

Biologische Stallumluftwäsche zur Minderung der Ammoniakbelastung in der Schweinehaltung: Potenzial und Kostenanalyse

Patrick Schale, Eva Gallmann, Armin O. Schmitt, Engel F. Arkenau, Jochen Hahne

Erhöhte Ammoniak- und Aerosolkonzentrationen in Schweineställen können zu gesundheitlichen Schäden bei Tieren und Menschen führen, leistungsmindernd wirken und als Emissionen die Umwelt belasten. Das Hauptziel der Untersuchung bestand darin, eine Methode für die Stallumluftwäsche zu entwickeln und zu evaluieren. Dabei sollte ein Teilstrom der Stallluft entnommen, durch einen mehrstufigen Reinigungsprozess geführt und anschließend wieder in den Stall zurückgeleitet werden, um so die Qualität der Stallluft effektiv zu verbessern. Ammoniak wird dabei aus dem Rohgas in einem flüssigen Medium absorbiert und anschließend über eine Nitrifikations- und Denitrifikationseinheit in atmosphärischen Stickstoff umgewandelt. In einem Technikumsversuch, der sich auf die Reduzierung von Ammoniak bei einer auf 16 Tierplätzen ausgelegten Anlage konzentrierte, zeigte sich, dass sowohl die Nitrifikations- als auch die Denitrifikationsleistung in Relation zur Anlagengröße gering waren. Die Nitrifikationsrate lag bei $0,21 \text{ g NO}_x\text{-N l}^{-1} \text{ d}^{-1}$ (SD = $0,06 \text{ g NO}_x\text{-N l}^{-1} \text{ d}^{-1}$) während die Denitrifikationsrate bei $1,11 \text{ g NO}_x\text{-N l}^{-1} \text{ d}^{-1}$ (SD = $0,37 \text{ g NO}_x\text{-N l}^{-1} \text{ d}^{-1}$) bezogen auf die Anlagenauslegung lag. Die Emissionen von Sekundärgas waren mit 1,3 % der N-Dosierung gering. Bei einer vergleichenden Kostenkalkulation mit der klassischen chemischen Abluftreinigung (Chemowäsche) zeigten sich deutlich höhere Betriebskosten für das getestete Verfahren, was darauf hinweist, dass es momentan noch nicht für den praktischen Einsatz geeignet ist. Es konnten keine Messungen zur Beurteilung der Verbesserung der Stallluftqualität durchgeführt werden.

Schlüsselwörter

Stallumluftwäsche, Ammoniakminderung, Nitrifikation, Denitrifikation, sekundäre Spurengase, Verfahrenskosten

In der Bundesrepublik Deutschland wurden im Jahr 2020 537.000 t Ammoniak (NH_3) emittiert. Davon stammten 512.300 t NH_3 aus der Landwirtschaft (Vos et al. 2022). Seit dem Jahr 2020 ist Deutschland verpflichtet, seine NH_3 -Emissionen gegenüber 2005 jährlich um 5 % zu reduzieren, ab 2030 um 29 % pro Jahr (RICHTLINIE (EU) 2016/2284). Von den 512.300 t NH_3 stammten 84.700 t NH_3 (16,5 %) aus der Schweinehaltung, wovon der Hauptanteil (67,5 %) dem Stall zuzuordnen war (Vos et al. 2022). Spätestens ab dem 01.01.2029 müssen alle Schweinemastställe ab 1.500 Mastplätzen eine Emissionsminderung von mindestens 40 % bezogen auf den Referenzwert von 2,91 kg NH_3 je Tierplatz (TP) und Jahr bei einer rohprotein- und phosphorangegebenen Mehrphasenfütterung erreichen (BIMSCHV 2021, TA LUFT 2021). Da die meisten Schweine in der Kategorie 1.000–1.999 Schweine pro Betrieb gehalten werden, betrifft diese Regelung einen Großteil der Betriebe (STATISTISCHES BUNDESAMT 2023). Dies macht deutlich, dass es einen großen Handlungsdruck gibt. Eine genauere Aussage,

wie viele Tiere in der Kategorie von 1.500 bis 1.999 Schweine pro Betrieb gehalten werden, war aufgrund der fehlenden Unterteilung beim Statistischen Bundesamt nicht möglich.

