirtschaft verursachte die Tierproduktion im Jahr 2010 90 % der Ammoniakverluste. Diese verteilten sich wie folgt auf die verschiedenen Tierkategorien: Rindvieh: 78 % (davon Milchkühe: 62 %), Schweine: 15 %, Geflügel: 3 %, Pferde und

_

² engl.:TAN = Total Ammoniacal Nitrogen; Dokument Technische Parameter Modell Agrammon (http://www.agrammon.ch/dokumente-zum-download/; 29.11.2013)

übrige Equiden sowie Kleinwiederkäuer: je 2 %. Die Milchkühe sind somit die wichtigste Tierkategorie. Ihr Anteil an den Ammoniakemissionen bezogen auf die gesamte Tierproduktion betrug 49 %. Rund 50 % der Milchkühe werden in Ställen mit Produktion von Vollgülle gehalten. Diese verteilen sich zu rund zwei Drittel auf Laufställe und zu einem Drittel auf Anbindeställe. Basierend auf der Umfrage zur Erhebung der Produktionstechnik von 2010 lässt sich die Bedeutung der Gülle hinsichtlich N-Fluss und NH₃-Emissionen wie folgt charakterisieren: 72 % des gesamten von den landwirtschaftlichen Nutztieren ausgeschiedenen Stickstoffs ist in Gülle und 28 % in Mist enthalten. Rindviehgülle macht davon den grössten Anteil aus (56 % des gesamten von den landwirtschaftlichen Nutztieren ausgeschiedenen Stickstoffs). Davon stammen 60 % von Betrieben, welche ausschliesslich Milchkühe oder Milchkühe kombiniert mit weiteren Rindviehkategorien (z.B. Aufzuchtrinder, Masttiere) halten. Schweinegülle weist einen Anteil von 16 % relativ zur totalen N-Ausscheidung der landwirtschaftlichen Nutztiere auf.

Die Zusammensetzung der von Rindvieh und Schweinen produzierten Gülle kann basierend auf den Grundlagen für die Düngung im Acker- und Futterbau (Flisch et al., 2009) charakterisiert werden (Tabelle 1). Gülle von Rindvieh weist generell einen höheren TS-Gehalt auf als Schweinegülle, das Gegenteil gilt für den Gesamtstickstoff (N_{tot}) und TAN. Im schweizerischen Mittel wird im Produktionsprozess die Gülle mit Wasser im Verhältnis von 1:1 (Flisch et al., 2009) verdünnt. Entsprechend verringern sich die Gehalte der Gülle in Tabelle 1 für die ausgebrachte durchschnittliche Rindvieh- und Schweinegülle. Diese Werte stimmen damit gut mit neueren Daten einer Untersuchung über Rindviehgülle des INH überein (pers. Mitteilung, C. Bosshard, Agroscope INH).

Tabelle 1: Zusammensetzung von unverdünnter Gülle von Rindvieh und Schweinen (Flisch et al., 2009).

		TS	OS	N _{tot}	TAN	Р	K
		%	g/kg	g/kg	g/kg	g/kg	g/kg
Milebriole Aufarrebt	Vollgülle	9.0	70	4.3	2.3	0.8	6.6
Milchvieh Aufzucht	Gülle kotarm	7.5	40	4.9	3.2	0.5	9.6
C alassocia a	Mast	5.0	36	6.0	4.2	1.7	3.7
Schweine	Zucht	5.0	33	4.7	3.3	1.4	2.7

TS: Trockensubstanz; **OS**: organische Substanz; \mathbf{N}_{tot} : Gesamtstickstoff; **TAN**: Summe des gelösten \mathbf{NH}_{4}^{+} ; **P**: Phosphor; **K**: Kalium.

Abbildung 2 zeigt die räumliche Verteilung der gesamten Ammoniakemissionen in der Schweiz. Regionen mit hoher Tierdichte (v.a. die Kantone LU, TG, AI, AR, FR) weisen hohe Emissionen auf. Bezüglich der zeitlichen Verteilung der Emissionen im Jahresverlauf ist von einem Höchstwert im Sommer auszugehen. In den Monaten Mai bis August werden gemäss Kupper et al. (2013) rund 45 % der gesamten Güllemenge ausgebracht. Die Untersuchungen von Schrade et al. (2012) und Berry et al. (2005) zeigten, dass aus Ställen von Milchvieh- und Mastschweinen im Sommer höhere Ammoniakmengen ausgestossen werden.

2010 wurde rund 25 % der Gülle mit emissionsmindernden Techniken (hauptsächlich Schleppschlauch) ausgebracht (Kupper et al., 2013). Diese Techniken waren in der Region Zentral Schweiz und in der Region Ost³ Schweiz mit Anteilen von 37 % und 26 % deutlich weiter verbreitet als in der Region West/Süd (8 %). Mit zunehmender Höhe nimmt die Anwendung von emissionsmindernden Techniken ab (Talregion: 35 %; Hügelregion: 26 %; Bergregion: 15 %). Diese Abnahme mit zunehmender Höhe trifft auf alle drei Regionen zu.

1.3 Bedeutung der verwendeten Messtechnik

Die Bestimmung von NH₃ Emissionen erscheint auf den ersten Blick als simple Fragestellung: die Menge NH₃ Moleküle, welche die begüllte Fläche über die Atmosphäre verlassen, soll gemessen werden. Konzeptionell am einfachsten ist der Ansatz einer vollständigen Massenbilanz, bei dem der NH₃ Massenfluss durch alle Flächen bestimmt werden könnte. Ein solcher Ansatz lässt sich

⁻

³ Region Zentral Schweiz: Kantone AG, BL, BS, LU, ZG, OW, NW, SO, BE; Region Ost Schweiz: Kantone: GR, SG, AR, AI, TG, SH, ZH, SZ, UR, GL; Region West/Süd Schweiz. JU, NE, VD, FR, GE, VS, TI

nur mit unrealistisch hohem Aufwand durchführen, weshalb einfachere Konzepte angewendet werden müssen. Die durchgeführten Versuche basieren generell auf einer Methode, bei welcher mit Hilfe eines Ausbreitungsmodells (Rückwärtstrajektorien) aus Punktmessungen der NH₃ Konzentration und meteorologischen Grössen die Emissionen berechnet wurden.

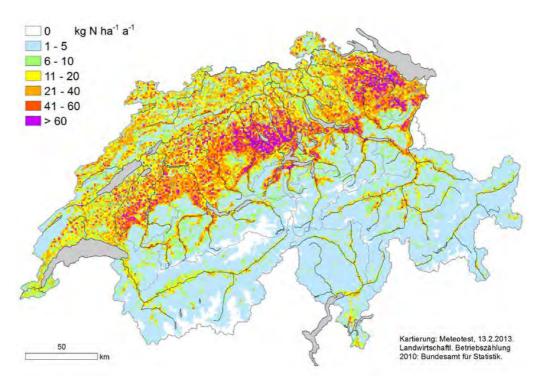


Abbildung 2: Räumliche Verteilung der NH₃-Emissionen 2010. Einheiten in kg NH₃-N ha⁻¹ Jahr⁻¹ (Quelle: Kupper et al., 2013).

1.4 Anforderungen an die Versuchsbedingungen

Bei der Auswahl der Versuchsflächen wurden Betriebe evaluiert, welche ebene Flächen mit einer minimalen Grösse und einer gut voraussagbaren frei anströmbaren Windrichtung sowie ohne bedeutende stationäre Emissionsquellen in der Umgebung zur Verfügung stellen konnten. Ein weiterer zentraler Aspekt war, dass praxisübliche Rahmenbedingungen bezüglich der landwirtschaftlichen Produktionstechnik der Schweiz abgebildet wurden. Gemäss Ausführungen von Kapitel 1.2 tragen Betriebe mit Milchvieh den grössten Teil zur Freisetzung von NH₃ bei. Die anteilsmässig wichtigsten Systeme bilden Ställe mit Produktion von Vollgülle. Daher wurden Betriebe mit Milchviehhaltung und häufig vorkommender Produktionstechnik sowie Produktion von reiner Rindviehgülle ausgewählt. Zur Bestimmung der Emissionen von Schweinegülle fiel die Wahl auf Betriebe, welche unvermischte Gülle aus der Schweineproduktion zur Verfügung stellen konnten. Weiter waren die Bereitschaft und die Kapazitäten der Betriebsleiter hinsichtlich Zusammenarbeit entscheidend.

Während der Versuche waren Abweichungen von idealen Versuchsbedingungen nicht vermeidbar:

- Die geographische Lage des schweizerischen Mittellandes hat häufig tiefe Windgeschwindigkeiten aus schwer voraussagbaren Richtungen zur Folge.
- Überraschend auftretende Niederschläge.
- In Zeitfenstern mit günstigen Bedingungen zur Gülleausbringung werden mit gewisser Wahrscheinlichkeit auch einige an die verwendeten Versuchsparzellen angrenzende Flächen begüllt.

2 Material und Methoden

2.1 Versuchsstandorte

Insgesamt wurden die NH₃ Emissionsmessungen nach Gülleausbringung an fünf verschiedenen Grünlandstandorten durchgeführt (Abbildung 3, Tabelle 2). Die Bewirtschaftung erfolgte gemäss üblicher landwirtschaftlicher Praxis. Für die Auswahl der Standorte waren die Bewirtschaftung sowie mikrometeorologische und versuchstechnische Vorgaben massgebend. Dabei wurde ein Kompromiss zwischen räumlicher Verteilung der Standorte, den Möglichkeiten zur Versuchsdurchführung vor Ort, Grösse und Topographie der Fläche (möglichst eben), Anströmbedingungen, Entfernung zu stationären NH₃ Quellen und der vorhandenen landwirtschaftlichen Produktionstechnik gesucht. Emissionsmessungen fanden in Phasen statt, in denen Gülleausbringung gemäss üblicher Praxis erfolgte. Für die Durchführung der Versuche wurden Perioden von mindestens drei aufeinanderfolgenden niederschlagsfreien Tagen nach der Futterernte ausgewählt.

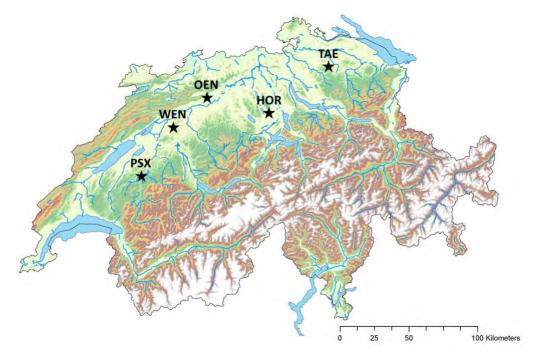


Abbildung 3: Standorte zur Durchführung der Emissionsmessungen; OEN = Oensingen, TAE = Tänikon, PSX = Posieux, WEN = Wengi, HOR = Hohenrain.

Tabelle 2: Kurzbeschreibung der Standorte zur Durchführung der Emissionsmessungen.(a) Übersicht zu den Betrieben der untersuchten Standorte (Ausgewählte Kenngrössen zur Produktionstechnik befinden sich im Anhang E).

Standort	Betriebstyp	Tierhaltung (GVE ⁺⁺)		Zone	Landw. Nutzfläche (ha)
Hohenrain (LU)	Milchwirtschaft, Ackerbau	Rindvieh:	60	Tal	36
Posieux (FR)	Milchwirtschaft, Veredlung	Rindvieh:	155	Tal	68
		Schweine:	104		
Tänikon (TG)	Milchwirtschaft, Veredlung,	Rindvieh:	77	Tal	83
	Ackerbau	Schweine:	69		
Wengi (BE)	Milchwirtschaft, Veredlung,	Rindvieh:	30	Tal	44
	Ackerbau	Schweine:	103		
Oensingen (SO)†	Milchwirtschaft, Ackerbau			Tal	-

[†] Sintermann et al. (2011a); Spirig et al. (2010): Die Messdaten des Standortes Oensingen wurden als zusätzliche Messdaten für die Extrapolation der kumulierten Emission verwendet. †† GVE: Grossvieheinheit

(b) Ausgewählte Kenngrössen der Versuchsfläche der Standorte (detaillierte Informationen zu den Versuchsparzellen, etc. befinden sich im Anhang A).

Standort	NH ₃ Belastung [*]	Bodentyp	Bewuchs ^{†††}	Geogr. Koord. WGS84	Höhe (m.ü.M.)
Hohenrain (LU)	hoch**	mittel sandiger Lehm	Naturwiese	47°10'57"N/ 8°19'27"E	600
Posieux (FR)	mässig	mittel sandiger Lehm	KW, SM 440, 13. HN	46°46'20"N/ 7°06'07"E	665
Tänikon (TG)	mässig- hoch***	schwach schluffi- ger Ton	KW, SM 330/430 AR, 3. HN KW, SM 330, 12. HN	47°28'47"N/ 8°54'17"E	540
Wengi (BE)	niedrig- mässig	schwach toniger Lehm	KW, SM 200, 23. HN	47°05'30"N/ 7°24'29"E	474
Oensingen (SO)†	mässig	mittel toniger Lehm	KW	47°17'09"N/ 7°43'58"E	453

^{*} NH₃ Hintergrund-Belastung = niedrig: 0-5 ppb, mässig: 5-10 ppb, hoch: 10-20 ppb, sehr hoch: >20 ppb;

Zur Validierung der angewendeten Methoden für die Bestimmung der Emissionen wurden in Tänikon und Posieux sowie an weiteren Standorten (Flugplatz Payerne und Witzwil) die folgenden Versuche durchgeführt:

- NH₃ Konzentrationsvergleiche mit unabhängigen Messsystemen (vgl. Kapitel 3.2.1)
- Vergleich bLS Methode mit Massenbilanzmethode (IHF) (vgl. Kapitel 3.2.2)
- Bestimmung der Wiederfindungsrate mittels künstlicher Quelle (vgl. Kapitel 3.2.5)

Informationen zum Versuchsaufbau und den angewendeten Methoden sind jeweils am Anfang der oben angegebenen Kapitel aufgeführt.

^{**} Hintergrund-Belastung am Versuchstag war mässig, *** je nach Windrichtung. † vgl. Tabelle (a),††† KW: Kunstwiese; SM: Standardmischung; HN: Hauptnutzungsjahr

2.2 Standort- und experimentspezifische Parameter

Die Versuchsstandorte wurden einmalig auf ihre Bodeneigenschaften untersucht. Zudem erfolgte vor jedem Versuch die Aufnahme zahlreicher weiterer Parameter (Wuchshöhe des Bestandes, Boden, ausgebrachte Gülle). Tabelle 3 fasst diese Parameter zusammen.

Tabelle 3: Erhobene standort- und experimentspezifische Parameter.

Bereich	Parameter	Erhebung
Boden:	Bodenartenfraktionen	pro Standort
(0-4.2 cm)	Kationenaustauschkapazität	pro Standort
	Rohdichte	pro Standort
	Porenvolumen	pro Standort
	Saugspannung (pF<1.8,1.8-3,3-4.2,>4.2)	pro Standort
	Infiltrationskapazität pKsat	pro Standort
	org. Kohlenstoff	pro Standort
	Gesamtstickstoff	pro Standort
	pH	pro Standort
	Basensättigung	pro Standort
Vegetation:	Ansaatmischung	pro Standort
	Bestandeshöhe	pro Versuchsparzelle
Versuchsanordnung:	Instrument-Messhöhen	pro Messhöhe
	Instrument-Positionen	pro Messinstrument
	Plot-Dimension & -Position	pro Versuchsparzelle
	Management-timing	pro Versuchsparzelle
	Ausbringtechnik	pro Versuchsparzelle
Ausgebrachte Gülle:	Ausbringmenge	pro Versuchsparzelle
_	Substrattyp	pro Versuchsparzelle
	pH	pro Versuchsparzelle
	TAN	pro Versuchsparzelle
	N _{tot}	pro Versuchsparzelle
	C _{ora}	pro Versuchsparzelle
	Trockensubstanz	pro Versuchsparzelle
	Dichte	pro Versuchsparzelle
	P,O _c	pro Versuchsparzelle
	ĸ,o˙	pro Versuchsparzelle
	Ca	pro Versuchsparzelle
	Mg	pro Versuchsparzelle
	Na	pro Versuchsparzelle
Meteorologie:	Luftdruck	pro Experiment
-	Lufttemperatur	pro Experiment
	Bodentemperatur	pro Experiment
	rel. Luftfeuchte	pro Experiment
	Niederschlagsmenge	pro Experiment
	Globalstrahlung	pro Experiment
	Lufttemperatur (10 Hz)	pro Experiment
	3D Windgeschwindigkeit (10 Hz)	pro Experiment
	Windrichtung	pro Experiment
	Lufttemperatur	pro Experiment
	Globalstrahlung	pro Experiment
	rel. Luftfeuchte	pro Experiment
	Oberflächentemperatur	pro Experiment

2.3 Feldversuche

Insgesamt wurden 17 Feldversuche zur Bestimmung der NH_3 Emission nach Gülleausbringung zwischen Sommer 2011 und Frühling 2014 durchgeführt. Tabelle 4 zeigt eine Übersicht zu den Versuchen, inklusive die untersuchten Einflussgrössen.

Tabelle 4: Übersicht zu den durchgeführten Feldversuchen mit den untersuchten Einflussgrössen

Versuchs ID	Datum	Standort	Einflussgrössen	Bemerkungen
F1	20.09.2011	Tänikon	Parzellengrösse	
F2	08.11.2011	Posieux	Parzellengrösse	
F3	10.05.2012	Hohenrain	Parzellengrösse	Mit Schleppschlauch
A1	14.07.2011	Tänikon	Ausbringtechnik	
A2	12.03.2012	Posieux	Ausbringtechnik	
A3	04.07.2012	Posieux	Ausbringtechnik	
A4	14.08.2012	Posieux	Ausbringtechnik	
A5	14.11.2012	Posieux	Ausbringtechnik	
A6	06.05.2013	Posieux	Ausbringtechnik	
G1	15.03.2012	Wengi	Gülleart	
G2	24.05.2012	Wengi	Gülleart	
G3	19.11.2012	Wengi	Gülleart	
TS1	12.06.2013	Wengi	(hoher) TS	
TS2	10.07.2013	Wengi	(hoher) TS	u.a. Konzentrat
TS3	11.03.2014	Wengi	(hoher) TS	drei identische Verfahren
Z 1	27.08.2012	Tänikon	Tageszeit	
Z2	04.07.2013	Tänikon	Tageszeit	Mit Schleppschlauch

2.3.1 Parzellengrösse

In drei Versuchen (F1 – F3) wurde eine mögliche Abhängigkeit der kumulierten NH₃-Emission zur Grösse der Versuchsparzelle geprüft. Die Versuche fanden an den Standorten Posieux, Tänikon und Hohenrain (stark NH₃ belastete Region) statt. In den Versuchen F1 und F2 wurde die Gülle mit der Referenztechnik Praliteller ausgebracht. In Versuch F3 (Hohenrain) erfolgte die Ausbringung mittels Schleppschlauch. In den Versuchen wurde Rindviehvollgülle auf zwei Parzellen mit einer Grösse von 0.5 – 1 ha und ca. 900 m² (ca. 30 x 30 m) ausgebracht. Versuch F1 beinhaltete zusätzlich eine dritte Parzelle mit einer Fläche von rund 100 m² (10 x 10 m). Der Ablauf der Versuche F1 – F3 war identisch mit demjenigen der Versuche gemäss Kapitel 2.3.2, ausser dass für die Ausbringung auf die grosse Versuchsparzelle jeweils drei Tankfüllungen notwendig waren. Dies hatte eine zeitliche Verzögerung der Ausbringung von ca. 30 min zur Folge, welche in der Berechnung der Emissionen berücksichtigt wurde (Anhang B.3).

2.3.2 Ausbringtechnik, Gülleart, Tageszeit der Ausbringung und TS-Gehalt der Gülle

In 14 Versuchen wurden verschiedene Faktoren variiert, welche die Höhe der kumulierten NH₃-Emission beeinflussen. Die untersuchten Einflussgrössen beinhalteten i) die Ausbringtechniken (Prallteller: Referenzverfahren, Schleppschlauch, Schleppschuh sowie Gülledrill); ii) die Gülleart (Rindviehvollgülle, RVG, Schweinegülle von Zucht- ZSG oder Mastschweinen, MSG); iii) die Ausbringung am Morgen, am Mittag und am Abend; iv) den TS-Gehalt der ausgebrachten Gülle. Die Ausbringung in den einzelnen Versuchen erfolgte jeweils nacheinander auf den verschiedenen Versuchsparzellen, wobei die zeitlichen Unterbrüche möglichst gering gehalten wurden (mit Ausnahme der beiden Versuche Z1 + Z2 zur Tageszeit der Ausbringung). Die Grösse der Versuchsparzellen betrug ca. 30 x 30 m, die Ausbringmenge rund 30 m³ pro ha, welche in 4 – 6 Bahnen mit einer Tankfüllung ausgebracht wurden. Dies ermöglichte, die Ausbringung innerhalb von 3 – 10 min pro Verfahren durchzuführen. Der Abstand zwischen den Versuchsparzellen betrug mindestens 30 m, um die gegenseitige Beeinflussung zu minimieren. Direkt nach der Ausbringung der Gülle bzw. wo möglich während der Ausbringung wurden die Geräte zur Messung der Ammoniakkonzentration in der Mitte der Parzelle installiert und in Betrieb genommen. Die Versuchsanlage wie beschrieben wird in der Folge "Standardversuch" genannt

2.4 Konzentrationsbestimmung

2.4.1 Low Cost Sammelsysteme (LOCI)

Zur Bestimmung der Ammoniakkonzentrationen wurde in Zusammenarbeit mit Agroscope Standort Tänikon ein auf die Feldversuche zugeschnittenes Sammelsystem entwickelt (Abbildung 4). Die Probenahme erfolgt auf 2 Höhen mit je 7 (Mess-) Positionen, an die über jeweils ein Ventil ein Impinger angeschlossen ist. Die Ventile der einzelnen Positionen lassen sich über eine programmierbare Mikrosteuerung (LOGO, Siemens) sequentiell ansteuern.





Abbildung 4: NH₃-Messsysteme: Low-Cost Impinger Sampling Device (LOCI).

Die Luft wird mit ca. 800 ml/min durch einen Impinger mit einem Gesamtvolumen von 22 ml gesaugt (64712-U Supelco, "Threaded Midget Impinger volume 22 ml"). Der Impinger ist gefüllt mit 15 ml einer 0.01 M Natriumacetat-Pufferlösung (hergestellt aus einer 3 M Natriumacetat- Pufferlösung, 71196, Sigma-Aldrich). In dieser auf pH 4 gepufferten Lösung wird das in der Zuluft enthaltene NH₃ als Ammonium (NH₄+) aufgefangen und anschliessend dessen Gehalt in der Lösung bestimmt. Messungen mit zwei Impingern in Serie haben gezeigt, dass NH₃ selbst in Situationen hoher Luftkonzentrationen (Mischungsverhältnisse von mehreren ppm) ausschliesslich im ersten Impinger gesammelt wird. Ein Teil des NH₄+ aus ammoniumhaltigen Aerosolen gelangt ebenfalls in die Lösung. Aufgrund des grossen Verhältnisses von NH₃ zu NH₄+ in der Luft nach Ausbringung von Gülle ist dieser Anteil jedoch vernachlässigbar.

2.4.2 Bestimmung der NH₄*-Konzentration der Impingerlösung

Die Ammoniumkonzentrationen der Impingerlösung wurden mit einem Spektralphotometer (DR 2800 VIS, Hach-Lange GmbH, Rheineck) mittels gebrauchsfertigem Küvetten-Test (LCK304: $0.02-2.5~mg/l~NH_4^+$ mit vor-dosierten Reagenzien für die photometrische Auswertung) durchgeführt. Die Detektionsgrenze liegt bei $0.02~mg~NH_4^+$ -N/l. Bei einer Stunde Sammelzeit und einem Luftvolumenstrom von 800 ml/min entspricht dies einer Luftkonzentration von $6.25~\mu g/m^3$, bei $6~stunden~sammelzeit~entsprechend~1.04~\mu g/m^3$. Die Kalibrierung des Geräts erfolgte mittels einer Ammoniumnitrat-Lösung, die in verschiedene Konzentrationen verdünnt wurde. Ein Vergleich verschiedener Proben und Standards mit der Forschungsstelle für Umweltbeobachtungen (FUB AG, Rapperswil) ergab 98 % Übereinstimmung für Konzentrationen über $0.03~mg~NH_2^+/l$.

2.4.3 Bestimmung von linienintegrierten Konzentrationen mit miniDOAS Systemen

H. Volten (RIVM Institut, NL) hat an der NitroEurope Open Science Conference im Februar 2010 die Entwicklung eines kompakten differentiellen optischen Absorptionsgerät für NH₃, SO₂ und NO vorgestellt und im Jahre 2012 publiziert (Volten et al., 2012). In einer Zusammenarbeit mit der RIVM Gruppe und der Interstaatlichen Hochschule für Technik NTB Buchs (SG) wurde diese Idee von Agroscope INH aufgenommen und das System weiterentwickelt. Die Weiterentwicklungen betreffen in erster Linie den mobilen und flexiblen Einsatz der Geräte für die Messung von land-

wirtschaftlichen Emissionen als auch eine erweiterte Spektralanalyse, damit ein grosser Konzentrationsbereich gemessen werden kann.

Abbildung 5 zeigt den Aufbau des feldtauglichen, schweizerischen miniDOAS Systems. Der Wechsel von einer Xenonlampe zu einer Deuteriumlampe erfolgte aufgrund der höheren Lichtausbeute in dem für die spektrale Auswertung benutzten UV Wellenlängenbereich von 200 bis 222 nm. Das Licht wird über einen off-axis Parabolspiegel aus dem Detektorgehäuse auf den Retroreflektor geführt. Von dem Retroreflektor wird das Licht parallel zum einfallenden Strahl auf den Detektor geleitet und mit Spiegeln auf den Eingangspunkt des Spektrometers fokussiert. Die optische Justierung geschieht automatisiert mit Hilfe von Piezomotoren an drei Punkten, an zwei Umlenkspiegeln und an der Position des Spektrometers. Ein vom Daten- und Auswertungscomputer gesteuerter Shutter vor dem Spektrometereingang erlaubt die Aufnahme des für die Auswertung wichtigen Dunkelspektrums. Um die optische Ausrichtung im Feld auch bei Tageslicht zu erleichtern, ist ein grüner Justierlaser parallel zum Lichtstrahl der Deuteriumlampe installiert, welcher auf einen fixierten Punkt des Retroreflektors zeigen muss. RIVM benützt ein relativ kostengünstiges Avantes Spektrometer, das jedoch keine Temperaturstabilisierung enthält. Vier der fünf Schweizer Systeme sind mit einer Temperatur geregelten Ocean Optics QE 65pro ausgerüstet.

Die Eingangsgitter der Spektrometer wurden so eingestellt, dass der CCD Detektor nur Wellenlängen < 230 nm erfasst. Das optische Messsystem ist in eine robuste und isolierte Aluminiumkiste eingebaut, die auf einem soliden optisch stabilen Fundament installiert werden kann. Die Box enthält eine aktive Ventilationseinheit, um die Spektrometertemperatur auf wenige Zehntelgrade konstant zu halten. Für Feldmessungen wird die Temperatur des CCD auf -10 °C eingestellt, damit kann bei einer Umgebungstemperatur zwischen -5 und 35 °C gemessen werden.

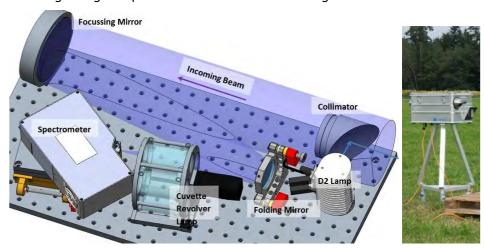


Abbildung 5: Schematischer Aufbau des miniDOAS Systems (links) und im Feld aufgebautes Gerät (rechts).

Die Evaluation der Konzentrationen basiert auf einer Linearisierung des Lambert-Beer'schen Gesetzes (Platt und Stutz, 2008; Volten et al., 2012):

$$\ln\left(\frac{I_0(\lambda)}{I(\lambda)}\right)L_{Pfad}^{-1} = \sum \sigma_i(\lambda)c_i + B(\lambda)$$

wobei $I_0(\lambda)$ die Intensität des von der Lampe ausgestrahlten Lichtstrahls und $I(\lambda)$ die Intensität ist, nachdem der Lichtstrahl eine Wegstrecke L_{Pfad} passiert hat. Des Weiteren: λ = Wellenlänge, i = Index (steht für eines der Spurengase NH₃, SO₂, NO), σ = Absorptionsquerschnitt, c = Spurengaskonzentration, B = Breitbandabsorptionsstruktur.

Der ausgehende Lichtstrahl wird durch Breitbandabsorption geschwächt (Mie und Rayleigh Streuung, breitbandig absorbierende Gase). Überlagert sind schmalbandige Absorptionsstrukturen. Im verwendeten Wellenbereich 200 bis 230 nm weisen NH₃, SO₂ und NO schmalbandige Absorptionslinien auf. Das Prinzip der DOAS Auswertung besteht darin, diese schmalbandigen Absorptionsstrukturen durch eine mathematische Hochpass-Filterung von der Breitbandabsorption zu trennen. Eine ausführliche Publikation zu diesen miniDOAS-Messgeräten wurde in der Zeitschrift Atmospheric Measurement Technique publiziert (Sintermann et al. 2016).

2.5 Wind- und Turbulenz-Messung

Detaillierte Wind- und Turbulenzinformationen wurden mittels Ultraschall-Anemometrie erhoben. Dafür kam mindestens ein frei platzierbares 3D-Ultraschallanemometer (WindMaster™Pro, Gill Instruments Limited, Lymington, UK) zum Einsatz, Meistens wurde diese Messung durch ein bis zwei weitere WindMaster™ ergänzt, um sich gegen Ausfälle von Instrumenten abzusichern, oder um die räumliche Verteilung von Wind und Turbulenz aufzunehmen. Die Routine-Messung fand auf einer Höhe um 1.3 m über dem Boden statt und wurde so platziert, dass das Anemometer für alle Ausbringflächen möglichst repräsentative Messwerte erfasste. Die Anemometer wurden mittels eines Magnetkompasses nach Norden ausgerichtet. Aus den zeitlich mit 10 Hz aufgelösten dreidimensionalen Wind- und Temperatur-Informationen lassen sich über die Messdauer gemittelte (im vorliegenden Falle 10 Minuten), idealerweise räumlich/zeitlich repräsentative ("stationäre") Windkomponenten u, v, w (im Kartesischen Koordinatensystem x, y, z, entlang einer doppelten Rotation (Aubinet et al., 2012), Windrichtung (θ), Lufttemperatur (T) sowie entsprechende weitere statistische Komponenten wie Standardabweichungen und Kovarianzen ableiten. Diese gemessenen Kenngrössen (θ , \bar{u} , σu , σv , σw , \bar{T} , $\overline{w'u'}$, $\overline{w'T'}$) gehen in die Beschreibung von Turbulenzeigenschaften ein und werden in verschiedenen Formen für die Ausbreitungsberechnung verwendet (Kapitel 2.6.1).

Zur Erfassung von Wind- und Turbulenzinformationen kamen die häufig verwendeten Gill Windmaster Pro Instrumente zum Einsatz. Nach Abschluss der Auswertungen wurde eine Meldung des Herstellers publik, wonach in der internen Berechnung der vertikalen Windkomponente ein Fehler vorliegt. Die positiven Werte werden um 29% unterschätzt, die negativen Werte um 17%.

2.6 Emissionsbestimmung

2.6.1 Ausbreitungsmodellierung

Um repräsentative Emissionsflüsse aus einzelnen (oder mehreren) Konzentrationsmessungen in der Abwindfahne der zu betrachtenden Quellfläche zu berechnen, müssen die beiden Grössen Luftkonzentration in der Emissionsfahne (C) und der Emissionsfluss (E) (d.h. Emission pro Zeiteinheit) einer räumlich begrenzten Fläche in Beziehung gesetzt werden. Dies wurde mittels eines state-of-the-art "backward Lagrangian stochastic" Dispersionsmodells (bLS) realisiert (Flesch et al., 2004, 1995). Das Modell ist in einer frei erhältlichen Softwareumgebung namens "WindTrax" implementiert (Version 2.0.8.8, Thunder Beach Scientific, Halifax, www.thunderbeachscientific.com). Im Folgenden werden das angewandte bLS und der Ausdruck "WindTrax" synonym behandelt. Um die Beziehung C/E zu ermitteln, berechnet das Modell die Herkunfts-Pfade (Rückwärtstrajektorien) einer bestimmten Anzahl Luftpartikel zwischen Messsensor und Emissionsfläche. Diese Rückwärtstrajektorien werden als Markow-Prozess entlang der mittleren Windrichtung, und beeinflusst durch die dreidimensional wirkende Turbulenz, modelliert. Unter der Voraussetzung, dass das emittierte Gas während des Transportes erhalten bleibt, lässt sich für ein gegebenes Zeitintervall die gesuchte (mittlere) Flächen-Emission wie folgt berechnen:

$$E = \frac{\left(C - C_{bgd}\right)}{\left(C/E\right)_{bLS}} \tag{1}$$

wobei C_{bgd} die Hintergrundkonzentration, d.h. die in Luv der Emissionsfläche vorherrschende Luftkonzentration repräsentiert, und $(C/E)_{bLS}$ das mit der bLS Ausbreitungsmodellierung errechnete theoretische C/E Verhältnis darstellt. Die Berechnungen eines einzelnen Intervalls basierten auf 50'000 Trajektorien. Als Grundlage für die Emissionsbestimmung wurden in dem hier angewendeten Fall $(C/E)_{bLS}$ Verhältnisse in 10-minütigen Intervallen kontinuierlich ermittelt und nachträglich auf die Dauer der Messintervalle gemittelt. Die Mittelung der Intervalle wird in Anhang B.1 genauer ausgeführt.

Für die Emissionsberechnung bedarf es einer genauen räumlichen Beschreibung der Emissionsfläche und des Luftkonzentrations-Messpunktes, Kenntnis von \mathcal{C} sowie \mathcal{C}_{bgd} und einer Charakterisierung des bodennahen atmosphärischen Zustandes, d.h. der Verteilung⁴ der drei Windkomponenten (u, v, w) inklusive derer Vertikalprofile. WindTrax verwendet dafür als Eingangsparameter die

⁴ WindTrax modelliert die Turbulenz mittels Gauss-Verteilungen.

Standardabweichungen der drei Windvektoren (σu , σv , σw), die Windrichtung (θ) sowie die Schubspannungsgeschwindigkeit (u_*), Obukhov-Länge (L) und Rauhigkeitslänge (z_0). Die Vertikalprofile werden durch "Monin-Obukhov Similarity Theory" (MOST) Beziehungen beschrieben (Flesch et al., 2004). Der in vorliegender Arbeit verwendete Ansatz zur Bestimmung der Eingangsgrössen wird in Anhang B.2 erläutert.

Die somit bestimmte Emission entspricht einem auf die Quellfläche gemittelten Nettofluss. Bei Gülle Ausbringung mittels Schleppschlauch oder Schleppschuh entgehen Ammoniakflüsse, welche auf den Pflanzen der nicht begüllten Streifen deponiert werden, der Messsung, da diese Ammoniakmoleküle nicht zu den Messsensoren gelangen.

2.6.2 Berücksichtigung der NH₃-Advektion angrenzender Versuchsparzellen und weiterer umliegender Quellen

In allen durchgeführten Versuchen wurde während der gesamten Versuchsdauer die Hintergrund-konzentration gemessen. Je nach jeweiligen Begebenheiten kamen dazu 1 - 4 Sammelsysteme in verschiedenen Luv-Positionen im Abstand von 5 bis 50 m zur begüllten Fläche zum Einsatz. Die Dauer der Messintervalle belief sich auf 4 - 6 h. In den meisten Versuchen wurde die Hintergrundkonzentration auf einer Höhe (ca. 1.5 m), in einigen Versuchen zusätzlich auf einer zweiten Höhe (ca. 1 m) gemessen.

Um den korrekten Anteil der gemessenen Konzentration den emittierenden Flächen zuzuweisen, wurde in der Berechnung der Emissionsflüsse (Gleichung (1)) der Konzentrationsanteil der Hintergrundkonzentration (C_{bgd}) um einen Term erweitert, welcher eine Abschätzung der NH₃-Advektion von angrenzenden Versuchsparzellen beinhaltet:

$$E_i = \frac{C_i - C_{bgd} - \sum_{k < i} (E_k \times (C/E)_{k,i})}{(C/E)_i}$$

wobei E_i die Emissionsflüsse in $\mu g/m^2/s$ der aktuellen Versuchsparzelle, C_i die gemessene Konzentration in $\mu g/m^3$ über der aktuellen Versuchsparzelle und (C/E) das berechnete Verhältnis der Konzentration zur Emission in s/m ist. Die Summe $\sum_{k < i} (E_k \times (C/E)_{k,i})$ entspricht dem Konzentrationsanteil der schon berechneten Emissionsflüsse an der gemessenen Konzentration über der aktuellen Versuchsparzelle.

Da die effektiven Emissionsflüsse unbekannt waren, musste a priori eine Reihenfolge zu deren Berechnung vorgegeben werden. Diese Reihenfolge zur Berechnung ergab sich in einem ersten Schritt aus der umgekehrten Reihenfolge der Ausbringung. Dadurch wird grundsätzlich die höchste Emission zuerst berechnet. In einem zweiten Schritt wurde die Reihenfolge geändert, um den Anteil der anderen Versuchsflächen abschätzen zu können. Dieser advektive Anteil der Nachbarparzellen lag in allen Versuchen bei weniger als 10 %.

2.6.3 Wahl der Messhöhe

Die aus den Konzentrationswerten der einzelnen Messhöhen mit dem bLS-Ansatz abgeleiteten Emissionen können systematische Abweichungen in Abhängigkeit der Messhöhe zeigen (Laubach, 2010, Yang et al., 2016) Dieser Umstand kann damit erklärt werden, dass die vertikale Durchmischung im Modell gegenüber den tatsächlichen Verhältnissen zum Zeitpunkt der Messung nicht korrekt abgebildet wird. Aus Massenerhaltungsgründen ergibt sich somit bei niedrigen Messhöhen eine Unterschätzung und bei hohen Messhöhen eine Überschätzung des C/E Verhältnisses oder umgekehrt. Dazwischen gibt es einen Höhenbereich, bei dem die Abweichungen des Modelles von dem realen Verhältnis klein sind. Yang et al. (2016) fanden ein optimales Verhältnis zwischen Messhöhe und Fetchlänge von 8.3 % bzw. 4.5 % bei einer Fetchlänge von 15 m bzw. 30 m. Bei den Standardversuchen (vgl. Kapitel 2.3.2) liegt diese bei rund 10 m, was gemäss Yang et al. (2016) einer optimalen Messhöhe zwischen 0.8 und 1.0 m über Grund entspricht. Nach Laubach (2010) beträgt die ideale Messhöhe bei stabiler Schichtung 0.7 m und bei instabiler Schichtung 0.8 m.

Daneben gibt es noch weitere Aspekte, die bei der Wahl der Messhöhen berücksichtigt werden müssen: die untersten Messhöhen sind beeinflusst von einer kleinen Quellregion. Eine allfällige geometrische Inhomogenität in der Quellverteilung ist deutlicher zu sehen. Zudem benötigen von der Bodenoberfläche stammende Emissionen eine minimale Durchmischungszeit, damit sie den

Modellansätzen genügen. In grossen Höhen erfasst ein Messpunkt die Quelle nur wenig, der Konzentrationsfootprint ist sehr klein. Dies führt zwangsläufig zu einer grösseren Unsicherheit der Berechnung des C/E Verhältnisses, und die niedrigeren Konzentrationen lassen sich analytisch weniger genau bestimmen und sind potentiell stark beeinflusst durch Advektion von Luftpaketen mit erhöhten Konzentrationen, die der Messung der Hintergrundkonzentration möglicherweise entgeht. Die Resultate der ersten zwei Versuchsjahre, in welchen auf ca. 0.9 m und 1.6 m gemessen wurde, zeigten diese Zusammenhänge klar auf. Daher basierte die Auswertung auf den Messhöhen von rund 0.9 m. Ab 2013 wurde auf den Höhen von rund 0.6 m und 0.9 m gemessen, da man davon ausgehen konnte, dass beide Höhen auswertbare Daten liefern. Für die Auswertung wurde in der Regel die niedrigere Messhöhe verwendet (vgl. 7. Anhänge, Messhöhen der durchgeführten Versuche).

Im vorliegenden Projekt wurde die Wahl der Messhöhe durch Vergleiche zwischen einem Massenbilanzansatz und dem bLS-Ansatz mehrmals getestet. Für die gewählten Messhöhen zwischen 0.6 und 1.0 m über Grund ergaben sich keine erkennbaren systematischen Differenzen zwischen den beiden Methoden (vgl. Kapitel 3.2.2).

2.6.4 Integrierter horizontaler Fluss (IHF) Methode

Die IHF Methode (Denmead, 1995) quantifiziert den horizontalen Abtransport des emittierten Gases über die gesamte Höhe der von den flächenmässig begrenzten Emissionen beeinflussten Abwindfahne, d.h. das Vertikalprofil von \overline{uc} , dem zeitlichen Mittelwert des Produktes der (skalaren) horizontalen Windgeschwindigkeit u und der Konzentration c. Das Messen im Zentrum einer kreisförmigen Emission macht die Berechnung windrichtungsunabhängig und die Ergebnisse lassen sich direkt auf eine Einheitsfläche beziehen. Die NH $_3$ -Konzentration an der Luv-Grenze der Emissionsfläche muss von der gemessenen Konzentration in der Mitte subtrahiert werden:

$$E = \frac{1}{X} \int_{z_0}^{z_{pl}} \overline{u(c_m - c_{bgd})} \, dz \tag{2}$$

wobei X den Kreisradius, c_{m} die Konzentration in der Mitte des Kreises, $\mathit{c}_{\mathit{bgd}}$ die windaufwärtige Hintergrund-Konzentration und z_{vl} die maximale vertikale Ausdehnung der Emissionsfahne ("Plume") in der Mitte des Kreises darstellt. Letztere ändert sich ständig mit der Windgeschwindigkeit und atmosphärischen Schichtung. Oft, so auch hier, wird für c_{bgd} als Vereinfachung ein höhenkonstantes Hintergrundprofil verwendet, so dass die Grösse an nur einem windaufwärtigen Ort gemessen werden muss. Der horizontale Fluss \overline{uc} kann im Regelfall messtechnisch nicht erfasst werden, sodass die Beziehung gemäss Gleichung (2) über den advektiven Teil des Flusses, d.h. dem Produkt der einzelnen Mittelwerte $\bar{u}\bar{c}$, angenähert wird. Der turbulente Teil des Flusses, welcher bei der IHF Methode den horizontalen Fluss (gegenüber dem advektiven Teil) verkleinert, wird dabei vernachlässigt. Somit sind die resultierenden Emissionen, basierend auf den gemessenen $\bar{u}\bar{c}$, zu hoch. Denmead (1995) empfiehlt eine Korrektur des gemessenen Flusses um bis zu 15 % nach unten. In der vorliegenden Studie wurden die berechneten IHF Emissionen um 7 % abwärts korrigiert. Dies entspricht einer, für die vorliegenden Bedingungen typischen, Korrektur gemäss (Wilson und Shum, 1992). Stehen für die vertikale Integration genügend Messpunkte zur Verfügung, um die Profilform über den kompletten Plume adäquat zu beschreiben (schwierig a priori zu kennen), so kann man die Integration schichtweise annähern. Ein weiterer Ansatz beruht auf einer Profilbeschreibung mit Hilfe einer vorgegebenen Profilform, welche an das gemessene Profil gefittet wird. Dabei ist wichtig, dass das resultierende Profil den gemessenen Verlauf gut genug wiedergibt und eine gute Abschätzung von z_{nl} erlaubt. Im vorliegenden Fall wurde das gemessene Windprofil an das stabilitätskorrigierte Vertikalprofil angenähert, welches ebenfalls in WindTrax verwendet wird (Flesch et al., 2004, und dortige Referenzen). Die Abschätzung des Konzentrationsprofils erfolgte mit einem exponentiell abfallenden Vertikalverlauf. Ein logarithmischer Verlauf (Ryden und McNeill, 1984) gab die Form des Profils schlechter wieder (die Endergebnisse würden sich allerdings nur im Rahmen von 7 % unterscheiden).

2.6.5 ZINST Methode

Ein weit verbreiteter Spezialfall in der Anwendung von bLS Ausbreitungsmodellierung zur Bestimmung von Emissionen ist die so genannte ZINST (oder im Original TPS: "theoretical profile shape") Methode (Wilson et al., 1982). Diese wurde in den 1990er Jahren u.a. in der Schweiz eingesetzt, um NH₃ Emissionen nach Gülleausbringung abzuschätzen (Katz, 1996). Basierend auf der

IHF Massenbilanzmethode (Denmead, 1995) haben Wilson et al. (1982) durch Simulationen mit einem 2D-bLS Modell gezeigt, dass bei Emissionen von einer Kreisfläche eine Höhe (ZINST) existiert, an der das Emissions-normalisierte Produkt \overline{uc}/E nur in engen Grenzen mit der atmosphärischen Stabilität schwankt. Für diese Höhe, die von z_0 und dem Kreisradius X abhängt, wurden die \overline{uc}/E Verhältnisse modelliert, so dass die gesuchte Emission mit der Messung von Horizontalwind und Konzentration auf der jeweiligen ZINST Höhe bestimmt werden kann. Diese Simulationen wurde für eine Neuberechnung der ZINST Parameter mit WindTrax wiederholt (siehe Anhang B.4).

2.7 Zeitlicher Emissionsverlauf und Bestimmung der kumulierten Emissionen

2.7.1 Einleitung

Häufig werden Ammoniakemissionen in Form der Gesamtverluste innerhalb von 96 h ausgedrückt (Huijsmans et al., 2001). Die Messung der Ammoniakkonzentrationen in den durchgeführten Versuchen dauerte im Mittel rund 2 Tage (47 h). In 5 der 17 Versuche wurde weniger als 30 h gemessen (siehe Abbildung 6). Die unterschiedlich langen Versuchsperioden hatten verschiedene Gründe wie z.B. eine nicht-detektierbare Differenz zwischen Hintergrundkonzentration und Konzentration über der begüllten Fläche, Annäherung einer Schlechtwetterlage, Advektion grosser Mengen an NH, von angrenzenden Parzellen.

Um die Gesamtemission innerhalb von 96 h zu berechnen, kamen zwei verschiedene Ansätze zur Anwendung. Einerseits wurden die gemessenen Emissionen basierend auf den Kenntnissen zu den Verläufen bestehender, längerfristiger Experimente extrapoliert (V_{96h}), andererseits wurde der Verlauf durch eine Michaelis-Menten-Gleichung angenähert und somit der Gesamtemission (N_{max}) über einen Fit der gemessenen Emission berechnet.

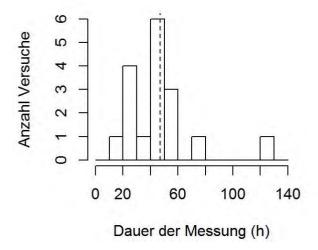


Abbildung 6: Verteilung der Messdauer der 17 durchgeführten Versuche.

2.7.2 Extrapolation der kumulierten Emission auf 96 h

Die auf 96 h extrapolierte Emission (V_{96h}) wurde aus Summe der folgenden drei Anteile gebildet:

$$V_{96h} = V_{Ende} + V_{E1} + V_{E2}$$

Wobei V_{Ende} die effektiv gemessene Emission bis Versuchsende, V_{E1} der Anteil der Emission des letzten Messtages, welcher durch die Messung nicht erfasst wurde, und V_{E2} die extrapolierte Emission der darauf folgenden Tage bis 96 h ist (Abbildung 7). Für die Berechnung der Extrapolation gilt: Ein Messtag beginnt um 6h00 Uhr morgens und endet um 5h59 Uhr des folgenden Tages. Die Schweiz weist typisch kontinentale Wettersituationen auf, mit sehr stabilen Schichtungen in der Nacht. Die gemessenen Emissionsflüsse in der Nacht zeigen generell sehr tiefe, kaum von Null unterscheidbare Flüsse an. Deshalb wurde in der Extrapolation die Emission zwischen 20h00 bis 5h59 Uhr gleich Null gesetzt. Die Emission eines Messtages endet für die Extrapolation somit um 20h00 Uhr des Messtages.

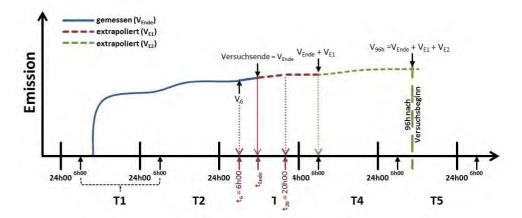


Abbildung 7: Schematische Darstellung eines typischen Verlaufes der kumulierten Emission, mit Extrapolation auf 96 h.

Berechnung von V_{FI}

Die Berechnung des zusätzlichen Verlustes des letzten Messtages nach Versuchsende (V_{E1}) erfolgte gemäss:

$$V_{E1} = (V_{Ende} - V_6) \frac{t_{20} - t_6}{t_{Ende} - t_6}$$

Wobei V_{Ende} der gemessene Verlust bei Versuchsende ist, V_6 der gemessene Verlust morgens um 6h00 Uhr des letzten Messtages (=Beginn des letzten Messtages), t_{Ende} die Uhrzeit bei Versuchsende, t_6 und t_{20} die Uhrzeiten bei Beginn, respektive Ende der Emission eines Messtages (d.h. 6h00 und 20h00 Uhr). Dies bedeutet, dass an nur zu Teilen beprobten Tagen der mittlere gemessene Emissionsverlauf auf den gesamten Tag extrapoliert wird.

Der extrapolierte Verlust des gesamten letzten Messtages (V_{LMt}) lässt sich über die Summe des gemessenen und des extrapolierten Verlustes angeben:

$$V_{LMt} = V_{E1} + (V_{Ende} - V_6) (3)$$

Berechnung von V_{F}

Aus dem Datensatz der durchgeführten Versuche und den zusätzlichen Daten des Versuchsstandortes Oensingen (Sintermann et al., 2011a; Spirig et al., 2010) wurden in Tabelle 5 die folgenden Verhältnisse der Verluste an den verschiedenen Messtagen berechnet (wobei ein Messtag zusätzlich die darauffolgende Nacht beinhaltete).

Tabelle 5: Verhältnisse der gemessenen Emission aufeinander folgender Messtage. T1: Verlust zwischen Zeitpunkt Ausbringung und Versuchstag 2 um 5h59, T2: Verlust zwischen Versuchstag 2 um 6h00 und Versuchstag 3 um 5h59, T3 - T5 analog zu T2.

P2 (=T2/T1)	P3 (=T3/T2)	P4 (=T4/T3)	P5 (=T5/T4)
15 %	31 %	56 %	57 %

Basierend auf der Grösse V_{LMt} (Gleichung (3)) und den tabellierten, prozentualen Anteilen P2-P5 können die Verluste der darauffolgenden Tage berechnet werden:

$$V_{E2} = \sum_{i > LMt} V_i$$

mit

$$V_i = V_{i-1} \times P_i$$

Wobei i = 2, 3, 4, 5 für die Messtage 2 - 5 stehen. i = LMt bezeichnet den Messtag bei Versuchsende.

2.7.3 Michaelis-Menten Verlauf

Der Verlauf der kumulierten Emission wird häufig durch ein mathematisches Modell analog zur Michaelis-Menten-Theorie angenähert (Søgaard et al., 2002). Der Verlauf der kumulierten Emission N (t) (% TAN) wird durch die folgende Gleichung angenähert:

$$N(t) = \frac{N_{max}t}{K_m + t} \tag{4}$$

Wobei t (min) die Zeit seit Ausbringung der Gülle, N_{max} (% TAN) die Gesamtemission für $t \to \infty$ und K_m (min) die Zeit bis $N(t) = \frac{1}{2}N_{max}$ ist.

Aus der kumulierten Emission N(t) lässt sich der Emissionsfluss $\dot{N}(t)$ ableiten

$$\dot{N}(t) = \frac{dN(t)}{dt}$$

oder ausformuliert:

$$\dot{N}(t) = \frac{N_{max}K_m}{(t + K_m)^2} \tag{5}$$

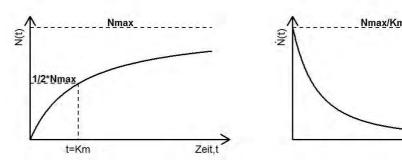
Gleichung (5) lässt sich auf die Intervalle der Emissionsflüsse diskretisieren:

$$\dot{n}(t,\Delta t) = \frac{1}{\Delta t} \int_{t}^{t+\Delta t} \dot{N}(\tau) d\tau = \frac{N(t+\Delta t) - N(t)}{\Delta t}$$

Und daraus:

$$\dot{n}(t,\Delta t) = \frac{K_m N_{max}}{(K_m + t + \Delta t)(K_m + t)} \tag{6}$$

Anhand der Gleichung (6) können die beiden Parameter N_{max} und K_m mit der Methode der kleinsten Quadrate an die berechneten Emissionsflüsse gefittet werden.



(a) Verlauf der kumulierten Emission (b) Verlauf des Emissionsflusses

Abbildung 8: Verlauf der kumulierten Emission (a) und des Emissionsflusses (b), welche durch die beiden Gleichungen (4) & (5) beschrieben werden.

Die Vorteile, die ein Fit der gemessenen Emission an einen Michaelis-Menten Verlauf beinhaltet, zeigen sich in den beiden Parametern der Michaelis-Menten Gleichung, welche ein Mass des Gesamtverlustes (N_{max}), sowie der Dynamik des Emissionsverlaufes (K_m = Dauer, bis die Emission die Hälfte der Gesamtemission N_{max} erreicht) darstellen (Abbildung 8). Aus diesen beiden Parametern lässt sich zudem der Initialfluss, d.h. der Emissionsfluss zum Zeitpunkt t=0, als $\dot{N}(t=0)=N_{max}/K_m$ ableiten. Somit ist es möglich, anhand zweier Parameter eine ganze Reihe an Emissionsverläufen auf einfache Art und Weise zu vergleichen und zu analysieren.

Aufgrund der Annahmen, welche dieser Vereinfachung zugrunde liegen, müssen solche gefitteten Ergebnisse allerdings vorsichtig interpretiert werden. Ein Michaelis-Menten Verlauf wird als isolierter Prozess behandelt und hat als solcher weder einen Tagesgang, noch andere mögliche Einflüsse aufgrund der Witterung oder Änderung der Hintergrundkonzentration.

2.8 Regressionsanalyse und Modellierung der kumulierten Emission

Eine Regressionsanalyse des Referenzsystems Prallteller/Rindviehvollgülle wurde mit dem Ziel durchgeführt, die wichtigsten Versuchsparameter zur Modellierung der gemessenen Emission zu bezeichnen, bzw. diejenigen Parameter zu finden, welche den grössten Einfluss auf die Variation der Emission haben. Daraus wurde ein Regressionsmodell erarbeitet, welches die folgenden Kriterien erfüllt:

- einfacher Modellaufbau
- einfach zu bestimmende Parameter
- Verwendung zur Parametrisierung der Emissionen im schweizerischen Emissionsinventar

Die Regressionsanalyse bezieht sich auf die effektiv gemessenen, über die ersten 24 h nach Gülleausbringung kumulierten Emissionen, da die extrapolierten Emissionen eine zusätzliche Unsicherheit in die Analyse einbringen. Die berücksichtigten Parameter umfassen die Mittelwerte der Lufttemperatur und der Windgeschwindigkeit, TS-Gehalt sowie die Wuchshöhe des Bestandes (Tabelle 6). Die beiden Parameter Lufttemperatur und Windgeschwindigkeit wurden emissionsgewichtet über 24 h gemittelt (Anhang B.8).

Tabelle 6: In die Regressionsanalyse einbezogen Parameter.

Bezeichnung	Parameter	Einheiten	Bemerkungen
T_{2m}	Lufttemperatur auf 2 m über Boden	°C	24h-Mittelwert
WS	Windgeschwindigkeit auf 1 m über Boden	m/s	24h-Mittelwert
TS	Trockensubstanz-Gehalt der Gülle	%	
$h_{Bestand}$	Mittlere Wuchshöhe des Bestandes	cm	

2.8.1 Kürzung des ursprünglichen Parameter-Sets

Die Auswahl an Parameter umfasst nicht alle verfügbaren Versuchsparameter. Vorhergehend liessen sich zwei grössere Parameter-Gruppierungen bestimmen, bestehend aus einer Gruppe an meteorologischen Parametern, welche mit der mittleren Lufttemperatur T_{2m} korrelieren, sowie einer Gruppe an Gülleeigenschaften, die eine starke Korrelation zum TS-Gehalt der Gülle zeigen. Auf Grund einer ausführlichen Analyse wurden aus diesen zwei Gruppierungen die beiden Versuchsparameter T_{2m} und TS in die Analyse einbezogen und die restlichen Parameter aus der Regressionsanalyse ausgeschlossen. Ebenso erfolgte ein Ausschluss einiger unvollständig erfasster Parameter (z.B. der Bodentemperatur), sowie des pH-Wertes und der Applikationsrate (siehe Anhang B.5.2). Das reduzierte Parameter-Set, welches schlussendlich zur Regressionsanalyse verwendet wurde, besteht aus vier Versuchsparametern (Tabelle 6), den Meteoparametern Lufttemperatur (T_{2m}) und Windgeschwindigkeit (WS), dem TS-Gehalt der Gülle (TS), sowie der mittleren Wuchshöhe des Bestandes ($h_{Bestand}$). Eine ausführliche Erläuterung zur Kürzung des Parameter-Sets ist dem Anhang B.5 zu entnehmen.

2.8.2 Modellierung der extrapolierten Emission nach 96 h

Zur Modellierung der gesamten NH_3 -Emission wurde die Struktur des im vorhergehenden Abschnitt beschriebenen Regressionsmodelles verwendet. Da die Emission bei Versuchsbeginn in Bezug auf die gesamte kumulierte Emission am stärksten ins Gewicht fällt, wurden die Meteoparameter T_{2m} und WS emissionsgewichtet über 96 h gemittelt. Diese emissionsgewichtete Mittelung wird in Anhang B.8 genauer beschrieben.

3 Resultate und Diskussion

3.1 Einfluss des Gill Firmware Fehlers auf die berechneten Emissionen

Der Fehler in der von den Gill Windmaster verwendeten Umrechnung der Schallgeschwindigkeit in die dreidimensionalen Windgeschwindigkeitskomponenten führt zu einer Unterschätzung der Grösse des vertikalen Windes. Dabei ergibt sich eine Asymmetrie: positive Werte sind um rund 29 % unterschätzt, negative Werte um 17 %. Wird die von Gill empfohlene Korrektur angewendet, erhöht sich die Standardabweichung des vertikalen Windes um rund 20 %.

Die Korrektur des Gill Fehlers hat in den bLS Modellen eine Verstärkung der vertikalen Durchmischung zur Folge. Da für das verwendete bLS – Modell die Massenerhaltung gilt, wird das berechnete C/E Profil mit der Höhe weniger stark abfallen.

Um die Grössenordnung der Korrekturen einzugrenzen, wurden die Auswirkungen für eine kreisförmige Emissionsfläche mit 20 m Radius bei stabilen, neutralen und instabilen Bedingungen quantifiziert. Dies entspricht den Standardversuchen des vorliegenden Projektes. Tabelle 7 zeigt die mikrometeorologischen Grundgrössen der drei Fälle und die Auswirkungen der Korrekturen.

Tabelle 7: Die mikrometeorologischen Grundgrössen u., L. z_0 , $\sigma w/u$, $\sigma u/u$, und U bei stabilen, neutralen und instabilen Bedingungen (vgl. Abbildung 9, jeweils korrigiert um den Gill Firmware Fehler bzw. unkorrigiert)

		u, (m s ⁻¹)	L (m)	z ₀ (m)	σw/u _*	σu/u _*	U
a) Stabil	korrigiert	0.156	9.5	0.03	1.197	3.47	1.62
	unkorrigiert	0.142	8.7	0.021	1.075	3.83	1.62
b) Neutral	korrigiert	0.375	-598	0.019	1.11	2.59	3.78
	unkorrigiert	0.342	-548	0.013	0.99	2.84	3.78
c) Instabil	korrigiert	0.193	-4.8	0.034	1.45	3.96	1.46
	unkorrigiert	0.181	-4.8	0.027	1.27	4.22	1.46

In der Abbildung 9a-c sind die prozentualen Korrekturen der Emissionsflüsse in Abhängigkeit der Messhöhen dargestellt. Es ist zu erwarten, dass die kumulierten Emissionen der Standardversuche zwischen 0 und 10 % nach oben korrigiert werden. Auf die ausgebrachte TAN Menge bezogene Verluste können beispielsweise von 30 % TAN auf 33 % TAN zunehmen.

Für die unteren und oberen Höhen der Experimente mit Erhebung von vertikalen Profilen wird es zu grösseren Korrekturen kommen, die in der Tendenz die schwer zu erklärende Höhenabhängigkeit entschärft (vgl. Kapitel 3.2.5, Tabelle 16, Tabelle 10). Für eine genauere Korrektur müssen alle Experimente vollständig neu berechnet werden.

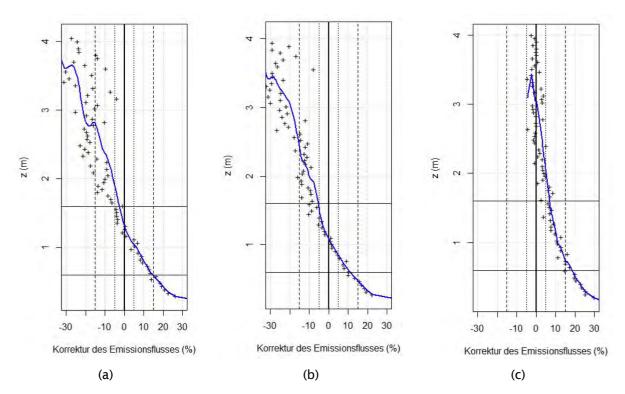


Abbildung 9: Korrektur der Emissionsflüsse bei stabilen (a), neutralen (b) und instabilen (c) Verhältnissen aufgrund des Gill Firmware Fehlers in Abhängigkeit der Messhöhe z in m für den Zentralmast eines Kreises mit 20 m Radius. Grundlage der Darstellung sind verschiedene Perioden des Versuchs zur Bestimmung der Wiederfindungsrate mittels künstlicher Quelle in Witzwil.

Im Falle der beiden Versuche in Witzwil vom 01.09.2014 und 03.09.2014 belaufen sich die Korrekturen auf +4.8% (d.h. Faktor 1.048) respektive +1.9% (d.h. Faktor 1.019) des unkorrigierten Verlustes (siehe Kapitel 3.2.2).

3.2 Validierung der angewendeten Methode zur Bestimmung der Emissionen

3.2.1 NH, Konzentrationsvergleiche mit unabhängigen Messsystemen

Die durchgeführten Messserien verwendeten für die NH₃ Konzentrationsmessungen die speziell dafür entwickelten LOCI-Impinger-Systeme. Die resultierende NH₃ Konzentration wird durch mehrere Komponenten bestimmt, welche alle für sich sorgfältig überprüft und geeicht wurden. Die Zuverlässigkeit des Messsystems als Ganzes kann jedoch am besten durch einen Vergleich mit anderen, unabhängigen Systemen getestet werden. Dazu wurden Vergleichsmessungen der LOCI-Systeme mit einem miniDOAS System und Passivsammlern am Standort Posieux durchgeführt. Dieser Standort weist bei moderaten mittleren NH₃ Konzentrationen durch die Nähe zu Stallanlagen eine starke kurzzeitige Dynamik auf und bietet aufgrund der messtechnisch schwierigen Bedingungen gute Voraussetzungen für einen solchen Vergleich.

Deutlich zeigt sich die starke Schwankung der NH_3 Konzentrationen mit vor allem nächtlichen Spitzenwerten und/oder stark erhöhte Konzentration, wenn der Wind von stationären Quellen her weht. Tabelle 8 zeigt den Vergleich der auf die LOCI und Passivsammler gemittelten Konzentrationen.

Zwischen dem 28. und 31. August 2014 wurden in Witzwil die 7 LOCI-Systeme parallel zu einem miniDOAS Lichtstrahl auf gleicher Höhe installiert und sieben Intervalle à 8 Stunden aufgenommen. Abbildung 10 zeigt eine Übersicht der gemessenen Konzentrationen des miniDOAS Systems und der Impingerwerte der LOCI. Die Zeiten der LOCI entsprechen der Mittelzeit des achtstündigen Messintervalls.

Die gute Zeitauflösung des miniDOAS illustriert die starke Dynamik der NH₃ Konzentrationen. In diesem Sinne gibt es keine stabile Hintergrundkonzentration, die Werte schwanken kurzzeitig zwischen 0.5 und 14 µg m⁻³. Im Mittel liegen die Konzentrationen der Impinger leicht über denjenigen des miniDOAS (Tabelle 9).

Tabelle 8: Vergleichswerte Impinger	- miniDOAS - Passivsammler (PS)) der Sommerkampagne 2013 in Posieux.

Start Messung (MEZ)	Ende Messung (MEZ)	Impinger (μg/m³)	miniDOAS gemittelt (μg/m³)	Differenz (μg/m³)	PS (μg/m³)
26.06.2013 14:33	26.06.2013 20:32	11.4	8.6	2.8	Ì
26.06.2013 20:33	27.06.2013 02:32	19.1	16.2	2.9	
27.06.2013 02:33	27.06.2013 08:32	10.3	9.1	1.2	
27.06.2013 08:33	27.06.2013 14:32	10.5	8.5	2.0	9.6
27.06.2013 14:33	27.06.2013 20:32	9.5	7.0	2.4	
27.06.2013 20:33	28.06.2013 02:32	11.1	9.7	1.4	
28.06.2013 02:33	28.06.2013 08:32	13.0	11.6	1.3	
01.07.2013 12:46	01.07.2013 18:44	4.2	3.1	1.1	Ì
01.07.2013 18:45	02.07.2013 00:44	11.8	11.5	0.3	
02.07.2013 00:45	02.07.2013 06:44	12.1	10.4	1.7	ļ
02.07.2013 06:45	02.07.2013 12:45	7.6	7.0	0.6	9.8
02.07.2013 12:46	02.07.2013 18:45	5.9	5.4	0.5	
02.07.2013 18:46	03.07.2013 00:45	7.2	7.7	-0.4	
03.07.2013 00:46	03.07.2013 06:53	4.0	3.3	0.7	Ļ

Eine simple lineare Regression zwischen miniDOAS und den Mittelwerten der LOCI über die Messintervalle zeigt eine Übereinstimmung im Rahmen der Erwartungen (Abbildung 11). Für diese Regression wurde das zweitletzte Intervall weggelassen. Bei diesem liegt die gemessene miniDOAS Konzentration bei der Detektionsgrenze der Impingersysteme. Die LOCI erfassen auch einen Teil des NH₄+ als Bestandteil der Aerosolpartikel. Bei tiefen NH₃-Hintergrundkonzentrationen kann sich dieser Effekt bemerkbar machen. Zudem können die miniDOAS absolut nicht genau kalibriert werden, da das Referenzspektrum aus praktischen Gründen nicht auf einem Pfad ohne NH₃-Moleküle aufgenommen werden kann (Sintermann et al. 2016). Die Detektionsgrenze der LOCI-Systeme bei einer Sammelzeit von 8 Stunden liegt bei ca. 1 µg m⁻³.

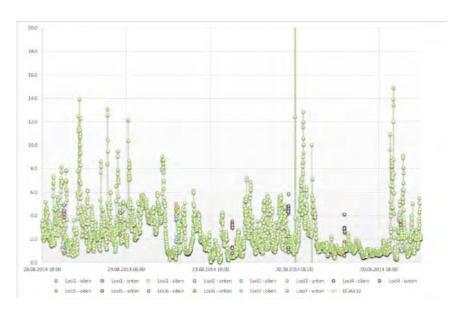


Abbildung 10: Zeitreihe der NH₃ Konzentration des miniDOAS und der Impingersysteme (Witzwil 28.-30. August 2014). Für die Impingersysteme ist der Mittelpunkt der jeweils 8-stündigen Messintervalle angegeben.

Tabelle 9: Vergleich NH_3 Konzentrationen der miniDOAS und LOCI Mittelwerte sowie Standardabweichungen über die 7 Messintervalle.

	miniDOAS	LOCI
	μg/m³	μg/m³
Mittelwert	2.5	3.3
Standardabweichung	0.9	0.6

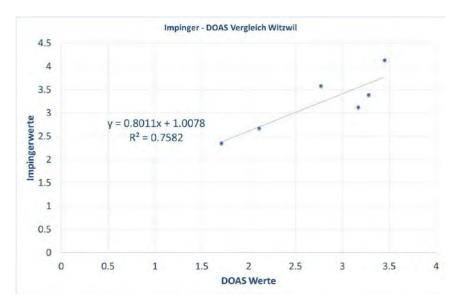


Abbildung 11: Regression der NH, Mittelwerte der 7 LOCI-Systeme mit den mittleren NH, miniDOAS Werten.

Ein weiterer Vergleich der Konzentrationsmessung der Impinger mit drei miniDOAS-Systemen wurde am 11./12. Juni 2015 in der Aula an der HAFL durchgeführt. Ursprünglich war geplant, die drei miniDOAS Systeme bei tiefen Konzentrationen zu vergleichen. Bei den Messungen stellte sich

heraus, dass in dem Raum Konzentrationen zwischen 50 und 100 µg m³ vorlagen. Ursachen dieser deutlich erhöhten Konzentrationen liessen sich nicht eruieren. Eine potentielle Quelle könnte das mit Rauch behandelte Eichenparkett sein.

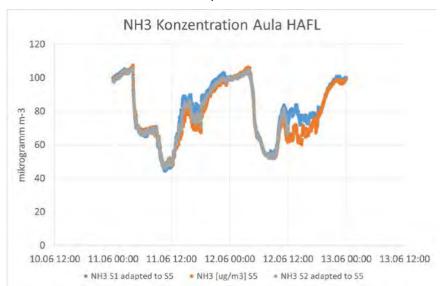


Abbildung 12: Zeitreihe der NH_3 Konzentration der drei miniDOAS Systeme vom 10.06. - 13.06.2015 in der Aula der HAFL, Zollikofen.

Abbildung 12 zeigt die aufgenommenen Zeitreihen mit den 3 miniDOAS Systemen. Diese wurde in der diagonal im Raum auf einer Höhe von 1.22 m und einem Abstand von 2 m aufgestellt. Nachmittags, bei aktivem Luftumsatz und Präsenz von Personen im Raum waren Konzentrations-unterschiede feststellbar. 7 Serien mit 6 LOCI-Systemen wurden im Zeitfenster 11.06.2015 14:30 bis 12.06.2015 06:00 durchgeführt. Abbildung 13 zeigt den Vergleich der über die Intervalllängen gemittelten Werte. Die vier letzten Intervalle wiesen eine homogene Konzentrationsverteilung im Raum auf. Die Streuung der Impingerwerte in diesen vier Intervallen beträgt rund 8 % und kann als repräsentativ für die durchgeführten Feldversuche angesehen werden.

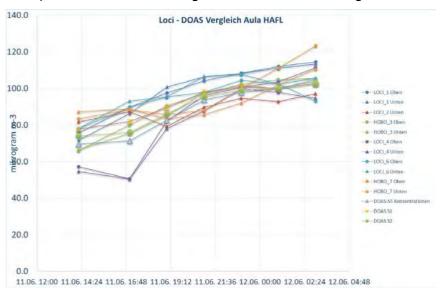


Abbildung 13: Vergleich der NH₃ Mittelwerte der 7 LOCI-Systeme mit den mittleren NH₃ miniDOAS Werten (Messung in der Aula der HAFL; Zeitangabe in UTC).

3.2.2 Vergleich bLS Methode mit Massenbilanzmethode (IHF)

WindTrax wurde in den vergangenen Jahren hauptsächlich zur Abschätzung von CH₄- sowie NH₃- Emissionen von landwirtschaftlichen, mit Gülle (Carozzi et al., 2012; Carozzi et al., 2013; Sanz et al., 2010; Sintermann et al., 2011a) oder mit Harnstoff (Sommer et al., 2005) gedüngten Flächen,

von Weiden (Denmead et al., 2004; Laubach, 2010; Laubach und Kelliher, 2005; Laubach et al., 2008, 2013), Futterplätzen (sog. "feetlots", Faulkner et al., 2007; Flesch et al., 2007; Loh et al., 2008; McGinn et al., 2007; van Haarlem et al., 2008) und kompletten landwirtschaftlichen Betrieben (Flesch et al., 2009) sowie von Biogasanlagen (Flesch et al., 2011) verwendet. Allgemein gilt WindTrax als einfach anwendbares, vergleichsweise genaues Instrument zur Emissionsbestimmung (Denmead, 2008; Harper et al., 2011; Laubach, 2010; Loubet et al., 2010; McGinn, 2013). Vergleiche zu Massenbilanz-Berechnungen sowie Tracer-Versuchen ergaben mittlere Unterschiede im Bereich von weniger als \pm 10 % für die meisten Anwendungsbedingungen (Flesch et al., 2013. 2005, 2004; Gao et al., 2009a, 2010; Harper et al., 2009; McBain und Desjardins, 2005). Die besten Ergebnisse lassen sich in Situationen erzielen, die möglichst nahe an den idealen MOST Voraussetzungen liegen. Im Anwendungsfall bedeutet das v.a. ein möglichst Hindernis-freies Luv-Windfeld, d.h. ungestörter "upwind fetch" länger als 5 - 25 mal der aerodynamischen Konzentrationsmesshöhe (Flesch et al., 2005; Gao et al., 2010; McBain und Desjardins, 2005). Die Genauigkeit kann sich durch extreme atmosphärische Schichtung und instationäre Verhältnisse (meist bei sehr niedrigem Horizontalwind \bar{u} sowie ebenfalls niedriger Schubspannungsgeschwindigkeit (u_*) verringern (Flesch et al., 2013, 2004; Gao et al., 2009b). Zudem ist das Ergebnis direkt von der Genauigkeit der Konzentrationsmessung, effektiv $C - C_{bqd}$ abhängig.

Insgesamt wurden drei Experimente mit Ausbringung von Gülle mittels Prallteller durchgeführt, welche einen Vergleich der im Rahmen der Standardversuche (vgl. Kapitel 2.3.2) angewendeten Methode (bLS Methode) mit Massenbilanzansätzen (IHF-Ansatz) beinhaltet (Versuch Z1 (Tänikon), Witzwil 01.09.2014 und Witzwil 03.09.2014). Tabelle 10 zeigt die berechneten kumulierten Emissionen mit den beiden Methoden im Vergleich. Mit der bLS Methode konnten die kumulierten Verluste der ersten vier Höhen bestimmt werden. Bei den beiden obersten Höhen gab es aus technischen Gründen einige Datenausfälle oder die Werte lagen unterhalb der Detektionsgrenze. Bei der IHF-Methode wurden die Verluste um -7% für den Anteil turbulenter Diffusion in der horizontalen Advektion korrigiert. Für den ersten Versuch Z1 (Tänikon) vom Sommer 2012 sind die 20 Hz Rohdaten nicht mehr vorhanden und die Gill Korrektur konnte nicht durchgeführt werden.

Tabelle 10: Vergleich der kumulierten NH₃ Verlustraten berechnet mit dem IHF und bLS-Ansatz auf den verschiedenen Messhöhen jeweils unkorrigiert und korrigiert um den Gill Firmware Fehler (vgl. Kapitel 3.1).

Versuch	Fläche	Messhöhen (m)	bLS Verlust unkorr. (kg NH ₃ -N ha ⁻¹)	bLS Verlust korr. (kg NH ₃ -N ha ⁻¹)	
		0.60	6.0	-	
Versuch Z1	Vrais	0.90	5.8	-	5.9
(Tänikon)	Kreis	1.60	7.0	-	
		3.00	10.5	-	
		0.45	4.9	5.5	
	Kreis	0.85	5.0	5.3	5.4
Witzwil		1.20	5.0	5.1	
01.09.14		1.80	5.3	4.9	
		3.30	6.3	5.3	
		4.80	unterhalb Dete	ktionsgrenze	
		0.45	7.7	8.4	
		0.85	8.0	8.0	8.4
Witzwil	Quadrat	1.20	8.6	8.1	
03.09.14		1.80	9.2	8.0	
		3.30	untarhalk Data	luti o m s a roman	
		4.80	unterhalb Dete	Kuonsgrenze	

Bis auf die oberste Höhe des Versuchs Z1 (Tänikon) stimmen die beiden Ansätze innerhalb ihrer Unsicherheiten überein. Die Berechnung der Emission mit der bLS Methode, basierend auf einer Konzentrationsmessung auf 3 m am Zentralmast eines Kreises mit einem Radius von 20 m, weist wegen dem auf dieser Höhe kleinen Konzentrationsfootprints innerhalb der Emissionsflächeeine grössere Unsicherheit auf. Am 01.09.14 in Witzwil stimmte die bLS Berechnung kombiniert mit miniDOAS Konzentrationsbestimmung ebenfalls mit den IHF-Impinger Ergebnissen überein (Sintermann et al., 2016). Daraus lässt sich schliessen, dass die Unterschiede zwischen den gewählten Standardverfahren bLS und dem weitgehend Modell-unabhängigen Massenbilanzverfahren weniger als 10 % betragen. Die in Sintermann et al. (2012) aufgezeigte Diskrepanz lässt sich damit nicht mit der Verwendung von unterschiedlichen Ansätzen zur Emissionsmodellierung erklären.

3.2.3 Reproduzierbarkeit

Das Experiment vom März 2014 in Wengi (TS3) hatte die Erfassung der Reproduzierbarkeit der Emissionsbestimmung bei Ausbringung auf Parzellen mittlerer Grösse (30 x 30 m) zum Zweck. Dazu wurden die gleiche Rindviehgülle in gleicher Menge mittels Prallteller auf 3 gleich grosse Parzellen ausgebracht und die Emissionen verglichen. Die Messung der NH $_3$ Konzentrationen erfolgte über jeder Parzelle auf 0.6 und 0.9 m über der Bodenoberfläche. Drei Sonic-Messungen fanden parallel auf 1.15 m, verteilt über die Versuchsfläche (je ein Sonic neben einer begüllten Parzelle), statt. In einem idealen Fall müssen die Kombinationen der verschiedenen Impingermessungen mit den Turbulenzdaten der drei Sonic dasselbe Resultat liefern. Tabelle 11 zeigt die 9 Kombinationen (drei Felder mit je drei Sonicmessungen) der berechneten NH $_3$ Verluste des ersten Tages. Für die Resultate wurden die beiden Höhen der LOCI gemittelt. Der Verlust lag bei 30.9 % des applizierten TAN, mit einer Standardabweichung von 4.4 % des applizierten TAN. Dies entspricht einer relativen Unsicherheit von rund \pm 30 % (2 σ) des gemessenen Verlustes und widerspiegelt die zu erwartende Unsicherheit einer Einzelmessung.

Tabelle 11: Kreuztabelle der kumulierten NH_3 -Verluste als Prozentwert des ausgebrachten TAN der drei Versuchsparzellen gegenüber den drei Ultraschallanemometer Auswertungen. Bei den Verlusten sind die Konzentrationsmessungen auf beiden Höhen berücksichtigt. $\sigma_{Parzelle}$: Standardabweichung des Verlustes zwischen den einzelnen Parzellen innerhalb eines Sonic Datensatzes. σ_{Sonic} : Standardabweichung des Verlustes zwischen den einzelnen Sonic Datensätzen für eine Parzelle.

	P1	P2	Р3	$\sigma_{_{ m Parzelle}}$
Sonic bei P1	31.2	28.0	33.4	2.7
Sonic bei P2	25.8	25.7	27.1	0.8
Sonic bei P3	35.2	34.1	37.6	1.8
$\sigma_{_{Sonic}}$	4.7	4.4	5.3	-

Die Streuung der Verluste ist vor allem durch die unterschiedlichen Turbulenz-Werte aufgrund der verschiedenen Sonic-Anemometer gegeben, was hauptsächlich auf einen systematischen Unterschied in den ersten, durch eine starke Bise geprägten Stunden nach Ausbringung der Gülle zurückzuführen ist. Die Windgeschwindigkeitsunterschiede der Sonicmessungen bei Parzelle Mitte (P2) und Parzelle Ost (P3) liegen bei rund 30 % und deuten die kleinräumigen topographischen Einflüsse auf die Turbulenz- und Strömungsverhältnisse über den einzelnen Feldern an.

3.2.4 Einfluss der Parzellengrösse auf die Emissionen

In den drei Versuchen F1 bis F3, in welchen eine allfällige Abhängigkeit der Emissionshöhe von der Parzellengrösse untersucht wurde, konnten keine systematischen Unterschiede aufgrund der Parzellengrösse gezeigt werden. Eine solche Abhängigkeit kann ausgeschlossen werden und die Unterschiede in den Literaturwerten gemessener Emissionen (Sintermann et al., 2012) können dadurch nicht erklärt werden. Zwar schwankten die parallel auf verschieden grossen Versuchsflächen gemessenen Werte relativ um bis zu rund 30 %. Eine zufällige Schwankungsbreite bis zu 30 % entspricht den Ergebnissen der Versuche zur Bestimmung der Wiederfindungsrate und Werten aus der Literatur (siehe Kapitel 3.2.5 und Anhang C.2). Der einzige bekannte Effekt, welcher

systematisch höhere Emissionen für kleine Flächen bewirkt, ist der so genannte Oasen-Effekt. Wie von Sintermann et al. (2012) zusammengefasst, kann dieser Effekt bei Fetchlängen > 20 m keinen grossen Einfluss haben.

3.2.5 Versuche zur Bestimmung der Wiederfindungsrate mittels künstlicher Quelle

Künstliche Quelle und Versuchsstandorte

Eine zusätzliche Serie von Experimenten hatte zum Ziel, die Wiederfindungsrate von NH_3 von Versuchen zur Ausbringung von Gülle zu bestimmen. Dazu wurde eine künstliche Quelle konstruiert. Diese bestand aus einem Netz von 36 kritischen Düsen (Durchmesser: 100 μ m, stainless steel, LenoxLaser, USA), die gleichmässig über eine hexagonale Fläche verteilt waren. Diese Anordnung simulierte eine emittierende Flächen in der Form eines Kreises mit einem Durchmesser von 20 m. Abbildung 14 zeigt den Aufbau und die geometrische Anordnung der Düsen. Diese waren im Versuchsaufbau mit 6 OD x 4 mm ID PA (Legris, Parker Hannifin) Schläuchen sternförmig von der Kreismitte ausgehend verbunden. Die Quelle wurde im Labor auf Dichtheit geprüft.

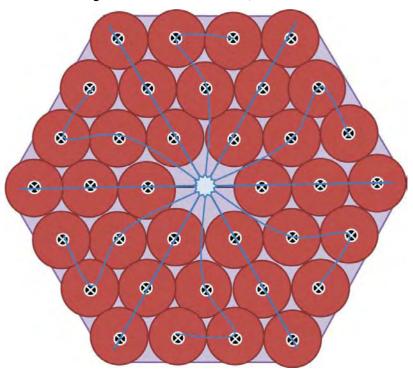


Abbildung 14: Geometrische Anordnung der Düsen der künstlichen Quelle.

Die Steuerung des Volumenstroms durch das System erfolgte mit einem Vögtlin Durchflussregler (red-y smart controller, Vögtlin Instruments AG, CH), zusätzlich wurde unmittelbar vor dem Verteilerkopf der Druck gemessen. Die einzelnen Düsen weisen eine Streuung von rund 20 % der Durchflussrate auf. Auf die Düsen wurde ein T-Stück aus Polyethylen aufgesetzt, welches auf dem Boden fixiert war. Damit liess die Austrittsgeschwindigkeit des Prüfgases verringern (Abbildung 15). Die Düsen wurden zuvor im Labor mit Druckluft getestet.



Abbildung 15: Detailansicht Auslass der kritischen Düse auf einer Grasoberfläche.

Tabelle 12 enthält eine Übersicht zu den drei durchgeführten Versuchen zur Bestimmung der Wiederfindungsrate. Die Quelle wurde mit 2 % resp. 5 % NH₃ Gehalt in Stickstoff oder mit reinem Methan betrieben. Experimente mit NH₃ als Tracergas sind bisher kaum durchgeführt worden. Einige Publikationen berichten über Untersuchungen, in deren Rahmen WindTrax mittels Versuchen zur Bestimmung der Wiederfindung von CH₄ erfolgreich validiert wurde (siehe Tabelle C.1 im Anhang). Methan bietet sich als Tracergas an, da es reaktionsträge ist und an Oberflächen nicht sorbiert. Die Bestimmung der Wiederfindungsrate von NH₃ stellt zusätzliche experimentelle Herausforderungen. NH₃ ist sehr polar sowie wasserlöslich (Sintermann, 2011) und kann daher an Oberflächen innerhalb und ausserhalb der künstlichen Quelle haften bleiben. Dies kann dazu führen, dass die dosierte NH₃ Menge erst mit Verzögerung freigesetzt und zwischen Quelle und Sensor an der Bodenoberfläche adsorbiert wird (Trockendeposition). Dieser Prozess wird zwangsläufig zu einer Wiederfindungsrate von weniger 100 % führen.

Die künstliche Quelle weist einen wichtigen Unterschied zu einer mit Gülle bedeckten Bodenoberfläche aus: die Emission erfolgt nicht homogen über die ganze Fläche, sondern an einzelnen kleinen Punkten. Messpunkte in der Mitte der Quelle werden davon stärker beeinflusst, als Messpunkte, die windabwärts der Quelle gelegen sind. Der Durchmesser der Quelle ist halb so gross wie die Grösse der Parzellen bei den Standardversuchen. Eine Messkonstellation mit Sensoren, die unmittelbar windabwärts von der Quelle liegen, entspricht den Standardversuchen somit am besten.

Tabelle 12: Standorte der Versuche zur Bestimmung der Wiederfindungsrate mittels künstlicher Quelle.

Standort	Datum	Oberfläche	Methode(n)†	Tracer	Tracergas-Messung	Messinstrumente
Posieux (FR)	25.6 29.6.2014	Kunstwiese (8.5 & 11 cm)	bLS	CH₄	Punktmessung	QCL, FGGA
Witzwil (BE)	22.9.2014	abgespritztes Gras (13 cm)	bLS	NH ₃	Linienintegrierte Messung	miniDOAS
Payerne (VD)	16.8 22.8.2013	Asphalt	bLS, IHF	$NH_{_3}$	Punkt- und linieninte- grierte Messung	LOCI, miniDOAS

 $\verb|†bLS|: Emissions bestimmung| mit| bLS| Ausbreitung smodellierung; IHF: Emissions bestimmung| mit| IHF| Methode|$

Versuch in Posieux (CH₂)

Am Standort Agroscope Posieux betreiben das INT und INH gemeinsam eine Flussmessstation, um den Biosphären-Atmosphären Austausch von Spurengasen über beweideten Systemen zu quantifizieren (Felber et al., 2015). Da diese Station über eine gute Infrastruktur mit zwei schnellen CH₄ Analysatoren verfügt, wurden dort Experimente zur Bestimmung der Wiederfindungsrate

mit reinem Methan durchgeführt (Abbildung 16). Abbildung 17 zeigt die beiden verwendeten Anordnungen der Quelle für die beiden Hauptwindrichtungen, Bise und Südwestwind. Die Konzentrationsmessungen erfolgten windabwärts der Quelle. Mit dieser Anordnung wurde ein Fetch zwischen 15 m und 20 m der Quelle erfasst. Dies entspricht einer ähnlichen Anordnung, wie sie bei den Versuchen zur Ausbringung von Gülle vorliegt.



Abbildung 16: Bestimmung der Wiederfindungsrate von CH_4 mittels künstlicher Quelle, Versuch vom 25.06. - 29.06.2014 in Posieux.

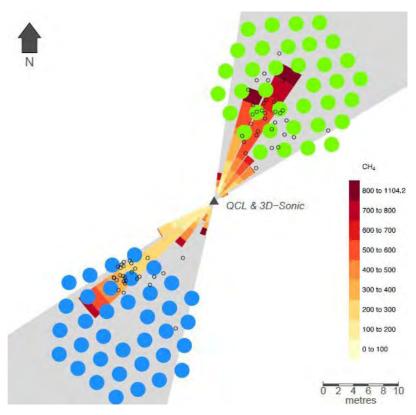


Abbildung 17: Konzentrationswindrosen in Bezug zu den Sensoren und zur geometrischen Anordnung der Quelle:grau hinterlegt = berücksichtigte Windrichtungs-Sektoren, blaue und grüne Symbole = einzelne Düsen, Konzentrationsrose zeigt CH₄-Konzentrationserhöhung durch die Emission, schwarze Kreise zeigen die Position des KM-Footprint-Maximums.

 ${\rm CH_4}$ wurde mit zwei schnellen Analysatoren gemessen (FGGA; Los Gatos Research Inc., US und Aerodyne QCL). Der Betrieb beider Instrumente erfolgte in einem klimatisierten Messanhänger. Luft wurde über einen 30 m langen PVC Schlauch mit einem Innendurchmesser von 8 mm und einer Flussrate von 45 nl/min angesaugt. Die Daten wurden auf 10 Hz synchronisiert in einem selbst geschriebenen LabView-Programm (LabView 2009, National Instruments, US) erfasst. Die Auswertung der Daten erfolgte off-line (für Details: vgl. Felber et al., 2015). Die Einlassöffnung des QCL war windabwärts auf 2 m Höhe in 20 m Distanz vom Quellenzentrum aufgestellt. Diejenige des FGGA war auf 0.95 m bei Bisenlage und auf 0.98 m beim Südwestwind etwa 13 m entfernt vom Quellenzentrum positioniert. Bei den beiden Messstellen befand sich je ein Ultraschallanemometer. Die Ansaugleitung der ${\rm CH_4}$ -Messgeräte wurde 20 cm unterhalb der Mitte der jeweiligen Anemometer platziert.

Die $\mathrm{CH_4}$ Hintergrundkonzentration wurde aus den gemessenen Zeitreihen bestimmt. Nördlich der Messstation befand sich ein grösserer Stallkomplex, welcher die Methankonzentration stark beeinflusste. Diese Störeinflüsse liessen sich anhand der Windrichtungen ausreichend herausfiltern. Aus diesen gefilterten Zeitreihen wurden die 2 % tiefsten Werte der 10 Hz Daten als Annäherung für die von der Quelle unbeeinflussten Werte angenommen und mit den mittleren Werten vor und nach dem Betrieb der Quelle verglichen. Unterschiedliche Werte vor und nach dem Betrieb der Quelle wurden linear interpoliert.