Erhöhte Ammoniak- und Staubkonzentrationen können sich negativ auf die Tiergesundheit und das Tierwohl auswirken. Ammoniak hat einen stechenden Geruch und wirkt reizend auf die Schleimhäute der Atemwege und der Bindehäute (KLICHE und MEHLHORN 1979). Einen signifikanten Zusammenhang zwischen dem Anstieg der NH_3 -Konzentration und steigenden Pneumoniebefunden bei Mastschweinen konnte RICHTER (2015) ermitteln. DONHAM (1991) gibt an, dass Pneumonie- und Brustfellbefunde mit dem NH_3 -Gehalt und dem lungengängigen Staubgehalt der Stallluft korrelieren. Der gesetzliche Grenzwert für NH_3 -Konzentrationen in der Stallluft liegt bei 20 ppm und darf seit 2021 auch nicht mehr kurzzeitig überschritten werden (TIERSCHNUTZTV 2017, 2021). Neben den schädigenden Einflüssen von Schadgasen und Stäuben auf die Schweine kommt es ebenfalls zu Belastungen und ggf. zu Erkrankungen der Atemwege bei den Landwirten (IVERSEN et al. 1988, LARSSON et al. 1994, KÖLBECK et al. 2000, RADON et al. 2003).

Aufgrund der beschriebenen Problematik sollte ein neues Verfahren zur Elimination von Ammoniak und Aerosolen aus der Stallluft entwickelt werden, welches die Luftqualität bereits im Stall und damit das Tierwohl sowie die Arbeitsbedingungen für die Landwirte verbessert. Das aus der Stallluft herausgewaschene NH_3 sollte mittels einer Nitrifikation und Denitrifikation in umweltverträglichen, gasförmigen Stickstoff (N_2) umgewandelt werden. Des Weiteren sollte durch den Luftwäscher der Staubgehalt der Stallluft reduziert werden. Dazu wurde eine Abluftreinigung konzipiert, die als Umluftverfahren im Stallabteil mit einer Teilstromreinigung bei der maximal doppelten Winterluftfrate betrieben werden sollte. Durch den Einsatz als Teilstromreinigung sollte die relative Luftfeuchtigkeit im Stall durch die Befeuchtung im Luftwäscher auf einem akzeptablen Niveau gehalten werden. Ferner sollte durch die Teilstromreinigung der Abluftvolumenstrom reduziert werden, da die Frischluftzufuhr im Stallabteil geringer ausfallen sollte. Aufgrund des geringeren Volumenstroms sinken die Ammoniakemissionen. Außerdem sollte aufgrund des reduzierten Luftwechsels eine Energieeinsparung ermöglicht werden, da weniger Energie für die Lüftung und Heizung benötigt wird.

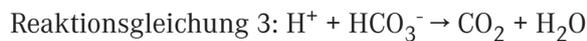
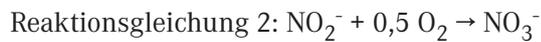
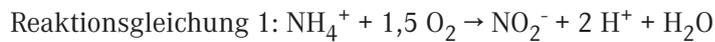
Ziel war es, den Prototypen auf seine grundsätzliche Eignung zu testen, die Anlagenleistung inklusive ihrer Verbrauchsmedien und die Betriebsstabilität zu ermitteln und die Betriebskosten im Vergleich zu einer chemischen Abluftreinigung zu bewerten. Im Fokus der Untersuchung stand ausschließlich die Effektivität der Reinigungsstufen. Aufgrund einer fehlenden Möglichkeit, die Versuchsanlage in einem Mastschweinestall zu installieren, beschränkt sich die Studie darauf und macht keine Aussagen zur Verbesserung der Stallluftqualität.

Grundlagen des Verfahrens

Das im Waschwasser der Luftwäschereinheit gelöste Ammonium (NH_4^+) wird in der Nitrifikationseinheit über Nitrit (NO_2^-) zu Nitrat (NO_3^-) oxidiert (Reaktionsgleichung 1 und 2). Bei der Oxidation von 1 mol NH_4^+ entstehen 2 mol Wasserstoffionen (H^+). Um den pH-Wert stabil zu halten, wird ein Puffer eingesetzt (Reaktionsgleichung 3; RENNERT 1981, HENZE et al. 1995, MUDRACK und KUNST 2003).

Eine effektive Denitrifikationseinheit bewirkt eine Zunahme der Alkalität, die aus der Freisetzung von Hydroxidionen (OH^-) während des Denitrifikationsprozesses resultiert (Reaktionsgleichung 4; MUDRACK und KUNST 2003). Dies ermöglicht es, ca. 50 % der im Nitrifikationsprozess entstandenen Protonen zu puffern, indem das aus der Denitrifikationseinheit rückgeführte Wasser in die Nitrifika-

tionseinheit geleitet wird (VAN RIJN et al. 2006). Das Verhältnis von Stickstoffdosierung zu Pufferverbrauch liegt somit bei ca. 1 : 1.



Material und Methoden

Beschreibung der Versuchsanlage

Für die Stallumluftwäsche wurde eine Versuchsanlage bestehend aus drei Komponenten konzipiert. Im Luftwäscher sollte zunächst der Ammoniak aus der Stallluft gebunden und über das Waschwasser in die Nitrifikationseinheit geleitet werden. In dieser Einheit erfolgte die Oxidation von Ammoniak zu Nitrit und Nitrat. Abschließend wurde in der Denitrifikationseinheit das Nitrat in Stickstoffgas (N_2) umgewandelt. Nachfolgend werden nur die Nitrifikations- und Denitrifikationseinheit näher betrachtet, weil die Gesamtanlage nicht Gegenstand der Untersuchung war (Abbildung 1). Ein Test der Gesamtanlage in einem Schweinemaststall war aufgrund der COVID-19-Pandemie nicht möglich. Daher wurde die Versuchsanlage im Technikum des Thünen-Instituts für Agrartechnologie, Braunschweig, aufgebaut und mit einer künstlichen Stickstoffzugabe in Form von Harnstoff ohne den Luftwäscher betrieben. An die Anlage wurden ähnliche Anforderungen bezüglich der Datendokumentation in Form eines elektronischen Betriebstagebuchs (EBTB) gestellt, wie sie auch an zertifizierte Abluftreinigungen gestellt werden (ARENDS et al. 2006, GRAMATTE und HÄUSER 2006, DLG 2018, VERA 2018, TA LUFT 2021).

Die Anlage wurde ganztägig betrieben, wobei ein Wassertausch zwischen der Nitrifikations- und Denitrifikationseinheit nur diskontinuierlich erfolgte, indem die Pumpe zum Übertrag von Wasser aus der Nitrifikationseinheit in die Denitrifikationseinheit nur tagsüber für acht Stunden eingeschaltet und anschließend wieder ausgeschaltet wurde. Dies hatte sich im Rahmen von Vorversuchen als optimal erwiesen. Innerhalb dieser acht Stunden wurde die Methanoldosierung betrieben. Der diskontinuierliche Anlagenbetrieb diente dazu, einen Übertrag von Methanol (CH_3OH) aus der Denitrifikationseinheit in die Nitrifikationseinheit und damit einhergehende Störungen dieser zu vermeiden. Die Versuchsanlage war auf die doppelte Winterluftfrate nach DIN 18910:2017-08 (2017) und 16 Tierplätze ausgelegt.