Die Berechnung der Wiederfindungsraten erfolgte basierend auf 10 min Intervallen. Diese Integrationszeit reicht aus, um den grössten Teil der Turbulenz zu erfassen. Abbildung 17 zeigt die Konzentrationswindrosen für die verwendeten Intervalle. Abbildung 18 zeigt die zeitlich geordneten Wiederfindungsraten der 10-Minuten Intervalle der vier Berechnungsarten. Bei dem vorliegenden Setup ist davon auszugehen, dass die Unsicherheiten in der Dispersionsmodellierung deutlich grösser sind als die Unsicherheiten (resp. Fluktuationen) der Quellstärke und der Konzentrationsbestimmung. Dispersionsmodelle sind eine Annäherung an die realen Verhältnisse und die Performance der Modelle hängen von der Stabilität ab (Carozzi et al., 2013; Flesch et al., 2004).

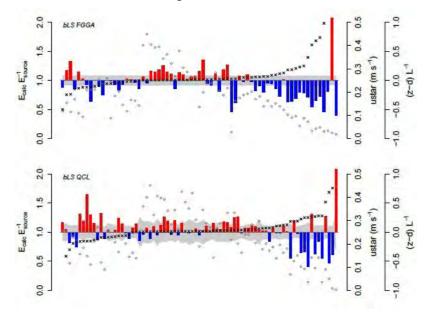


Abbildung 18: Wiederfindungsraten für Methan in Posieux an den beiden Messpunkten geordnet nach atm. Stabilität ausgedrückt als das Verhältnis der aus den Messungen abgeleiteten Emission E_{calc} und der nominellen Emission der künstlichen Quelle (E_{source}). Grafik oben: Resultate des FGGA Messgerätes, Messhöhe auf 0.95 m. Grafik unten: Resultate des QCL Messgerätes, Messhöhe auf 2 m. Die Balken symbolisieren die Wiederfindungsraten (rot entspricht einer positiven Abweichung, blau einer negativen Abweichung). Die grauen Kreuze entsprechen der Stabilität (z-d)/L und die grauen Punkte zeigen die Schubspannungsgeschwindigkeit u*. Der grau hinterlegte Bereich entspricht der statistischen Unsicherheit der experimentellen Bestimmung der Wiederfindungsrate.

Tabelle 13 zeigt eine Übersicht der mittleren Wiederfindungsraten gruppiert nach verschiedenen Kriterien. Die Werte liegen im Mittel bei nahezu 100 % und die Streuung der einzelnen Wiederfin-

dungsraten befindet sich in einem für diese Art von Messungen typischen Bereich und entspricht der zufälligen Natur von turbulenten Austauschprozessen.

Tabelle 13: Wiederfindungsraten für Methan in Posieux mit Standardfehler und Anzahl 10-Minuten Intervalle (kursiv gedruckt).

Messinstrument	alle Intervalle	Intervalle mit L > 0	Intervalle mit L < 0
QCL	104 ± 2.9 <i>79</i>	103 ± 3.5 <i>58</i>	105 ± 4.6 <i>21</i>
FGGA	96 ± 3.0 <i>69</i>	95 ± 4.0 <i>50</i>	96 ± 3.5 <i>19</i>

Versuch in Witzwil (NH₃)

Am 22.09.2014 wurde am Standort Witzwil ein Experiment zur Bestimmung der Wiederfindungsrate von NH_3 mittels künstlicher Quelle auf einer am 15.09.2014 abgespritzten Kunstwiese durchgeführt. Das Abspritzen mit Round-up entspricht einer routinemässigen Praxis, welche es erlaubt, ein Feld für eine Direktsaat vorzubereiten. Man kann davon ausgehen, dass ein abgestorbener Grasbestand weniger NH_3 über die Spaltöffnungen aufnehmen kann, und somit die NH_3 Rückhaltekapazität des Grasbestandes reduziert ist, weshalb Wiederfindungsraten von rund 100 % zu erwarten waren. Der Versuch fand am 22.09.2014 zwischen 11:00 und 14:00 lokale Zeit statt mit relativen Feuchten deutlich unter 80 %. Die Quelle wurde mit 5 nl/min mit 5 % NH_3 in N_2 betrieben.



Abbildung 19: Bestimmung der Wiederfindungsrate von NH, mit künstl. Quelle, Versuch vom 22.09.2014 Witzwil.

Die NH₃ Konzentrationsbestimmung wurde mit 4 MiniDOAS Systemen durchgeführt, eines wurde windaufwärts platziert, drei auf den Höhen 0.49, 1.24, 3.12 m windabwärts (Abbildung 19). Abbildung 20 zeigt den geometrischen Aufbau mit den Konzentrationswindfahnen. Bei einer einigermassen konstanten Bisenlage konnte über 3 Stunden gemessen werden.

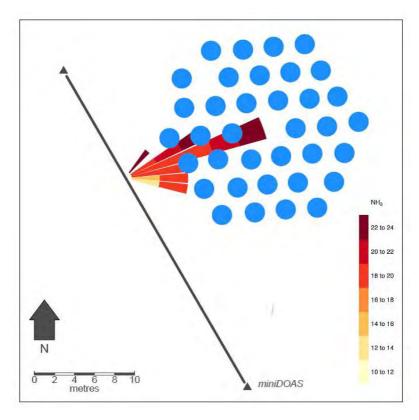


Abbildung 20: Versuchsanordnung zur Bestimmung der Wiederfindungsrate von NH₃ mittels künstlicher Quelle über abgespritzter Kunstwiese, 22.09.2014, ohne Anordnung der Messung der Hintergrundkonzentration.

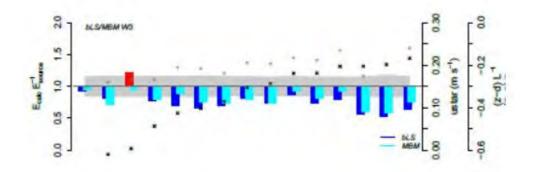


Abbildung 21: Vergleich der NH_3 Wiederfindungsraten berechnet mit einem Massenbilanzansatz (MBM) und mit der Standard Ausbreitungsmodellierung (bLS; Messhöhe: 1.2 m) ausgedrückt als das Verhältnis der aus den Messungen abgeleiteten Emission E_{calc} und der nominellen Emission der künstlichen Quelle (E_{source}). Die 10 Minutenwerte sind nach atm. Stabilität gegliedert. Die Balken symbolisieren die Wiederfindungsraten (rot entspricht einer positiven Abweichung, blau einer negativen Abweichung). Die grauen Kreuze entsprechen der Stabilität (z-d)/L und die grauen Punkte zeigen die Schubspannungsgeschwindigkeit u*. Der grau hinterlegte Bereich entspricht der statistischen Unsicherheit der experimentellen Bestimmung der Wiederfindungsrate.

Abbildung 21 zeigt die nach Stabilität geordneten Wiederfindungsraten, die sowohl für die Massenbilanzmethode als auch für die bLS Ausbreitungsmodellierung deutlich weniger als 100 % betragen. Die Emissionen gemäss bLS Modellierung wurden mit den Konzentrationen auf der Höhe von 1.2 m berechnet. Diese um rund 25 % zu niedrigen Wiederfindungsraten sind unter normalen Umständen nicht zu erklären. Sie könnten jedoch auf die Deposition von Ammoniak zurückzuführen sein. Bei einer mittleren Windgeschwindigkeit von 2 m s⁻¹ benötigen die emittierten NH₃ Moleküle eine Zeit von durchschnittlich 7.5 s, um zum Messstrahl zu gelangen. Bei einer angenommenen Depositionsgeschwindigkeit von 10 mm s⁻¹ wird in dieser Zeit das in einer Luftschichtschicht von 7.5 cm über der Bodenoberfläche enthaltene NH₃ abgelagert. Da diese Schicht die höchste

NH₃ Fracht enthält, ist ein solcher Minderbefund möglich. Zufälligerweise fand das Freisetzungsexperiment genau während der Passage einer durch den Ausbruch des isländischen Vulkans Bárdarbunga verursachten SO₂ Wolke statt (Abbildung 22). Dies führt indirekt zu einer Ansäuerung der Oberflächen (Boden, Vegetation), was die Deposition von Ammoniak tendenziell erhöhen könnte.

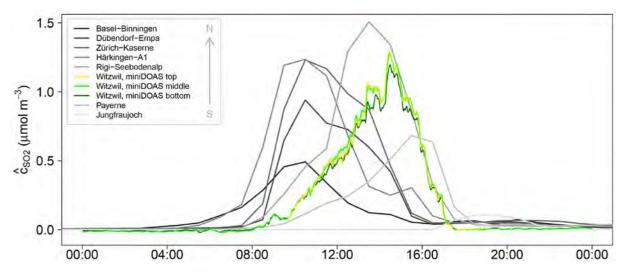


Abbildung 22: SO₂-Konzentrationen gemessen an den NABEL Stationen im Vergleich zu den SO₂ Messwerten des miniDOAS am Standort Witzwil (Quelle: Sintermann et al., 2016).

Versuch in Payerne (NH₃)

Versuchsanordnung

Ende August 2013 wurde auf dem Gelände des Militärflugplatzes in Payerne (46°50'24.56"N/6°54'54.00"E) ein Experiment zur Bestimmung der Wiederfindungsrate für NH₃ mit der künstlichen Quelle durchgeführt. Abbildung 23 und Abbildung 24 zeigen die Versuchsanordnung auf einem Zubringerasphaltstreifen zur Landebahn. Leider wurde die Benutzung der Landebahn, welche sich zu diesem Zeitpunkt im Umbau befand, nicht gestattet, da Payerne den Betrieb als Notlandeplatz für den Flughafen Genf gewährleisten musste.



Abbildung 23: Bestimmung der Wiederfindungsrate von NH_3 mittels künstlicher Quelle in Payerne, Versuch vom 20.08.2013.

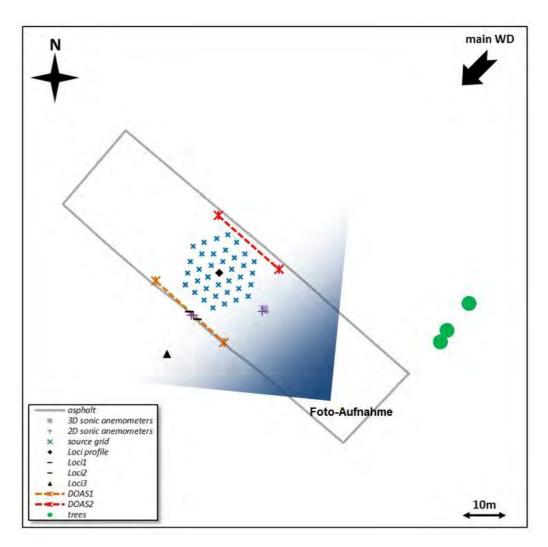


Abbildung 24: Versuchsanordnung zur Bestimmung der Wiederfindungsrate von NH_3 mittels künstlicher Quelle über Asphaltfläche, 20.08.2013; ausserhalb des Asphalts befand sich eine Mähwiese mit ca. 15 cm Bestandeshöhe.

Während einer Bisenlage (Windrichtung Nord-Ost) wurden an die Quelle während verschiedener Messperioden Gasflaschen mit unterschiedlichen NH_3 Konzentrationen (2.005 sowie 5.04 % NH_3 in N_2 Carbagas, Reinheit 5.0) angeschlossen. Der Vögtlin Durchflussregler wurde auf 10 nl/min eingestellt. Somit emittierte die Quelle kontinuierlich 2.5 bzw. 6.4 mg NH_3 s⁻¹. Tabelle 14 fasst die durchgeführten Versuche zusammen.

Tabelle 14: Übersicht zu den durchgeführten Experimenten zur Bestimmung der Wiederfindungsrate von NH_3 mittels künstlicher Quelle in Payerne. NH_3 -MV = NH_3 Mischverhältnis in % (NH_3/N_2) der Gasflasche. Instrumente: eingesetzte NH_3 Messinstrumente. U = mittlere Windgeschwindigkeit in m/s während des Versuches. (z-d)/L = mittlere Stabilität während des Versuches. DOAS: DOAS1 + DOAS2, L1 - L3: LOCI1 - LOCI3 windabwärts, L_{Profil} : Zentralmast.

ID	Zeit (MEZ)	NH ₃ -MV (%)	Oberfläche	Instrumente	U (m/s)	(z-d)/L (-)
Exp 1	20.08. 12:49 - 15:08	5.04	Asphalt	DOAS, L1, L2, L _{Profil} , L3	3.7	-0.04
Exp 2a	20.08. 18:36 - 19:46	5.04	Asphalt	DOAS, L1, L2, L _{Profil} , L3	3.1	0.01
Exp 2b	20.08. 20:01 - 21:00	2.005	Asphalt	DOAS	1.4	0.12
Exp 3	21.08. 05:16 - 07:41	2.005	Asphalt	DOAS, L1, L2, L _{Profil}	0.3	-2.44
Exp 4	21.08. 07:57 - 11:30	2.005	Asphalt	DOAS, L1, L2, L _{Profil}	1.8	-0.29
Exp 5	21.08. 13:56 - 16:01	2.005	Gras	DOAS, L1, L2	3.1	-0.02

Wind- und Turbulenzverteilung wurde im Vertikalprofil mit jeweils drei 3D und 2D Ultraschallanemometern gemessen, wobei alle Anemometer vor dem Versuch parallel betrieben wurden, um die Vergleichbarkeit sicherzustellen. Die jeweiligen NH₃ Freisetzungen dauerten über ein bis zwei Stunden. Der Start der Konzentrationsmessungen erfolgte erst, nachdem sich der Quellen-Innendruck stabilisiert hatte und frühestens nach 5 Minuten. Über der Asphalt Fläche fanden 5 solcher Experimente zu verschiedenen Tageszeiten statt. Am 21.08. mittags wurden die Quelle und die Sonic-Anemometer auf die windaufwärtig gelegene Wiese verschoben, das DOAS1 in Luv aufgestellt, LOCI 1 & 2 in Lee Seite an Seite positioniert, um ein analoges Experiment über Gras vorzunehmen. Alle Positionen wurden mit GPS aufgenommen und die Quelle zusätzlich über dem Asphalt geometrisch vermessen.

Zwei miniDOAS Systeme kamen zum Einsatz, um die linienintegrierte NH₃ Konzentration in Luv sowie Lee zu bestimmen. Die beiden miniDOAS Systeme wurden unmittelbar vor den Experimenten parallel verglichen. Zusätzlich wurden die üblichen LOCI NH₃ Messsysteme verwendet, um einerseits im Quellen-Zentrum ein Vertikalprofil der Konzentration aufzunehmen, andererseits um in Lee zu messen. Kenngrössen der Messsysteme sind Tabelle 15 zu entnehmen.

Tabelle 15: Bestimmung der Wiederfindungsrate von NH_3 mittels künstlicher Quelle in Payerne: Messsysteme und ihre Verwendung.

Messsystem	Messhöhe (m ü. Boden)	Messperiode (min)	Funktion
3D Sonic1	2.39	10	Windprofil, Turbulenz
3D Sonic2	1.00	10	Windprofil, Turbulenz
3D Sonic3	1.44	10	Windprofil, Turbulenz
2D Sonic1	0.73	10	Windprofil
2D Sonic2	0.28	10	Windprofil
2D Sonic WS	1.98	10	Windprofil
miniDOAS1 (1. Generation)	1.05 - 1.30	10	Lee-Konzentration
miniDOAS2 (2. Generation)	1.03 - 1.15	10	Luv-Konzentration
LOCI1	0.86 & 1.15	30 - 60	Lee-Konzentration
LOCI2	0.89 & 1.18	30 - 60	Lee-Konzentration
LOCI3	0.90 & 2.15	30 - 60	Lee(&Luv)-Konzentration
LOCI4	0.28 & 0.65	30 - 60	Zentralprofil-Konzentration
LOCI6	1.78 & 2.22	60	Zentralprofil-Konzentration
LOCI7	0.91 & 1.23	30 - 60	Zentralprofil-Konzentration

Zur Ausbreitungsmodellierung mittels WindTrax wurden die 10-minütigen Turbulenzdaten von 1 m Messhöhe vorerst gleich qualitäts-selektiert wie in den routinemässigen NH3-Emissionsmessungen (siehe Anhang B.2) (beim Asphalt: d = 0 m, oberes und unteres z_0 -Konsistenz-Limit = 0.001 & 0.04 m). Die Auswertung der Winddaten und der Wiederfindungsverhältnissen ergab, dass für die Experimente auf der Asphaltfläche eine Wind- und Turbulenzbeschreibung mit Standard-MOST problematisch war. Das lag am Auftreten vertikaler Divergenz von Impuls- und fühlbarem Wärmefluss aufgrund der räumlich engen Begrenzung der Asphaltfläche mit ihren von der Umgebung (Gras) abweichenden Rauhigkeits- und Thermaleigenschaften. Als Konsequenz ergab sich im Querschnitt über der Asphaltfläche ein Übergangswindfeld mit Mischturbulenz. Konkret äusserte sich dies v.a. in bodennah erhöhten, horizontalen Windgeschwindigkeiten, die von dem mit auf 1 m Höhe erhobenen MOST Parametern definierten Profil abwichen (Abbildung 25). Bei der Ausbreitungsrechnung wird somit die bodennahe Windgeschwindigkeit und damit verbunden die bodennahe Advektion des emittierten Gases unterschätzt. Abbildung 25 verdeutlicht, dass dies nur über dem Asphalt geschah und der Effekt mit zunehmenden Windgeschwindigkeiten stärker ausgeprägt war. Dieses Verhalten ist in der Hauptsache eine Experimentbedingte Einschränkung. Um diese abzumindern, wurde z_0 neu bestimmt (Abbildung 26), indem die Unterschiede zwischen dem gefittetem und optimiertem MOST Profil unterhalb 1 m mittels der Methode der kleinsten Quadrate minimiert wurden (Abbildung 25). Das ergibt für WindTrax eine bessere Übereinstimmung des Horizontalwindes in diesem Bereich (in welchem ein Grossteil der Konzentrationsmessungen stattfand), allerdings eine Überschätzung oberhalb.

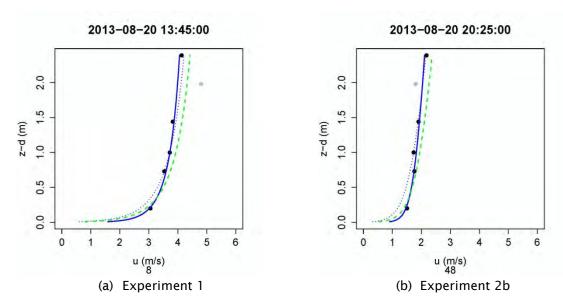


Abbildung 25: Typische 10-minütige \overline{u} Vertikalprofile über dem Asphalt; schwarze Punkte = Messung, blau durchgezogen = Fit über alle Messungen, blau gepunktet/rot gestrichelt = MOST (1 m) (Flesch et al., 2004), grün gestrichelt = MOST optimiert für z - d < 1 m.

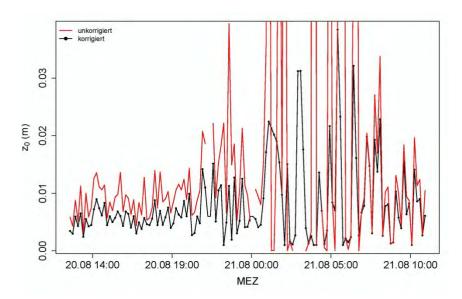


Abbildung 26: Neu-Evaluierung von z_0 über Asphalt entsprechend optimiertem Fit des MOST \overline{u} Vertikalprofiles zwischen z_0 und 1 m.

Mit den für Asphalt neu ermittelten Wind- und Turbulenzinformationen wurde dann mit WindTrax die C/E Beziehung berechnet. Die schlussendlich ermittelten 10-minütigen C/E-Verhältnisse wurden auf die jeweiligen Messintervalle gemittelt und mit der bekannten Quellstärke die zu erwartende $\mathrm{NH_3}$ -Konzentration C_{bLS} berechnet. Durch Vergleich mit den gemessenen Konzentrationen C ergibt sich die $\mathrm{NH_3}$ -Wiederfindung als Verhältnis C/C_{bLS} , oder äquivalent Q_{bLS}/Q .

Wiederfindungsraten

Die Konzentrationsmessungen des Zentralmastes ermöglichen formal eine Emissionsberechnung mit der IHF Methode. Ebenfalls können für die individuellen Höhen mit dem bLS-Ansatz individuelle Wiederfindungsraten bestimmt werden. Um dem Rauhigkeitsunterschied Rechnung zu tragen, wurde bei der IHF Methode ein geteilter exponentieller Fit verwendet, d.h. der untere Teil des Konzentrationsprofils wurde an die vier untersten Höhen, der obere Teil an die vier obersten Höhen gefittet. Abbildung 27 zeigt den advektiven Teil $(\bar{u}\bar{c})$ des horizontalen Flusses.

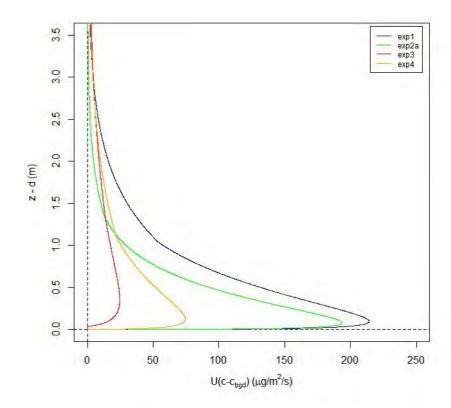


Abbildung 27: Vertikalprofile der horizontalen Advektion $\bar{u}\bar{c}$ während des Experimentes zur Bestimmung der Wiederfindungsrate von NH, mittels künstlicher Quelle in Payerne.

Tabelle 16, Tabelle 17 und Tabelle 18 fassen die berechneten Wiederfindungsraten zusammen. Am Zentralmast zeigt sich eine systematische Höhenabhängigkeit mit den kleinsten Wiederfindungsraten auf der untersten Höhe und einer tendenziellen Zunahme der Wiederfindungsrate mit der Messhöhe. Diese Höhenabhängigkeit würde durch die Korrektur des Gill Fehlers abgeschwächt oder aufgehoben (vgl. Kapitel 3.1).

IHF Wiederfindungsraten konnten für die Experimente 1, 2a, 3 und 4 bestimmt werden. Diese betragen 82 %, 56 %, 52 % und 90 %. Der Abfall der Wiederfindungsrate am Zentralmast von Versuch 1 zu Versuch 2a lässt sich nicht erklären. Während des Versuch 3 herrschten sehr tiefe Windgeschwindigkeiten ($u = 0.3 \text{ms}^{-1}$), womit keine gut ausgebildete Turbulenz vorhanden war und die verwendeten Ansätze versagen.

Tabelle 16: Berechnete bLS Wiederfindungsraten in % der einzelnen Höhen des Zentralprofils, sowie die Wiederfindungsrate der IHF-Methode. Exp: Experiment ID. Interval: LOCI Messintervall (die Dauer eines Einzelintervalls beträgt 60 min). IHF: Wiederfindung mit der IHF-Methode in %

Exp.	Intervall	0.28 m	0.65 m	0.91 m	1.23 m	1.78 m	2.22 m	IHF
1	1	63	77	84	124	128	316*	82
ı	2	62	63	161	101	120	310	02
2a#	1	45	51	59	n.b.	38**	270*	56
3	1	54	88	89	114	79	84	52
3	2	58	63	59	74	79	04	32
	1	66	81	73	91	132	105	
4	2	59	71	76	112	132	105	90
	3	60	86	115	107	101	323*	

^{*} Profilform der Konzentration zeigt, dass die Höhe im BGD Bereich liegt. ** Unterhalb des Detektionslimits. n.b. nicht bestimmt

Zur Berechnung der mittleren bLS Wiederfindungsraten wurden die Ergebnisse der drei Höhen am Zentralmast 0.63 m, 0.91 m und 1.23 m verwendet, welche gemäss Kapitel 2.6.3 im Bereich des optimalen Verhältnisses von Fetchlänge zu Messhöhe liegen. Die Messanordnung mit Zentralmast mit den 3 Messhöhen entspricht derjenigen der Feldversuche. Für Experiment 1 wurde beim bLS-

^{*} Die Resultate dieses Experimentes sind im Vergleich zu den andern Experimenten weniger vertrauenswürdig.

Mittel der Wert (161 %) auf der Höhe 0.91 m als Ausreisser betrachtet und nicht berücksichtigt. Die mittlere Wiederfindungsrate für die Experimente 1, 2a, 3 und 4 betragen somit 89 %, 55 %, 81 % und 90 %. Tabelle 17 zeigt einen Vergleich der Ergebnisse der vier Experimente nach IHF und bLS Ansatz. Für die IHF-Methode wurde ein Fehler von10 % angenommen. Der Standardfehler des bLS Ansatzes berechnet sich aus der Streuung aller Einzelwerte der drei Höhen 0.63 m, 0.91 m und 1.23 m dividiert durch die Wurzel der Anzahl Werte. Mit Ausnahme von Versuch 3 stimmen die Resultate innerhalb des Standardfehlers gut überein. Bei Versuch 3 ist wie oben erwähnt zu berücksichtigen, dass die verwendeten Modellansätze unter den herrschenden Turbulenzbedingungen nicht anwendbar sind.

Tabelle 17: Berechnete mittlere Wiederfindungsraten nach bLS und IHF Ansatz in %, die Standardfehler in % sowie das Verhältnis der Wiederfindungsraten der beiden Ansätze in %. Exp: Experiment ID. Berechnung der mittleren bLS Wiederfindungsraten basierend auf den Höhen 0.63 m, 0.91 m und 1.23 m des Zentralmasts (vgl. Tabelle 16, Kapitel 2.6.3). Exp. 1: Wert 161 % auf der Höhe 0.91 m als Ausreisser nicht berücksichtigt.

Exp.	bLS Mittelwert	bLS Standardfehler	IHF Mittelwert	IHF Standardfehler	Verhältnis bLS:IHF
1	89	11	82	8	1.08
2a	55	n.b.*	56	6	0.98
3	81	8	52	5	1.56
4	90	6	90	9	1.00

^{*} n.b. nicht bestimmt

Die tieferen Wiederfindungsraten beim Zentralmast bei den unteren Höhen sind auf den ersten Blick überraschend und stehen im deutlichen Gegensatz zu den Wiederfindungsraten, welche mit den windabwärts platzierten Sensoren gefunden wurden. Diese Diskrepanz könnte durch den Umstand bedingt sein, dass die verwendete künstliche Quelle aus einzelnen Punktquellen besteht. Dabei muss auch beachtet werden, dass bei der Düsenöffnung die Luft mit relativ grosser Geschwindigkeit austritt, und die Annahme einer diffusen Quelle, wie sie das Modell bedingt, für eine solch kurze Distanz (Quelle/Sensor) nicht vertretbar ist.

Tabelle 18: Berechnete bLS Wiederfindungsraten in % der einzelnen Messsysteme windabwärts. Exp: Experiment ID. Interval: LOCI Messintervall (Dauer eines Einzelintervalls beträgt 60 min). DOAS: Wiederfindung mit der miniDOAS Messung; in Klammern ist zusätzlich der Bereich der DOAS Einzelintervalle (10 min Basis) angegeben.

Exp.	Interval	DOAS	LOCI1 U	LOCI1 O	LOCI2 U	LOCI2 O	LOCI3 U	LOCI3 O
1	1	87 (79-98)	79	80	72	77	92	123
	2	89 (82-97)	73	75	n.b.	n.b.	83	113
2a	1	90 (84-95)	79	83	78	80	79	131
2b	1	110 (103-118)	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
3	1	87 (36-127)	72	133	152	63	n.b.	n.b.
	2	91 (60-123)	65	72	60	61	II.D.	II.D.
4	1	100 (86-126)	106	88	81	n.b.		
	2	95 (80-98)	84	85	81	97	n.b.	n.b.
	3	94 (90-99)	68	81	77	83		
5	1	77 (75-80)	94	94	80	85	n h	n h
	2	70 (65-77)	89	86	113	86	n.b.	n.b.

Allgemein erfassen die Sensoren des Zentralmastes deutlich weniger Düsen als die windabwärts positionierten Sensoren. Die Variabilität der Flüsse der einzelnen Düsen liegt bei \pm 30 %. Eine mögliche Erklärung für den auftretenden Minderbefundes am Zentralmast ist, dass die wenigen Düsen, welche die Konzentration auf den einzelnen Höhen bestimmen, weniger Gas emittieren, als der durchschnittlichen Emission entspricht.

Übers Ganze gesehen wurden Wiederfindungsraten bestimmt, die mehrheitlich unter 100 % liegen. Entgegen unserer Erwartung ist es wahrscheinlich, dass NH₃ auf der Asphaltfläche adsorbiert. Diese Annahme wird gestützt durch Depositionsgeschwindigkeiten, die in urbanen Gebieten (d.h. Gebiete mit mehrheitlich befestigten Flächen, wenig Vegetation) gemäss Schrader und Brummer (2014) in der gleichen Grössenordnung liegen wie diejenigen von landwirtschaftlich genutzten Gebieten. Die Depositionsgeschwindigkeit ist definiert, als der Fluss dividiert durch die

Konzentration auf einer Referenzhöhe, typischerweise 1 m über Boden. Konzeptionell wird sie als der Kehrwert von drei Transportwiderständen in Serie betrachtet: aerodynamischer Transportwiderstand, Widerstand der laminaren Grenzschicht und Widerstand der Oberfläche (vgl. auch Builtjes et al., 2011). Letzterer steht für die Sorptionsfähigkeit einer Oberfläche.

Daraus muss geschlossen werden, dass Ammoniak auch von befestigten Flächen sorbiert wird. Die Versuchsanlage auf einer Asphaltfläche dürfte also bei einem Freisetzungsexperiment wenigstens temporär zu einem Minderbefund der Wiederfindung von NH₃ führen. So zeigte der zeitliche Verlauf der Konzentration, welche windabwärts mittels miniDOAS gemessen wurde, nach dem Ausschalten der NH₃ Freisetzung während mehrerer Stunden eine Konzentration, die deutlich über der Hintergrundkonzentration lag, gemessen auf der windaufwärtigen Seite mittels miniDOAS. Dieser Effekt kann gemäss einer Schätzung rund 10 % des während des Betriebs der Quelle emittierten Ammoniaks betragen, wurde jedoch nicht weiter systematisch untersucht.

Bei den linienintegrierten Sensoren zeigt sich zusätzlich eine Abhängigkeit der Wiederfindungsrate von der Windgeschwindigkeit (Abbildung 28). Höhere Windgeschwindigkeiten führen zu grösseren Unterschätzungen, da sie auch eine grössere absolute Beschleunigung des bodennahen Windes durch die Rauhigkeitsstufe aufweisen. Die windabwärts gelegenen Sensoren weisen einen vergleichbaren Fetch auf, wie die Messtürme im Zentrum der Felder bei den Experimenten mit Gülleausbringung (ca. 20 m).

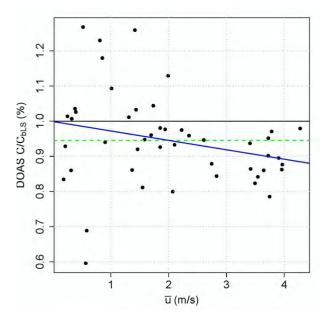


Abbildung 28: Einzelintervalle der Wiederfindungsrate mit den miniDOAS C/C_{bLS} in Abhängigkeit der Windgeschwindigkeit \bar{u} . Die grüne Linie gibt den Mittelwert aller Einzelintervalle an.

Dies lässt sich mit der Mischturbulenz über dem Asphalt und den resultierenden nicht ganz korrekten vertikalen u Profilen erklären (Abbildung 25). Je grösser u, desto stärker unterschätzt das zur Ausbreitungsberechnung verwendete bodennahe (respektive emissionsnahe) u, d.h. desto höher wird das erwartete Ergebnis ab einer bestimmten Messhöhe ausfallen im Vergleich zur Messung. Zusätzlich hat die atmosphärische Stabilität einen Einfluss auf Genauigkeiten der Ausbreitungsberechnung (Flesch et al., 2004), und es ist nicht auszuschliessen, dass auch die Asphaltfläche eine NH_3 -Senke darstellt.

Limitierende Aspekte der IHF Methode

Die IHF Methode wird häufig als eine modellunabhängige Massenbilanzmethode betrachtet und somit als Referenzmethode verwendet. Es gilt allerdings zu beachten, dass bei der Anwendung der IHF Methode verschiedene Annahmen zu treffen sind, welche Einfluss auf die Qualität der Resultate haben. Unter anderem müssen die Höhenprofile angenähert und extrapoliert sowie der advektive Anteil des Flusses um den turbulenten Anteil nach unten korrigiert werden.

Des Weiteren ist die Bestimmung des effektiven Fetchs, welcher zur Emission beiträgt, notwendig. Diese Grössen sind experimentell schwierig zu erfassen und müssen somit abgeschätzt oder mit

einem Modellansatz berechnet bzw. überprüft werden. Im Falle des vorliegenden Quellexperimentes kommt dazu, dass die 36 Düsen nicht genau einer homogenen (kreisförmigen) Quelle entsprechen. Abbildung 29 zeigt das berechnete, vertikale Profil des horizontalen Flusses anhand eines Beispiel-Intervalls des Experimentes zur Bestimmung der Wiederfindungsrate von NH₃ mittels künstlicher Quelle in Payerne. Die Berechnungen wurden mit einem bLS Modell durchgeführt, welches auf dem Modell von Flesch et al. (2004) beruht

(siehe http://www.agrammon.ch/documents-to-download/blsmodelr/; 09.06.2015).

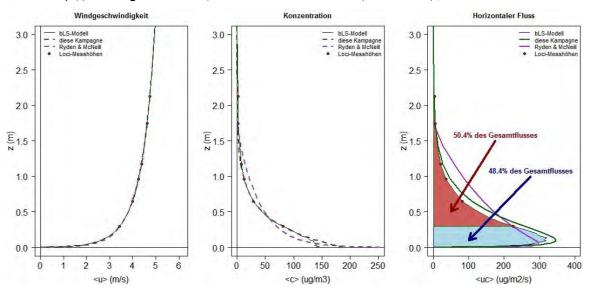


Abbildung 29: Modellberechnung des vertikalen Profils der Windgeschwindigkeit, der NH₃ Konzentration und des resultierenden horizontalen Flusses am Zentralmast.

Die Integration des horizontalen Flusses zeigt einen berechneten Fluss von rund 165.0 μ g m⁻² s⁻¹ bei einem erwarteten Fluss⁵ von rund 202.8 μ g m⁻² s⁻¹. Um die Massenbilanz zu erfüllen, muss mit einer Länge von 8.2 m dividiert werden, eine um ca. 20 % reduzierte Länge der angestrebten geometrischen Länge von 10 m. Die Quelle kann somit nicht als homogen emittierende Kreisfläche von 10 m betrachtet werden. Diese Inhomogenität wird mit zunehmender Distanz zur Quelle kleiner

Der turbulente Anteil des Gesamtflusses beträgt in dem gerechneten Beispiel rund 25 % des Advektionsflusses, welcher aus dem Produkt der gemittelten Grössen < u> und < c> resultiert. Dieser Anteil hängt von den gewählten bLS-internen Parametrisierungen ab und diese können somit als eine Modell-Kalibration betrachtet werden.

Aus der Grafik ersichtlich ist ausserdem die deutlich bessere Performance des verwendeten exponentiellen Fittes gegenüber dem üblichen Fit nach Ryden und McNeill (1984), auch wenn sich letztendlich die berechneten Flüsse aufgrund der beiden Methoden nicht substantiell unterscheiden (exponentieller Fit: 206.6 µg m² s¹, Fit gemäss Ryden und McNeill: 220.0 µg m² s¹, beide mit 7 % Korrektur des turbulenten Flussanteils). Rund 48 % des horizontalen Flusses fliesst unterhalb der Sensoren durch und nur 1 % oberhalb (Abbildung 29). Bei einer IHF-Messung wäre es somit wertvoller, zusätzliche Konzentrations- und Windmessungen auf niedrigen Messhöhen zu haben, als bis zur Plume-Obergrenze zu messen.

3.3 NH, Emissionsbestimmung

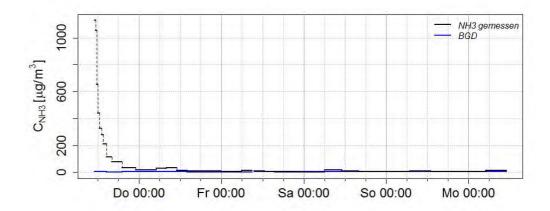
3.3.1 Zeitlicher Verlauf der gemessenen NH₃-Konzentrationen

Die aus den Messungen abgeleiteten Emissionsflüsse skalieren nicht nur mit den gemessenen Konzentrationen, sondern auch mit den Transfergeschwindigkeiten auf der Messhöhe, welche die

 $^{^5}$ Bei der Modellberechnung wurde die künstliche Quelle durch 36 Kreise mit Radius 0.4 m angenähert. Bei einer gesamten Emissionsstärke von 6.37 mg s-1 entspricht dies rund 352.0 µg m-2 s-1 pro einzelne Kreisfläche, und (unter der Annahme, dass die Quelle als Kreis von Radius 10 m betrachtet werden darf) rund 20.3 µg m-2 s-1 hochgerechnet auf einen Kreis mit Radius 10 m.

atmosphärische Transportkapazität abbildet. Die Transfergeschwindigkeit ist der reziproke Wert der Summe des aerodynamischen Widerstands und des Oberflächenwiderstandes (Flechard et al., 2010). Die beiden Grössen sind durch die Stärke des turbulenten Austausches gegeben. Dieser wiederum weist in kontinentalen meteorologischen Bedingungen einen starken Tagesgang auf. Die Transfergeschwindigkeit ist tagsüber grösser als in der Nacht und nimmt generell mit der Windgeschwindigkeit zu.

Abbildung 30 zeigt am Beispiel des Versuches TS2 (Wengi Juli 2013) einen typischen NH₃-Konzentrationsverlauf, wie er nach Ausbringung von Gülle in der Mitte der Versuchsparzelle auf 1 m Höhe über mehrere Tage gemessen wurde. Die gemessenen Konzentrationsverläufe weisen unmittelbar nach der Ausbringung jeweils einen sehr schnellen Abfall auf und nähern sich schon in den ersten Nachtstunden der Hintergrundkonzentration. An den weiteren Tagen folgen die Konzentrationen einem klar ersichtlichen Tagesgangprofil.



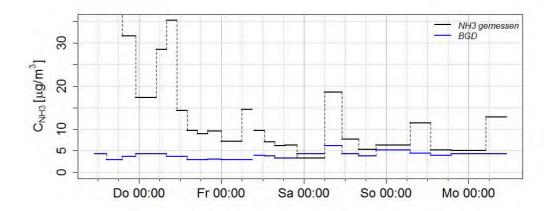


Abbildung 30: Typischer Verlauf der NH_3 Konzentration in der Mitte der Versuchsparzelle auf 1 m über Boden am Beispiel des Versuches TS2 (Wengi, Juli 2013). Die untere Abbildung zeigt den Ausschnitt zwischen 0 – 30 μ g/m³. BGD: Hintergrundkonzentration (C_{bad}).

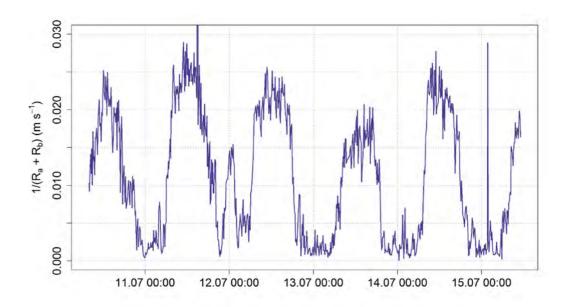


Abbildung 31: Typischer Tagesgang der Transfer-Geschwindigkeit $1/(R_a + R_b)$ am Beispiel des Versuches TS2 (Wengi, Juli 2013).

Die Transfergeschwindigkeit für den gleichen Zeitraum ist in Abbildung 31 dargestellt. Die Emissionsflüsse verlaufen proportional zum Produkt der gemessenen Konzentration abzüglich der Hintergrundkonzentration C_{bgd} und der Transfergeschwindigkeit. Daraus lässt sich schliessen, dass die Flüsse in den Nachtstunden generell sehr klein sind. Neben dem atmosphärischen Transport beeinflussen auch die Temperatur an der emittierenden Oberfläche und die Werte von TAN und pH in der Gülle die Emissionsprozesse von NH $_3$. Ein vereinfachtes Volatilisierungsmodell nach Sommer et al. (2003) ergibt bei Verwendung von durchschnittlichen Gülleeigenschaften und den in den vorliegenden Versuchen gemessenen atmosphärischen Parametern einen typischen Tagesgang potentieller NH $_3$ -Emissionen, der ein hohes Emissionspotential zwischen ca. 08h00 und 19h00 Uhr aufweist (Abbildung 32).

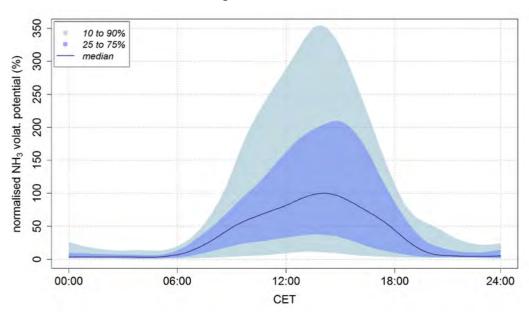


Abbildung 32: Modellierter Tagesgang des durchschnittlichen Emissionspotentials basierend auf den während allen Feldexperimenten gemessenen atmosphärischen Parametern. Volatilisierungsmodell nach Sommer et al. (2003) und Sintermann et al. (2012). Gülleparameter: pH = 7.2, TAN = 1.2 g/L.

3.3.2 Einfluss der Tageszeit auf die NH,-Emissionen

Zwei Versuche, Z1 und Z2, untersuchten die Abhängigkeit der Emission von verschiedenen Ausbringzeiten. Dabei wurde Gülle auf je eine Parzelle um ca. 6h00 (Morgen), 12h00 (Mittag) sowie 18h00 (Abend) ausgebracht. Bei der Ausbringung am Morgen ging um 30 %, respektive 40 %, am Abend um 4 %, respektive 26 %, weniger Ammoniak verloren im Vergleich zur Mittagszeit. Sommer und Olesen (2000) beschreiben ein ähnliches Verhalten der Emissionen im Verlaufe eines Tages anhand eines NH₃-Emissionsmodells mit einem semi-empirischen Modellansatz. Ihre Modell-Rechnungen zeigten eine rund doppelt so hohe Emission bei Ausbringung von Gülle um die Mittagszeit im Vergleich zur Ausbringung in den Morgen- und Abendstunden. Katz (1996) fand bei Ausbringung von Rindviehvollgülle um 6h00, 12h00 sowie 18h00 Emissionen von 74 % TAN, 60 % TAN bzw. 35 % TAN.

Im Versuch Z2 wurde Gülle mit Schleppschlauch ausgebracht, die einen TS-Gehalt von ca. 5 % aufwies. Dabei resultierten deutlich niedrigere Emissionen bei Ausbringung in den Morgenstunden und nur eine geringe Reduktion bei der Ausbringung am Abend im Vergleich zum Mittag.

Diese Versuche heben den wichtigen Einfluss der Transportkapazität der Atmosphäre auf die Menge der kumulierten Emissionen hervor. Vereinfacht gesagt konkurrenzieren sich zwei Prozesse: die Volatilisierung von NH₃ und die dauernde Bindung von NH₄⁺ durch das System Boden/Pflanze. Die Bindung des ausgebrachten Ammoniums durch das System Boden/Pflanze erfolgt effizient innerhalb von wenigen Stunden. Die Menge des emittierten NH₃ ist proportional zur vorliegenden Turbulenz. Bei Ausbringung mittels Schleppschlauch ist zu vermuten, dass in den Morgenstunden die noch feuchten Vegetationsoberflächen zwischen den Güllestreifen emittiertes NH₃ aufnehmen können. Da die Gülle in den Pflanzenbestand abgelegt wird, verringert sich die Windgeschwindigkeit an der Grenzschicht zwischen Gülle und Atmosphäre. Durch Evapotranspiration kühlt sich die Umgebung im Bereich der emittierenden Oberfläche ab. Diese Effekte liefern eine plausible Erklärung für den weniger ausgeprägten Unterschied zwischen der Emission in den Mittags- und den Abendstunden im Vergleich zum Verfahren Prallteller.

3.3.3 Zeitlicher Verlauf der NH3-Emissionen

Abbildung 33 zeigt die gemessene kumulierte Emission innerhalb von 24 h nach der Ausbringung im Verhältnis zum Verlust nach 96 h. Im Mittel betrug dieser Anteil unter Berücksichtigung sämtlicher Ausbringtechniken 82 % und für den Prallteller/RVG: 86 %. Dieser Emissionsverlauf stimmt mit den Angaben aus der Literatur überein (Huijsmans et al., 2001; Misselbrook et al., 2005; Ni et al., 2013; Sommer et al., 1995; Spirig et al., 2010). Obschon in den meisten Fällen der grösste Teil der Verluste innerhalb der ersten 24 h nach der Ausbringung auftreten, zeigen die vorliegenden Versuche, dass dieser Anteil innerhalb eines gewissen Bereichs variiert.