Nitrifikationseinheit

Das Wasservolumen betrug bei einem Normfüllstand 129 l. In der Nitrifikationseinheit (3), einem Moving Bed Biofilm Reaktor (MBBR, Bewegtbett-Biofilmreaktor) befanden sich 60 l Füllkörper (HEL-X BIOCARRIERS HXF12KLL). Die Harnstofflösung (1) wurde dosierfertig angemischt und mittels Dosierpumpe (2) in die Anlage eingebracht. Durch ein Gebläse (4) wurde die Nitrifikationseinheit dauerhaft mit Frischluft zur Sauerstoffversorgung (O_2) belüftet. Am Luftaustritt aus der Nitrifikationseinheit konnte die Luftgeschwindigkeit (8) händisch gemessen werden. Als Pufferlösung (5) wurde Natriumhydrogencarbonat in einer Konzentration von 80 g l^{-1} eingesetzt. Eine Dosierung von Natriumhydrogencarbonat war durchgängig möglich und erfolgte in Abhängigkeit vom pH-Wert des Wassers in der Nitrifikation. In dem Behälter befanden sich Sensoren zur Ermittlung des pH-Wertes, der Wassertemperatur und des Sauerstoffgehalts. Zum Erreichen der Solltemperatur war im Behälter

ein Heizstab verbaut. Die Frischwasserzufuhr (6) der gesamten Anlage erfolgte über die Nitrifikationseinheit. Geregelt wurde der Füllstand über einen Füllstandsensoren. Eine Schlauchpumpe (10) versorgte die Denitrifikationseinheit mit Wasser aus der Nitrifikationseinheit.

Denitrifikationseinheit

Die Denitrifikationseinheit (11) hatte ein Wasservolumen von 29 l bei einem Normfüllstand. Im Behälter befanden sich 12 l Füllkörper der gleichen Sorte wie in der Nitrifikation. Bei der eingesetzten Denitrifikationseinheit handelte sich um einen sogenannten Self-cleaning Inherent Gas Denitrification Reactor (SID-reactor). Das Gasmisch im Behälter wurde über ein Gebläse (13) im Intervall in das Wasservolumen des Behälters zurückgedrückt. Als Kohlenstoffquelle (12) für die Denitrifikanten wurde Methanol in einer Verdünnung von 1:5 eingesetzt. Die Denitrifikationseinheit wurde aktiv mit Stickstoffgas (14) begast, um dauerhaft eine ausreichende Menge Gas zur Analyse dem Fourier-Transformations-Infrarotspektrometer (FTIR) (17) zur Verfügung zu stellen. Der Gasdurchsatz wurde auf 1 l min⁻¹ eingestellt. Zur Messung der Volumenströme kamen zwei Trommelgaszähler (15) zum Einsatz. Ein 50-l-Gasreservoir diente als Gassammelbehälter (16), aus dem das FTIR seine Probe zog. In der Denitrifikationseinheit befanden sich eine baugleiche pH-Sonde mit integriertem Temperaturfühler und der baugleiche Heizstab wie in der Nitrifikationseinheit. Außerdem war eine Redox-Sonde verbaut. Über einen freien Rücklauf floss überschüssiges Wasser aus der Denitrifikationseinheit zurück in die Nitrifikationseinheit.