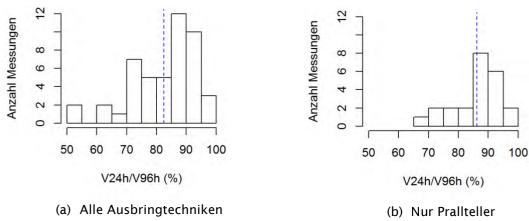


Abbildung 33: Verhältnis der kumulierten Emission nach 24h (V24h) zu den extrapolierten 96h Emissionen (V96h). Eingeschlossen sind alle Messungen inklusive Daten des Versuchsstandorts Oensingen (Sintermann et al., 2011a; Spirig et al., 2010). Abbildung (a) zeigt alle Ausbringtechniken, Abbildung (b) nur das Referenzsystem Prallteller.

Aus den K_m -Werten der an einen Michaelis Menten Verlauf gefitteten Emissionen lassen sich die Emission innerhalb der ersten 24 h ebenfalls abschätzen. Im Mittel resultieren Anteile zwischen

86 - 93 % der Gesamtemission (Tabelle 19, Abbildung 34), was mit den oben aufgeführten Werten vergleichbar ist.

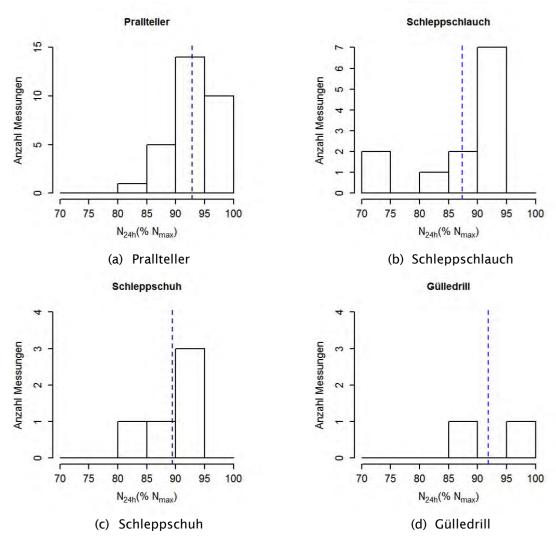


Abbildung 34: Anteil der kumulierten Emission innerhalb von 24h (N_{24h}) an der Gesamtemission (N_{max}) unter Annahme eines Menten Verlaufes. Die Anteile basieren auf den gefitteten K_m-Werten.

Tabelle 19: Mittelwerte und Mediane der gefitteten K_m -Werte in Minuten (Min.), aufgeteilt nach Ausbringverfahren und Gülleart.

Ausbringverfahren Gülleart	Mittleres K_m (Min.)	Median K_m (Min.)	Entsprechende Emission innerhalb von 24 h in % der Gesamtemission (mittleres K_m)	Anzahl Versuche
Prallteller	113	90	92.7	30
Rindvieh	114	91	92.7	24
Mast- und Zuchtschweine	110	84	92.9	8
Schleppschlauch	225	140	86.5	12
Schleppschuh	172	157	89.3	5
Gülledrill	131	-	91.7	2

Der grösste Teil der Ammoniakemissionen erfolgte bei allen Ausbringtechniken innerhalb von 24 h. Der Anteil der Emission nach mehr als 24 h war im Verhältnis zur Gesamtemission klein (0 – 30 % der gesamten Emission). Der mittlere Verlauf nach Ausbringung von Schweinegülle ($K_m = 1000$)

110 Minuten) unterschied sich nicht von demjenigen nach Ausbringung von Rindviehvollgülle (K_m = 114 Minuten).

3.3.4 Abschätzung der "versteckten" Emission durch Erhöhung des NH₃-Kompensationspunktes durch die Düngung.

Die Ausbringung von Gülle beeinflusst den Austausch von NH₃ zwischen der Oberfläche (Boden, Pflanzenbestand) und der Atmosphäre über ca. 10 – 20 Tage (Flechard et al., 2010). Dieser Langzeit-Effekt zeigt sich nicht direkt in einer messbaren Emission, sondern in einer im Mittel reduzierten NH₃ Aufnahmefähigkeit (geringerer Depositionsfluss) der begüllten Fläche. Der "versteckte" Effekt der reduzierten Deposition ist mit der bestehenden Messmethode nicht zu erfassen. Eine obere Abschätzung dieser nicht erfassten Emission ergibt basierend auf den Zahlen von Flechard et al. (2010) eine Grössenordnung von 50 – 250 g N ha⁻¹ bzw. 0.2 – 0.8 % der ausgebrachten TAN Menge von rund 30 kg N ha⁻¹.

3.3.5 Zusammenfassung der gemessenen NH₃-Emissionen

Tabelle 20 fasst die extrapolierten Emissionen als Fraktion der ausgebrachten Menge TAN geordnet nach Ausbringtechnik und Gülleart zusammen. Im Mittel betrug die Ammoniakemission 24.9 % nach Ausbringung mit dem Referenzsystem Prallteller/RVG (Anzahl Messungen: n=24; Bereich: 9.8-47.3 %). Die Emission nach Ausbringung von Rindviehvollgülle mit dem Schleppschlauch (n=12) und dem Schleppschuh (n=5) betrug im Mittel 13.2 %, respektive 9.4 %. Die in Tabelle 20 aufgeführten Werte liegen im Bereich der Emissionen gemäss Sintermann et al. (2012). Die rein zufällige Ungenauigkeit einer Einzelmessung des kumulierten Flusses wird auf Grund des Experiments zur Reproduzierbarkeit (Kapitel 3.2.3) auf \pm 30 % (2σ) geschätzt. Die detaillierten Daten zu sämtlichen Versuchen sind im Anhang A aufgeführt.

Tabelle 20: Zusammenfassung der auf 96 h extrapolierten Emissionen (in % des ausgebrachten TAN) nach Ausbringtechnik und Gülletyp. Die Tabelle zeigt die Anzahl Messungen, den Median, den Mittelwert (MW) sowie den Mindestund Höchstwert (Min/Max). Zusätzlich ist der zugehörige Bereich des TS-Gehaltes der Gülle (TS in %) sowie der 24h-Mittelwert der Lufttemperatur auf 2 m Höhe (T_{Air} in °C) mit den entsprechenden Mittelwerten in runden Klammern angegeben.

Ausbringtechnik	Gülletyp	Anzahl	Median	MW	Min	Max	TS (%)	T _{Air} (°C)
Prallteller	RVG	24	21.7	24.9	9.8	47.3	1.0 - 6.7	1.7 - 21.2
							(3.8)	(12.2)
Schleppschlauch	RVG	12	12.6	13.2	4.0	24.1	1.0 - 5.1	3.2 - 19.9
Schieppschiaden	RVG	12	12.0	13.2	٦.٥	۷٦.١	(3.4)	(15.2)
Cablannaabub	RVG	5	0.6	9.4	3.5	12.2	1.5 - 3.0	3.3 - 19.9
Schleppschuh	RVG	5	9.6	9.4	5.5	12.2	(2.3)	(12.0)
Cillodrill*	D)/C	2	n h	n h	6.0	42.0**	2.5 - 9.1	20.2 - 21.3
Gülledrill*	RVG	2	n.b.	n.b.	6.9	42.0	(5.8)	(20.7)
Dralltallar	MCC	2	15.0	12.0	5.9	15.0	1.2 - 3.3	1.7 - 18.6
Prallteller	MSG	3	15.0	12.0	5.9	15.0	(2.0)	(9.6)
Dualleallau	76.0	2	0.0	0.0	7 2	122	1.0 - 3.2	1.7 - 18.5
Prallteller	ZSG	3	9.9	9.8	7.3	12.2	(2.1)	(9.6)

^{*}Zwei Versuche; n.b.: nicht berechnet, **Fehlfunktion des Geräts bei der Ausbringung (Verstopfung der Schläuche aufgrund des hohen TS-Gehalts der Gülle) und dadurch Akkumulation der Gülle an der Oberfläche auf Teilen der Versuchsparzelle. RVG: Rindviehvollgülle, MSG: Mastschweingülle, ZSG: Zuchtschweingülle.

3.3.6 Einfluss der emissionsmindernden Ausbringtechniken und der Gülleart auf die NH₃-Emissionen

In sechs Versuchen (A1 – A6) wurden die emissionsmindernden Ausbringtechniken Schleppschlauch, Schleppschuh und Gülledrill mit der Referenztechnik Prallteller (Pt) verglichen. Diese fanden in Posieux statt mit Ausnahme des Versuches A1, welcher in Tänikon durchgeführt wurde. Im Mittel resultierte eine Reduktion der Ammoniakverluste um 50.4 %, 53.2 % und 76.3 % im Vergleich zur Referenztechnik Prallteller (Tabelle 21).

Für den Schleppschlauchverteiler, der korrekt eingesetzt wurde (Verteiler tief eingestellt und damit Ablage der Gülle auf den Boden, angepasste Ausbringmenge), resultierte eine höhere Emissionsminderung im Vergleich zu UNECE (2014). Die Wirkung der Verfahren Schleppschuh und Gül-

ledrill lag in einem ähnlichen Bereich wie die Werte gemäss UNECE (2014). Beim Einsatz von Schleppschlauch und Schleppschuh wird mit zunehmender Wuchshöhe des Bestandes und je nach Präzision der Ausbringung und Ausmass der Pflanzenverschmutzung eine grössere Reduktion erzielt (UNECE, 2014). Die Resultate des Versuches A1 (Juli 2011 in Tänikon) bestätigen diesen Befund für den Schleppschlauchverteiler. Ein Literaturstudie von Webb et al. (2010) zeigt eine hohe Variabilität der gemessenen mittleren Emissionsminderung der verschiedenen Techniken (Tabelle 21).

Tabelle 21: Reduktion der NH₃-Emissionen nach Ausbringung von Gülle auf Grasland bei Verwendung von emissionsmindernden Ausbringtechniken (in %) gegenüber der Referenztechnik Prallteller. Die Tabelle zeigt den Mindestund Höchstwert (Min/Max) sowie den Mittelwert (MW). N = Anzahl Messungen. n.b. = nicht berechnet. Die letzten beiden Spalten zeigen Angaben aus der Literatur.

Ausbringtechnik	Gülletyp	N	MW	Min	Max	UNECE (2014)	Webb et al. (2010)*
Schleppschlauch	RVG	7	50.5	28	67.6	30-35+**	0-74
Schleppschuh	RVG	5	53.1	35.7	70.9	30-60+**	57-70
Gülledrill	RVG	1***	76.3	n.b.	n.b.	70	60-99

*Die Daten geben den Bereich der durchschnittlichen Emissionsreduktion von 45 (Schleppschlauch), 37 (Schleppschuh) und 56 (Gülledrill) Experimenten an. **Gute Anwendung und zunehmende Höhe des Bewuchses können die Reduktion verstärken (UNECE, 2014). ***Die Daten von Versuch TS2 (Wengi, 10.07.2013) wurden nicht berücksichtigt, da der Injektor aufgrund der dickflüssigen Gülle schlecht funktionierte (Verstopfungen der Schläuche).

Bei Anwendung eines Schleppschlauchverteilers ist etwa 25 % der Oberfläche mit Gülle bedeckt, wobei die Gülle auf die Bodenoberfläche und teilweise Pflanzenteile abgelegt wird. Beim Einsatz von Schleppschuh und vor allem Gülledrill erfolgt die Ablage der Gülle zunehmend unterhalb des Pflanzenbestands, womit die verschmutzte Fläche weiter abnimmt. Die gemessene Emissionsminderung von ca. 50 % im Vergleich zum Prallteller fällt geringer aus als die Reduktion der mit Gülle bedeckten Fläche. Diese unterproportionale Emissionsminderung entspricht den Erwartungen, da bei gleicher Ausbringmenge mehr Gülle innerhalb der Streifen abgelegt wird und somit die TAN Menge pro Fläche entsprechend grösser ist. Dies zeigt sich auch in der zeitlichen Entwicklung ausgedrückt mit dem K_m – Parameter, welcher für die emissionsmindernden Techniken höher liegt.

Im Mittel resultierte für Schweinegülle ein Verlust von 12.0 % TAN (MSG) und 9.8 % (ZSG). Im direkten Vergleich liegen diese um 31 % bzw. 38 % tiefer als die Emissionen von RVG, was im Verhältnis gut mit Daten aus der Literatur (Søgaard et al., 2002; UNECE, 2014) übereinstimmt. Hinsichtlich des zeitlichen Emissionsverlaufs ist kein Unterschied zwischen den verschiedenen Güllearten feststellbar (Kapitel 3.3.3).

3.3.7 Regressionsanalyse und Modellierung der kumulierten Emission nach 24 h

Die wichtigsten Parameter zur Bestimmung der Emission nach 24 h für das Referenzsystem Prallteller/Rindviehgülle sind die Lufttemperatur auf 2 m über Boden (T_{2m}) sowie der Trockensubstanzgehalt der Gülle (TS). Insgesamt dominieren diese die Streuung der gemessenen Emissionen. Die übrigen beiden Parameter, die Wuchshöhe des Grasbestandes sowie die Windgeschwindigkeit auf 1 m Höhe, zeigen eine geringe bis keine Abhängigkeit aufgrund der Regressionsanalyse der durchgeführten Versuche. Die Beziehung der kumulierten Emission über 24 h zu T_{2m} und TS wird durch die folgende Gleichung am besten beschrieben:

$$V_{24h} = e^{\beta_0 + \beta_{T2m} T_{2m} + \beta_{TS} TS}$$
 (7)

Wobei V_{24h} die gesamte Emission (in % des ausgebrachten TAN) nach 24 h ist. T_{2m} steht für die über 24 h gewichtet⁶ gemittelte Lufttemperatur in °C auf 2 m über Boden und TS für den Trockensubstanzgehalt der Gülle in %. Tabelle 22 gibt eine Übersicht zu den Koeffizienten des 24h-Regressionsmodelles.

-

⁶ siehe Anhang B.8

Tabelle 22: Berechnete Effektgrösse, Standardfehler (SE) und 95%-Konfidenzintervall (95%-CI) der Regressionskoeffizienten β i. Die Koeffizienten beziehen sich auf das log-lineare Modell der 24 h Emissionen, welches durch Gleichung (7) beschrieben wird.

Koeffizient	Effektgrösse	SE	95%-CI	Einheiten
β_0	1.83	0.16	(1.50, 2.17)	-
β_{T2m}	0.033	0.010	(0.013, 0.052)	°C ⁻¹
eta_{TS}	0.18	0.04	(0.10, 0.25)	(%) ⁻¹

Abbildung 35 zeigt die modellierte Emission im Vergleich zur gemessenen Emission. Die Regression weist ein Bestimmtheitsmass von $R^2 = 0.76$ auf.

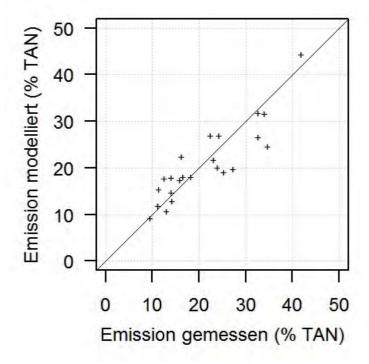


Abbildung 35: Emission nach 24 h gemäss Gleichung (7) im Vergleich zur gemessenen Emission nach 24h.

Im Zusammenhang mit der vorliegenden Regressionsanalyse muss Folgendes beachtet werden: innerhalb der Messkampagne zeigten die Parameter $h_{Bestand}$, AR und WS keinen deutlichen Effekt auf die Emission. Die Versuchsanlage war auch nicht darauf ausgerichtet, deren Einfluss zu untersuchen. Diese Parameter können nichtsdestotrotz einen wichtigen Einfluss auf die Emissionen haben. Die Parameter TAN, pH und Standort (stellvertretend für die Bodeneigenschaften) wurden aus dem ursprünglichen Parameter-Set ausgeschlossen (Kapitel 2.8.1, Anhang B.5). Sie stehen aber ebenfalls für weitere Parameter, welche die Höhe der Emission beeinflussen können.

3.3.8 Modellierung der extrapolierten Emission nach 96 h

Die Regressionsanalyse der Emissionen nach 24 h entsprechend der Gleichung (7) diente als Grundlage für die auf 96 h extrapolierten Emissionen:

$$V_{96h} = e^{\beta_0 + \beta_{T2m} T_{2m} + \beta_{TS} TS}$$
 (8)

Wobei V_{96h} die gesamte Emission (in % des ausgebrachten TAN) nach 96 h ist. T_{2m} steht für die über 96 h gewichtet⁷ gemittelte Lufttemperatur in °C auf 2 m über Boden und TS für den Trockensubstanzgehalt der Gülle in %. Tabelle 23 gibt eine Übersicht zu den Koeffizienten des 96h-Regressionsmodelles.

Tabelle 23: Berechnete Effektgrösse, Standardfehler (SE) und 95%-Konfidenzintervall (95%-CI) der Regressionskoeffizienten βi. Die Koeffizienten beziehen sich auf das log-lineare Modell der 96h Emissionen, welches durch Gleichung (8) beschrieben wird.

Koeffizient	Effektgrösse	SE	95%-CI	Einheiten
β_0	1.97	0.15	(1.65, 2.29)	-
β_{T2m}	0.032	0.009	(0.014, 0.050)	°C-1
eta_{TS}	0.18	0.03	(0.11, 0.25)	(%) ⁻¹

Die Abhängigkeit der Emission innerhalb von 96 h zu den beiden Regressionsparametern $T_{\rm 2m}$ und TS ist in Abbildung 36 dargestellt. Abbildung 37 zeigt die modellierte Emission im Vergleich zur gemessenen Emission. Die Regression weist ein Bestimmtheitsmass von R^2 = 0.78 auf.

Die emissionsgewichtete Mittelung der Lufttemperatur ist keine direkt nachvollziehbare Grösse. Verwendet man anstelle des gewichteten Mittelwertes den einfachen 96h-Mittelwert der Lufttemperatur (T_{96h}), ändert sich das entsprechende Modell nur marginal (Gleichung (9); $R^2 = 0.75$). Dies lässt sich durch die über die gesamte Versuchskampagne ähnlichen Versuchsstartzeiten (kurz vor Mittag) erklären, welche die durch den Tagesgang bedingten Unterschiede der beiden Parameter T_{96h} und T_{2m} verschleiern.

$$V_{96h} = e^{2.03 + 0.028 \, T_{2m} + 0.199 \, TS} \tag{9}$$

Das Modell nach Gleichung (9) ist allerdings nicht geeignet einen Tagesgang des Emissionspotentials (siehe Kapitel 3.3.1) mit einzubeziehen.

-

⁷ siehe Anhang B.8

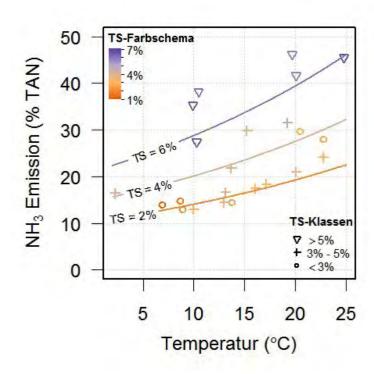


Abbildung 36: Emission in Abhängigkeit der emissionsgewichtet gemittelten Lufttemperatur und des TS-Gehaltes der Gülle. Die ausgezogene Linie zeigt die modellierte Emission nach Gleichung (8), die Symbole stellen die gemessenen Emissionen in drei TS-Klassen (< 3%, 3% - 5%, > 5%) dar.

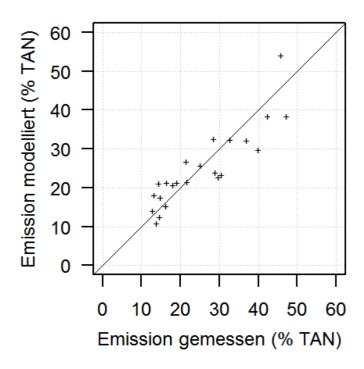


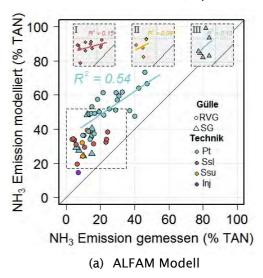
Abbildung 37: Emission nach 96 h gemäss Gleichung (8) im Vergleich zur gemessenen Emission nach 96 h

3.3.9 Vergleich zu den bestehenden Modellen ALFAM und Menzi et al. (1998)

Das Ammoniakemissionsmodell ALFAM (Søgaard et al., 2002) und das Modell von Menzi et al. (1998) zeigen beide systematisch höhere Emissionen im Vergleich zu den vorliegenden Resultaten (Abbildung 38).

Bei einer 1:1 verdünnten Rindviehgülle (TS-Gehalt: 4.5 %; TAN-Gehalt: 1.15 g/L), Ausbringmenge: 30 m3/ha, Temperatur: 12 °C) resultieren die folgenden Emissionen: 23.7 % TAN gemäss dem vorliegenden Regressionsmodell (96 h) (vgl. Gleichung (8)), 50.6 % TAN gemäss Menzi et al. (1998) und 49.4 % TAN gemäss ALFAM (Søgaard et al., 2002).

Die höheren Emissionen der schweizerischen Messungen aus den 1990er Jahren deuten auf einen systematischen Messfehler hin (Kapitel 3.3.10).



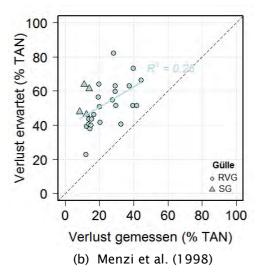


Abbildung 38: Vergleich der bestehenden Messreihe mit den NH₃-Emissionsmodellen ALFAM (Søgaard et al., 2002) und Menzi et al. (1998). RVG: Rindviehvollgülle; SG: Schweinegülle; Pt: Prallteller; Ssl: Schleppschlauch; Ssu: Schleppschuh; Inj: Gülledrill. ALFAM Subplots: I) RVG/Ssl, II) RVG/Ssu, III) SG/Pt.

Ein weiterer Unterschied zu der vorliegenden Untersuchung liegt in den mit ALFAM berechneten Km-Werten zu Emissionsverläufen bei Ausbringung von Schweinegülle, welche deutlich höher liegen (Abbildung 39).

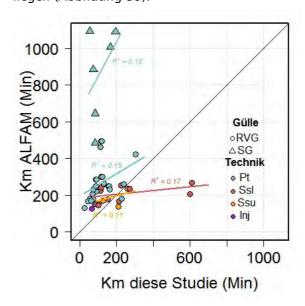


Abbildung 39: Vergleich der gefundenen Km-Werte mit den prognostizierten Werten des Modelles ALFAM (Søgaard et al., 2002). RVG: Rindviehvollgülle; SG: Schweinegülle; Pt: Prallteller; Ssl: Schleppschlauch; Ssu: Schleppschuh; Inj: Gülledrill.

3.3.10 Ursachen für die Differenzen zwischen den Resultaten der vorliegenden Studie und den Werten der schweizerischen Messungen aus den 1990er Jahren

Die Veröffentlichung und Verbreitung der "ZINST" Methode zeigte einen Weg auf, wie mit der an den damaligen landwirtschaftlichen Forschungsanstalten FAC und FAT vorhandenen Möglichkeiten solche Untersuchungen durchgeführt werden konnten. Die verwendete Messtechnik baute auf den Arbeiten der damaligen Gruppe Lufthygiene und Pflanzenökologie auf. Basierend auf der Pionierarbeit von Fritz Zürcher wurde ein Passivsammlersystem aufgebaut (Blatter et al., 1992). Für die Windmessungen fand ein an der FAC entwickeltes Schalenanemometer mit kleiner Nachweisgrenze Verwendung. Die Emissionen wurden aus dem Produkt der gemessenen Windgeschwindigkeit und der Konzentration auf der auf Grund der geschätzten Bodenrauigkeit von 0.7 cm festgesetzten Höhe ZINST von 90 cm berechnet (Katz, 1996).

Detaillierte Datenprotokolle dieser Versuche, welche eine Überprüfung der Resultate erlaubten, waren verfügbar. Dabei konnten drei Faktoren identifiziert werden, die zu einer systematischen Überschätzung der veröffentlichten Emissionsflüsse führten:

- 1. Overspeeding der Schalenanemometer bei windarmen Bedingungen.
- 2. Nicht Berücksichtigung der gegenseitigen Beeinflussung der Ammoniakkonzentrationen durch die verwendeten Versuchsflächen.
- 3. Der Skalierungsfaktor des Verhältnis u*c/Emission hat sich durch die Verbesserung der Emissionsmodelle geändert.

Von einer systematischen Neuberechnung der alten Emissionsraten ist abzusehen, da der Aufwand sehr gross wäre und auch wichtige Informationen fehlen, insbesondere die genaue Lage der damals verwendeten Versuchsflächen in Tänikon.

Es gibt einen weiteren möglichen systematischen Fehler, der in Betracht gezogen werden muss. Die damals verwendete Anordnung der Konzentrationsmessung mittels Passivsammlern, die in einem Zylinder angeordnet waren, durch welche aktiv die Probenluft gezogen wurde, wies sehr grosse Oberflächen auf. Die schnellen NH₃-Messungen nach Ausbringung von Gülle von Sintermann et al. (2011b) zeigen ein sehr dynamisches Verhalten mit innerhalb von einigen Sekunden schwankenden Konzentrationen zwischen 50 ppb und 5000 ppb. Es ist wahrscheinlich, dass die Windpakete mit den hohen Ammoniakkonzentrationen die Oberflächen um den Einlass des Passivsammlers stark belegten. Gelangte Luft mit wesentlich geringerer NH₃ Konzentration in den Einlass, konnte Desorption von NH₃ Molekülen von diesen Oberflächen zu einer systematischen Überschätzung der mittleren Konzentrationen führen. Dieser Mechanismus kann nicht ausgeschlossen werden, weil Passivsammler einen sehr geringen Anteil der durchströmenden NH₃ Moleküle aufnehmen. Da die Sammeleinheit nicht mehr vorhanden ist, lässt sich ein entsprechender Nachweis nicht erbringen, und der vorgeschlagene Mechanismus bleibt hypothetisch.

4 Schlussfolgerungen

4.1 Qualität der Messungen

4.1.1 Messtechnik

Eine zuverlässige Bestimmung der NH, Verluste nach Ausbringung von Gülle setzt das Zusammenspiel von chemisch-analytischen Methoden, mikrometeorologischer Ausbreitungsmodellierung und agronomischen Grössen voraus. Im vorliegenden Projekt wurden daher grosse Anstrengungen unternommen, die Präzision der Messwerte zu bestimmen und durch unabhängige Ansätze zu überprüfen. Die Genauigkeit der angegebenen prozentualen Verluste setzt sich im Wesentlichen aus drei unabhängigen Fehlerquellen zusammen: i) analytische Konzentrationsbestimmung, ii) verwendete Ausbreitungsmodellierung und iii) Versuchsparameter wie die Ausbringungsmenge, TS- und TAN-Gehalt der Gülle sowie die Geometrie der emittierenden Fläche. Die vorgegebene Messstrategie basierend auf parallelen Messungen mit bis zu vier verschiedenen Versuchsparzellen auf einer grösseren Fläche, welche zudem strömungsunabhängig sein musste, führte zu der Eigenentwicklung der auf der Impingertechnologie abgestützten Low Cost Systemen (LOCI). Die analytische Genauigkeit der LOCI Systeme liegt bei \pm 8 % (1 σ). Die andern Fehlerquellen weisen eine ähnliche Grössenordnung auf. Somit ergibt sich eine typische Präzision einer Einzelmessung von \pm 30 % (2 σ). Bei Feldmessungen spielen oft nicht oder schwer kontrollierbare äussere Einflüsse eine Rolle (z.B. Defekte von Messgeräten), die zu grösseren systematischen Abweichungen führen können, welche sich nicht immer erkennen lassen.

Bezüglich der Qualität der Messungen ist zu beachten, dass nach Abschluss der Auswertungen eine Meldung des Herstellers publik wurde, wonach in der internen Berechnung der vertikalen Windkomponente ein Fehler vorliegt. Die positiven Werte werden um 29 % unterschätzt, die negativen Werte um 17 %. Dieser Fehler hat Auswirkungen auf die vorliegenden Emissionen. Erste Abschätzungen der notwendigen Korrekturen ergeben relative Erhöhungen von bis zu 10 %. Auf die ausgebrachte TAN Menge bezogene Verluste können beispielsweise von 30 % TAN auf 33 % TAN zunehmen. Die Erhöhung der Emissionen wird für die einzelnen Experimente verschieden ausfallen (vgl. Kapitel 3.1).

Eine prinzipielle Limitierung bezüglich Genauigkeit der verwendeten Messtechnik mit den LOCI Systemen ist die Sensitivität der Impinger. Die Detektionsgrenze entspricht einer NH₃ Dosis und liegt für eine Stunde Sammelzeit bei rund 10 µg m⁻³. Somit lassen sich Emissionen während der ersten Stunden nach Ausbringung der Gülle gut erfassen. Im weiteren Verlauf müssen die Messintervalle stark vergrössert werden, womit die Messung die Austauschdynamik nicht mehr auflösen kann. Zudem wird es zunehmend schwieriger, die durch die untersuchte emittierende Fläche bedingte NH₃ Konzentration von derjenigen der Hintergrundkonzentration zu diskriminieren.

Die Entwicklung der berührungsfreien DOAS Technologie überwindet die wichtigsten Limitierungen der bis jetzt üblicherweise verwendeten NH₃ Analytik. Bei Emissionsmessungen von räumlich begrenzten Flächen ist eine linienintegrierte Messung einer Punktmessung prinzipiell vorzuziehen. Die DOAS Technologie ist berührungsfrei, weist bei hoher Sensitivität eine Zeitauflösung von einer Minute auf. Nachteilig sind die Anschaffungskosten und die Notwendigkeit einer Stromversorgung mit 220 Volt. Die Präzision der neuen Generation der DOAS Messsysteme (miniDOAS) liegt bei ± 0.2 µg m³ für eine Integrationszeit von einer Minute und einer Pfadlänge von 50 Meter (Distanz Sensor zu Retroreflektor 25 Meter). Der Arbeitsaufwand beim Betrieb ist deutlich kleiner als bei LOCI Systemen. Die in den letzten Jahren entwickelten miniDOAS Systeme ermöglichen auch eine ausreichend präzise Erfassung von schwach emittierenden Flächenquellen wie sie typischerweise bei beweideten Flächen oder bei der Ausbringung von Festmist vorkommen.

4.1.2 Ausbreitungsmodellierung

Jede Umsetzung gemessener Konzentrationen in eine Emissionsrate bedingt eine Modellvorstellung. Auch die einfachste Massenbilanzmethode mit dem Konzept einer Box über der Messfläche und der quantitativen Bestimmung aller Flüsse durch die begrenzenden Flächen nimmt an, dass sich die zu bestimmende Substanz wie ein passiver Tracer verhält. Die verwendeten Modellvorstellungen entsprechen somit zwangsläufig einer vereinfachten Darstellung der an einem Ver-

suchsstandort tatsächlich vorhandenen Verhältnisse. Die Messkampagnen zur Ausbringung von Gülle in der Schweiz der 90er Jahre hatten die Genauigkeit der verwendeten Ansätze kaum untersucht. Damals standen nur wenige Methoden zur Verfügung. Keine grösseren Abweichungen bei wiederholten Messungen unter gleichen Versuchsbedingungen wurden mit einer guten Präzision der verwendeten Methodik gleichgesetzt.

Die Entwicklung stochastischer Ausbreitungsmodelle parallel zu analytischen Modellen hat in erster Linie das Verständnis der Ausbreitungsprozesse und der Kenntnis verbessert, inwieweit Abweichungen in Abhängigkeit von den mikrometeorologischen Bedingungen zu erwarten sind.

4.1.3 Zusammenfassende Beurteilung der Genauigkeit der experimentellen Emissionsbestimmungen im Rahmen der Standardversuche

Die Genauigkeit der Emissionsbestimmungen, d.h. die Abweichungen von den tatsächlichen Emissionswerten, ist durch die Kombination der Unsicherheiten der Einzelkomponenten gegeben. Dabei gibt es drei unabhängige Gruppen:

- 1. NH₃-Konzentrationsmessungen
- 2. Bestimmung der Turbulenz (Windstatistik)
- 3. Umsetzung der Konzentrations- und Windmesswerte in Emissionen (z.B. IHF-Ansatz, bLS-Ansatz)

Im vorliegenden Projekt wurde die Qualitätssicherung des Standardverfahrens der Emissionsbestimmung mittels bLS-Ansatz auf zwei Arten durchgeführt:

- a. Vergleich mit dem IHF-Ansatz, einer weitgehend unabhängigen Methode, welche in der wissenschaftlichen Literatur als robust eingeschätzt wird.
- b. Bestimmung von Wiederfindungsraten von NH₃ und CH₄, die mittels einer künstlichen Quelle freigesetzt wurden.

Die Vergleiche zwischen bLS und IHF zeigten eine schwierig zu erklärende Höhenabhängigkeit des bLS-Ansatzes mit einer deutlichen Tendenz zu tiefen Emissionswerten für niedrige Messhöhen und einer Zunahme der Emissionswerte mit zunehmenden Messhöhen. Dies deutet auf eine gegenüber den effektiven Verhältnissen zu kleine Turbulenz in dem bLS-Modell hin. Da für das Modell die Massenerhaltung gilt, gibt es eine Messhöhe, bei der die Abweichung null ist. Die nach Abschluss des Projektes durch die Herstellerfirma der verwendeten Sonic Anemometer bekannt gegebene notwendige Korrektur der erfassten vertikalen Windgeschwindigkeit, hebt die beobachtete Höhenabhängigkeit bei den neuberechneten Versuchen von Witzwil auf. Da für das bLS-Modell die Massenerhaltung gilt, gibt es eine Messhöhe, bei der die zu kleinen Turbulenzwerte zu keinen Abweichungen führen. Die verwendeten Messhöhen der Standardversuche liegen nahe bei diesem Punkt.

Für die zur Auswertung der Standardversuche verwendeten Messhöhen zeigte sich kein systematischer Unterschied zwischen dem IHF und bLS Ansatz. Daraus folgt, dass die Emissionsergebnisse der Standardversuche vergleichbar sind mit früheren, publizierten Emissionswerten, die auf dem IHF Ansatz basieren.

Die Versuche zur Bestimmung der Wiederfindungsraten müssen gegliedert werden in die Versuche mit einem konservativen Tracer Methan und in die Versuche mit dem stark sorbierenden NH₃. Es wird davon ausgegangen, dass innerhalb einer Genauigkeit von ± 10 % die künstliche Quelle die beabsichtigte Menge emittiert. Die Validierung des bLS-Ansatzes wurde mit einem konservativen Tracer (CH₄) mittels Punktmessungen durchgeführt, die windabwärts des Quellenzentrums in einer Distanz von 13 m und einer Messhöhe von 0.95 m und in einer Distanz von rund 20 m in einer Messhöhe von 2 m platziert waren. Dieser Versuch, welcher einen weiten Stabilitätsbereich abdeckte, zeigte eine nicht von 1 unterscheidbare Wiederfindungsrate von CH₄. Einzig für extreme Stabilitäten, sowohl im stabilen wie instabilen Fall zeigen sich deutlichere Abweichungen, da die dem bLS-Ansatz zugrunde liegenden Annahmen nicht mehr erfüllt sind. Diese Ergebnisse decken sich mit etlichen Ergebnissen in der wissenschaftlichen Literatur. Es ist zu überprüfen, ob der hier gewählte Ansatz mittels Punktmessungen windabwärts der Quelle auf Messungen im Zentrum der Quelle übertragbar ist.

Die mittleren Wiederfindungsraten bei der optimalen Messhöhe der LOCI am Zentralmast von 4 Experimenten auf Asphalt betragen gemäss bLS Ansatz 89 %, 55 %, 81 % und 90 % (siehe Abschnitt Versuch in Payerne (NH $_3$), Wiederfindungsraten, Kapitel 3.2.5). Da die Messungen am Zentralmast der Messanordnung in den Feldversuchen entsprechen, kann man von einer Wiederfindungsrate im oben aufgeführten Bereich ausgehen. Eine Wiederfindungsrate von 75 % wurde bei den Versuchen mit einer künstlichen Quelle über abgespritztem Gras und linienintegrierter Messung im Lee (siehe Abschnitt Versuch in Witzwil (NH $_3$), Kapitel 3.2.5) gefunden.

Aufgrund der guten Übereinstimmung der Wiederfindungsrate gemäss bLS- und IHF-Ansatz kann davon ausgegangen werden, dass das verwendete Dispersionsmodell die Ausbreitungsverhältnisse gut beschreibt. Dies hat auch Gültigkeit für die Messungen im Zentrum einer emittierenden Fläche, mit ähnlicher windaufwärts gelegenen Quellenausdehnung. Die in den Versuchen zur Bestimmung der Wiederfindungsrate mit NH, festgestellte Diskrepanz kann dahingehend interpretiert werden, dass entweder die künstliche Quelle systematisch weniger emittierte als angenommen, oder dass auf dem Weg zwischen der Quelle und den Sensoren NH, dem System entzogen wurde. Die erste Möglichkeit, eine systematisch verminderte Emissionsstärke, liess sich bis jetzt nicht belegen. Hingegen gibt es mehrere Hinweise auf einen aktiven Entfernungsprozess (Deposition) zwischen den Sensoren und den in der künstlichen Quelle verwendeten Düsen. Im Experiment in Payerne, wo die Quelle auf Asphalt betrieben wurde, konnte zwischen dem ersten und zweiten Experiment eine NH,-Desorption von der Asphaltoberfläche mittels eines Vergleichs der miniDOAS Konzentrationen (windaufwärts und windabwärts) nachgewiesen werden. Mit der Einführung eines Depositionsalgorithmus in ein bLS Modell (bLD-Modell) liess sich für die Verhältnisse des Experimentes Witzwil vom September 2014 (Abschnitt Versuch in Witzwil (NH.), Kapitel 3.2.5), die um rund 25 % verminderte Wiederfindungsrate mit einer für landwirtschaftliche Flächen typischen Parametrisierung erklären.

Es muss festgehalten werden, dass die Durchführung von Validierungsversuche mit einer künstlichen NH₃-Quelle eine anspruchsvolle Aufgabe ist. Die ersten Versuche zeigten die Konsistenz der verschiedenen Ansätze, aber auch, dass NH₃ nicht als konservativer Tracer behandelt werden darf.

Fazit: Die im vorliegenden Bericht präsentierten Vergleiche zwischen der bLS- und IHF-Methode zeigten eine gute Übereinstimmung. Daraus lässt sich folgern, dass die vorliegenden Resultate vergleichbar sind mit publizierten Emissionswerten, die auf dem IHF Ansatz basieren. Die Minderbefunde der Versuche mit der künstlichen Quelle mit NH₃ sind unabhängig sowohl vom gewählten methodischen Ansatz (bLS, IHF), als auch von der gewählten analytischen Methode. Der Einbezug eines Depositionsprozesses in die Ausbreitungsmodellierung kann den beobachteten Minderbefund zumindest teilweise erklären. Die vorliegenden Resultate müssen aber noch vertiefter überprüft werden.

4.2 Wichtigste Erkenntnisse aus dem vorliegenden Projekt

Aus den Resultaten des vorliegenden Projekts resultieren die folgenden Erkenntnisse:

Die Emissionen nach Ausbringung von Gülle basierend auf Messungen von Versuchsparzellen mittlerer Grösse (ca. 30 m \times 30 m) unterscheiden sich nicht von denjenigen praxisüblicher Parzellen (0.5 bis 1 ha).

Die mittels Regressionsmodell (96 h) modellierten NH₃-Emissionen nach Ausbringung von Gülle mittels Prallteller, welche auf den vorliegenden Versuchsdaten basieren, sind tiefer als die im Rahmen der schweizerischen Emissionsmodellierung (Agrammon) verwendeten Werte, die auf Messungen in den 1990er Jahren beruhen. Bei einer 1:1 verdünnten Rindviehgülle (TS-Gehalt: 4.5 %; TAN-Gehalt: 1.15 g L⁻¹), einer Ausbringmenge von 30 m³ ha⁻¹ und einer Temperatur von 12 °C resultiert eine Emission von 23.7 % TAN gemäss dem vorliegenden Regressionsmodell (96 h) (vgl. Gleichung (8)). Im Vergleich dazu berechnet das Modell von Menzi et al. (1998), welches die Grundlage für die in Agrammon verwendete Emissionsrate bildet, ein Verlust von 50.6 % TAN. Diese Differenz lässt sich zum grössten Teil durch Overspeeding der damals eingesetzten Schalenanemometer, Nicht-Berücksichtigung der gegenseitigen Beeinflussung der verwendeten Versuchsflächen und die Änderung des Skalierungsfaktors des Verhältnisses u*c/Emission erklären (vgl. Kapitel 3.3.10)

Die Wirksamkeit der emissionsmindernden Ausbringverfahren Schleppschuh und Gülledrill entsprechen in etwa den Werten für Grasland gemäss UNECE (2014): Schleppschuh: 30 – 60 %; Gülledrill: 70 %. Für den Schleppschlauchverteiler, der in den vorliegenden Versuchen korrekt eingesetzt wurde (Verteiler tief eingestellt und damit Ablage der Gülle auf den Boden, angepasste Ausbringmenge), resultierte eine bessere Wirkung hinsichtlich Emissionsminderung im Vergleich zu UNECE (2014), das für diese Technik eine Reduktion der Verluste von 30 - 35 % angibt.

Zwei Versuche mit Ausbringung von Gülle mit dem Prallteller weisen darauf hin, dass bei Ausbringung am Morgen (ca. 6h00) weniger Ammoniak emittiert wird als bei Ausbringung über Mittag. Für die Ausbringung am Abend (ca. 18h00) ist das Bild uneinheitlich.

4.3 Einordnung der bestimmten Emissionen in den internationalen Kontext

Die Resultate der zahlreichen Versuche, welche Ammoniakemissionen nach Ausbringung von Gülle untersucht haben, streuen über einen weiten Bereich. Gemäss UNECE (2014) liegen die Emissionen typischerweise zwischen 40 und 60 % TAN, wobei angemerkt wird, dass auch niedrigere Emissionen üblich seien. Die Werte, welche zur Modellierung der Ammoniakemissionen nach Ausbringung von Gülle im Rahmen von Emissionsinventaren verwendet werden, variieren ebenfalls. Gemäss Reidy et al. (2008) lagen die Emissionsraten der Modelle, welche von Dänemark, Deutschland, Grossbritannien, den Niederlanden und der Schweiz angewendet wurden, zwischen 43 % und 68 % TAN. Ein aktueller Modellvergleich im Rahmen des EAGER Netzwerks zeigt, dass die Unterschiede zwischen den verschiedenen verwendeten Emissionsraten in einer ähnlichen Grössenordnung liegen (EAGER, unveröffentlichte Daten). Die Werte der vorliegenden Studie sind niedriger als die in der Modellierung verwendeten Emissionsraten.

In der Schweiz weist Gülle einen relativ niedrigen Trockensubstanzgehalt auf. Gesamtschweizerisch beträgt die Verdünnung 1:1 (vgl. Kapitel 1.2). Dies hängt vermutlich mit der Produktionstechnik zusammen: i) verhältnismässig kleine Einheiten, d.h. eine relativ grosse Menge von Reinigungswasser im Verhältnis zur produzierten Gülle, ii) aktive Verdünnung von Gülle vor dem Ausbringen (viele Betriebe verfügen über eigene Wasserquellen, so dass die Verdünnung von Gülle abgesehen von den Transportkosten keine Mehrkosten verursacht, iii) Laufhöfe mit Entwässerung in das Güllelager, iv) ca. 30 % der Gülle wird mittels Verschlauchung ausgebracht (unveröffentlichte Daten, HAFL, 2011), d.h. die Transportkosten für die Gülle fallen weniger ins Gewicht als bei Ausbringung mittels Druck- oder Pumpfass. Die Eigenschaften der Gülle kombiniert mit den meteorologischen Verhältnissen (tiefe mittlere Windgeschwindigkeit: oft unter 1 m/s) der Schweiz, lassen relativ niedrige Emissionen für Gülle als plausibel erscheinen.

Die Modellierung der Emissionen mittels ALFAM Modell (Søgaard et al., 2002) oder Modell nach Menzi et al. (1998) führt zu Werten, die höher liegen als die im vorliegenden Projekt gemessenen Emissionen. Widersprüche bestehen aber auch innerhalb von publizierten Modellansätzen. Die

statistische Modellierung aller in der vorliegenden Studie durchgeführten Referenzverfahren, d.h. der Feldversuche mit Prallteller, zeigt eine Abhängigkeit von der Lufttemperatur und vom Trockensubstanzgehalt, welche mit derjenigen von Sommer und Hutchings (2001) gut übereinstimmt. Das von Sommer und Hutchings (2001) präsentierte Modell basiert auf mechanistischen Überlegungen. In der Arbeit von Søgaard et al. (2002) wurde nicht auf das früher von den Co-Autoren Sommer und Hutchings publizierte Modell verwiesen und auch nicht diskutiert, dass die mittels ALFAM modellierten Emissionen wesentlich höher liegen, als aufgrund der Arbeit von Sommer und Hutchings (2001) zu erwarten ist.