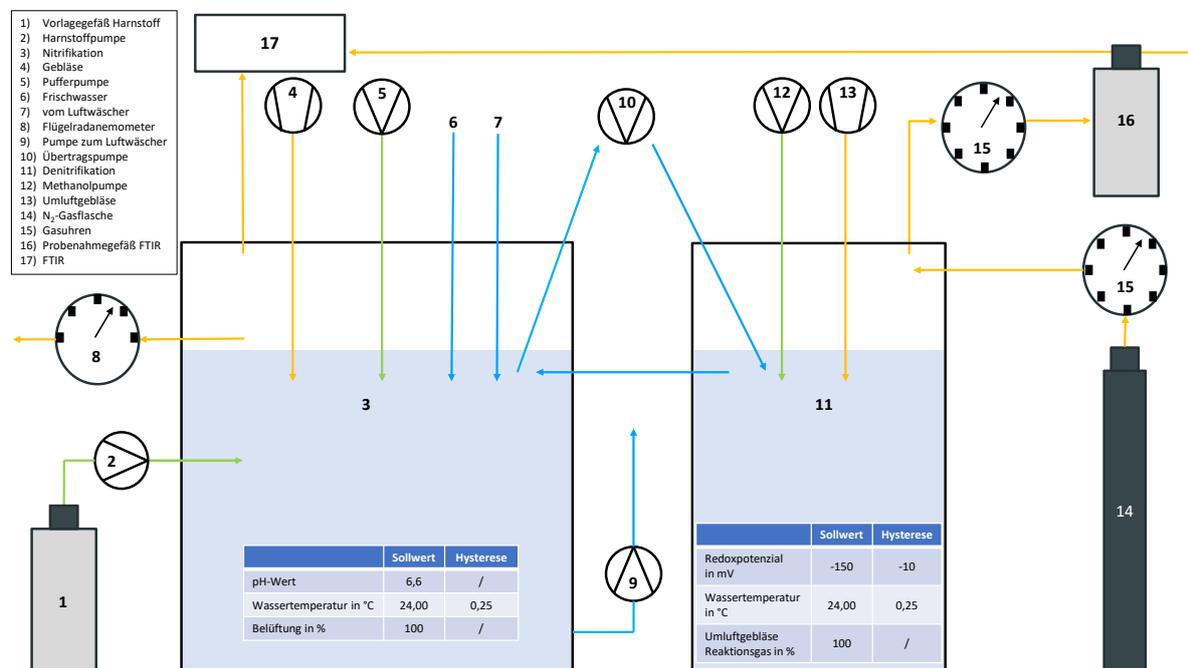


Abbildung 1: Schematische Darstellung der Nitrifikationseinheit (3) und der Denitrifikationseinheit (11) mit den wichtigsten Sollwerten

Anlagenbetreuung und Datenerfassung an der Anlage

Die Anlage wurde täglich mehrfach kontrolliert und sieben Tage die Woche von zwei Personen nach einem festen Protokoll betreut. In der Regel wurde einmal wöchentlich die Anlage anhand eines Wartungsplans gewartet. Bei Bedarf wurde händisch eine Abschlammung durchgeführt bzw. das schlammhaltige Wasser entzogen, wobei maximal aus beiden Behältern ca. 50 % des Behälterinhalts, ausgehend vom Normfüllstand, durch Frischwasser in der Nitrifikations- bzw. in der Denitrifikationseinheit durch Wasser aus der Nitrifikationseinheit ersetzt wurde. Eine Abschlammung fand in der Regel statt, wenn die elektrische Leitfähigkeit in der Nitrifikationseinheit auf 20 mS cm^{-1} , spätestens bei 25 mS cm^{-1} , gestiegen war (HAHNE et al. 2016, HAHNE und PFEIFER 2017).

Nasschemische Analysen

Die relevanten Stickstofffraktionen, die elektrische Leitfähigkeit und der Chemische Sauerstoffbedarf (CSB) wurden im Labor in Wasserproben bestimmt, die nach dem Auffüllen auf den Normfüllstand und Spülen der Ablassrohre aus der Versuchsanlage gezogen wurden (Tabelle 1).

Tabelle 1: Analysemethoden für relevante Wasserparameter

Parameter	Analysemethode
Ammonium-N ($\text{NH}_4\text{-N}$)	in Anlehnung an die DIN 38406-5:1983-10 (1983) mit 33 prozentiger technischer Natronlauge
Nitrit-N ($\text{NO}_2\text{-N}$), Nitrat-N ($\text{NO}_3\text{-N}$)	DIN EN ISO 10304-1:2009-07 (2009)
Elektrische Leitfähigkeit	DIN EN 27888:1993-11 (1993)
Chemischer Sauerstoffbedarf (CSB)	DIN ISO 15705:2003-09 (2003)

Leistungsermittlung der Anlage

Aus den um 08:00 Uhr und um 16:00 Uhr gezogenen Wasserproben, die jeweils auf $\text{NO}_2\text{-N}$ und $\text{NO}_3\text{-N}$ analysiert wurden, konnte die Nitrifikationsleistung ($\text{NO}_x\text{-N}$) berechnet werden. Die Nitrifikationsleistung wurde für die Nitrifikationseinheit an 67 Tagen und für die Abbauleistung der Denitrifikationseinheit an 22 Tagen ermittelt. Aus diesem Datensatz wurden nur diejenigen Werte für die weitere Auswertung herangezogen, bei denen die Werte aus dem Elektronischen Betriebstagebuch für die Konzentration an gelösten Sauerstoff, den pH-Wert, die Wassertemperatur und das Redoxpotenzial in der Nitrifikations- bzw. Denitrifikationseinheit im Optimalbereich lagen (Tabelle 2). Das Bewertungsschema wurde anhand von eigenen Versuchsergebnissen mit der Versuchsanlage und anhand von Literaturangaben abgeleitet (BOON und LAUDELOUT 1962, FORSTER 1974, COLLINS et al. 1975, RENNERT 1981, KRÜNER und ROSENTHAL 1983, ØDEGAARD et al. 1994, CHEREMISINOFF 1995, HENZE et al. 1995, RUSTEN et al. 1995, LEE et al. 2000, MUDRACK und KUNST 2003, VERA 2018, HAHNE 2019).

Tabelle 2: Bewertungsschema für die Anlagendaten der Nitrifikations- und Denitrifikationseinheit im Rahmen der Leistungsermittlung

	O₂-Gehalt in mg l⁻¹	pH-Wert	Wassertemperatur in °C
Nitrifikationseinheit	< 0,5	< 6,0	< 12
	0,5 - 0,9	6,0 - 6,4	12 - 15
	1,0 - 9,0	6,5 - 7,5	> 15
	pH-Wertveränderung zwischen 08:00 Uhr und 16:00 Uhr	Redoxpotenzial am Ende (16:00 Uhr) in mV	Wassertemperatur in °C
Denitrifikationseinheit	< 0,1	< -400	< 12
	/	/	12 - 15
	≥ 0,1	≥ -400	> 15

Rot = Funktionsfähigkeit der Anlage nicht mehr gewährleistet

Gelb = Toleranzbereich

Grün = Optimalbereich

Als N-Emissionsfaktor für Mastschweine wurden 3 kg TP⁻¹ a⁻¹ bei Zwangslüftung mit Flüssigmistverfahren bei Teil- oder Vollspaltenboden zugrunde gelegt (TA LUFT 2021). Die Versuchsanlage war auf die doppelte Winterlüfrate nach der DIN 18910:2017-08 (2017) (33,8 m³ TP⁻¹ h⁻¹) und 16 Tierplätzen ausgelegt. Die durchschnittliche Jahreslüfrate beträgt ca. 50 % im Verhältnis zur Maximallüfrate nach HAHNE und PFEIFER (2017) und wurde zur Berechnung der Anlagenauslegung bei einer vollständigen Reinigung der Stallluft angenommen. Die Versuchsanlage konnte somit maximal 68 % der N-Emissionen, bezogen auf eine vollständige Reinigung der Luft, reinigen. Somit lag die maximale N-Emissionsminderung der Versuchsanlage bei 2.038 g N TP⁻¹ a⁻¹ (68 % von 3.000 g N TP⁻¹ a⁻¹ nach TA LUFT (2021)).