Diese Widersprüche und Lücken der Emissionsmodelle (vor allem für Bedingungen mit niedrigem Emissionspotential) wurden international zumindest teilweise erkannt. In diesem Zusammenhang stehen die Arbeiten im Rahmen von Projekt ALFAM II. Das Ziel des Projekts besteht darin, eine aktualisierte Datenbank von Messresultaten zu Ammoniakemissionen nach Ausbringung von Gülle und darauf basierend ein neues Modell zu erarbeiten. Die Daten und alle damit verbundenen Unsicherheiten aus dem vorliegenden Projekt sowie das daraus resultierende Knowhow werden in die Aktivitäten von ALFAM II eingebracht.

4.4 Forschungsbedarf und Ausblick

4.4.1 Genauigkeit der Emissionsbestimmung

Die Unsicherheiten der Emissionsbestimmungen mit dem verwendeten Ansatz liegen trotz bedeutender methodischer Fortschritte bei \pm 30 % (2 σ). Mögliche nicht erkannte systematische Abweichungen, insbesondere beim verwendeten Ausbreitungsmodell, bedeuten eine grosse methodische Herausforderung. Allerdings zeigen verschiedene publizierte Untersuchungen die Zuverlässigkeit des hier verwendeten bLS-Modells.

Der Wahl der Messhöhen kommt dabei besondere Bedeutung zu. Die in den vorliegenden Untersuchungen gewählten Werte bei den Standardversuchen stehen im Einklang mit publizierten Empfehlungen. Die festgelegten Messhöhen werden auch durch Vergleiche mit Massenbilanzansätzen gestützt. Es ist jedoch äusserst schwierig, die Höhenabhängigkeit durch Wiederfindungsexperimente mit Verwendung von Ammoniak eindeutig zu quantifizieren. Die zu erwartende Deposition in der unmittelbaren Quellenumgebung erschwert diese Analyse. Um diesen Effekt quantifizieren zu können, ist eine Erweiterung des verwendeten Ausbreitungsmodell um einen Depositionsalgorithmus erforderlich, welcher mit Messungen validiert werden sollte. Dies liesse sich experimentell mit einer Serie von vertikalen Profilmessungen umsetzen, die windabwärts einer emittierenden Fläche im Abstand von 0.5 bis 10 mal der Quellenausdehnung durchgeführt werden. Die Deposition ist etwa für die Bestimmung der Emissionen von Weiden oder der Ausbringung von Festmist relevant, da in diesen Fällen auf den untersuchten Flächen gleichzeitig Emission und Deposition stattfinden.

Idealerweise müsste die quantitative Erfassung von Emissionen die Flüsse durch alle Seitenwände und das Dach einer Box über einer emittierenden Fläche erfassen. In diesem Zusammenhang werden beispielsweise Flüsse entgegen dem herrschenden Gradienten diskutiert. Dies würde die Kombination von horizontalen Flussmesssystemen, beispielsweise linienintegrierte Messungen (miniDOAS) kombiniert mit Windgeschwindigkeitsmessungen und vertikalen Flussmessungen (Eddy Korrelationssystemen) bedeuten. Ein experimenteller Ansatz dieser Art erfordert einen grossen Aufwand. Zudem sind vertikale Transportmechanismen, die in dem verwendeten Ausbreitungsmodell nicht erfasst werden, prinzipiell nicht auszuschliessen. Solche Prozesse lassen sich nur sehr schwer messen, da deren vertikale Ausbreitung nicht bekannt ist. Um abzuschätzen, ob solche Phänomene eine wichtige Rolle spielen, können mittels der miniDOAS Systeme windaufund windabwärts auf einer Höhe, die mindestens dreimal der Quellenausdehnung in Längsrichtung des Windes entspricht, hochaufgelöste Konzentrationsreihen gemessen werden. Die Höhe wird dabei so gewählt, dass bei normalen Turbulenzbedingungen keine Ammoniakmoleküle diese Höhen erreichen. Eine messbare Zunahme der Konzentration windabwärts gegenüber der Konzentration windaufwärts würde auf solche Prozesse hinweisen.

4.4.2 Ausbringung von Gülle

Die vorliegenden Untersuchungen haben gezeigt, dass die gemessenen NH₃ Verluste nach Ausbringung von Gülle recht gut mit einer einfachen Abhängigkeit von der mittleren Lufttemperatur und des Trockensubstanzgehaltes der Gülle beschrieben werden können. Dies steht im Einklang mit dem vorhandenen mechanistischen Verständnis (Sommer und Hutchings, 2001). Die durchgeführten Versuche haben Situationen mit tiefer Temperatur (Spätwinter, Herbst) und Applikation von Gülle mit hohem TS Gehalt nicht abgedeckt. Somit bleibt die Frage offen, wie sich die Abhängigkeit der Emission von der Temperatur für hohe und tiefe TS-Gehalte verhält. Diese Frage müsste mit vier Versuchen an mindestens zwei Standorten untersucht werden.

Der durchgeführte Versuch zur Abhängigkeit der Emissionen von der Tageszeit bei Ausbringung mit Schleppschlauch zeigte einen deutlich tieferen Ammoniakverlust bei Ausbringung am Morgen gegenüber den Verfahren Ausbringung am Mittag und Abend welche nur eine kleine Differenz aufwiesen. Aufgrund mechanistischer Überlegungen ist zu erwarten, dass der Ausbringzeitpunkt beim Einsatz von Schleppschlauch oder Schleppschuh eine geringere Wirkung hinsichtlich Emissionsminderung hat als bei Verwendung des Pralltellers. Der deutlich kleinere Verlust bei Ausbringung am Morgen, müsste mit weiteren Versuchen abgesichert werden. Dabei wäre auch der Einfluss des TS-Gehaltes der Gülle zu beachten.

Verschiedene Publikationen zeigen bei Einsatz des Schleppschlauchs auf nicht bewachsenem Boden oder bei niedrigem Bewuchs keine Emissionsminderung oder ausnahmsweise höhere Emissi-

onen im Vergleich zum Prallteller (z.B. Leick, 2003; Sommer et al., 1997; Vandre et al., 1997). Aus der heutigen Sicht müssen diese Resultate kritisch hinterfragt werden. Solche Resultate finden im internationalen Umfeld Beachtung und auf der Grundlage dieser Studien wird die Wirksamkeit von emissionsmindernden Ausbringtechniken, vor allem dem Schleppschlauch, in Frage gestellt. Dies könnte sich kontraproduktiv auf Bemühungen zur Emissionsreduktion in der Schweiz auswirken. Dies umso mehr, als keine schweizerischen Messresultate zum Einsatz von Gülle im Ackerbau und zur Wirkung bezüglich Emissionsminderung der verschiedenen Ausbringtechniken vorliegen. Gegenwärtig wird rund 20 % der Güllemenge auf Ackerflächen ausgebracht, davon gut zwei Drittel auf Getreide (unveröffentlichte Daten, HAFL Zollikofen, 2011). Eine systematische Untersuchung der Emissionen von Gülleausbringung im Ackerbau bedingt mehrere Versuche, da davon ausgegangen werden muss, dass neben dem TS-Gehalt der Gülle und der Umgebungstemperatur auch die Bewuchshöhe einen sehr wichtigen Einfluss hat. Zudem müssten jeweils mehrere Ausbringtechniken parallel untersucht werden.

4.4.3 Ausbringung von Festmist

Aufgrund der Resultate der vorliegenden Studie ist davon auszugehen, dass auch die aktuell in der Emissionsmodellierung verwendeten Emissionsraten für Festmist zu hoch liegen. Eine Extrapolation der Erkenntnisse basierend auf den neuen Resultaten für Gülle auf Mist ist nicht zulässig, da letzterer einen anderen Emissionsverlauf aufweist (insbesondere länger andauernde Emissionen: Webb et al., 2012). Festmist stellt eine bedeutende Emissionsquelle dar: rund 30 % der N-Ausscheidungen der landwirtschaftlichen Nutztiere sind in Festmist enthalten (unveröffentlichte Daten, HAFL Zollikofen, 2011). Der Anteil der Ausbringung von Festmist an den gesamten NH₃-Emissionen der Tierproduktion beträgt 10 % (Kupper et al., 2013). Es wird empfohlen, Untersuchungen zu den wichtigsten Kategorien von Festmist durchzuführen (Stapelmist, Laufstallmist von Rindvieh, Pouletsmist). Die Versuche sollten die Jahreszeiten Sommer sowie Frühjahr/Herbst abdecken.

4.4.4 Weideemissionen

Der Anteil der N-Ausscheidungen von Nutztieren auf der Weide hat über die letzten Jahre als Folge der Förderung von tierfreundlichen Haltungssystemen auf 18 % des Totals zugenommen. Der Anteil der Weideemissionen betrug 2010 rund 3 % der Emissionen aus der Tierproduktion (Kupper et al., 2013). Zur Berechnung der Ammoniak-Emissionen bei Weide von Wiederkäuern sowie Pferden und übrigen Equiden wird im Modell Agrammon eine Emissionsrate von 8.3 % bezogen auf die ausgeschiedene TAN-Menge verwendet⁸. Diese beruht auf Messungen in den Niederlanden (Bussink, 1992, 1994). Kürzlich wurden neuseeländische Studien von Laubach et al. (2012, 2013) veröffentlicht, welche Emissionen im Sommer von bis zu rund 37 % der ausgeschiedenen TAN-Menge angeben. Bei solch hohen Emissionsraten würde den Weideemissionen in der Schweiz eine weit grössere Bedeutung zukommen als gemäss dem aktuellen Emissionsinventar berechnet wird. Die Bestimmung von für die Schweiz repräsentativen Emissionsraten für Weidesysteme ist damit wichtig sowohl für die Weiterentwicklung und Verbesserung des Ammoniak-Emissionsinventars als auch im Hinblick auf die Optimierung der N-Effizienz der Tierproduktion.

-

Bokument Technische Parameter Modell Agrammon (http://www.agrammon.ch/dokumente-zum-download/; 29.11.2013)

5 Verdankungen

Wir danken dem Bundesamt für Landwirtschaft und dem Bundesamt für Umwelt für die Finanzierung des Projekts Ammoniakemissionen nach Ausbringung von Gülle (Vertrag 09.0084.PJ/K233-1881 und Vertrag 06.9115.PZ/L225-3604).

Wir bedanken uns weiter bei den Betrieben, welche bei den Versuchen mitgearbeitet haben. Ohne die Unterstützung der beteiligten Personen, wäre die Durchführung dieses Projekts nicht möglich gewesen:

- Agroscope Institut für Nachhaltigkeitswissenschaften INH (Yvo Aeby, Christian Carrel, Philippe Corpateaux, Jakob Heusser, Marc Wymann, Joachim Sauter)
- IAG Grangeneuve (Laurent Guisolan)
- BBZN Hohenrain (Herbert Schmid, Josef Estermann, Walter Gut)
- Betrieb Generationengemeinschaft Hauert, Wengi (Adrian Hauert, Hans Hauert)
- Betrieb Andreas Schöni, Wengi
- Anstalten Witzwil (insbes. Alfred Burri, Bernhard Märki)
- Militärflugplatz Payerne (Alain Chételat)
- Familie Assandri, Scheunenberg, Wengi

Weiter haben uns Hubert Bollhalder und Elektronik Lehrling Roman Gubler sowie Manuel Schuler (beide Agroscope INH) beim Aufbau der Messgeräte und bei den Versuchen unterstützt.

6 Literaturverzeichnis

- Ammann, C., 1999. On the Applicability of Relaxed Eddy Accumulation and Common Methods for Measuring Trace gas fluxes. No. 73 in Zürcher Geographische Schriften. Geographisches Institut ETH Zürich, Zürich.
- Aubinet, M., Vesala, T., Papale, D. (Eds.), 2012. Eddy Covariance A Practical Guide to Measurement and Data Analysis. Springer, Dordrecht.
- Barton, K., 2013. MuMIn: Multi-model inference. R package version 1.9.13. URL http://CRAN.R-project.org/package=MuMIn
- Berkhout, A. J. C., van der Hoff, G. R., Bergwerff, J. B., Swart, D. J. P., Hensen, A., Kraai, A., Bleeker, A., Huijsmans, J. F. M., Mosquera, J., van Pul, W. A. J., 2008. Measuring ammonia emissions from manured fields. No. 680150003 in RIVM Report. National Institute for Public Health and the Environment, Bilthoven, The Netherlands.
- Berry, N., Zeyer, K., Emmenegger, L., Keck, M., 2005. Emissionen von Staub (PM10) und Ammoniak (NH3) aus traditionellen und neuen Stallsystemen mit Untersuchungen im Bereich der Mastschweinehaltung. Tech. rep., EMPA and Agroscope FAT Tänikon, Dübendorf and Ettenhausen, Switzerland.
- Blatter, A., Fahrni, M., Neftel, A., 1992. A new generation of nh3-passive samplers in air pollution. In: Allegrini, I. (Ed.), Air Pollution Research Report 41 Development of analytical techniques for atmospheric pollutants. Environmental Research Programme of the Commission of the European Communities, Rome, Italy, pp. 171-176.
- Builtjes, P., Banzhaf, S., Gauger, T., Hendriks, E., Kerschbaumer, A., Koenen, M., Nagel, H.-D., Schaap, M., Scheuschner, T., Schlutow, A. 2011. Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffeinträgen und ihren Wirkungen in Deutschland. Zusammenfassender Abschlussbericht. Forschungskennzahl 3707 64 200 UBA-FB 001490. Berlin, Germany: Umweltbundesamt.
- Burnham, K. P., Anderson, D. R., 2002. Model Selection and Multimodel Inference: A Practical Information-Theoretic Approach, 2nd Edition. Springer-Verlag.
- Bussink, D., 1992. Ammonia volatilization from grassland receiving nitrogen-fertilizer and rotationally grazed by dairy-cattle. Fertil. Res. 33 (3), 257-265.
- Bussink, D., 1994. Relationships between ammonia volatilization and nitrogen-fertilizer application rate, intake and excretion of herbage nitrogen by cattle on grazed swards. Fertil. Res. 38 (2), 111-121.
- Carozzi, M., Ferrara, R.M., Fumagalli, M., Sanna, M., Chiodini, M., Perego, A., Chierichetti, A., Brenna, S., Rana, G., Acutis, M. 2012. Field-scale ammonia emissions from surface spreading of dairy slurry in Po Valley. Ital. J. Agrometeorol. 17 (3): 25-34.
- Carozzi, M., Loubet, B., Acutis, M., Rana, G., Ferrara, R. M., 2013. Inverse dispersion modelling highlights the efficiency of slurry injection to reduce ammonia losses by agriculture in the Po Valley (Italy). Agric. Forest Meteorol. 171, 306-318.
- Denmead, O. T., 1995. Novel meteorological methods for measuring trace gas fluxes. Philos. T. Roy. Soc. A 351 (1696), 383-396.
- Denmead, O. T., 2008. Approaches to measuring fluxes of methane and nitrous oxide between landscapes and the atmosphere. Plant Soil 309 (1-2), 5-24.

- Denmead, O. T., Chen, D., Turner, D., Li, Y., Edis, R., 2004. Micrometeorological measurements of ammonia emissions during phases of the grazing rotation of irrigated dairy pastures. In: Proc. of Supersoil 2004: Program and Abstracts for the 3rd Australian New Zealand Soils Conference, 5 9 December 2004. University of Sydney, Sidney, Australia.
- Desjardins, R., Denmead, O., Harper, L., McBain, M., Masse, D., Kaharabata, S., 2004. Evaluation of a micrometeorological mass balance method employing an open-path laser for measuring methane emissions. Atmos. Environ. 38 (39), 6855-6866.
- EKL, 2005. Stickstoffhaltige Luftschadstoffe in der Schweiz. Status-Bericht der Eidg. Kommission für Lufthygiene (EKL). 384, Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL).
- Faulkner, W. B., Powell, J. J., Lange, J. M., Shaw, B. W., Lacey, R. E., Parnell, C. B., 2007. Comparison of dispersion models for ammonia emissions from a ground-level area source. T. ASABE 50 (6), 2189-2197.
- Felber, R., Münger, A., Neftel, A., Ammann, C., 2015. Eddy covariance methane flux measurements over a grazed pasture: effect of cows as moving point sources. Biogeosciences Discussions 12 (4), 3419-3468.
- Flechard, C. R., 1998. Turbulent exchange of ammonia above vegetation. PhD thesis, Univ. of Nottingham, Nottingham.
- Flechard, C. R., Spirig, C., Neftel, A., Ammann, C., 2010. The annual ammonia budget of fertilised cut grassland part 2: Seasonal variations and compensation point modeling. Biogeosciences 7 (2), 537-556.
- Flesch, T., Desjardins, R. L., Worth, D., 2011. Fugitive methane emissions from an agricultural biodigester. Biomass & Bioenergy 35 (9), 3927-3935.
- Flesch, T., Harper, L. A., Powell, J. A., Wilson, J. D., 2009. Inverse-dispersion calculation of ammonia emissions from wisconsin dairy farms. T. ASABE 52 (1), 253-265.
- Flesch, T., McGinn, S., Chen, D., Wilson, J., Desjardins, R., 2013. Data filtering in bls calculation of emissions rates: improvements to increase data retention. Adv. Anim. Biosci. 4, 472.
- Flesch, T., Prueger, J., Hatfield, J., 2002. Turbulent Schmidt number from a tracer experiment. Agricult. Forest Meteorol. 111 (4), 299-307.
- Flesch, T., Wilson, J., Harper, L., 2005. Deducing ground-to-air emissions from observed trace gas concentrations: A field trial with wind disturbance. J. Applied Meteorol. 44 (4), 475–484.
- Flesch, T., Wilson, J. D., Harper, L. A., Crenna, B. P., 2005. Estimating gas emissions from a farm with an inverse-dispersion technique. Atmos. Environ. 39 (27), 4863-4874.
- Flesch, T., Wilson, J. D., Harper, L. A., Crenna, B. P., Sharpe, R. R., 2004. Deducing ground-to-air emissions from observed trace gas concentrations: A field trial. J. Appl. Meteorol. 43 (3), 487-502.
- Flesch, T., Wilson, J. D., Harper, L. A., Todd, R. W., Cole, N. A., 2007. Determining ammonia emissions from a cattle feedlot with an inverse dispersion technique. Agr. Forest Meteorol. 144 (1-2), 139-155.
- Flesch, T., Wilson, J. D., Yee, E., 1995. Backward-time lagrangian stochastic dispersion models and their application to estimate gaseous emissions. J. Appl. Meteorol. 34 (6), 1320–1332.
- Flisch, R., Sinaj, S., Charles, R., Richner, W., 2009. Grundlagen für die Düngung im Acker- und Futterbau Kapitel 11-14. Agrarforschung 16, 50-71.

- Gao, Z., Desjardins, R. L., Flesch, T. K., 2009a. Comparison of a simplified micrometeorological mass difference technique and an inverse dispersion technique for estimating methane emissions from small area sources. Agr. Forest Meteorol. 149 (5), 891-898.
- Gao, Z., Desjardins, R. L., Flesch, T. K., 2010. Assessment of the uncertainty of using an inversedispersion technique to measure methane emissions from animals in a barn and in a small pen. Atmos. Environ. 44 (26), 3128-3134.
- Gao, Z., Mauder, M., Desjardins, R. L., Flesch, T. K., van Haarlem, R. P., 2009b. Assessment of the backward lagrangian stochastic dispersion technique for continuous measurements of CH4 emissions. Agr. Forest Meteorol. 149 (9), 1516–1523.
- Grant, R. H., Boehm, M. T., Lawrence, A. F., 2013. Comparison of a backward-Lagrangian stochastic and vertical radial plume mapping methods for estimating animal waste lagoon emissions. Agricult. Forest Meteorol. 180, 236–248.
- Harper, L., Denmead, O., Flesch, T., 2011. Micrometeorological techniques for measurement of enteric greenhouse gas emissions. Animal Feed Sci. Technol. 67 (SI), 227-239.
- Harper, L., Flesch, T., Powell, J., Coblentz, W. K., Jokela, W., Martin, N., 2009. Ammonia emissions from dairy production in Wisconsin. J. Dairy Sci. 92 (5), 2326-2337.
- Harper, L. A., Flesch, T., Desjardins, R., Zhiling, G., McBain, M., 2006. Backward Lagrangian dispersion analysis for determination of multiple emission sources. Tech. rep., Prelim. Rep. to Agriculture and Agri-Food Canada, cited by Harper et al. (2009), Ottawa Ontario, Canada.
- Huijsmans, J. F. M., Hol, J. M. G., Hendriks, M. M. W., 2001. Effect of application technique, manure characteristics, weather and field conditions on ammonia volatilization from manure applied to grassland. Neth. J. Agr. Sci. 49 (4), 323-342.
- Katz, P. E., 1996. Ammoniakemissionen nach der Gülleanwendung auf Grünland. PhD thesis, ETH Zürich, Zürich.
- Kupper, T., Bonjour, C., Achermann, B., Rihm, B., Zaucker, F., Menzi, H., 2013. Ammoniakemissionen in der Schweiz: Neuberechnung 1990-2010. Prognose bis 2020. Tech. rep., Berner Fachhochschule. Hochschule für Agrar-, Forst- und Lebensmittelwissenschaften, Zollikofen, Schweiz.
- Kupper, T., Bonjour, C., Menzi, H. 2015. Evolution of farm and manure management and their influence on ammonia emissions from agriculture in Switzerland between 1990 and 2010. Atmos. Environ. 103, 215-221.
- Laubach, J., 2010. Testing of a lagrangian model of dispersion in the surface layer with cattle methane emissions. Agr. Forest Meteorol. 150 (11), 1428-1442.
- Laubach, J., Kelliher, F., 2004. Measuring methane emission rates of a dairy cow herd by two micrometeorological techniques. Agric. Forest Meteorol. 125 (3-4), 279-303.
- Laubach, J., Kelliher, F., 2005. Methane emissions from dairy cows: Comparing open-path laser measurements to profile-based techniques. Agricult. Forest Meteorol. 135 (1-4), 340-345.
- Laubach, J., Kelliher, F. M., 2005. Measuring methane emission rates of a dairy cow herd (II): results from a backward-Lagrangian stochastic model. Agr. Forest Meteorol. 129 (3-4), 137-150.

- Laubach, J., Kelliher, F. M., Knight, T. W., Clark, H., Molano, G., Cavanagh, A., 2008. Methane emissions from beef cattle a comparison of paddock-and animal-scale measurements. Aust. J. Exp. Agr. 48 (1-2), 132-137.
- Laubach, J., Taghizadeh-Toosi, A., Gibbs, S., Sherlock, R., Kelliher, F., Grover, S., 2013. Ammonia emissions from cattle urine and dung excreted on pasture. Biogeosciences 10 (1), 327-338.
- Laubach, J., Taghizadeh-Toosi, A., Sherlock, R. R., Kelliher, F. M., 2012. Measuring and modelling ammonia emissions from a regular pattern of cattle urine patches. Agricult. Forest Meteorol. 156, 1-17.
- Leick, B. C., 2003. Emission von Ammoniak (NH3) und Lachgas (N2O) von landwirtschaftlich genutzten Böden in Abhängigkeit von produktionstechnischen Massnahmen.
- Leuning, R., Freney, J. R., Denmead, O. T., Simpson, J. R., 1985. A sampler for measuring atmospheric ammonia flux. Atmos. Environ. 19 (7), 1117-1124.
- Loh, Z., Chen, D., Bai, M., Naylor, T., Griffith, D., Hill, J., Denmead, T., McGinn, S., Edis, R., 2008. Measurement of greenhouse gas emissions from australian feedlot beef production using open-path spectroscopy and atmospheric dispersion modelling. Aust. J. Exp. Agr. 48 (1-2), 244-247.
- Loubet, B., Ge´ nermont, S., Ferrara, R., Bedos, G., Decuq, G., Personne, E., Fanucci, O., Durand, B., Rana, G., Cellier, P., 2010. An inverse model to estimate ammonia emissions from fields. Eur. J. Soil Sci. 61 (5), 793-805.
- Majewski, M., Glotfelty, D., Paw, K., Seiber, J., 1990. A Field comparison of Several Methods for Measuring Pesticide Evaporation Rates from Soil. Eviron. Sci. Technol. 24 (10), 1490-1497.
- Mazerolle, M. J., 2013. AlCcmodavg: Model selection and multimodel inference based on (Q)AlC(c). R package version 1.35.

 URL http://CRAN.R-project.org/package=AlCcmodavg
- McBain, M. C., Desjardins, R. L., 2005. The evaluation of a backward lagrangian stochastic (bLS) model to estimate greenhouse gas emissions from agricultural sources using a synthetic tracer source. Agr. Forest Meteorol. 135 (1-4), 61–72.
- McGinn, S., 2013. Developments in micrometeorological methods for methane measurements. Animal 7, 386-393.
- McGinn, S., Flesch, T., Harper, L., Beauchemin, K., 2006. An approach for measuring methane emissions from whole farms. J. Environ. Quality 35 (1), 14-20.
- McGinn, S. M., Beauchemin, K. A., Flesch, T. K., Coates, T., 2009. Performance of a Dispersion Model to Estimate Methane Loss from Cattle in Pens. J. Environ. Quality 38 (5), 1796-1802.
- McGinn, S. M., Flesch, T. K., Crenna, B. P., Beauchernin, K. A., Coates, T., 2007. Quantifying ammonia emissions from a cattle feedlot using a dispersion model. J. Environ. Qual. 36 (6), 1585-1590.
- McInnes, K., Kissel, D., Kanemasu, E., 1985. Estimating Ammonia Flux A Comparison bet- ween the Integrated Horizontal Flux Method and Theoretical Solutions of the Diffusion Profile. Agronomy J. 77 (6), 884-889.

- Menzi, H., Katz, P. E., Fahrni, M., Neftel, A., Frick, R., 1998. A simple empirical model based on regression analysis to estimate ammonia emissions after manure application. Atmos. Environ. 32 (3), 301-307.
- Misselbrook, T. H., Nicholson, F. A., Chambers, B. J., Johnson, R. A., 2005. Measuring ammonia emissions from land applied manure: an intercomparison of commonly used samplers and techniques. Environ. Pollut. 135 (3), 389-397.
- Neftel, A., Spirig, C., Ammann, C., 2008. Application and test of a simple tool for operational footprint evaluations. Environ. Pollut. 152 (3), 644-652.
- Ni, K., Pacholski, A., Gericke, D., Kage, H., 2013. The measurement time required for determining total NH3 losses after field application of slurries by trail hoses. J. Agricult. Sci. 151 (1), 34-43.
- Pain, B. F., Phillips, V. R., Clarkson, C. R., Klarenbeek, J. V., 1989. Loss of nitrogen through ammonia volatilization during and following the application of pig or cattle slurry to grassland. J. Sci. Food Agr. 47 (1), 1–12.
- Platt, U., Stutz, J., 2008. Differential optical absorption spectroscopy: Principles and applications. Physics of earth and space environments. Springer, Berlin.
- R Core Team, 2013. R: A Language and Environment for Statistical Computing. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria.

 URL http://www.R-project.org/
- Raupach, M., Legg, B., 1984. The uses and limitations of flux-gradient relationships in micrometeorology. Agric. Water Managem. 8 (1-3), 119–131.
- Reidy, B., Dämmgen, U., Döhler, H., Eurich-Menden, B., van Evert, F. K., Hutchings, N. J., Luesink, H. H., Menzi, H., Misselbrook, T. H., Monteny, G. J., Webb, J., 2008. Comparison of models used for national agricultural ammonia emission inventories in europe: Liquid manure systems. Atmos. Environ. 42 (14), 3452-3464.
- Ro, K. S., Johnson, M. H., Hunt, P. G., Flesch, T. K., 2011. Measuring Trace Gas Emission from Multi-Distributed Sources Using Vertical Radial Plume Mapping (VRPM) and Backward Lagrangian Stochastic (bLS) Techniques. Atmosph. 2 (3), 553–566.
- Ro, K. S., Johnson, M. H., Stone, K. C., Hunt, P. G., Flesch, T., Todd, R. W., 2013. Measuring gas emissions from animal waste lagoons with an inverse-dispersion technique. Atmos. Environ. 66 (SI), 101-106.
- Ryden, J., McNeill, J., 1984. Application of the Micrometeorological Mass Balance Method to the Determination of Ammonia Loss from a Grazed Sward. J. Sci. Food Agricult. 35 (12), 1297-1310.
- Sanz, A., Misselbrook, T., Sanz, M. J., Vallejo, A., 2010. Use of an inverse dispersion technique for estimating ammonia emission from surface-applied slurry. Atmos. Environ. 44 (7), 999-1002.
- Schjoerring, J. K., Sommer, S. G., Ferm, M., 1992. A simple passive sampler for measuring ammonia emission in the field. Water Air Soil Poll. 62 (1-2), 13-24.
- Schrade, S., Zeyer, K., Gygax, L., Emmenegger, L., Hartung, E., Keck, M., 2012. Ammonia emissions and emission factors of naturally ventilated dairy housing with solid floors and an outdoor exercise area in Switzerland. Atmos. Environ. 47, 183–194.

- Schrader, F., Brummer, C. 2014. Land use specific ammonia deposition veLOCIties: a review of recent studies (2004-2013). Water Air Soil Pollut. 225(10).
- Sintermann, J., 2011. Reduced nitrogen released by agriculture emission quantification by advanced methodology. PhD thesis, ETH Zürich, Zürich.
- Sintermann, J., Ammann, C., Kuhn, U., Spirig, C., Hirschberger, R., Gärtner, A., Neftel, A., 2011a. Determination of field scale ammonia emissions for common slurry spreading practice with two independent methods. Atmos. Meas. Tech. 4 (9), 1821-1840. URL http://www.atmos-meas-tech.net/4/1821/2011/
- Sintermann, J., Dietrich, K., Häni, C., Bell, M.J., Jocher, M., Neftel, A. 2016. A miniDOAS instrument optimised for ammonia field measurements. Atmos. Meas. Tech. 9: 2721-2734.
- Sintermann, J., Neftel, A., Ammann, C., Häni, C., Hensen, A., Loubet, B., Flechard, C. R., 2012. Are ammonia emissions from field-applied slurry substantially overestimated in european emission inventories? Biogeosciences 9, 1611-1632. URL www.biogeosciences.net/9/1611/2012/
- Sintermann, J., Spirig, C., Jordan, A., Kuhn, U., Ammann, C., Neftel, A., 2011b. Eddy covariance flux measurements of ammonia by high temperature chemical ionisation mass spectrometry. Atmos. Meas. Tech. 4 (3), 599-616.
- Søgaard, H. T., Sommer, S. G., Hutchings, N. J., Huijsmans, J. F. M., Bussink, D. W., Nicholson, F., 2002. Ammonia volatilization from field-applied animal slurry the ALFAM model. Atmos. Environ. 36 (20), 3309-3319.
- Sommer, S., Friis, E., Bach, A., Schjorring, J., 1997. Ammonia volatilization from pig slurry applied with trail hoses or broadspread to winter wheat: Effects of crop developmental stage, microclimate, and leaf ammonia absorption. J. Environ. Qual. 26 (4), 1153–1160.
- Sommer, S., Mikkelsen, H., Mellqvist, J., 1995. Evaluation of Meteorological Techniques for Measurements of Ammonia Loss from Pig Slurry. Agricult. Forest Meteorol. 74 (3-4), 169-179.
- Sommer, S. G., Ge´nermont, S., Cellier, P., Hutchings, N. J., Olesen, J. E., Morvan, T., 2003. Processes controlling ammonia emission from livestock slurry in the field. Eur. J. Agron. 19 (4), 465-486.
- Sommer, S. G., Hutchings, N. J., 2001. Ammonia emission from field applied manure and its reduction invited paper. Eur. J. Agron. 15 (1), 1-15.
- Sommer, S. G., McGinn, S. M., Flesch, T. K., 2005. Simple use of the backwards lagrangian stochastic dispersion technique for measuring ammonia emission from small field-plots. Eur. J. Agron. 23 (1), 1-7.
- Sommer, S. G., Olesen, J. E., 1991. Effects of dry-matter content and temperature on ammonia loss from surface-applied cattle slurry. J. Environ. Qual. 20 (3), 679-683.
- Sommer, S. G., Olesen, J. E., 2000. Modelling ammonia volatilization from animal slurry applied with trail hoses to cereals. Atmos. Environ. 34 (15), 2361-2372.
- Spirig, C., Flechard, C. R., Ammann, C., Neftel, A., 2010. The annual ammonia budget of fertilised cut grassland part 1: Micrometeorological flux measurements and emissions after slurry application. Biogeosciences 7 (2), 521-536.
- Stull, R. B., 1988. An Introduction to Boundary Layer Meteorology. Kluwer Academic Publisher, Dordrecht.

- Tomkins, N. W., McGinn, S. M., Turner, D. A., Charmley, E., 2011. Comparison of open-circuit respiration chambers with a micrometeorological method for determining methane emissions from beef cattle grazing a tropical pasture. AnimalL Feed Sci. Technol. 166-67 (SI), 240-247.
- UNECE, 2014. Guidance document for preventing and abating ammonia emissions from agricultural sources. Paper ECE/EB.AIR/120, February 7, 2014. Geneva, Switzerland: United Nations Economic Commission for Europe (UNECE).
- van Haarlem, R. P., Desjardins, R. L., Gao, Z., Crenna, T. K., Li, X., 2008. Methane and ammonia emissions from a beef feedlot in western canada for a twelve-day period in the fall. Can. J. Anim. Sci. 88 (4), 641-649.
- Vandre, R., Clemens, J., Goldbach, H., Kaupenjohann, M., 1997. NH3 and N2O emissions after landspreading of slurry as influenced by application technique and dry matter-reduction. 1. NH, emissions. Z. Pflanz. Bodenkunde 160 (3), 303-307.
- Volten, H., Bergwerff, J. B., Haaima, M., Lolkema, D. E., Berkhout, A. J. C., van der Hoff, G. R., Potma, C. J. M., Kruit, R. J. W., van Pul, W. A. J., Swart, D. P. J., 2012. Two instruments based on differential optical absorption spectroscopy (DOAS) to measure accurate ammonia concentrations in the atmosphere. Atmos. Meas. Tech. 5 (2), 413-427.
- Webb, J., Pain, B., Bittman, S., Morgan, J., 2010. The impacts of manure application methods on emissions of ammonia, nitrous oxide and on crop response-A review. Agr. Ecosyst. Environ. 137 (1-2), 39-46.
- Webb, J., Sommer, S., Kupper, T., Groenestein, C., Hutchings, N., Eurich-Menden, B., Rodhe, L.and Misselbrook, T., Amon, B., 2012. Emissions of ammonia, nitrous oxide and methane during the management of solid manures. a review. In: Lichtfouse, E. (Ed.), Agroecology and Strategies for Climate Change. Springer-Verlag GmbH, Heidelberg, Germany, pp. 67-108.
- Wilson, J., Flesch, T., Bourdin, P., 2010. Ground-to-Air Gas Emission Rate Inferred from measured concentration rise within a disturbed atmospheric surface layer. J. Applied Meteorol. Climatol. 49 (9), 1818–1830.
- Wilson, J. D., Catchpoole, V. R., Denmead, O. T., Thurtell, G. W., 1983. Verification of a simple micrometeorological method for estimating the rate of gaseous mas-transfer from the ground tothe atmosphere. Agr. Forest Meteorol. 29 (3), 183–189.
- Wilson, J. D., Shum, W. K. N., 1992. A re-examination of the integrated horizontal flux method for estimating volatilization from circular plots. Agr. Forest Meteorol. 57 (4), 281–295.
- Wilson, J. D., Thurtell, G. W., Kidd, G. E., Beauchamp, E. G., 1982. Estimation of the rate of gaseous mass-transfer from a surface source plot to the atmosphere. Atmos. Environ. 16 (8), 1861–1867.
- Yang, W., Zhu, A., Zhang, J., Zhang, X., Che, W. 2016. Assessing the backward Lagrangian stochastic model for determining ammonia emissions using a synthetic source. Agr. Forest. Meteorol. 216, 13-19.

7 Anhänge Messhöhen der durchgeführten Versuche

	Datum Applikation	Ort	Parzelle	untere Höhe(n)	obere Höhe(n)
F1	20.09.2011	Tänikon	Klein	94*	154
			Mittel	88*	161
			Gross	91*	160
F2	08.11.2011	Posieux	Gross	92*/92	160/160
			Mittel	92*	160
F3	10.05.2012	Hohenrain	Mittel	90*	160
			Gross	90*/90	160/160
A1	14.07.2011	Tänikon	Pt	90*	160
			Ssl kurzes Gras	109*	177
			SsI langes Gras	92*	161
A2	12.03.2012	Posieux	Ssu	92*	160
·		. 00.00%	Pt	92*	160
			Ssl	92*	160
A3	04.07.2012	Posieux	Ssu	101*	100
~3	04.07.2012	Tosleux	Ssl	104*	
			Pt	104*	
A4	14.08.2012	Posieux	Ssu	100*	
~ 4	17.00.2012	rusieux	Ssl	100*	
			Pt	95*	
					1 5 7
^	14.11.2012		Inj	70*	157
A 5	14.11.2012	Posieux	Ssu	75*	150
			Ssl	75*	150
			Pt	75*	150
A6	06.05.2013	Posieux	Pt	67*	96
			Ssl	67*	96
			Ssu	67*	96
G1	15.03.2012	Wengi	RVG	92*	160
			ZSG	92*	160
			MSG	92*	160
G2	24.05.2012	Wengi	ZSG	90*	160
			RVG	90*	160
			MSG	90*	160
G3	19.11.2012	Wengi	ZSG	75*	150
			MSG	75*	150
			RVG	75*	150
TS1	12.06.2013	Wengi	30 tief	62*	97
		- 3	30 hoch	67*	94
			15 hoch	66*	95
TS2	10.07.2013	Wengi	Pt	62*	88
			Inj RVG	63*	90
			Inj Konz	66*	90
TS3	11.03.2014	Wengi	P1	60	90*
	11.03.2017	Wengi	P2	60	90*
			P3	60	90*
Z1	27./28.08.2012	Tänikon	Abend	90*	160
∠ I	21./20.00.2012	Tallikuli	Morgen	90*	160
			_		
70	04 (05 07 2012	T2!!	Mittag	61/90*	160/300
Z2	04./05.07.2013	Tänikon	Abend	62*	155
			Morgen	64*	96
			Mittag	63*	98

^{*} Die für die Ausbreitungsmodellierung verwendeten Messhöhen. Begründung für die Wahl der in der Regel tieferen Messhöhe: vgl. Kap. 2.6.3. Auf dieser Höhe resultierten im Mittel tendenziell höhere Emissionen. Ausnahme Versuch TS3: höhere Emissionen auf der Höhe 90 cm, weshalb in diesem Fall diese höhere Messhöhe für die Ausbreitungsmodellierung verwendet wurde. Die Emissionen berechnet basierend den beiden Messhöhen unterscheiden sich wenig (relative Differenz mehrheitlich < 10 %).

Wichtigste Resultate der durchgeführten Versuche

Wichtigste Resultate der durchgeführten Versuche. Pt: Prallteller. Ssl: Schleppschlauch. Ssu: Schleppschuh. Inj: Gülledrill. RVG: Rindviehvollgülle. MSG: Mastschweingülle. ZSG: Zuchtschweingülle. Konz: Konzentrat.

Versuchs ID	Verfahren	Gülle	TAN-Gehalt der Gülle (g/L)	TS-Gehalt der Gülle (%)	Applikationsmenge (t/ha)	Parzellengrösse (m2)	Emission nach 24 h (% TAN)	Emission nach 96 h (% TAN)	Nmax aus Menten-Fit (% TAN)	Km aus Ment6en-Fit (Min)	Emission bei Versuchsende (% TAN)	Emissionsminderung im Vergleich zum Prallteller (%)	Bemerkungen
F1	Pt	RVG	1.06	3.67	27.8	137	12.6	14.5	14.5	89	13.6	-	
F1	Pt	RVG	1.06	3.67	28.0	1027	14.2	16.6	15.4	91	15.5	-	
F1	Pt	RVG	1.05	3.63	31.6	5354	18.3	21.8	20.9	115	20.4	-	
F2	Pt	RVG	1.19	2.13	27.2	985	11.3	12.9	12.4	159	12.4	-	Herbstweide bis Ver- suchsstart
F2	Pt	RVG	1.16	1.52	28.8	6029	13.2	14.8	16.2	165	14.4	-	
F3	Ssl	RVG	0.71	2.53	28.2	1334	4.3	4.6	4.3	99	4.3	-	Probleme bei Ausbrin- gung mit Schlepp- schlauch
F3	SsI	RVG	0.71	2.68	27.1	5081	3.7	4.0	4.0	83	3.8	-	
A 1	Pt	RVG	1.05	3.67	22.2	1417	25.3	29.9	30.4	70	26.4	-	
A 1	SsI	RVG	1.05	3.64	27.3	1471	18.2	23.1	25.2	112	19.0	28	Gras kurz
A1	Ssl	RVG	1.04	3.61	32.1	1359	11.9	16.0	12.5	115	13.2	50	Gras lang
A 2	Pt	RVG	0.69	3.35	24.0	1233	11.8	13.4	13.0	90	12.0	-	
A2	Ssl	RVG	0.69	3.55	18.8	2082	7.4	10.5	10.6	598	7.5	38	Probleme bei Ausbrin- gung mit Schlepp- schlauch
A2	Ssu	RVG	0.70	3.01	25.1	1158	3.5	3.5	5.2	260	3.5	71	
A 3	Pt	RVG	0.68	2.90	26.7	968	28.1	30.6	28.8	70	27.8	-	
А3	SsI	RVG	0.69	3.32	22.6	1480	9.1	10.3	10.7	213	9.1	67	
A 3	Ssu	RVG	0.68	2.50	19.2	979	10.4	12.2	12.5	211	10.2	63	
A4	Pt	RVG	0.66	2.60	18.6	1043	24.7	29.0	25.5	26	27.9	-	
A4	SsI	RVG	0.67	2.74	22.5	1367	11.4	14.6	12.6	101	13.8	51	
A4	Ssu	RVG	0.67	2.63	27.6	954	10.3	12.2	11.4	104	11.3	59	
A4	Inj	RVG	0.66	2.52	24.2	1092	5.9	6.9	5.8	65	6.6	76	
A5	Pt	RVG	0.72	1.04	28.2	1043	9.6	14.0	10.4	84	12.9	-	
A5	SsI	RVG	0.72	1.04	31.5	1367	3.3	6.3	3.7	126	5.4	58	
A5	Ssu	RVG	0.65	1.51	25.7	954	4.8	9.6	5.6	157	8.3	36	

Fortsetzung: Wichtigste Resultate der durchgeführten Versuche. Pt: Prallteller. Ssl: Schleppschlauch. Ssu: Schleppschuh. Inj: Gülledrill. RVG: Rindviehvollgülle. MSG: Mastschweingülle. ZSG: Zuchtschweingülle. Konz: Konzentrat.

Versuchs ID	Verfahren	Gülle	TAN-Gehalt der Gülle (g/L)	TS-Gehalt der Gülle (%)	Applikationsmenge (t/ha)	Parzellengrösse (m2)	Emission nach 24 h (% TAN)	Emission nach 96 h (% TAN)	Nmax aus Menten-Fit (% TAN)	Km aus Ment6en-Fit (Min)	Emission bei Versuchsende (% TAN)	Emissionsminderung im Vergleich zum Prallteller (%)	Bemerkungen
A6	Pt	RVG	0.58	2.49	18.8	1030	14.7	14.9	15.5	64	14.9	-	
A6	Ssl	RVG	0.59	2.60	19.8	1592	5.4	5.8	6.3	153	5.8	61	
A6	Ssu	RVG	0.57	1.72	26.9	1121	8.5	9.4	8.9	129	9.4	37	
G1	Pt	RVG	1.21	2.36	28.3	1077	-	9.8	8.1	75	8.0	-	
G1	Pt	MSG	2.11	3.30	26.4	1063	-	5.9	4.6	56	5.0	-	
G1	Pt	ZSG	1.75	2.14	26.8	1078	-	7.3	6.2	75	6.1	-	
G2	Pt	RVG	1.58	3.69	25.7	1135	16.8	21.6	16.5	74	20.3	-	
G2	Pt	MSG	1.58	1.24	28.8	969	12.4	15.0	12.7	83	14.3	-	
G2	Pt	ZSG	1.73	3.19	26.0	1082	9.7	12.2	10.6	84	11.2	-	
G3	Pt	RVG	1.65	3.77	26.7	925	14.3	16.4	17.9	305	15.8	-	
G3	Pt	MSG	1.60	1.43	25.5	921	9.6	15.0	10.4	194	11.7	-	
G3	Pt	ZSG	1.66	1.00	24.6	1008	7.2	9.9	8.0	168	8.5	-	
TS1	Pt	RVG	1.45	4.92	26.2	1019	23.5	32.9	28.2	240	27.7	-	
TS1	Pt	RVG	1.66	5.74	18.8	894	34.8	47.3	38.6	130	39.6	-	
TS1	Pt	RVG	1.68	5.68	26.3	967	33.3	42.4	36.4	125	36.8	-	
TS2	Pt	RVG	1.89	6.69	25.8	874	42.1	45.9	44.5	86	45.6	-	
TS2	lnj	RVG	1.85	9.08	25.7	1297	36.3	42.0	42.3	197	43.9	-	Probleme bei Ausbringung mit Gülledrill. Dickflüssige Gülle blieb auf der Oberfläche liegen.
TS2	Inj	Konz	6.09	4.59	19.7	1203	6.4	9.0	6.4	76	9.4	-	
TS3	Pt	RVG	1.71	6.47	30.1	1055	34.3	37.0	41.4	116	35.9	-	
TS3	Pt	RVG	1.65	6.48	29.6	1084	25.6	28.7	30.0	120	27.4	-	
TS3	Pt	RVG	1.70	5.95	29.9	983	36.3	40.0	42.2	113	38.3	-	
Z1	Pt	RVG	0.82	3.01	30.6	1554	17.4	19.1	15.6	56	17.9		Abend
Z1	Pt	RVG	0.82	3.01	28.9	1593	16.6	18.1	20.5	229	17.1		Morgen
Z1	Pt	RVG	0.82	3.01	29.2	1515	24.0	25.1	24.0	46	24.3	-	Mittag
Z2	Ssl	RVG	1.27	5.04	26.2	992	17.3	23.6	16.5	271	23.0		Abend
Z2	Ssl	RVG	1.28	5.06	28.7	930	9.9	15.3	17.1	609	14.4	-	Morgen
Z2	Ssl	RVG	1.28	5.03	28.5	942	20.3	24.1	22.7	223	23.9	-	Mittag

A. Anhang Steckbriefe der einzelnen Versuche

A.1 Standort Hohenrain

A.1.1 Versuch F3 (Hohenrain, 10.05.2012)

Übersicht

Tabelle A.1: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
Parzelle Mittel	Ssl	RVG	10.05.2012 09:40 MESZ	11.05.2012 15:41 MESZ	1334	16	28.2
Parzelle Gross	Ssl	RVG	10.05.2012 10:30 MESZ	11.05.2012 16:02 MESZ	5081	15	27.1

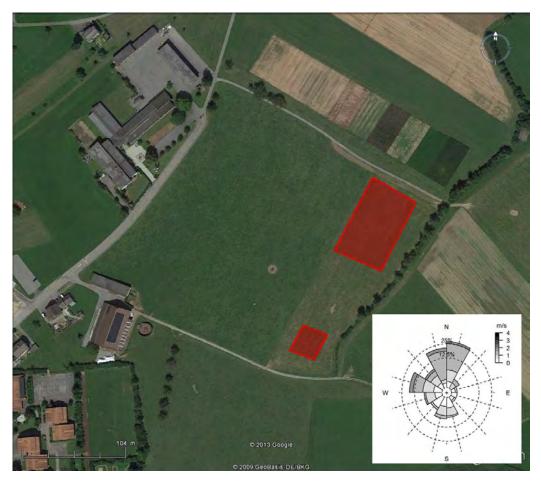


Abbildung A.1: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Gülleeigenschaften

Tabelle A.2: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	рН
Parzelle Mittel Parzelle Gross	0.73	1.26	0.53	2.59	19.1	6.9	6.9
	0.73	1.27	0.54	2.75	20.7	6.8	6.9

Meteorologie

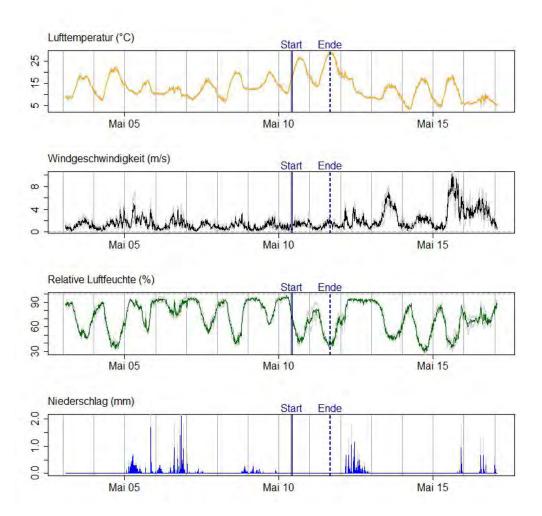


Abbildung A.2: Aufzeichnung der Wetterstationen Cham (ZG) und Luzern. Die Grafik zeigt die gemittelten Werte der Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie der 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Hellgrau eingezeichnet sind die effektiv gemessenen Werte der einzelnen Stationen. Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.3: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Parzelle Mittel	4.1	4.5	4.3	4.3	99	0.9
Parzelle Gross	3.6	3.9	3.7	4	83	0.8

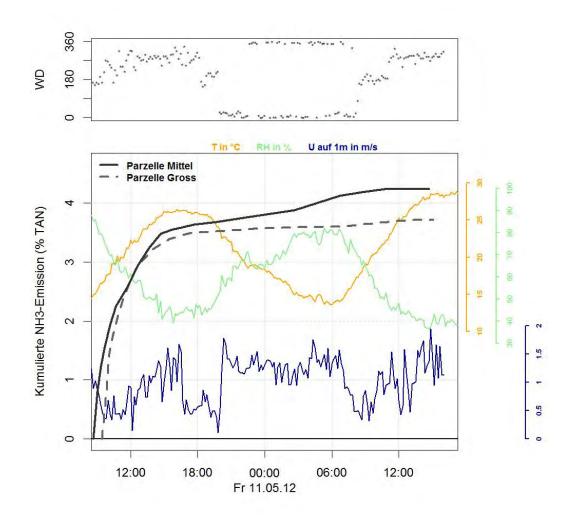
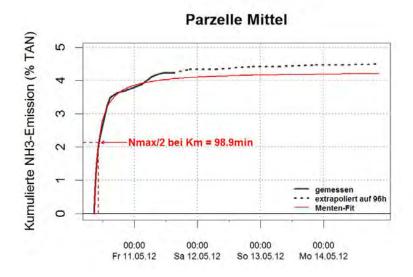


Abbildung A.3: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).



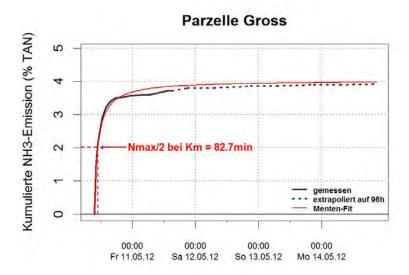


Abbildung A.4: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.2 Standort Posieux

A.2.1 Versuch F2 (Posieux, 08.11.2011)

Übersicht

Tabelle A.4: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
Parzelle Mittel	Pt	RVG	08.11.2011 12:41 MEZ	10.11.2011 13:27 MEZ	985	8	27.2
Parzelle Gross	D+	RVG	08.11.2011 11:44 MEZ	10.11.2011 14:14 MEZ	6029	10	28.8

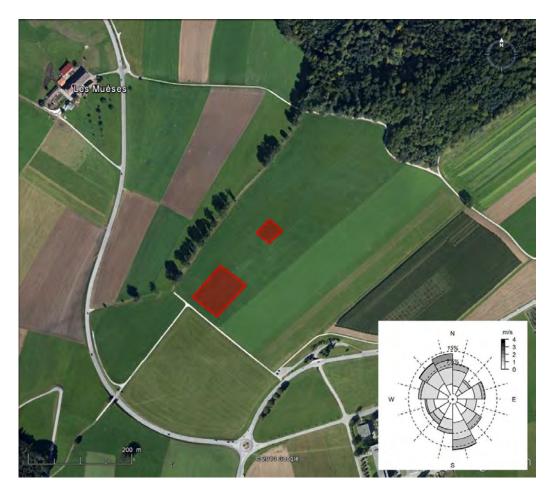


Abbildung A.5: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.5: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	рН
Parzelle Mittel	1.19	1.83	0.64	2.13	15.2	6.1	7.3
Parzelle Gross	1.16	1.88	0.72	1.52	10.3	4.9	7.2

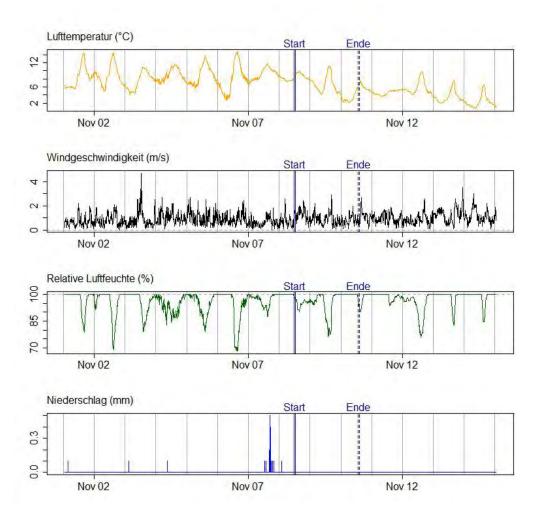


Abbildung A.6: Aufzeichnung der Wetterstation Fribourg / Posieux. Die Grafik zeigt die Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie die 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.6: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Feld Mittel	11.3	12.9	12.4	12.4	159	4.2
Feld Gross	13.2	14.8	14.4	16.2	165	4.9

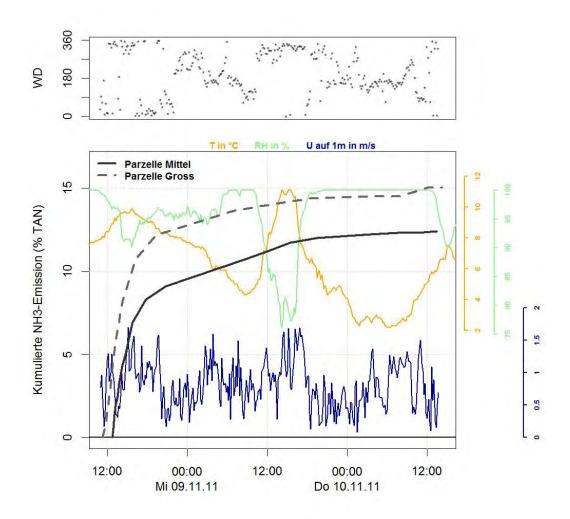
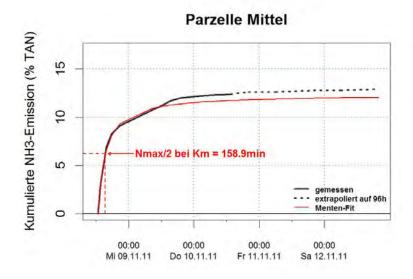


Abbildung A.7: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).



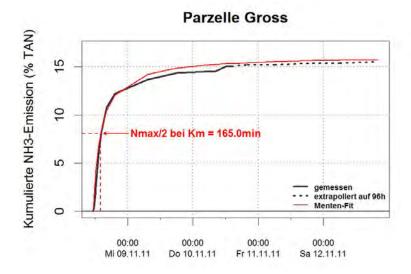


Abbildung A.8: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.2.2 Versuch A2 (Posieux, 12.03.2012)

Übersicht

Tabelle A.7: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m^2)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
Prallteller	Pt	RVG	12.03.2012 11:33 MEZ	13.03.2012 12:23 MEZ	1233	8	24
Schleppschlauch	Ssl	RVG	12.03.2012 12:25 MEZ	13.03.2012 12:34 MEZ	2082	8	18.8
Schleppschuh	Ssu	RVG	12.03.2012 11:14 MEZ	13.03.2012 12:08 MEZ	1158	7	25.1

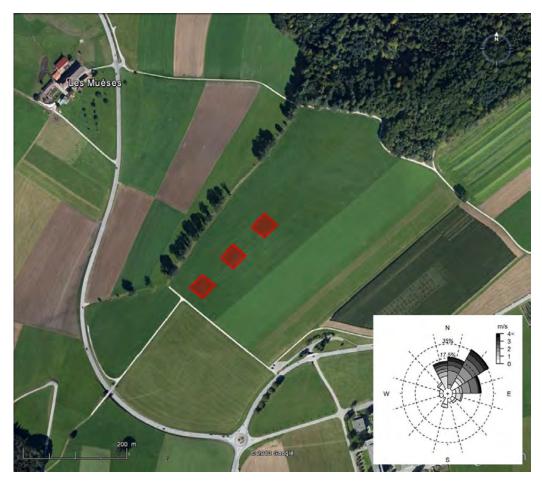


Abbildung A.9: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.8: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	рН
Prallteller	0.71	1.42	0.71	3.44	28.1	6.4	6.8
Schleppschlauch	0.72	1.42	0.7	3.66	26.1	10.6	6.9
Schleppschuh	0.72	1.34	0.62	3.09	21.1	9.9	6.8

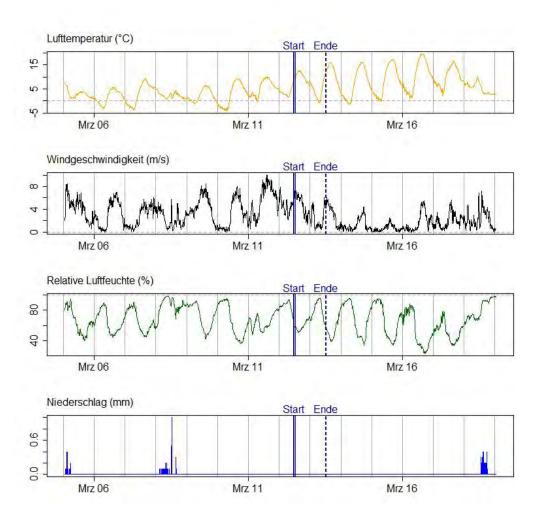


Abbildung A.10: Aufzeichnung der Wetterstation Fribourg / Posieux. Die Grafik zeigt die Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie die 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.9: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Prallteller	11.5	13	11.7	13	90	2.2
Schleppschlauch	7.1	10.1	7.2	10.6	598	1.4
Schleppschuh	3.4	3.4	3.4	5.2	260	0.6

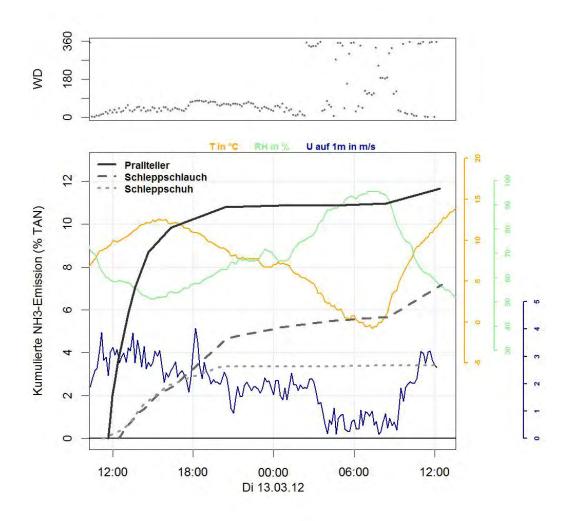
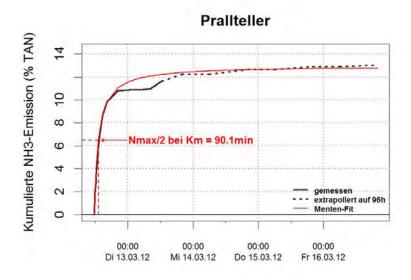
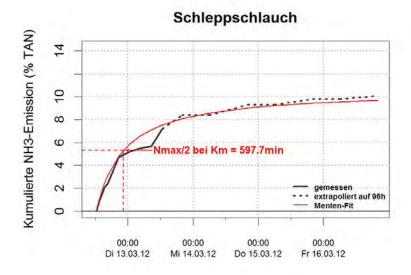


Abbildung A.11: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





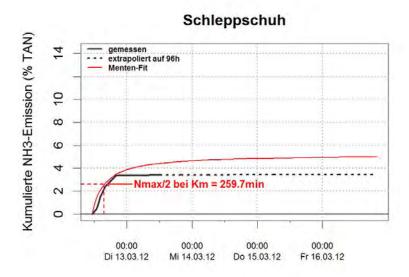


Abbildung A.12: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.2.3 Versuch A3 (Posieux, 04.07.2012)

Übersicht

Tabelle A.10: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)	
Praliteller	Pt	RVG	04.07.2012 11:34 MESZ	05.07.2012 12:55 MESZ	968	15	26.7	
Schleppschlauch	Ssl	RVG	04.07.2012 11:08 MESZ	05.07.2012 12:59 MESZ	1480	15	22.6	
Schleppschuh	Ssu	RVG	04.07.2012 10:53 MESZ	05.07.2012 13:05 MESZ	979	15	19.2	

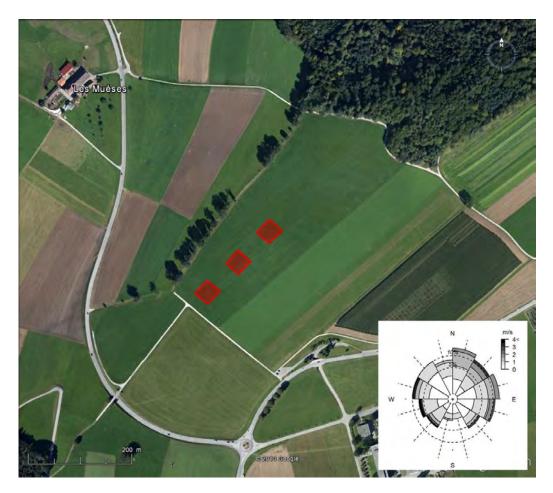


Abbildung A.13: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.11: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	pН
Prallteller	0.7	1.33	0.63	2.98	19.8	10.1	7.7
Schleppschlauch	0.7	1.41	0.71	3.39	23.3	10.7	7.7
Schleppschuh	0.69	1.34	0.65	2.55	16.1	9.4	7.7

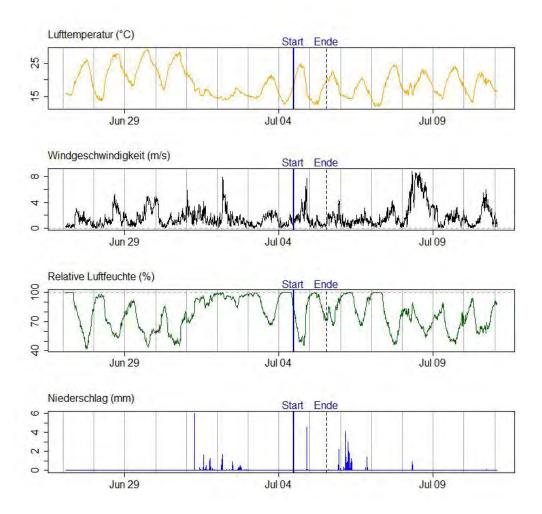


Abbildung A.14: Aufzeichnung der Wetterstation Fribourg / Posieux. Die Grafik zeigt die Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie die 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.12: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Prallteller	27.3	29.7	27.8	28.8	70	5.6
Schleppschlauch	9	10.1	9	10.7	213	1.6
Schleppschuh	10.3	12	10.2	12.5	211	1.6

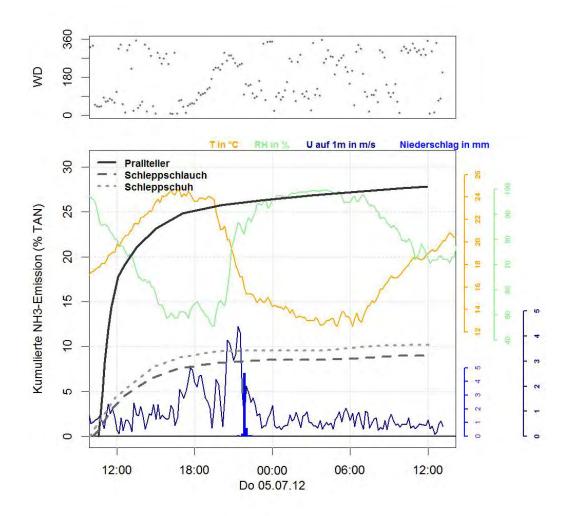
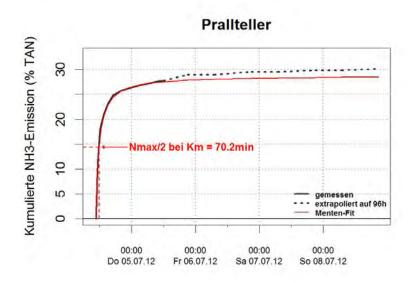
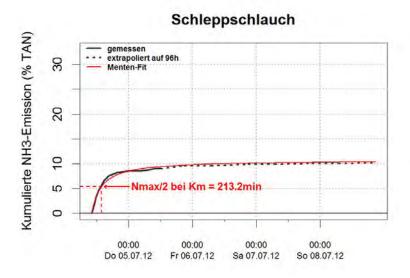


Abbildung A.15: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





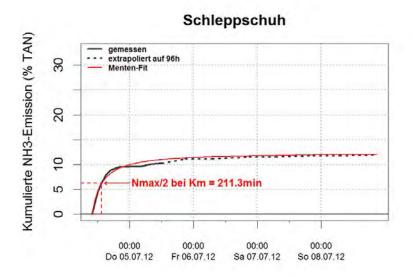


Abbildung A.16: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.2.4 Versuch A4 (Posieux, 14.08.2012)

Übersicht

Tabelle A.13: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)	
Praliteller	Pt	RVG	14.08.2012 11:28 MESZ	16.08.2012 12:59 MESZ	1043	16	18.6	
Schleppschlauch	Ssl	RVG	14.08.2012 11:11 MESZ	16.08.2012 13:12 MESZ	1367	15	22.5	
Schleppschuh	Ssu	RVG	14.08.2012 10:41 MESZ	16.08.2012 13:12 MESZ	954	14	27.6	
Gülledrill	Gud	RVG	14.08.2012 14:05 MESZ	16.08.2012 13:23 MESZ	1092	14	24.2	

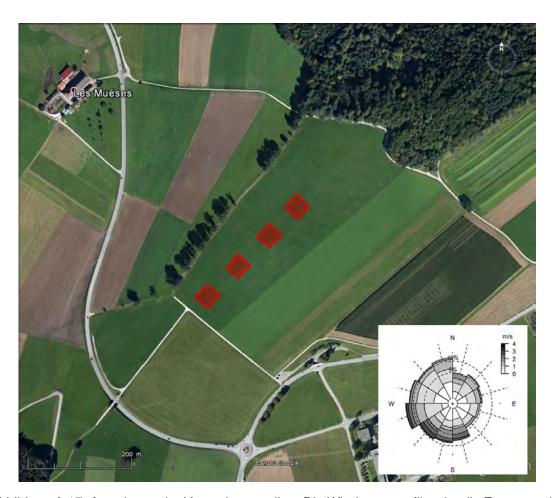


Abbildung A.17: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.14: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	рН
Prallteller	0.68	1.31	0.63	2.68	17.1	9.8	7.7
Schleppschlauch	0.69	1.31	0.62	2.79	18	10	7.7
Schleppschuh	0.69	1.31	0.62	2.71	17.3	9.9	7.7
Gülledrill	0.68	1.32	0.64	2.6	16.7	9.4	7.8

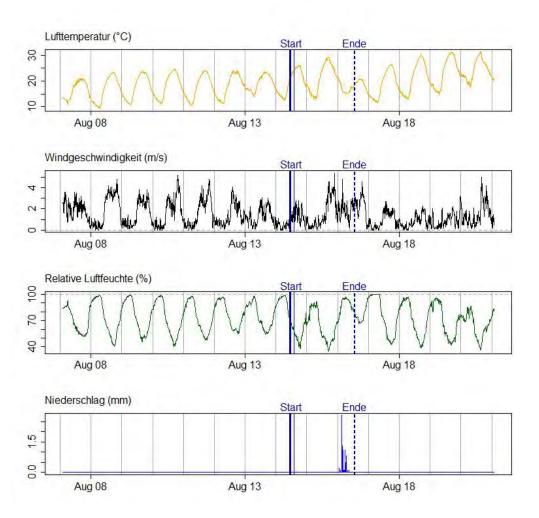


Abbildung A.18: Aufzeichnung der Wetterstation Fribourg / Posieux. Die Grafik zeigt die Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie die 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.15: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Prallteller	24	28.1	27.9	25.5	26	3.6
Schleppschlauch	11.1	14.2	13.8	12.6	101	2.2
Schleppschuh	10	11.8	11.3	11.4	104	2.2
Gülledrill	5.7	6.7	6.6	5.8	65	1.1

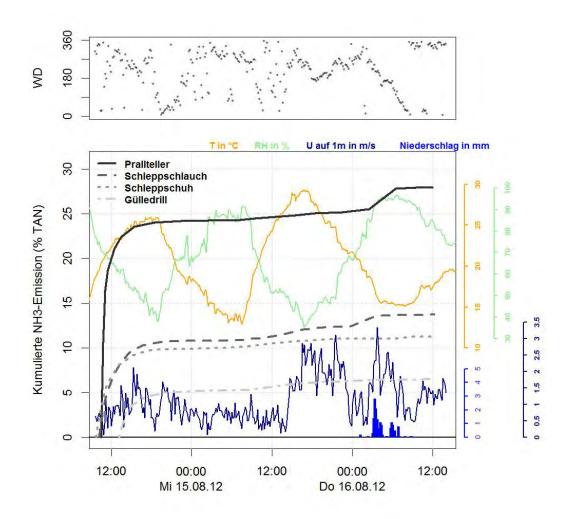
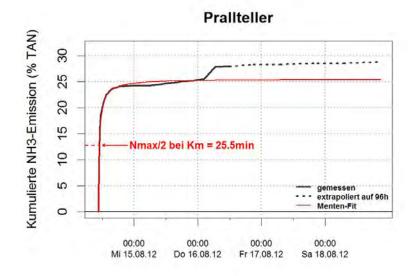
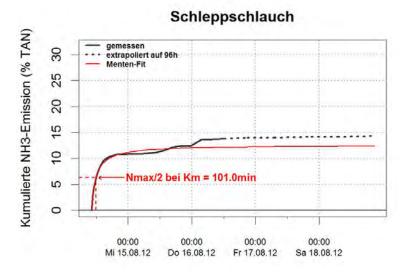
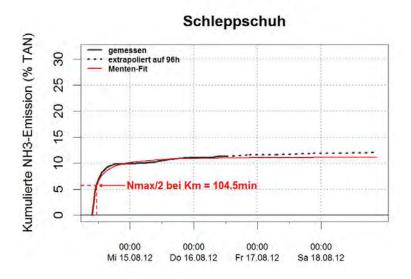
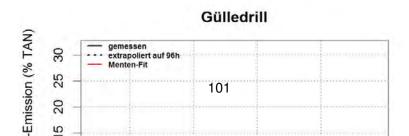


Abbildung A.19: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).









A.2.5 Versuch A5 (Posieux, 14.11.2012)

Übersicht

Tabelle A.16: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
Praliteller	Pt	RVG	14.11.2012 11:59 MEZ	16.11.2012 19:23 MEZ	1043	12	28.2
Schleppschlauch	Ssl	RVG	14.11.2012 11:41 MEZ	16.11.2012 19:29 MEZ	1367	13	31.5
Schleppschuh	Ssu	RVG	14.11.2012 11:25 MEZ	16.11.2012 19:46 MEZ	954	11	25.7

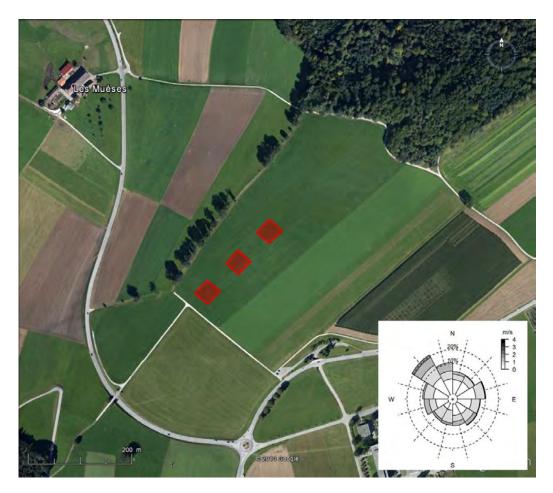


Abbildung A.21: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.17: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	pН
Prallteller	0.72	1.69	0.97	1.04	3.3	7.2	7.7
Schleppschlauch	0.72	1.69	0.97	1.04	3.3	7.2	7.7
Schleppschuh	0.65	1.14	0.49	1.51	5.2	9.9	7.8

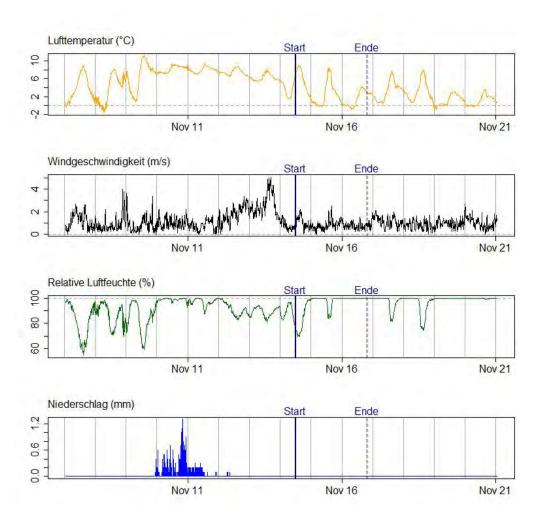


Abbildung A.22: Aufzeichnung der Wetterstation Fribourg / Posieux. Die Grafik zeigt die Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie die 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.18: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Prallteller	9.6	14	12.9	10.4	84	2.8
Schleppschlauch	3.3	6.3	5.4	3.7	126	1.4
Schleppschuh	4.8	9.6	8.3	5.6	157	1.6

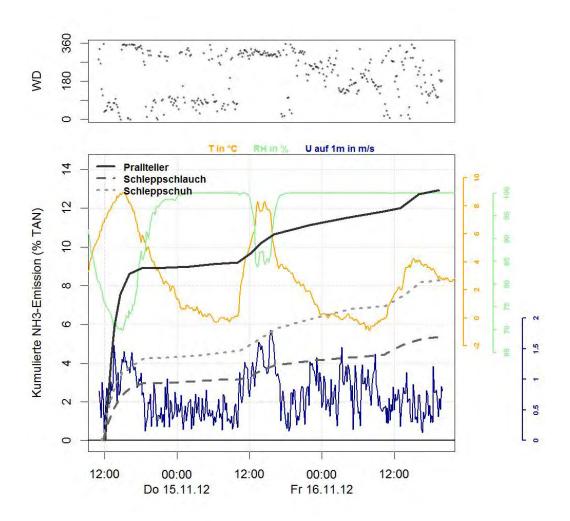
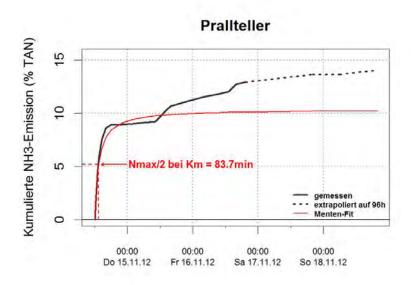
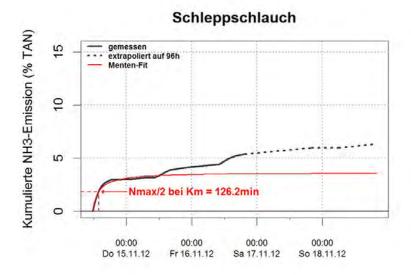


Abbildung A.23: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





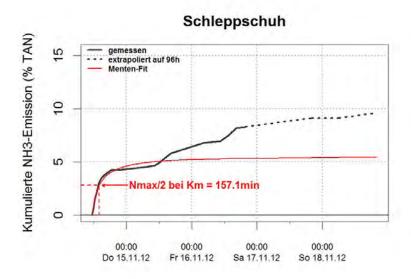


Abbildung A.24: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.2.6 Versuch A6 (Posieux, 06.05.2013)

Übersicht

Tabelle A.19: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
Praliteller	Pt	RVG	06.05.2013 11:11 MESZ	08.05.2013 13:28 MESZ	1030	13	18.8
Schleppschlauch	Ssl	RVG	06.05.2013 11:31 MESZ	08.05.2013 13:33 MESZ	1592	14	19.8
Schleppschuh	Ssu	RVG	06.05.2013 13:37 MESZ	08.05.2013 13:42 MESZ	1121	13	26.9

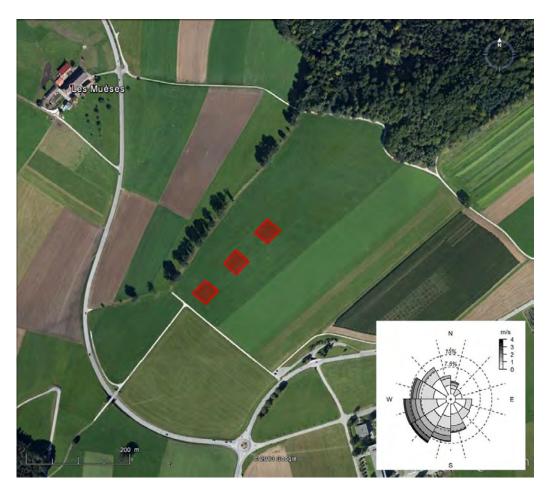


Abbildung A.25: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.20: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	рН
Prallteller	0.6	1.17	0.57	2.56	16.3	9.3	7.2
Schleppschlauch	0.6	1.15	0.55	2.65	16.5	10	7.3
Schleppschuh	0.58	1.03	0.45	1.75	10.3	7.2	7.2

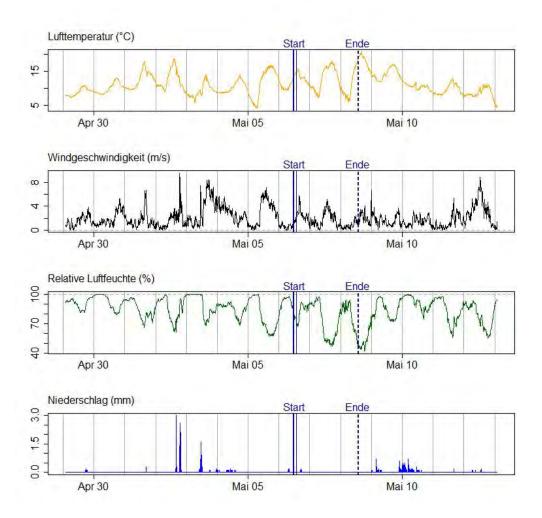


Abbildung A.26: Aufzeichnung der Wetterstation Fribourg / Posieux. Die Grafik zeigt die Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie die 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.21: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Prallteller	14.2	14.4	14.4	15.5	64	1.6
Schleppschlauch	5.3	5.7	5.7	6.3	153	0.7
Schleppschuh	8.3	9.2	9.2	8.9	129	1.4

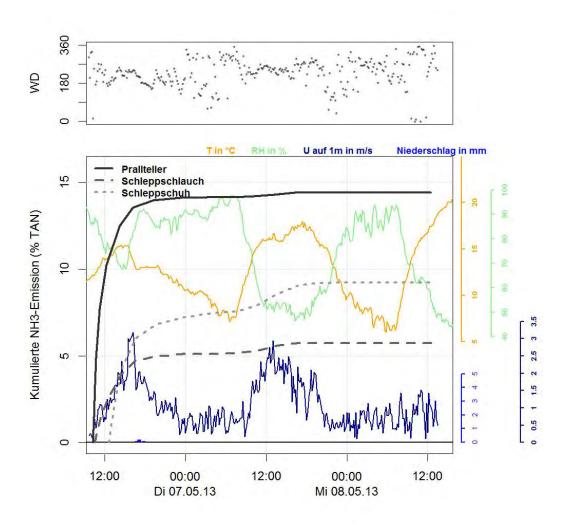
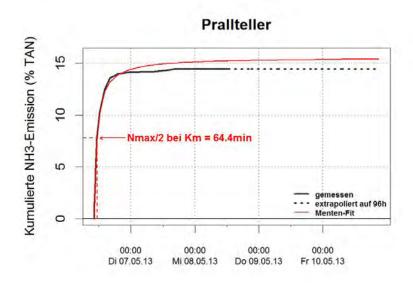
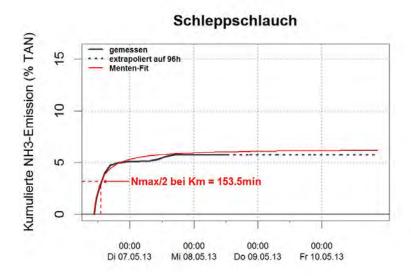


Abbildung A.27: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





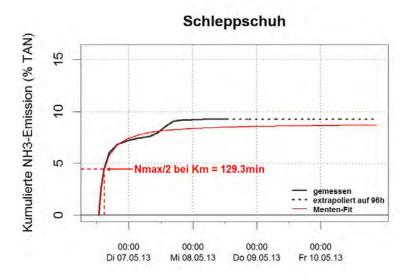


Abbildung A.28: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.3 Standort Tänikon

A.3.1 Versuch A1 (Tänikon, 14.07.2011)

Übersicht

Tabelle A.22: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)		
Praliteller	Pt	RVG	14.07.2011 10:28 MESZ	15.07.2011 14:59 MESZ	1417	10	22.2	
Ssl kurzes Gras Ssl langes Gras	Ssl Ssl	RVG RVG	14.07.2011 10:57 MESZ 14.07.2011 11:20 MESZ	15.07.2011 15:07 MESZ 15.07.2011 15:19 MESZ	1471 1359	10 18	27.3 32.1	



Abbildung A.29: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Gülleeigenschaften

Tabelle A.23: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle. Ssl: Schleppschlauch.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	pН
Prallteller	1.05	2.02	0.97	3.67	26.7	10	7.1
Ssl kurzes Gras	1.05	2.04	0.99	3.64	26.4	10	7.1
Ssl langes Gras	1.04	2.04	1	3.61	26.1	10	7.1

Meteorologie

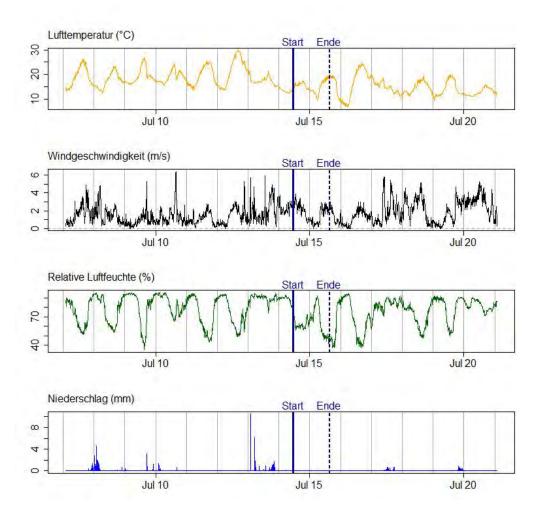


Abbildung A.30: Aufzeichnung der Wetterstation Aadorf / Tänikon. Die Grafik zeigt die Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie die 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.24: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben. Ssl: Schleppschlauch.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Prallteller	25.3	29.9	26.4	26.8	61	7.0
Ssl kurzes Gras	18.2	23.1	19	19.6	144	6.6
Ssl langes Gras	11.9	16	13.2	12.6	132	5.3

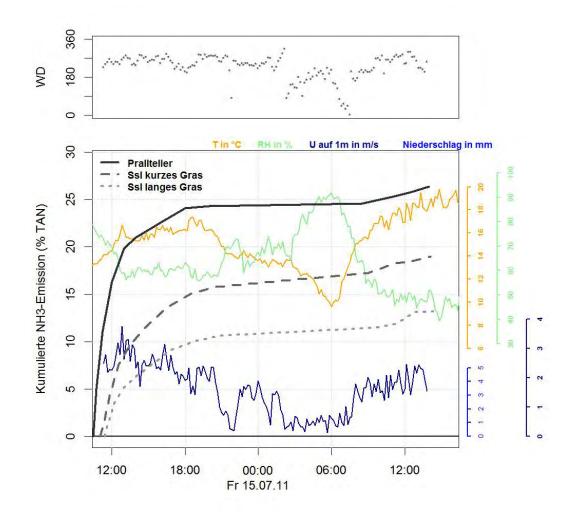
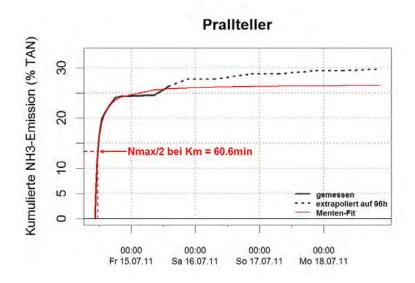
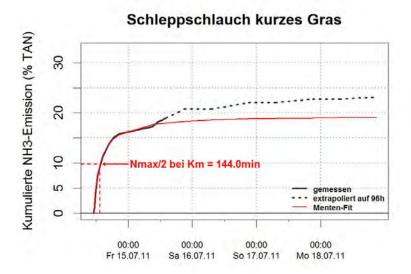


Abbildung A.31: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





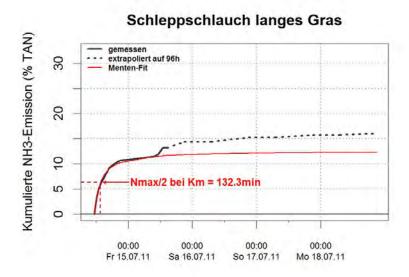


Abbildung A.32: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.3.2 Versuch F1 (Tänikon, 20.09.2011)

Übersicht

Tabelle A.25: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)	
Parzelle Klein	Pt	RVG	20.09.2011 11:08 CEST	22.09.2011 14:52 CEST	137	15	27.8	
Parzelle Mittel	Pt	RVG	20.09.2011 11:18 CEST	22.09.2011 15:04 CEST	1027	15	28	
Parzelle Gross	Pt	RVG	20.09.2011 12:02 CEST	22.09.2011 15:12 CEST	5354	15	31.6	



Abbildung A.33: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.26: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	pН
Parzelle Klein	1.06	2	0.94	3.67	15.9	20.8	7.3
Parzelle Mittel	1.06	2	0.94	3.67	15.9	20.8	7.3
Parzelle Gross	1.05	1.99	0.94	3.63	15.7	20.6	7.3

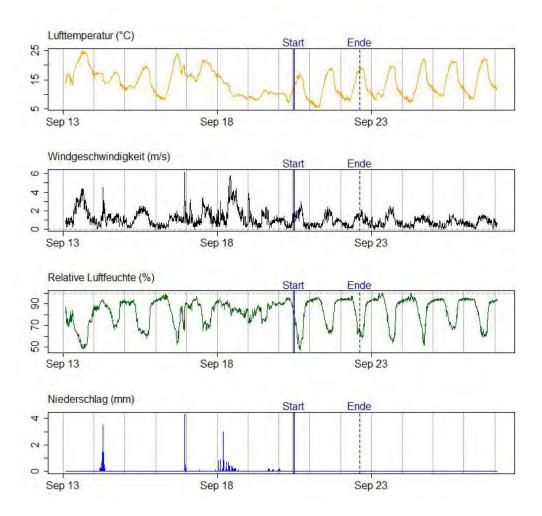


Abbildung A.34: Aufzeichnung der Wetterstation Aadorf / Tänikon. Die Grafik zeigt die Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie die 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.27: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Parzelle Klein	12.6	14.5	13.6	14.5	89	4.3
Parzelle Mittel	14.2	16.6	15.5	15.4	91	4.9
Parzelle Gross	18.3	21.8	20.4	20.9	115	7.2

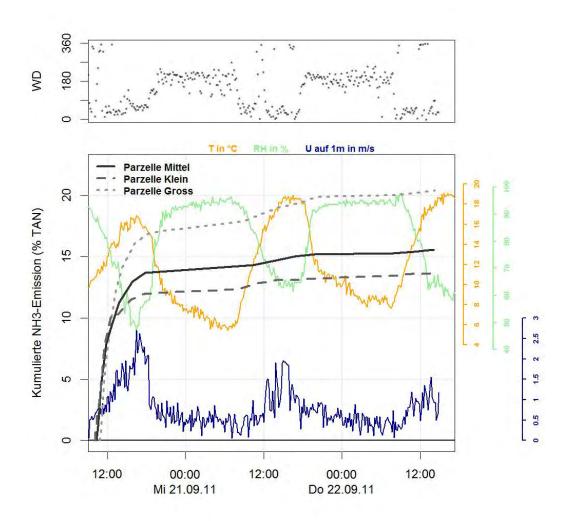
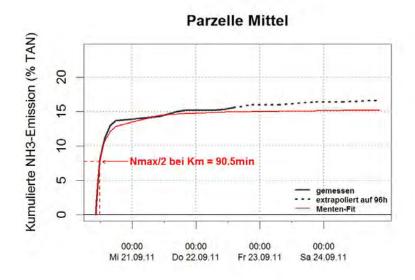
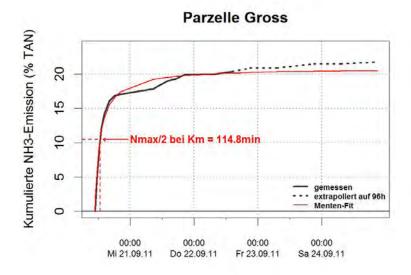


Abbildung A.35: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





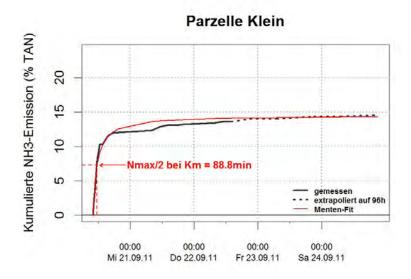


Abbildung A.36: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.3.3 Versuch Z1 (Tänikon, 27.08.2012)

Übersicht

Tabelle A.28: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
Abend	Pt	RVG	27.08.2012 18:16 MESZ	29.08.2012 13:47 MESZ	1554	15	30.6
Morgen	Pt	RVG	28.08.2012 07:07 MESZ	29.08.2012 13:57 MESZ	1593	15	28.9
Mittag	Pt	RVG	28.08.2012 11:36 MESZ	29.08.2012 14:32 MESZ	1515	15	29.2

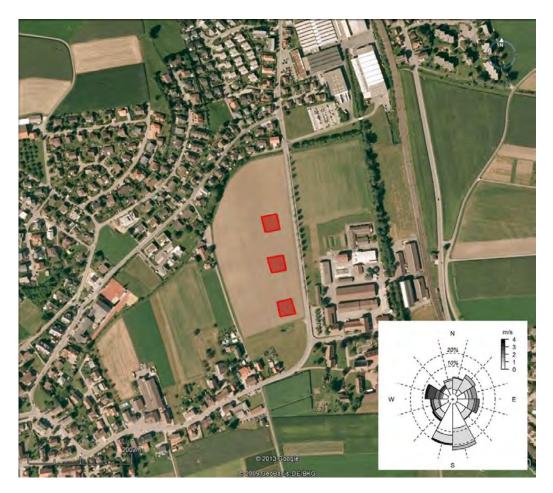


Abbildung A.37: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.29: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	рН
Abend	0.85	1.69	0.84	3.14	22.4	9	7.3
Morgen	0.85	1.69	0.84	3.14	22.4	9	7.3
Mittag	0.85	1.69	0.84	3.14	22.4	9	7.3

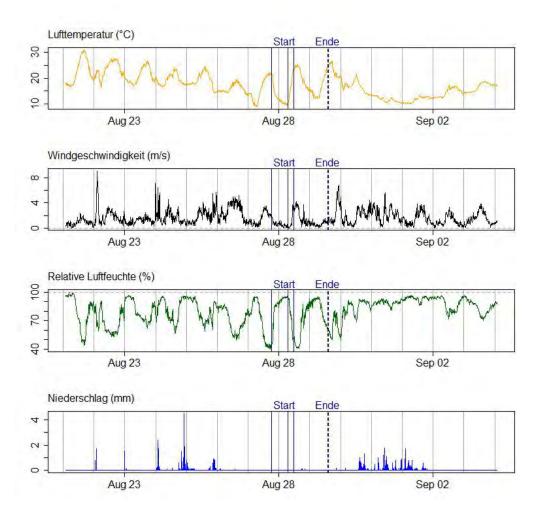


Abbildung A.38: Aufzeichnung der Wetterstation Aadorf / Tänikon. Die Grafik zeigt die Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie die 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.30: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Abend	16.7	18.4	17.3	15.6	56	4.8
Morgen	16	17.5	16.5	20.5	229	4.3
Mittag	23.2	24.2	23.4	24	46	6.0

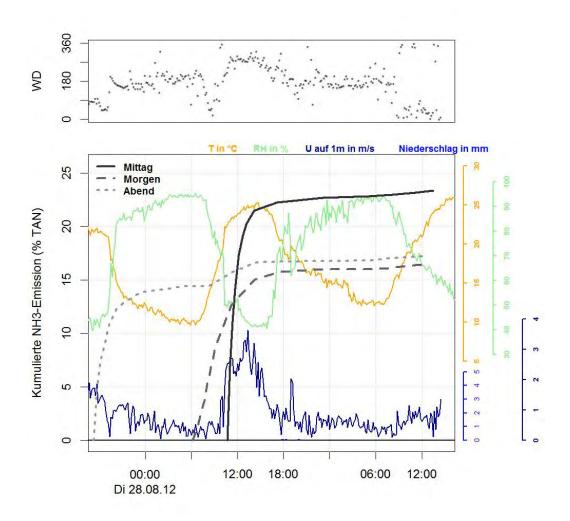
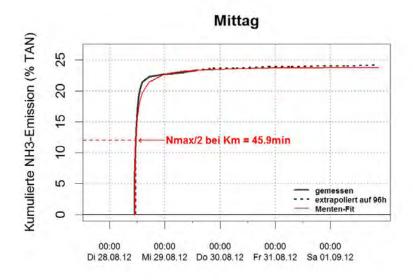
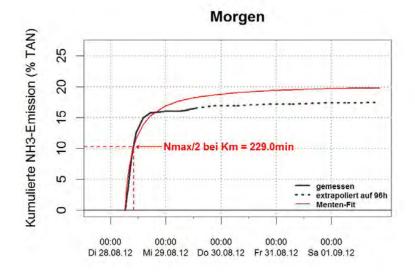


Abbildung A.39: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





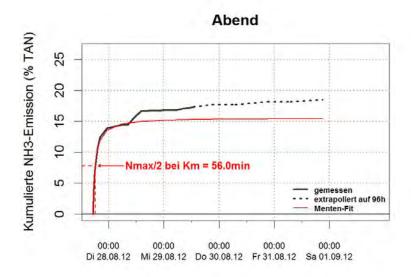


Abbildung A.40: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.3.4 Versuch Z2 (Tänikon, 04.07.2013)

Übersicht

Tabelle A.31: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
Abend	Ssl	RVG	04.07.2013 18:12 MESZ	08.07.2013 03:55 MESZ	991.6	10	26.2
Morgen	Ssl	RVG	05.07.2013 07:40 MESZ	08.07.2013 09:24 MESZ	930.4	10	28.7
Mittag	Ssl	RVG	05.07.2013 13:16 MESZ	08.07.2013 09:32 MESZ	941.9	10	28.5

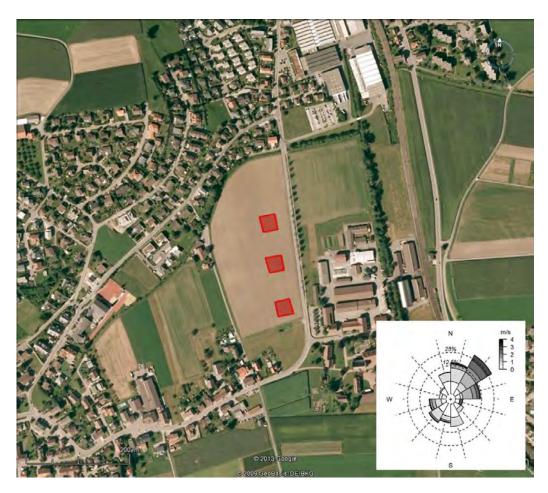


Abbildung A.41: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.32: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	pН
Abend	1.3	2.39	1.09	5.14	38.4	13	6.9
Morgen	1.28	2.43	1.15	5.06	37.5	13.1	6.8
Mittag	1.31	2.45	1.14	5.13	38.1	13.2	6.8

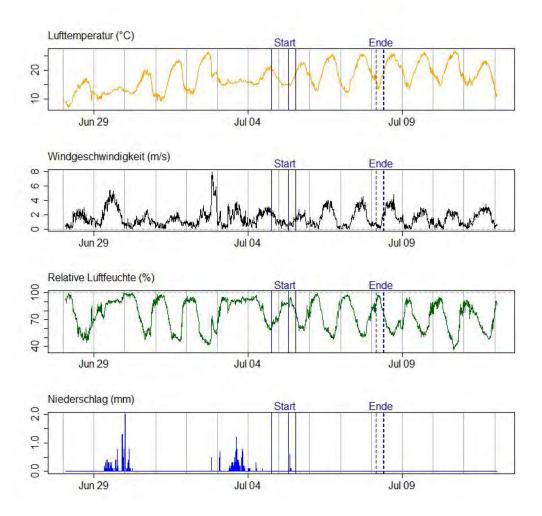


Abbildung A.42: Aufzeichnung der Wetterstation Aadorf / Tänikon. Die Grafik zeigt die Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie die 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.33: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Abend	16.9	23.1	22.5	16.5	271	7.9
Morgen	9.9	15.3	14.4	17.1	609	5.6
Mittag	19.9	23.6	23.4	22.7	223	8.8

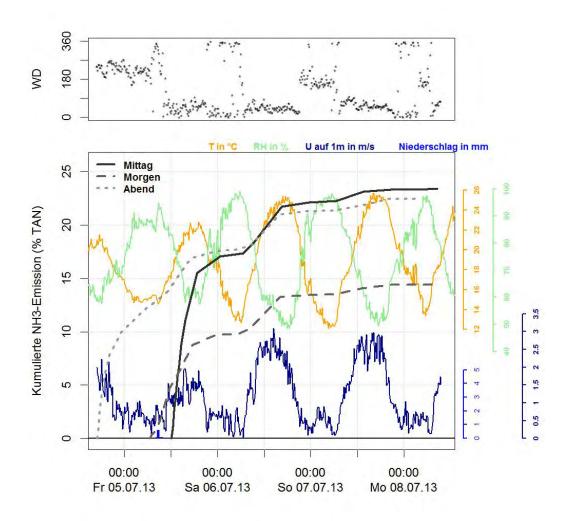
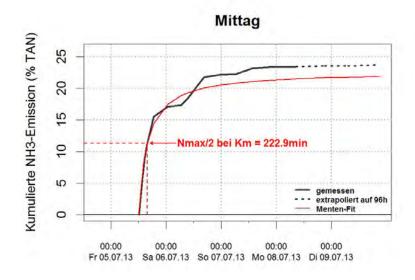
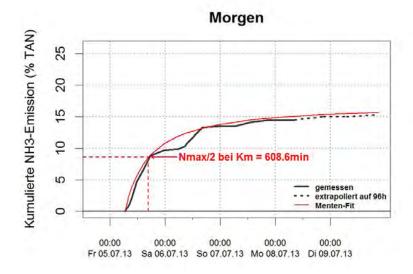


Abbildung A.43: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





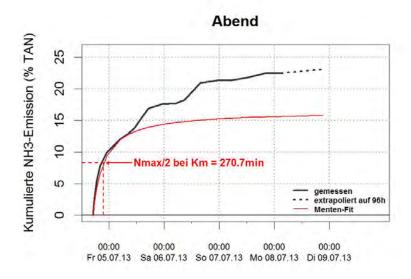


Abbildung A.44: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.4 Standort Wengi

A.4.1 Versuch G1 (Wengi, 15.03.2012)

Übersicht

Tabelle A.34: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
Rindvieh	Pt	RVG	15.03.2012 12:56 MEZ	16.03.2012 07:59 MEZ	1077	6	28.3
Mastschwein	Pt	MSG	15.03.2012 14:32 MEZ	16.03.2012 07:34 MEZ	1063	7	26.4
Zuchtschwein	Pt	ZSG	15.03.2012 13:43 MEZ	16.03.2012 08:00 MEZ	1078	7	26.8



Abbildung A.45: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Gülleeigenschaften

Tabelle A.35: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	pН
Rindvieh	1.23	1.67	0.44	2.41	16.5	7.6	7
Mastschwein	2.15	2.92	0.77	3.37	23	10.7	7.1
Zuchtschwein	1.8	2.26	0.46	2.2	13.4	8.6	7.2

Meteorologie

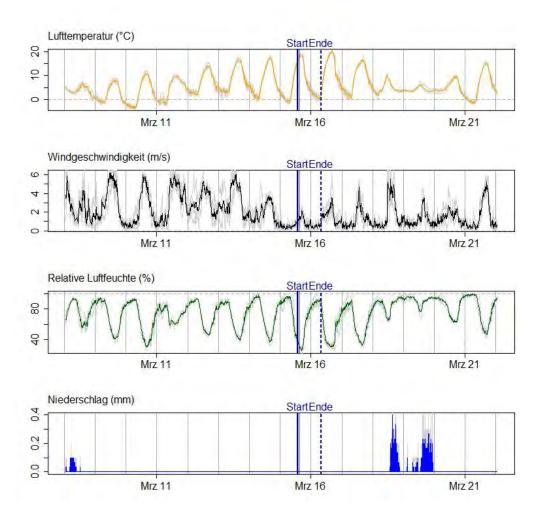


Abbildung A.46: Aufzeichnung der Wetterstationen Bern / Zollikofen, Grenchen (SO) und Koppigen (BE). Die Grafik zeigt die gemittelten Werte der Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie der 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Hellgrau eingezeichnet sind die effektiv gemessenen Werte der einzelnen Stationen. Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.36: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Rindvieh	-	9.8	7.9	8.1	75	3.4
Mastschwein	-	5.9	4.9	4.6	56	3.3
Zuchtschwein	-	7.3	5.9	6.2	75	3.5

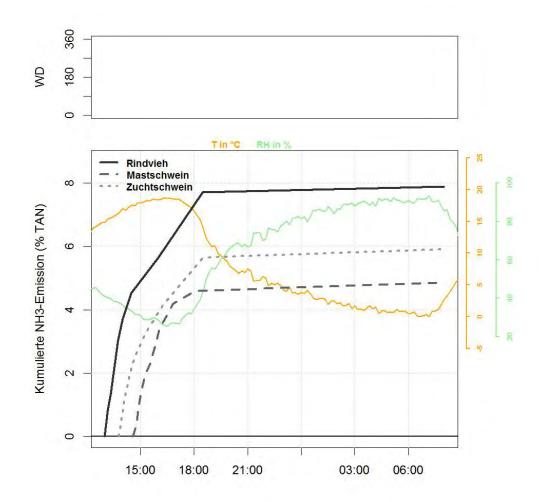
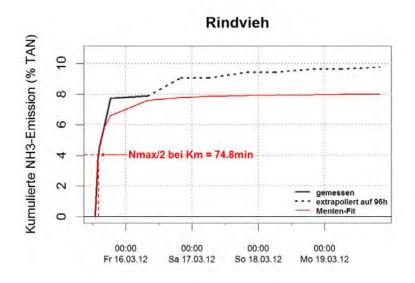
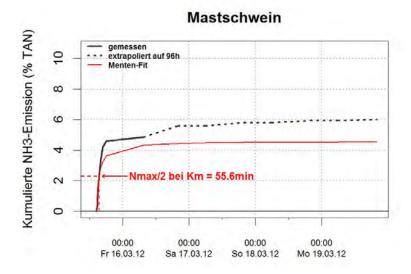


Abbildung A.47: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die gemittelten Meteoparameter Lufttemperatur (T) und relative Luftfeuchte (RH). Keine Windmessungen wegen Sonic-Ausfall in diesem Versuch.





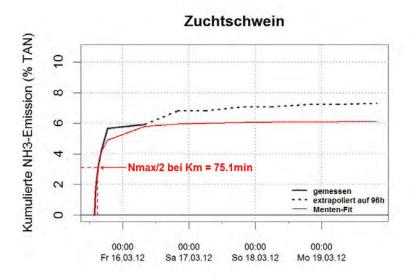


Abbildung A.48: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.4.2 Versuch G2 (Wengi, 24.05.2012)

Übersicht

Tabelle A.37: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
Rindvieh	Pt	RVG	24.05.2012 10:13 MESZ	26.05.2012 16:33 MESZ	1135	16	25.7
Mastschwein	Pt	MSG	24.05.2012 10:56 MESZ	26.05.2012 16:28 MESZ	969	16	28.8
Zuchtschwein	Pt	ZSG	24.05.2012 09:37 MESZ	26.05.2012 15:24 MESZ	1082	16	26

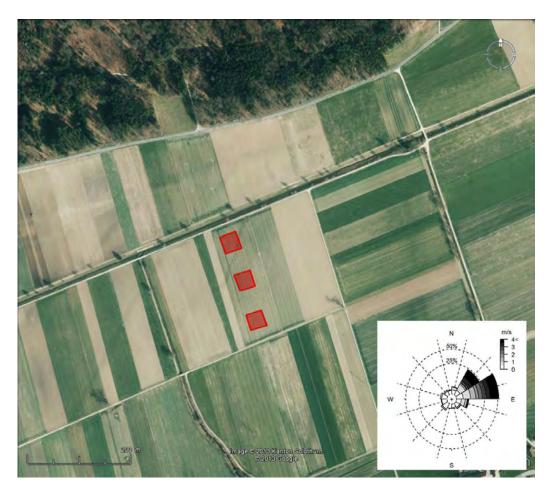


Abbildung A.49: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.38: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	pН
Rindvieh	1.63	2.76	1.13	3.8	26.9	11.1	7
Mastschwein	1.63	1.97	0.34	1.28	6.8	6	7.3
Zuchtschwein	1.76	2.71	0.95	3.25	22.1	10.4	7.2

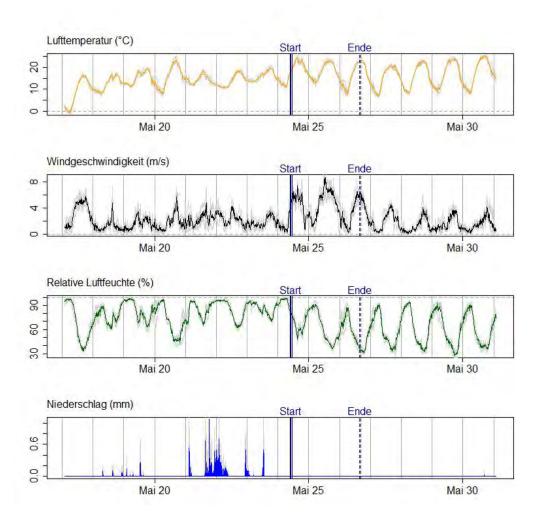


Abbildung A.50: Aufzeichnung der Wetterstationen Bern / Zollikofen, Grenchen (SO) und Koppigen (BE). Die Grafik zeigt die gemittelten Werte der Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie der 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Hellgrau eingezeichnet sind die effektiv gemessenen Werte der einzelnen Stationen. Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.39: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Rindvieh	16.3	21	19.6	16.5	74	8.8
Mastschwein	12	14.6	13.9	12.7	83	6.9
Zuchtschwein	9.5	12	11	10.6	84	5.5

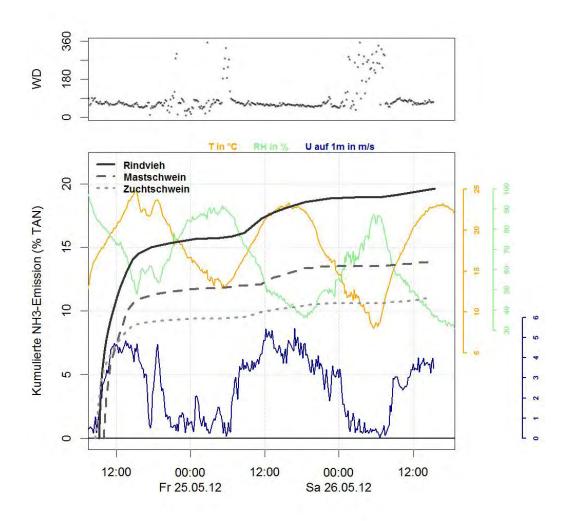
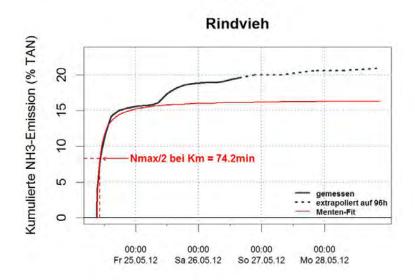
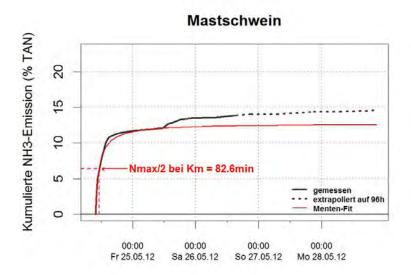


Abbildung A.51: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die gemittelten Meteoparameter Lufttemperatur (T) und relative Luftfeuchte (RH) und die vor Ort gemessene Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





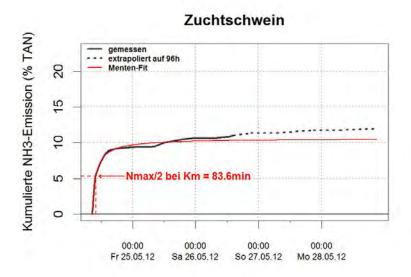


Abbildung A.52: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.4.3 Versuch G3 (Wengi, 19.11.2012)

Übersicht

Tabelle A.40: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
Rindvieh	Pt	RVG	19.11.2012 12:55 MEZ	20.11.2012 22:18 MEZ	925	10	26.7
Mastschwein	Pt	MSG	19.11.2012 11:31 MEZ	21.11.2012 11:18 MEZ	921	10	25.5
Zuchtschwein	Pt	ZSG	19.11.2012 12:15 MEZ	21.11.2012 11:52 MEZ	1008	10	24.6

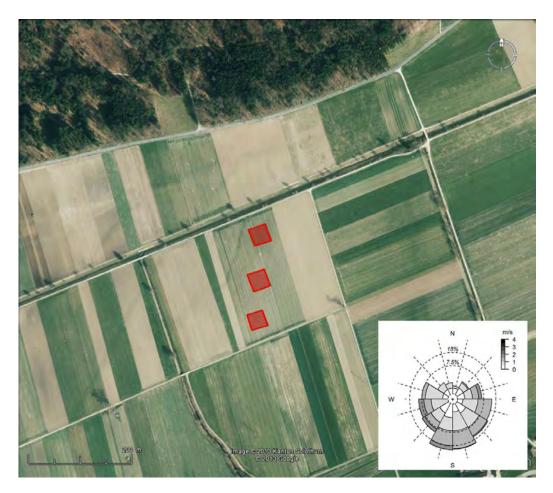


Abbildung A.53: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.41: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	рН
Rindvieh	1.65	2.45	0.8	3.77	14.7	23	7.3
Mastschwein	1.6	1.88	0.28	1.43	4	10.3	7.7
Zuchtschwein	1.66	2.21	0.55	1	2.6	7.4	7.6

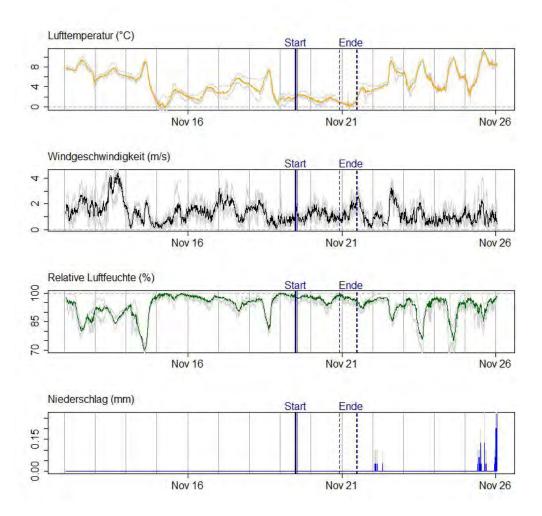


Abbildung A.54: Aufzeichnung der Wetterstationen Bern / Zollikofen, Grenchen (SO) und Koppigen (BE). Die Grafik zeigt die gemittelten Werte der Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie der 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Hellgrau eingezeichnet sind die effektiv gemessenen Werte der einzelnen Stationen. Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.42: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Rindvieh	14.3	16.4	15.8	17.9	305	7.2
Mastschwein	9.6	15	11.7	10.4	194	6.1
Zuchtschwein	7.2	9.9	8.5	8	168	4.0

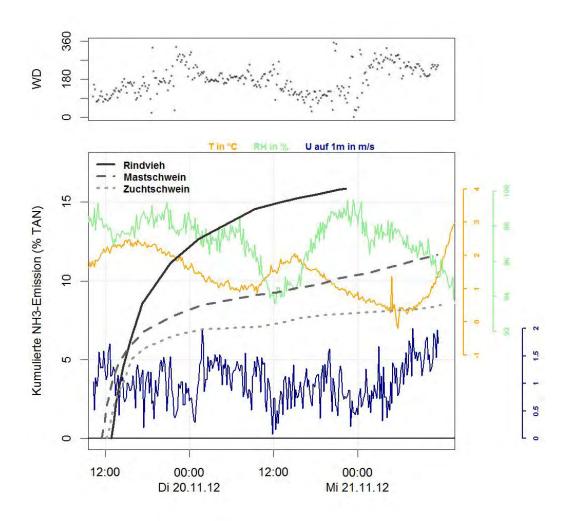
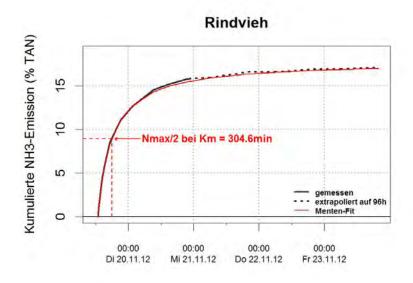
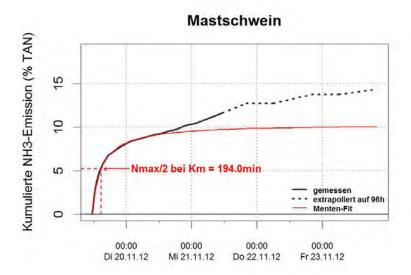


Abbildung A.55: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die gemittelten Meteoparameter Lufttemperatur (T) und relative Luftfeuchte (RH) und die vor Ort gemessene Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





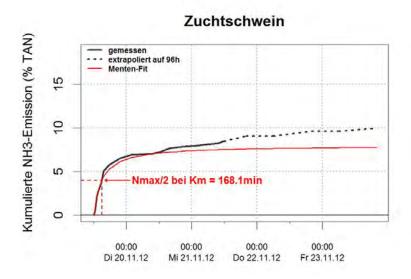


Abbildung A.56: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.4.4 Versuch TS1 (Wengi, 12.06.2013)

Übersicht

Tabelle A.43: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
TS Gülle tief, 30 m ³ /ha	Pt	RVG	12.06.2013 10:47 MESZ	14.06.2013 09:46 MESZ	1019	12	26.2
TS Gülle hoch, 15 m ³ /ha	Pt	RVG	12.06.2013 11:20 MESZ	14.06.2013 10:20 MESZ	893.7	12	18.8
TS Gülle hoch, 30 m ³ /ha	Pt	RVG	12.06.2013 11:54 MESZ	14.06.2013 10:55 MESZ	967.4	11	26.3

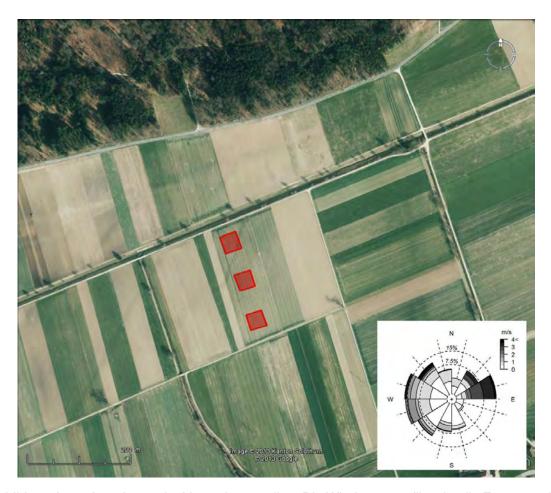


Abbildung A.57: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Tabelle A.44: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	рН
TS Gülle tief, 30 m ³ /ha	1.51	2.64	1.13	5.12	39	12.2	6.6
TS Gülle hoch, 15 m ³ /ha	1.7	3.16	1.46	5.88	42.4	16.4	6.9
TS Gülle hoch, 30 m ³ /ha	1.71	3.08	1.37	5.77	41.5	16.2	6.9

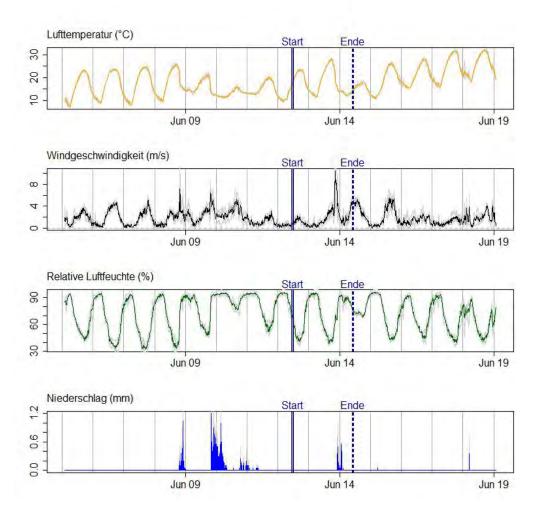


Abbildung A.58: Aufzeichnung der Wetterstationen Bern / Zollikofen, Grenchen (SO) und Koppigen (BE). Die Grafik zeigt die gemittelten Werte der Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie der 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Hellgrau eingezeichnet sind die effektiv gemessenen Werte der einzelnen Stationen. Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.45: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
TS Gülle tief, 30 m ³ /ha	22.5	31.6	27.7	28.2	240	12.5
TS Gülle hoch, 15 m ³ /ha	34	46.2	38.7	38.6	130	14.8
TS Gülle hoch, 30 m^3/ha	32.7	41.7	36.8	36.4	125	18.8

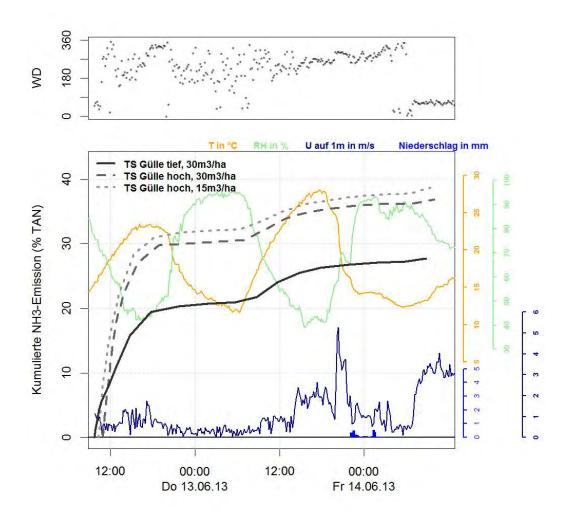
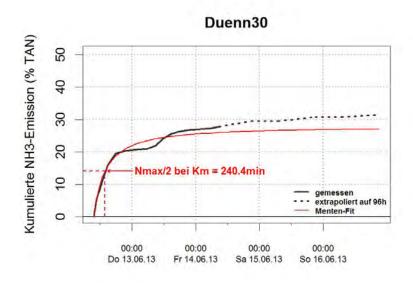
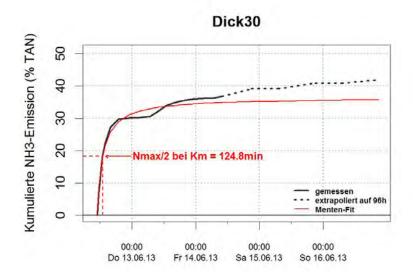


Abbildung A.59: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die gemittelten Meteoparameter Lufttemperatur (T) und relative Luftfeuchte (RH) und die vor Ort gemessene Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





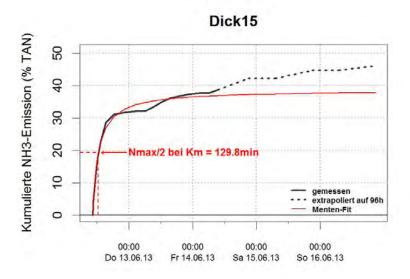


Abbildung A.60: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.4.5 Versuch TS2 (Wengi, 10.07.2013)

Übersicht

Tabelle A.46: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben). Pt: Prallteller. Gd: Gülledrill. RVG: Rindviehvollgülle. Konz: Konzentrat.

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
Pt-RVG	Pt	RVG	10.07.2013 11:58 MESZ	15.07.2013 12:02 MESZ	873.6	9	25.8
Güd-RVG	Gd	RVG	10.07.2013 11:48 MESZ	15.07.2013 11:52 MESZ	1297	10	25.7
Güd-Konz	Gd	KONZ	10.07.2013 10:26 MESZ	15.07.2013 11:39 MESZ	1203	9	19.7

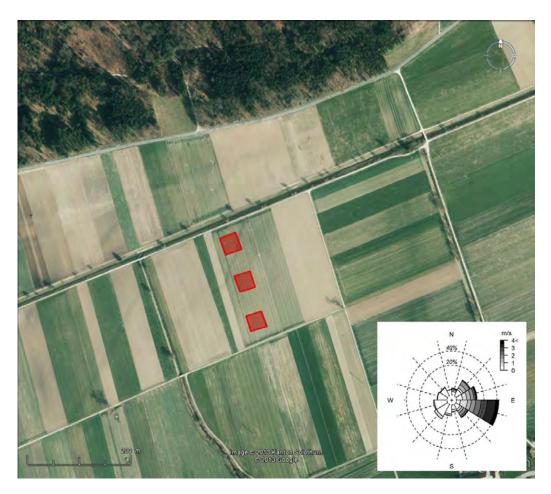


Abbildung A.61: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Gülleeigenschaften

Tabelle A.47: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle. Pt: Prallteller. Gd: Gülledrill. RVG: Rindviehvollgülle. Konz: Konzentrat.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	pН
Pt-RVG	1.9	3.5	1.6	6.82	48.6	19.6	7.1
Gud-RVG	1.8	3.6	1.8	8.81	61.1	27	7
Gud-Konz	6.4	6.5	0.1	4.82	15.4	32.8	7.7

Meteorologie

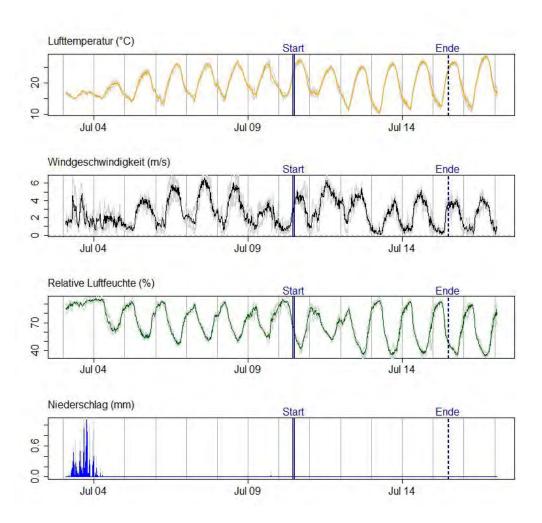


Abbildung A.62: Aufzeichnung der Wetterstationen Bern / Zollikofen, Grenchen (SO) und Koppigen (BE). Die Grafik zeigt die gemittelten Werte der Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie der 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Hellgrau eingezeichnet sind die effektiv gemessenen Werte der einzelnen Stationen. Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Tabelle A.48: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in Minuten (Min.) angegeben. Pt: Prallteller. Gd: Gülledrill. RVG: Rindviehvollgülle. Konz: Konzentrat.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (Min.)	Emission 96h (kg/ha)
Pt-RVG	41.9	45.6	45.6	44.5	86	22.4
Gud-RVG	37.3	43.2	43.9	42.3	197	20.0
Gud-Konz	6	8.5	9	6.4	76	10.7

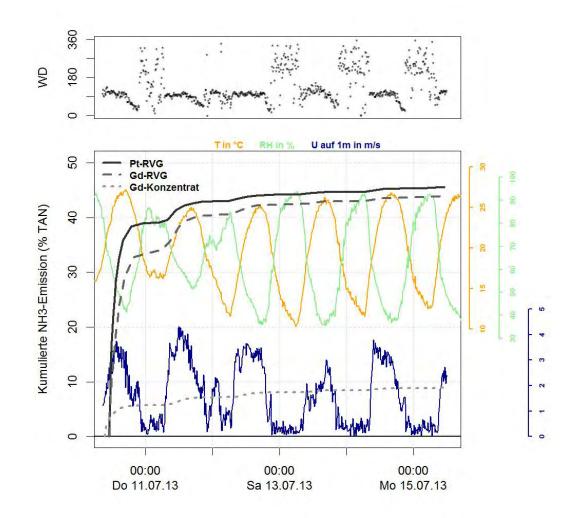
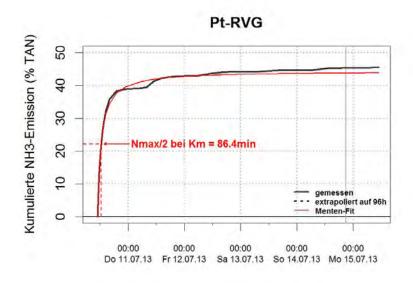
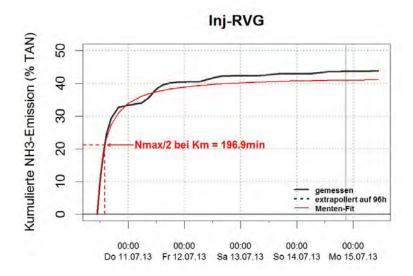


Abbildung A.63: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die gemittelten Meteoparameter Lufttemperatur (T) und relative Luftfeuchte (RH) und die vor Ort gemessene Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





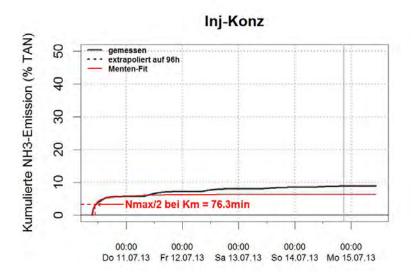


Abbildung A.64: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

A.4.6 Versuch TS3 (Wengi, 11.03.2014)

Übersicht

Tabelle A.49: Angaben zu den Versuchsparzellen (Versuchsstart und Versuchsende sind in MEZ/MESZ angegeben).

Versuchsparzelle	Verfahren	Gülle	Versuchsstart	Versuchsende	Fläche (m ²)	Wuchshöhe (cm)	Ausbringmenge (t/ha)
F1	Pt	RVG	11.03.2014 10:21 MEZ	13.03.2014 07:22 MEZ	1055	7	30.1
F2	Pt	RVG	11.03.2014 10:57 MEZ	13.03.2014 07:38 MEZ	1048	8	29.6
F3	Pt	RVG	11.03.2014 11:31 MEZ	13.03.2014 07:58 MEZ	983	10	29.9

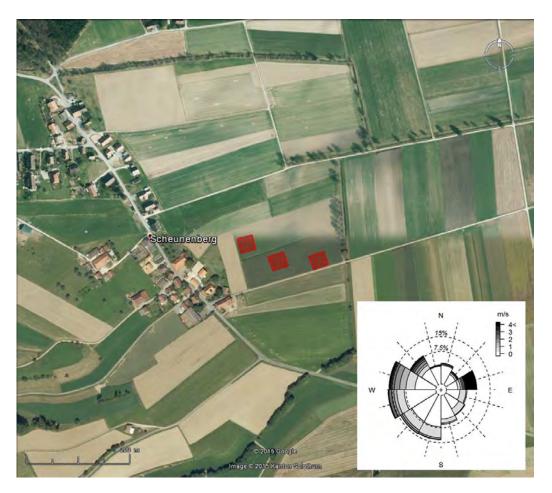


Abbildung A.65: Anordnung der Versuchsparzellen. Die Windrosengrafik zeigt die Frequenz der Windrichtung, sowie die dazugehörigen Windgeschwindigkeiten (in m/s) auf 1 m über Boden, welche über die gesamte Versuchsdauer gemessen wurden.

Gülleeigenschaften

Tabelle A.50: Wichtigste Eigenschaften der applizierten Gülle.

Versuchsparzelle	TAN (g/L)	N _{tot} (g/L)	N _{org} (g/L)	TS (%)	C _{org} (g/L)	C _{anorg} (g/L)	pН
F1	1.79	3.25	1.46	6.76	51.3	16.3	7.1
F2	1.73	3.27	1.54	6.78	51.6	16.2	7.2
F3	1.78	3.16	1.38	6.22	47.7	14.5	7.1

Meteorologie

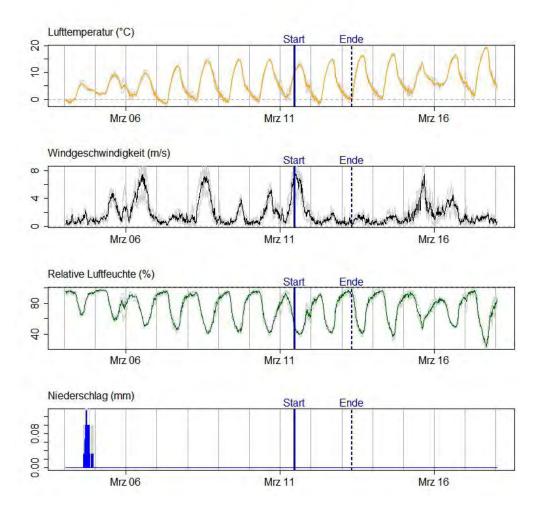


Abbildung A.66: Aufzeichnung der Wetterstationen Bern / Zollikofen, Grenchen (SO) und Koppigen (BE). Die Grafik zeigt die gemittelten Werte der Lufttemperatur (°C), Windgeschwindigkeit (m/s), relativen Luftfeuchte (%), sowie der 10-minütigen Niederschlagssumme (mm). Hellgrau eingezeichnet sind die effektiv gemessenen Werte der einzelnen Stationen. Start und Ende des Versuches sind zusätzlich in der Grafik eingetragen.

Höhe und Verlauf der Emission

Tabelle A.51: Gemessene und extrapolierte Emissionen in % des ausgebrachten TAN. Zusätzlich wird der gefittete Km-Wert in min angegeben.

Versuchsparzelle	Emission 24h (% TAN)	Emission 96h (% TAN)	Emission Versuchsende (% TAN)	Nmax (% TAN)	Km (min)
F1	32.8	35.3	34.3	39.6	116
F2	24.4	27.4	26.1	28.6	120
F3	34.7	38.2	36.6	40.3	113

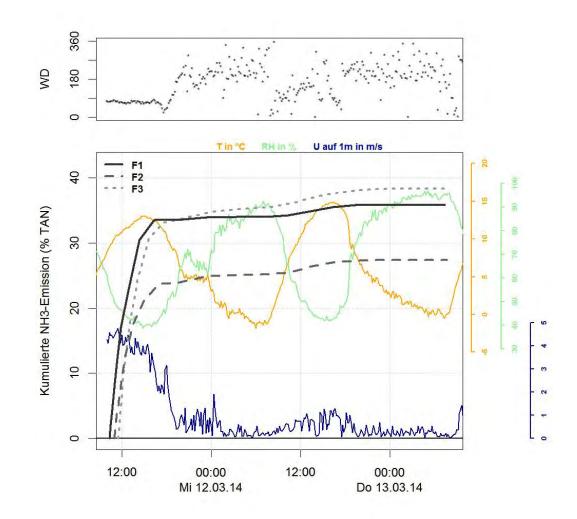
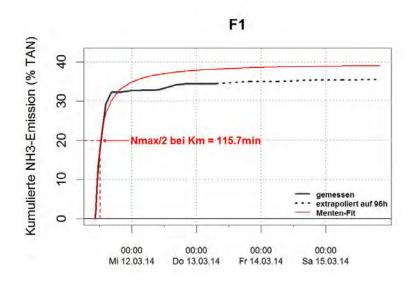
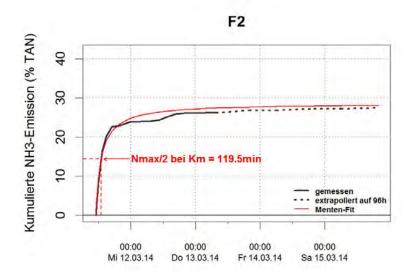


Abbildung A.67: Gemessener Verlauf der kumulierten Emission sowie die vor Ort gemessenen Meteoparameter Lufttemperatur (T), relative Luftfeuchte (RH), Windgeschwindigkeit (U) und Windrichtung (WD).





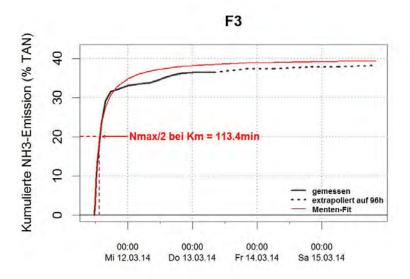


Abbildung A.68: Verlauf der kumulierten NH₃-Emission. Die Grafiken zeigen die gemessenen und extrapolierten Emissionsverläufe, sowie die gefitteten Verläufe nach Michaelis-Menten.

B. Anhang Material und Methoden

B.1 Mittelung der berechneten C/E-Verhältnisse

Da die $\mathrm{NH_3}$ -Messung nicht in regelmässigen Intervallen von 10 min Dauer, sondern in unterschiedlichen Intervalllängen von 10 min - 12 h durchgeführt wurde, war eine Mittelung der mit WindTrax berechneten $(C/E)_{bLS}$ Verhältnisse auf die jeweiligen Intervalle der Konzentrationsmessungen erforderlich. Eine nachträgliche Mittelung der 10-Minuten Intervalle ermöglichte eine Auswertung über eine längere Zeitspanne unter Bedingungen, in denen sich die Turbulenz und Windrichtung über die Dauer des Messintervalls änderten.

Die Mittelung wurde wie folgt durchgeführt:

$$\left(\frac{C}{E}\right)_{LOCI} = \frac{1}{\sum \alpha_i} \sum \alpha_i \left(\frac{C}{E}\right)_i \tag{B.1}$$

wobei die Gewichtung α_i durch das folgende Produkt gegeben ist:

$$\alpha_i = \frac{\Delta t_i}{10 \min} \times \frac{\Delta t_i}{\Delta t_{LOCI}} \tag{B.2}$$

 Δt_i steht für die Dauer (in Minuten) des C/E-Intervalls i, welcher innerhalb des Mittelungsintervalls mit Dauer Δt_{LOCI} (in Minuten) liegt. Abbildung B.1 zeigt eine schematische Darstellung der verschiedenen Zeitintervalle, welche zur Mittelung eines Intervalls (Gleichung B.1 & B.2) beitragen.

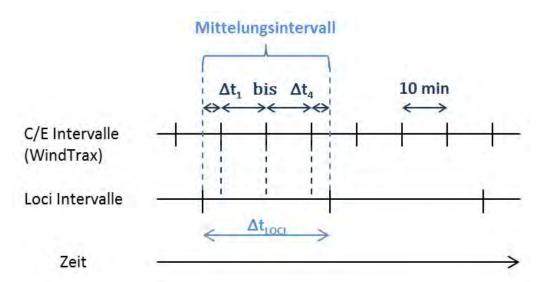


Abbildung B.1: Schematische Darstellung der Zeitintervalle, welche zur Mittelung der C/E-Intervalle (WindTrax) auf die Intervalle der gemessenen NH₃-Konzentrationen (Loci-Intervalle) verwendet wurden.

B.2 WindTrax und verwendete Turbulenz Parameter

Die Ausbreitungsrechnung funktioniert umso genauer, je näher der aktuelle Zustand idealen MOST Bedingungen entspricht (Flesch et al., 2004), d.h. in der Hauptsache unendlich

weit ausgedehntem, homogenem und ebenem Gelände, so dass sich ein idealer stationärer Zustand einstellt (Stull, 1988). In der Realität ergeben sich Abweichungen von solch einem Zustand durch Tagesgänge im Strahlungsantrieb, Gelände-Inhomogenität (z.B. Variation von Neigung, Bodenfeuchte, Albedo), Änderungen der aerodynamischen Unterlageeigenschaften (z.B. Vegetationszusammensetzung bzw. -rauigkeit) oder Hindernissen im Windfeld. Speziell in der Schweiz ist es problematisch, Standorte vorzufinden, die sich guten MOST Bedingungen annähern. Es ist aber ein allgemeiner Aspekt mikrometeorologischer Messungen, dass mit Abweichungen vom MOST-Ideal gelebt werden muss. Im Regelfall lässt dies trotzdem robuste Ergebnisse (mit einer erhöhten zufallsbedingten Ungenauigkeit) zu. Um eine möglichst realitätsnahe Ausbreitungsmodellierung durchzuführen, wurden in der vorliegenden Studie ausschliesslich gemessene Werte für die in Kapitel 2.7.1 aufgeführten WindTrax-Eingangsparameter verwendet. Dazu gilt folgendes zu bemerken: Wir betrachten z₀ nicht a-priori als feste Unterlageneigenschaft, sondern als Mass für die aerodynamische Rauigkeit unter lokalen Gegebenheiten zu einem bestimmten mittleren Zeitpunkt. Als Konsequenz der o.g. Abweichungen vom MOST-Ideal kann z_0 mit Variationen von θ , \bar{u} und L schwanken (z.B. Neftel et al., 2008), so dass wir z_0 intervallweise aus \bar{u} , u_* und L berechnen. u_* (wie in Teilen auch L) basiert auf dem Impulsfluss, mit 3D-Ultraschallanemometer als $(\overline{w'u'})$ gemessen. Im Fall von starker räumlicher Inhomogenität, v.a. Hindernisse im Windfeld und geringer Turbulenz (d.h. meistens niedrige \bar{u} , stabile Schichtung, Mäandrieren von \bar{u}) kann die direkte Messung von $\overline{w'u'}$ grösseren Fehlern unterliegen (Aubinet et al., 2012), wie Abbildung B.3 exemplarisch verdeutlicht. Dabei bewirkt die geringe Geschwindigkeit der Windkomponenten im Zusammenspiel mit sehr stabiler bzw. instabiler Schichtung eine Instationarität über die Mittelungsperiode. Die entsprechende Kovarianzfunktion für $\overline{w'u'}$ erfährt einen offset der nicht einem turbulenten Anteil am Impulsfluss entsprichet. Dies verfälscht $u_* = \sqrt{-\overline{w'u'}}$. Grosse Schwankungen und unplausible Werte von z_0 (aus u_* , L und \bar{u} ermitttelt) zeigen grössere Abweichungen von MOST an und sollten als Plausibiliätskontrolle verwendet werden (Laubach, 2010; Neftel et al., 2008). Verlässt z₀ den Plausibilitätsbereich, dann wird u_* entsprechend eingrenzender z_0 Annahmen korrigiert. Dies impliziert, dass die Messung von \bar{u} und $\overline{w'T'}$ wesentlich genauer und robuster ist als die von w'u'. Erfahrung (Uberprüfung der Kovarianzfunktionen) zeigt, dass dies in vielen als unplausibel erachteten Fällen zutraf. Des Weiteren sei erwähnt, dass im Folgenden alle Messhöhen (und auch z_0) gegen die aerodynamische Verschiebungshöhe (d = 2/3 Vegetationshöhe) evaluiert sind. Abbildung B.2 schematisiert den Plausibiliätstest der Turbulenzparameter einschliesslich allfälliger Korrekturvarianten.

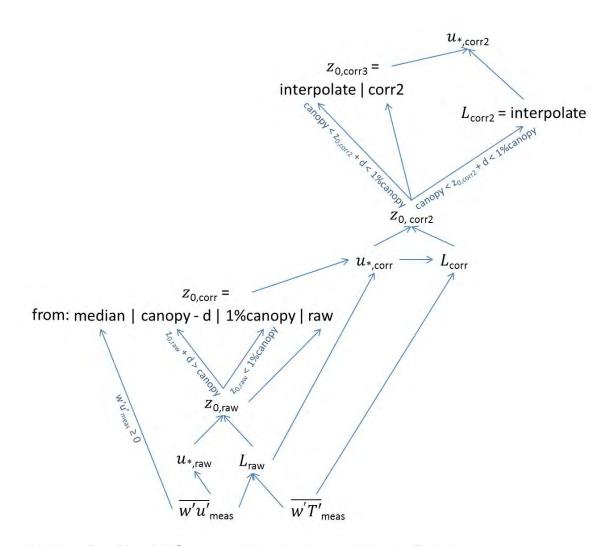


Abbildung B.2: Plausibilitätstest und Korrektur/Interpolation der Turbulenzparameter u_* , z_0 , L (\bar{u} und \bar{T} sowie z-d nicht dargestellt - es wurden immer die Messwerte verwendet); z_0 = median bezieht sich auf den Median aller berechneten z_0 in der Messperiode.

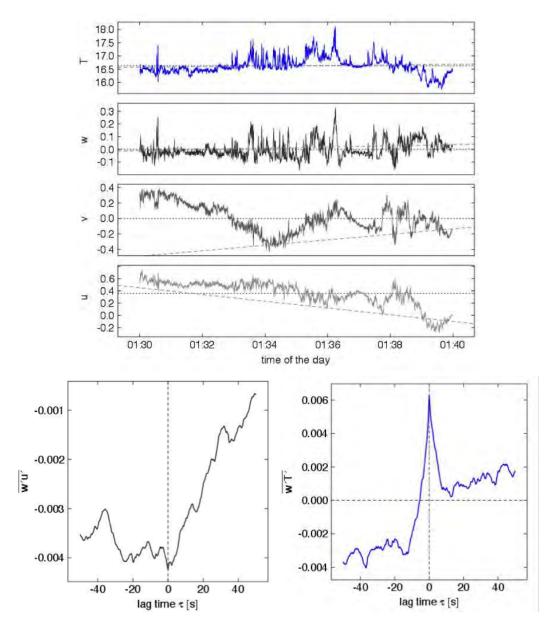


Abbildung B.3: Ausgewählter Fall eines instationären 10-minütigen 3D-Ultraschallanemometer Messintervalls (16.08.2013, 01:30-01:40, 'Sonic3'): (oben) 10 Hz Zeitserie der drei Windkomponenten $u,\,v,\,w$ (entlang des kartesischen Koordinatensystems mit den Achsen $x,\,y,\,z$), T sowie (unten) die entsprechenden Kovarianzfunktionen von $\overline{w'u'}$ und $\overline{w'T'}$.

B.3 Berechnung der Emission grösserer Versuchsparzellen

Das Düngen grösserer Flächen mit Gülle benötigt je nach Kapaziät des Güllefasses und Applikationsrate längere Zeiträume als nur wenige Minuten. Speziell wenn der Gülletank wieder aufgefüllt werden muss, übersteigt die Ausbringdauer schnell 20 Minuten. Verschiedene Güllebahnen emittieren unterschiedlich stark, wenn ein zeitlicher Versatz zwischen ihrer Ausbringung besteht. Jedoch setzen die meisten methodischen Ansätze zur Emissionsberechnung eine gleichförmig emittierende Fläche voraus. Um dieser generellen Schwierigkeit bei der Emissionsberechnung grosser Felder zu begegnen, wurde ein Verfahren analog zu dem Ansatz von Sintermann et al. (2011a) gewählt. Vergleichbar dem Voraussetzen eines Michaelis-Menten Verlaufs der Emissionen (Kapitel 2.8.3) wurde eine bi-exponentielle zeitliche Emissionsstruk-

tur für jeden (der in vorliegenden Versuchen meistens zwei) als räumlich homogen emittierend erachteten Güllestreifen vorausgesetzt. Mit WindTrax wurden die C/E Anteile der Konzentrationsmessung für jede Bahn einzeln ermittelt. Diese wurden im Rahmen der Annäherung mittels Methode der kleinsten Quadrate mit dem (unbekannten) vorausgesetzten Emissionsverlauf und den gemessenen Konzentrationen kombiniert. Somit wurde der Emissionsverlauf der jeweiligen homogen emittierenden Güllebahnen ermittelt und die Gesamtemission durch zeitlichen Parallelversatz der Emissionen bestimmt. Für weitere Details siehe Sintermann et al. (2011a).

B.4 Neuberechnung von ZINST

Im folgenden Beispiel wurde mit WindTrax die Berechnung von Wilson et al. (1982) nachgestellt. Dafür wurden im Zentrum einer kreisförmigen Flächenquelle ($X=20\,\mathrm{m}$, Einheitsemission) Vertikalprofile von \bar{u} und \bar{c} für einen Bereich verschiedener z_0 und jeweils für L=5, L=-5 und $L=10^5$ (quasi ∞) berechnet. Die berechneten Höhen des Profils reichten von 0.06 bis 0.2 m in 1 cm Schritten, weiter bis 1.5 m in 5 cm Schritten, bis 4 m in 10 cm Schritten und bis auf 40 m in 20 cm Schritten. Das \bar{c} Profil wurde dann mittels einer lokalen Fit Routine (R-Funktion: loess(..., span=3/40m, control=loess.control(surface="direct"))) parametrisiert, während das \bar{u} Profil mittels den entsprechenden MOST Profilen (Flesch et al., 2004) beschrieben und gegen die von WindTrax ausgegebenen \bar{u} getestet wurde. ZINST ist als die Höhe des Schnittpunktes der modellierten $\bar{u}\bar{c}/E$ Profile im stabilen und instabilen Fall definiert. Zur Emissionsberechnung ergibt der dem Schnittpunkt zugehörige $\bar{u}\bar{c}/E$ Wert sowie der des neutralen Profils auf ZINST Höhe einen engen möglichen Bereich (Abbildung B.4).

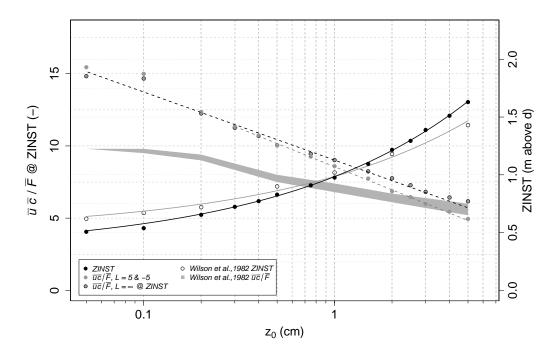


Abbildung B.4: Neuberechnung von ZINST und zugehörigen Faktoren mittels WindTrax für X = 20 m, L = $+5/-5/\infty$ m, (u_* = 0.25 m/s,) 2x10⁵ Partikel pro Höhe berechnet; zusätzlich sind die entsprechenden Ergebnisse aus Wilson et al. (1982) für äquivalente Bedingungen eingetragen. $\bar{F} = E$.

B.5 Parameter-Set der Regressionsanalyse

Die Grössen, welche zu den jeweiligen Experimenten erfasst wurden, sind in Tabelle B.1 zusammengefasst. Für die Regressionsanalyse wurde das Set an Versuchsparametern auf die 4 Parameter reduziert, welche in der Tabelle mit "Analyse" vermerkt sind.

Tabelle B.1: Auflistung der wichtigsten erfassten Versuchsbedingungen. Parameter, die nicht für alle Versuche erhoben werden konnten, sind in der letzten Spalte mit "nur teilweise verfügbar" vermerkt. Die mit "Analyse" vermerkten Parameter wurden in die Datenanalyse einbezogen. Parameter, welche mit T_{2m} oder TS vermerkt sind, zeigen eine starke Korrelation zu einem der beiden Parameter und wurden deshalb aus der Analyse ausgeschlossen.

Meteore	ologie			
T_{2m}	Lufttemperatur auf 2 m über Boden	℃	Analyse	
T_{Obfl}	Lufttemperatur auf Bodenhöhe	℃	T2m	
T_{Boden}	Bodentemperatur in 5 cm Tiefe	℃		nur teilweise verfügbar
gRAD	Globalstrahlung	W/m^2	T2m	
RH	Relative Luftfeuchte auf 2 m über Boden	%	T2m	
SD	Sättigungsdefizit des Wasserdampfes auf 2 m über Boden	mbar	T2m	
WS	Windgeschwindigkeit auf 1 m über Boden	m/s	Analyse	
WS_{10m}	Windgeschwindigkeit auf 10 m über Boden	m/s		nur teilweise verfügbar
T_{Tp}	Taupunkttemperatur auf 2 m über Boden	℃	T2m	
Gülleei	genschaften			
TAN	Gehalt an gelöstem NH ₃ + NH ₄ ⁺	g/L	Analyse	
N_{tot}	Gesamtstickstoffgehalt	g/L	TS	
N_{org}	Gehalt an organischem Stickstoff	g/L	TS	
TS	Anteil Trockensubstanz	%	Analyse	
C_{org}	Gehalt an organischem Kohlenstoff	g/L	TS	
C_{anorg}	Gehalt an anorganischem Kohlenstoff	g/L	TS	
pH	pH-Wert	-		nicht-repräsentative Grösse ok?
Visc	Viskosität	%		nur teilweise verfügbar
Weitere	Faktoren			
$h_{Bestand}$	Wuchshöhe des Bestandes	cm	Analyse	
AR	Applikationsrate = Ausbringmenge Gülle pro Fläche	t/ha		kleine Streuung
Standort	Versuchsstandort (repräsentiert die Bodeneigenschaften)	-	TS	

B.5.1 Ausschluss redundanter Parameter

Eine Verfeinerung der Auswahl an Parameter aus Tabelle B.1 war notwendig, da viele der Regressionsparameter untereinander stark korreliert waren und eine Auswertung erheblich erschwerten. Aufgrund der starken Korrelation des TS mit den restlichen Gülleeigenschaften (Tabelle B.2 & Abbildung B.5) sowie dem Standort (Abbildung B.6), wurden die Parameter TAN, C_{org} , C_{anorg} , N_{tot} , N_{org} und Standort aus der Analyse ausgeschlossen. Ebenso wurden die Meteo-Parameter T_{Obfl} , gRAD, RH, SD und T_{Tp} nicht in die Regressionsanalyse miteinbezogen, da sie zu stark mit T_{2m} korrelieren (Tabelle B.3 & Abbildung B.7). Die Wahl der beiden Parameter TS und T_{2m} begründet sich darin, dass beides relativ einfach zu bestimmende Grössen sind, welche in verschiedenen, bestehenden Modellen bereits verwendet wurden (z.B. Søgaard et al., 2002; Sommer und Olesen, 1991).

Tabelle B.2: Korrelationen der erfassten Gülleeigenschaften.

	TAN	TS	C_{org}	C_{anorg}	N_{tot}	N_{org}
\overline{TAN}	1	0.81	0.79	0.80	0.97	0.84
TS	0.81	1	0.99	0.94	0.87	0.88
C_{org}	0.79	0.99	1	0.90	0.86	0.87
C_{anorg}	0.80	0.94	0.90	1	0.85	0.83
N_{tot}	0.97	0.87	0.86	0.85	1	0.94
N_{org}	0.84	0.88	0.87	0.83	0.94	1

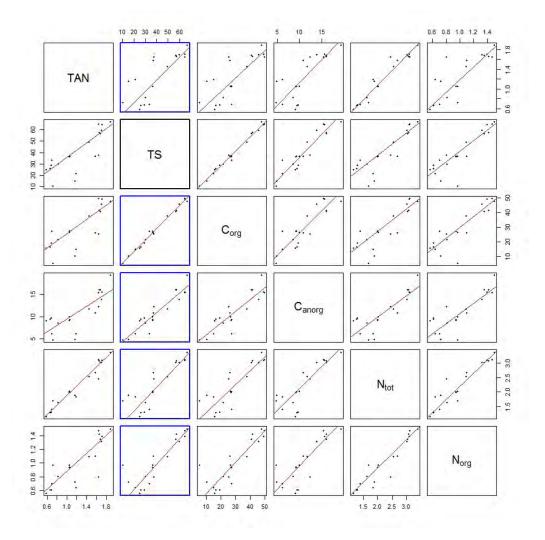


Abbildung B.5: Korrelation der erfassten Gülleeigenschaften (ohne pH).

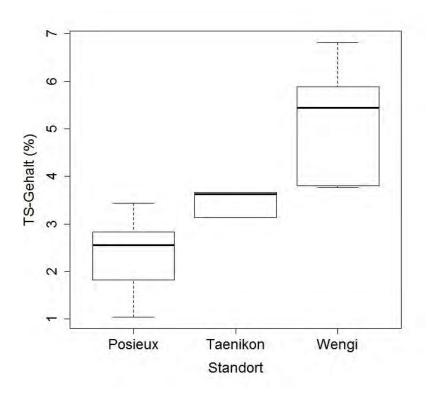


Abbildung B.6: Boxplots des TS-Gehaltes aufgeteilt nach den drei Versuchstandorten Posieux, Tänikon und Wengi. Die Abbildung zeigt den Median (fett), die Spanne zwischen dem 1. und dem 3. Quartil (Box), sowie eine ungefähre Abschätzung des 95%-Vertrauensbereiches des TS-Gehaltes.

Tabelle B.3: Korrelationen der erfassten Meteoparameter.

	T_{2m}	T_{Obfl}	gRAD	RH	SD	T_{Tp}	WS
$\overline{T_{2m}}$	1	0.98	0.83	-0.47	0.88	0.94	-0.01
T_{Obfl}	0.98	1	0.83	-0.39	0.83	0.95	-0.11
gRAD	0.83	0.83	1	-0.73	0.89	0.65	0.08
RH	-0.47	-0.39	-0.73	1	-0.78	-0.14	-0.40
SD	0.88	0.83	0.89	-0.78	1	0.68	0.15
T_{Tp}	0.94	0.95	0.65	-0.14	0.68	1	-0.16
WS	-0.01	-0.11	0.08	-0.40	0.15	-0.16	1

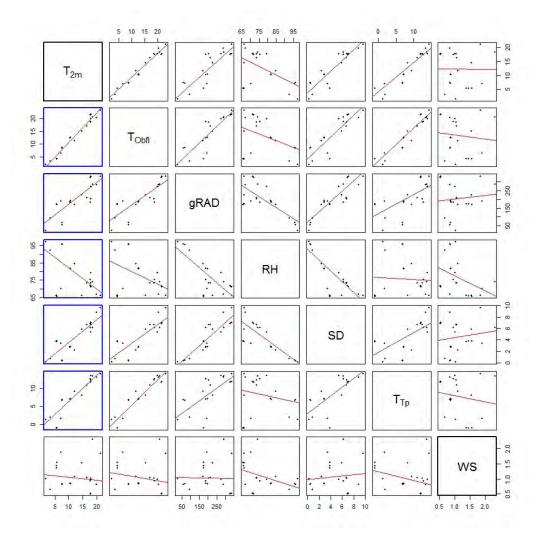


Abbildung B.7: Korrelation der erfassten Meteoparameter.

B.5.2 Ausschluss weiterer Parameter

Die in Tabelle B.1 mit "nur teilweise verfügbar" vermerkten Parameter konnten nicht in die Regressionsanalyse einbezogen werden, da fehlende Werte eine Analyse verunmöglichten. Zudem zeigte sich, dass die gemessenen pH-Werte, welche von Gülleproben stammten die den Ausbringfässern entnommen wurden, nicht repräsentativ für die (emissionsbestimmenden) pH-Werte auf dem Feld waren. Der pH-Wert der Gülle wurde deshalb aus der Analyse ausgeschlossen. Des Weiteren wurde die Applikationsrate nicht in die Analyse einbezogen, da die geringe Streuung zwischen den einzelnen Versuchen dies nicht zuliess.

B.5.3 Gekürztes Parameter-Set

Das gekürzte Parameter-Set besteht aus den 4 Versuchsparametern T_{2m} , WS, TS und $h_{Bestand}$. Die Parameter zeigen keine grössere Korrelationen untereinander (siehe Tabelle B.4 und Abbildung B.8). Zudem erfüllt diese Parameterauswahl die Kriterien eines Modells mit bekannten und einfach zu bestimmenden Parametern.

Tabelle B.4: Korrelationen unter den vier Parametern des gekürzten Sets.

	T_{2m}	WS	TS	$h_{Bestand}$
T_{2m}	1	-0.01	0.11	0.52
$T_{2m} WS$	-0.01	1	0.27	-0.24
TS	0.11	0.27	1	-0.42
$h_{Bestand}$	0.52	-0.24	-0.42	1

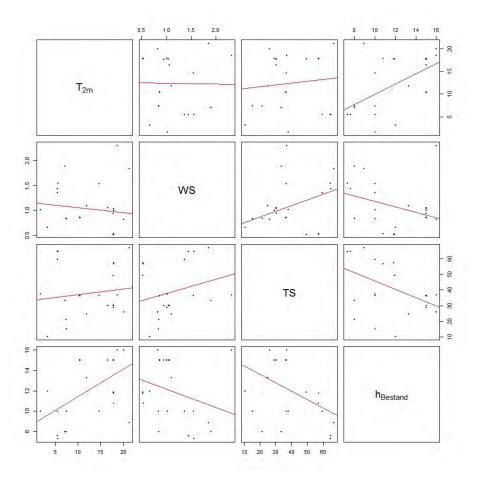


Abbildung B.8: Korrelation unter den Parameteren des gekürzten Parameter-Sets.

B.6 Regressionsverfahren

Die Regressionsmodelle wurden durch ein einfaches, lineares Modell mit dem Optimierungsverfahren der Methode der kleinsten Quadrate (OLS) beschrieben. Als abhängige Variable wurde der natürliche Logarithmus der Emission nach 24h verwendet. Die Modelle werden somit wie folgt beschrieben:

$$\ln Y = \beta_0 + \sum (\beta_i X_i) \tag{B.3}$$

oder rücktransformiert:

$$Y = \exp\left\{\beta_0 + \sum (\beta_i X_i)\right\}$$
 (B.4)

wobei Y die abhängige Variable, X_i die unabhängigen Variablen und β_i die dazugehörigen Koeffizienten darstellen. Die Berechnungen wurden mit der Funktion Im der Statistik-Software R (R Core Team, 2013) ausgeführt.

B.7 Informationsbasierte Modellauswahl und Modellauswahl-Inferenzen

Die Modellauswahl basierte auf dem corrected, oder auch second-order Akaike-Informations-kriteriums AICc, angelehnt an die Methodik, welche unter anderem in Burnham und Anderson (2002) ausführlich diskutiert wird. Die Berechnungen bezüglich Modellauswahl und Modellauswahl-Inferenzen wurden mit den beiden R-Packages AICcmodavg (Mazerolle, 2013) und MuMIn (Barton, 2013) durchgeführt.

B.8 Emissionsgewichtete Mittelung der Meteoparameter

Für die Regressionsanalyse wurden die beiden Meteoparameter T_{2m} und WS emissionsgewichtet gemittelt, wobei die Gewichtung der einzelnen Intervalle (w_i) durch einen Emissionsverlauf vorgegeben wurde, welcher auf dem mittleren Michaelis-Menten Verlauf, respektive dem mittleren K $_m$ ($\overline{K_m}$ = 113 min), der durchgeführten Versuche mit Referenzsystem Prallteller/Rindviehgülle basierte:

$$w_{i} = \frac{\overline{K_{m}}}{\left(t + \Delta t + \overline{K_{m}}\right)\left(t + \overline{K_{m}}\right)} \tag{B.5}$$

C. Anhang Resultate und Diskussion

C.1 Anmerkungen zur praktischen Anwendung der ZINST Methodik

In allen Berechnungen wird vorausgesetzt, dass die Bezugsebene, auf der die Emissionen entstehen auf der Höhe z₀ liegt. Die bLS Methodik betrachtet das System von der Atmosphäre aus. z₀ ist ein aerodynamischer Rauhigkeitsparameter (Flechard, 1998) und repräsentiert nicht per se so etwas wie eine mittlere Vegetationshöhe. In der Mikrometeorologie wird jegliche Höhe üblicherweise abzüglich der aerodynamischen Verschiebungshöhe (d) angegeben (Ammann, 1999), die einer Faustformel entsprechend oft als $d = 2/3 \times \text{Vegetationsh\"ohe}$ angegeben ist (Flechard, 1998, und Referenzen darin). Auch z₀ wird im Regelfall gegen d und nicht gegen die Bodenoberfläche evaluiert, da es aus durch das Windprofil definiert ist. Dementsprechend ist automatisch auch ZINST definiert und d lässt sich nur im Falle sehr niedriger Vegetation ignorieren. Obwohl Wilson et al. (1982) dies in einem Fallbeispiel erwähnen, kann leicht der Eindruck entstehen, d spiele keine Rolle bei der Etablierung von ZINST. Führte man einen Feldversuch auf 10 cm hohem Gras durch, hätte man im Regelfall z_0 gegen $d = 2/3 \times 10$ cm evaluiert (für ZINST evaluieren müssen) und entsprechende ZINST identifiziert. Die anzustrebende Messhöhe über Grund wäre dann ZINST + d. Ignorierte man d, so würde auf zu niedriger Höhe gemessen, d.h. zu hohe Konzentrationen angenommen. Je nach \bar{u} Ausprägung könnte dies zu einer systematischen Überschätzung der Emissionen führen (noch abgesehen davon, dass man sich von ZINST entfernt hat).

C.2 Experimenteller Vergleich zwischen WindTrax, IHF & ZINST

Vergleiche zwischen IHF und (alter) ZINST Methode in der Literatur fallen positiv aus. Tabelle C.1 zählt Ergebnisse von Vergleichsstudien auf. Insgesamt bewegt sich die zu erwartende Genauigkeit und Präzision von ZINST im zu erwartenden Unsicherheitsbereich mikrometeorologischer Messungen (z.B. 10 bis 30 % Unsicherheit). Es ist zu beachten, dass ZINST im Prinzip eine Sonderfall-Modellierung mit dem WindTrax-Vorgänger bLS darstellt. Für das WindTrax-bLS ergeben sowohl die Vergleiche zu IHF-Messungen als auch in Freisetzungsexperimenten (hauptsächlich CH₄) im Durchschnitt eine sehr gute absolute Genauigkeit mit stochastischen Unsicherheiten um die 20 %. Tabelle C.1 beinhaltet unter anderem Studien, die auch eine WindTrax Anwendung in ungünstigen mikrometeorologischen Situationen betrachten (z.B. Emissionen von Kuhherden, Verallgemeinerung von Punkt- auf Flächenquellen, grobe Turbulenz- oder Stabilitätsbeschreibung, lange Mittelungszeiten, Hindernisse im fetch), reflektiert deren Ergebnisse allerdings meist im Anschluss an eine Qualitätsselektion. Abschliessend bleibt festzuhalten, dass für alle diskutierten Emissionsberechnungsmethoden abgesehen von Freisetzungsexperimenten (mit ihren eigenen Einschränkungen) keine absolute Referenz existiert. Gemeinhin wird die IHF Methode zu Vergleichszwecken herangezogen. Eine korrekte Anwendung einer jeden Methode ist Voraussetzung für jegliche Vergleiche.

Tabelle C.1: Literaturübersicht mikrometeorologischer Fluss-Mess-Methodenvergleiche ("ref." signalisiert die Referenzmethode, Angaben als Verhältnisse, d.h. 1 $\hat{=}$ 100 %, MBM = Mass Balance Method, FG = Flux Gradient Method, EC = Eddy Covariance Method).

Referenz	IHF/MBM	bLS	ZINST	FG	EC	Freisetzung
Wilson et al. (1983)	ref.		1.13 / 1.08			
McInnes et al. (1985)	ref.		1.13 ± 0.84			
Pain et al. (1989)	ref.		1.00 / 0.78 -			
			1.15 ⁺			
Flesch et al. (1995)			≈1	ref.		
Majewski et al.	ref.	1.04 ± 0.19				
(1990)						
Sommer et al. (1995)	ref.		0.85 - 1.38 ⁺			
Flesch et al. (2002)	ref.	1.06		≈0.7		
Laubach und Kelliher	ref.	1.09 ± 0.2		≈1.1		
(2005)***						
Sommer et al.	ref.	0.76 - 0.81 ± 0.2 -	0.89 ± 0.26			
(2005)****		0.6				
Laubach und Kelliher	ref.	1.14 - 1.17				
(2005)***						
Laubach et al.	1.13	1.09 - 1.3		1.04		ref.
(2008)***						
McGinn et al.		0.93 / 0.69				ref.
(2009)***						
Laubach (2010)***	ref.	$0.91 - 1.20 \pm 0.06$ -				
		0.09				
Sanz et al. (2010)	ref.	0.95 / 1.1 0				
Sintermann et al.		1.00 / 0.97			ref.	
(2011a)						
Tomkins et al. (2011)	ref.x	0.99				
Laubach et al.	0.76 - 0.9	ref.				
(2012)						
Laubach et al.	ref.		1.03			
(2012)						
Grant et al. (2013)	ref.	0.89 - 0.95				
Flesch et al. (2004)		1.02 ± 0.22				ref.
Flesch et al. (2005)**		$0.98 - 1.02 \pm 0.20$				ref.
McBain und Desjardins		1.06 ± 0.16				ref.
(2005)						
McGinn et al. (2006)		1.00 ± 0.29				ref. ^
Harper et al. (2006)		1.07 ± 0.13				ref.
Berkhout et al.	0.8*	1.07 ± 0.10				ref.
(2008)	0.0					101.
Gao et al. (2009b)		1.00 ± 0.30				ref.
Gao et al. (2009a)	1.01 ± 0.06	1.03 ± 0.16				ref.
Gao et al. (2010)**	0.00	0.93 - 1.03 / 0.99 -				ref.
		1.09				101.
Wilson et al.		0.87 - 1.88 ± 0.10 -				ref.
(2010)*****		0.17				. 51.
Ro et al. (2011)		0.98 ± 0.24 / 1.08 ±				ref.
5. 4 (2011)		0.30 ± 0.247 1.00 ±				101.
Flesch et al. (2013)		1.00 ± 0.22 / 1.06 ±				ref.
1 100011 of all (2010)		0.3				101.
Ro et al. (2013)**		0.93 ± 0.19 / 0.81 ±				ref.
J. a. (=010)		3.00 ± 0.10 / 0.01 ±				

measured by TDL, "downwind of obstacle(s), "emissions from cattle, ""long averaging periods, ""different, but similar MOST bLS & strongly disturbed windfield, calculated from SF₆ vs. Table1, derived from presented cumulated loss, "open circuit respiration chambers, "SF₆ release from barn/pen; all release experiments with CH₄, except for Berkhout et al. (2008): NH₃, Flesch et al. (1995): VOCs, Laubach et al. (2008): CH₄ & SF₆, Laubach et al. (2012): enteric SF₆ & N₂O, McGinn et al. (2006): SF₆, McGinn et al. (2009): enteric SF₆.

C.3 Abschätzung des Anteil horizontaler turbulenten Dispersion am Advektionsfluss einer IHF Berechnung

Der angesprochene Anteil der horizontalen turbulenten Dispersion am gesamten horizontalen Transport \overline{uc} ist in der Regel nur grob abschätzbar. Im Falle einer flächenmässig be-

grenzten Emission wirkt dieser turbulente Anteil immer entgegen dem mittleren Horizontalwind Sintermann et al. (z.B. 2012). Speziell für eine kreisförmige Emissionsfläche ergibt sich eine Kombination aus $\overline{u'c'}$ sowie $\overline{v'c'}$, die ein berechnetes \overline{uc} Advektionsprofil aus separat gemessenem \bar{u} und \bar{c} für die IHF verfälscht. Es gibt fast keine Messungen die diesen Effekt direkt untersuchen. Prinzipiell müssten dafür integrierte Vertikalprofile von \overline{uc} und \overline{uc} verglichen werden. Leuning et al. (1985) sowie Schjoerring et al. (1992) haben Einheiten vorgestellt die c_{NH3} proportional zu u sammeln. Leuning et al. (1985) beziffern so den Beitrag horizontaler Turbulenz auf ca. 15 %. Raupach und Legg (1984) ermitteln in einem Windtunnel Experiment mittels fühlbarer Wärmefluss-Messungen einen Anteil von 10 %. Gao et al. (2009a) bestimmen für ein spezifisches CH₄ Freisetzungs-Experiment 7 bis 12 % (nah neutral bis instabil) und Desjardins et al. (2004) kommen im Mittel auf ca. 5 %. Diese Werte gelten im strengen Sinne nur für die untersuchten Situationen und im Rahmen der Ungenauigkeit der Messungen. Für eine systematische Betrachtung simulierten Wilson und Shum (1992) mit ihrem 3D bLS IHF Experiment für verschiedene Kreisflächengrössen zwei verschiedene z₀ und drei kontrastierende Stabilitätsregime. Der Vergleich zum vorgegebenen Emissionsfluss erlaubt dann eine Abschätzung des horizontalen turbulenten Transportes (Abbildung C.1). Für $z_0 = 1$ cm wird je nach Kreisradius und Stabilität eine Spanne von ca. 0 bis 20 % angegeben. Für X>20 m ist der Beitrag geringer als 10 %. Laubach und Kelliher (2004) errechnen mit Hilfe von MOST Überlegungen für ihren Anwendungsfall (CH $_4$ Emissionen grasender Kühe, X = 50 bis 300 m, z₀ = 2.2 cm, relativ neutrale Schichtung) eine horizontale Turbulenzkorrektur von 3 bis 30 % mit einem Mittelwert von 12 %. In vorliegender Studie wurde mit WindTrax eine Modellierung analog zu Wilson und Shum (1992) durchgeführt. Dabei wurde das Vertikalprofil generell bis 40 m Höhe für einen Emissionskreis mit X = 20 m betrachtet. Das Ergebnis, analog zu Abbildung C.1 (mit R = 20 m), ist in Abbildung C.2 für eine Reihe variierender z_0 dargestellt.

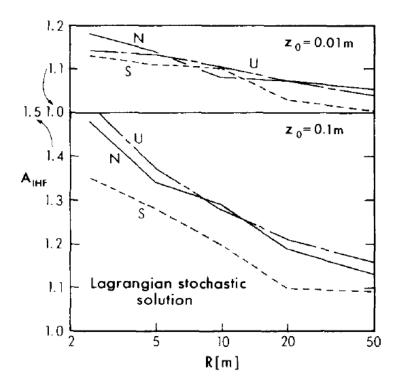


Abbildung C.1: Aus Wilson und Shum (1992): Genauigkeit der simulierten IHF (A_{IHF}) für Emissionsplots verschiedener Radien (R) und zwei z_0 ; S = stabile, N = neutrale, U = instabile atmosphärische Schichtung; A_{IHF} Abweichungen von 1 repräsentieren theoretisch den Beitrag des horizontalen turbulenten Transportes.

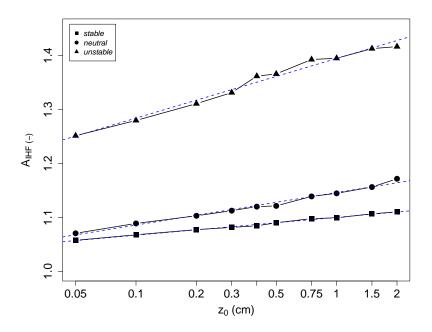


Abbildung C.2: A_{IHF} für X = 20m, drei Stabilitätsregime und verschiedene z_0 mittels WindTrax; Profilberechnungen wie für ZINST 2013 (siehe Kapitel B.4).

Für den mit Wilson und Shum (1992) vergleichbaren Fall ($z_0 = 1$ cm, X = 20 m) ergibt sich bei stabiler Schichtung ein Anteil um 8 %, für neutrale Schichtung um 13 % und bei sehr instabilen Verhältnissen knapp 40 %. Die beiden erstgenannten Werte sind, obgleich leicht höher, vergleichbar mit den Ergebnissen in Abbildung C.1 und kompatibel mit den weiteren Abschätzungen aus o.g. Literatur. In der Abbildung aus Wilson und Shum (1992) sind stärkere stochastische Schwankungen erkennbar als in Abbildung C.2. Es gibt zudem fast keinen Unterschied zwischen neutralen und instabilen Verhältnissen. Das liegt nach Meinung des Autors an Unsicherheiten in der Vertikalinterpolation der mit dem bLS diskret berechneten Profil (siehe ?). In vorliegender Arbeit wurde sorgfältig darauf geachtet, eine passende sowie ausreichend hoch reichende Profilbeschreibung anzuwenden (Kapitel B.3). Generell können Unterschiede in der Turbulenzparameterisierung zwischen den verwendeten bLS Modellen ebenfalls zu abweichenden Ergebnissen führen. Es ist zu erwarten, dass die horizontale turbulente Dispersion bei sehr instabilen Bedingungen am intensivsten wirkt. Speziell die Situation einer kreisförmigen Emissionsfläche bei einer IHF Messung verstärkt den systematischen Fehler nichtberücksichtigter horizontaler turbulenter Dispersion, da diese kombiniert in x- und y-Richtung wirkt. Die kombinierte turbulente "Verdünnung" der Emissionsfahne nach oben sowie lateral verstärkt den systematischen Effekt. Nichtsdestotrotz erscheint der grosse modellierte Bias unter instabilen Bedingung in Abbildung C.2 etwas hoch.

D. Anhang Meteorologische Versuchsbedingungen

Tabelle D.1: Mittelwerte der meteorologischen Grössen Lufttemperatur, Windstärke und Luftfeuchte, sowie die Gesamtniederschlagsmenge über 96h nach Versuchsbeginn.

Versuchs ID	Datum	Standort	Lufttemperatur (℃)	Windstärke (m/s)	Luftfeuchte (%)	Niederschlagssumme (mm)
F1	20.09.2011	Tänikon	12.0	0.8	84	0
F2	08.11.2011	Posieux	5.7	0.8	97	0
F3	10.05.2012	Hohenrain	15.3	1.0	69	15
A1	14.07.2011	Tänikon	15.2	1.6	71	13
A2	12.03.2012	Posieux	7.9	1.9	68	0
A3	04.07.2012	Posieux	17.8	1.0	81	51
A4	14.08.2012	Posieux	19.5	1.2	73	17
A5	14.11.2012	Posieux	2.8	0.7	97	0
A6	06.05.2013	Posieux	13.3	1.1	78	19
G1	15.03.2012	Wengi	7.4		72	8
G2	24.05.2012	Wengi	16.7	2.6	63	0
G3	19.11.2012	Wengi	3.2	1.0	96	0
TS1	12.06.2013	Wengi	17.9	1.3	73	0
TS2	10.07.2013	Wengi	19.4	1.7	65	0
TS3	11.03.2014	Wengi	6.9	0.8	73	0
Z 1	27.08.2012	Tänikon	16.1	0.9	80	44
Z2	04.07.2013	Tänikon	19.4	1.2	74	1

Tabelle D.2: Gewichtete Mittelwerte der meteorologischen Grössen Lufttemperatur, Windstärke und Luftfeuchte über 96h nach Versuchsbeginn.

Versuchs ID	Datum	Standort	Lufttemperatur (°C)	Windstärke (m/s)	Luftfeuchte (%)
F1	20.09.2011	Tänikon	14.9	2.4	66
F2	08.11.2011	Posieux	10.1	2.8	59
F3	10.05.2012	Hohenrain	20.1	0.9	75
A1	14.07.2011	Tänikon	22.9	0.9	61
A2	12.03.2012	Posieux	6.8	0.8	78
A3	04.07.2012	Posieux	13.9	1.4	77
A4	14.08.2012	Posieux	13.3	1.1	74
A5	14.11.2012	Posieux	8.8	0.9	96
A6	06.05.2013	Posieux	20.9	0.7	61
G1	15.03.2012	Wengi	15.0		41
G2	24.05.2012	Wengi	20.1	3.6	72
G3	19.11.2012	Wengi	2.2	1.1	98
TS1	12.06.2013	Wengi	19.6	0.6	60
TS2	10.07.2013	Wengi	24.4	2.7	57
TS3	11.03.2014	Wengi	10.2	3.7	49
Z1	27.08.2012	Tänikon	18.6	1.3	66
Z 2	04.07.2013	Tänikon	18.6	1.1	74

E. Anhang Produktionstechnik der Versuchsbetriebe

Tabelle E.1: Produktionstechnik der Versuchsbetriebe.

Versuchsstandort	Posieux	Wengi	Wengi	Hohenrain	Tänikon
Betrieb	ALP Posieux	Generationenge-	Schöni	BBZN Hohenrain	ART Tänikon
		meinschaft Hauert	COHOIII		
Milchkühe (Anzahl) Eingrasen im Sommer	81	30 X		50	55
Fütterung Heu im Sommer	Х	X			X
Fütterung Maissilage im Sommer	Α	^			x
Fütterung Maiswürfel im Sommer	Χ				
Fütterung Maissilage im Winter	X			X	X
Fütterung Grassilage im Winter	X			Χ	X
Fütterung Maiswürfel im Winter Fütterung Kartoffeln im Winter	Х	Х			
Durchschnittliche Kraftfuttermenge im Som-	^	^			
mer (kg pro Tag)	2-3	1-2		0	3-5
Durchschnittliche Kraftfuttermenge im Winter					
(kg pro Tag)	2-3	2-3		<1	3-5
Anbindestall mit Produktion von Vollgülle Anbindestall mit Produktion von Gülle und					
Mist					
Laufstall mit Produktion von Vollgülle	X	Χ		X	X
Laufstall mit Produktion von Gülle und Mist					
Laufstall mit Tiefstreue / Tretmist					
Jährliche Zutrittsdauer zum Laufhof	165	300		365	300
Laufhof, keine Fütterung im Laufhof Laufhof, Fütterung teilweise im Laufhof	Х	Х		Χ	X
Laufhof, Fütterung vollständig im Laufhof					
Laufhof mit befestigtem Boden	X			Χ	
Laufhof mit unbefestigtem Boden					
Laufhof mit perforiertem Boden		X			X
Weide als Laufhof					
Jährliche Weidetage Tägliche Weidestunden	200 17	190 8.5		220 16	190 3
Galtsauen (Anzahl)	17	100	70	16	3
Rohproteingehalt der Ration		140	**		
Energiegehalt der Ration		12	**		
Konventioneller Stall ohne Auslauf		X			
Labelstall mit Mehrflächenbucht und Auslauf			Х		
Tiefstreustall Weidehaltung					
Säugende Sauen (Anzahl)		40	30		
Rohproteingehalt der Ration		190	**		
Energiegehalt der Ration		14	**		
Konventioneller Stall ohne Auslauf		Χ			
Labelstall mit Mehrflächenbucht und Auslauf Tiefstreustall			X		
Weidehaltung					
Ferkel abgesetzt bis 25 kg (Anzahl)		400	160		
Rohproteingehalt der Ration		180	***		
Energiegehalt der Ration		13.8	***		
Konventioneller Stall ohne Auslauf Labelstall mit Mehrflächenbucht und Auslauf		X	X		
Tiefstreustall			^		
Weidehaltung					
Mastschweine/Remonten (Anzahl)		50	600		
Rohproteingehalt der Ration Phase 1			**		
Rohproteingehalt der Ration Phase 2					
Rohproteingehalt der Ration Phase 3 Konventioneller Stall ohne Auslauf		X	-		
Labelstall mit Mehrflächenbucht und Auslauf		^	Х		
Tiefstreustall					
Weidehaltung					
Cällalanan					
Güllelager Volumen gesamt	4200 m ³	1100 m ³	1200 m ³		710 m^3
Intervall Aufrühren: max. 2 Mal pro Xhr	+200 III	1100111	1200 111		/ IV III
Intervall Aufrühren: 3-6 Mal pro Xhr					
Intervall Aufrühren: 7-12 Mal pro Xhr	Χ	Χ	X	Χ	
Intervall Aufrühren: 13-20 Mal pro Xhr					X
Intervall Aufrühren: 21-30 Mal pro Xhr Intervall Aufrühren: mehr als 30 Mal pro Xhr					
Verdünnung der Gülle	1:1	1:1	1:1	1:1	1:1
Abdeckung des Güllelagers: ungedeckt	1600m ³			1000 m ³ *†	***
Abdeckung des Güllelagers: feste Abdeckung					
Beton, Holz	400 m ³ *	60 m^3 , $600 \text{ m}^{3*\dagger\dagger}$	1200 m ^{3+†††}		
Abdeckung des Güllelagers: perforierte Ab-					3.
deckung		100 m ^{3+†}			850 m ³ *
Abdeckung des Güllelagers: Folienzelt					

^{*}Lager für die im Versuch verwendete Gülle. **keine detaillierten Angaben (Ration bestehend aus Futterkartoffeln, Schotte, Ergänzungsfutter; NPr, 2 Phasenfütterung).
****keine detaillierten Angaben (NPr). †Rindviehvollgülle. ††Zuchtschweingülle. ††***Mastschweingülle.