Die Anlagenleistung in Gramm je Tag wurde auf das Behältervolumen in Liter bezogen. In einem letzten Schritt wurde die prozentuale Anlagenleistung bezogen auf die Anlagenauslegung berechnet.

Die Methanoldosierung erfolgte unabhängig vom Redoxpotenzial mit festgelegten Mengen (Tabelle 3). Dabei wurden nur die Tage berücksichtigt, welche durch die Prüfung anhand des Bewertungsschemas in Tabelle 2 in die Auswertung eingeflossen sind.

Tabelle 3: Methanoldosierung an den Tagen, die in die Auswertung zur Leistungsermittlung der Denitrifikationseinheit einbezogen wurden

N-Dosierung g d⁻¹	Anzahl Messwerte	Zugabemenge von Methanollösung (1 : 5) g d⁻¹
15	6	90
15	4	150
30	2	350
60	2	900

Ermittlung der Bildung sekundärer Spurengase und Erfassung der Betriebsmittelverbräuche für die kalkulatorische Bewertung des Gesamtverfahrens

Die Ermittlung der Stickstoffemissionen über sekundäre Spurengase und die Erfassung der Betriebsmittelverbräuche erfolgte im Zeitraum vom 24.08.2020 08:00 Uhr bis 16.11.2020 07:59 Uhr. Die N-Dosierung lag über die 84 Versuchstage bei 30 g d^{-1} .

Sekundäre Spurengase

Zur Erfassung der sekundären Spurengase wurde ein FTIR mit beheizten Messgasleitungen (Messgaszelle und Leitungen Sollwert $80 \text{ }^\circ\text{C}$) eingesetzt. Über einen Messstellenumschalter wurden die Messpunkte Außenluft (zur Analyse der Frischluft), Nitrifikationseinheit (direkt am Nitrifikationsbehälter) und Denitrifikationseinheit (am Gassammelbehälter) beprobt. Die beiden erstgenannten wurden im Wechsel angesteuert, während die Denitrifikationseinheit ca. alle 90 Minuten angefahren wurde. Um 01:00 Uhr erfolgte eine Nullpunktmessung mit reinem Stickstoffgas.

In der Nitrifikationseinheit wurden von den gemessenen Konzentrationen die Messwerte für die Außenluft subtrahiert. Die ermittelten Messwerte für die Nitrifikations- und Denitrifikationseinheit wurden mit dem jeweiligen Standardvolumenstrom (bei $273,15 \text{ K}$) zur Berechnung der Emissionsfrachten multipliziert. Die ermittelten N-Verluste für N_2O , NH_3 , NO und NO_2 aus zwei Stundenmittelwerten wurden für jeden Behälter getrennt über den Betrachtungszeitraum summiert. Außerdem wurde der N-Austrag auf die N-Dosierung bezogen, um eine Aussage über den prozentualen Anteil der Stickstoffverluste machen zu können. Dazu wurden die täglich erfassten dosierten Stickstoffmengen addiert. Für jedes der vier Spurengase wurde getrennt nach den Behältern der prozentuale Anteil am Gesamtaustrag ermittelt, um darstellen zu können, welches Gas welchen Anteil zu den Verlusten beigetragen hat.

Medienverbräuche

Für die Versuchsanlage wurden die Medienverbräuche wie folgt berechnet:

Wasser:

Der Wasserverbrauch der Versuchsanlage setzte sich aus den Wasserverlusten über die Abschlammung und den Wasserdampfverlusten über den Volumenstrom zusammen. Die Gesamtmenge des abgeschlammten Wassers, erfasst durch Gewichtsmessungen beim manuellen Wasserwechsel, wurde kumulativ addiert. Wasserverluste über Verdunstung wurden über das FTIR erfasst. Aus diesen Daten wurde der gesamte Wasserverlust berechnet und auf den Verbrauch je Tierplatz und Jahr umgerechnet.

Puffer und Methanol:

Die Methanoldosierung erfolgte anfangs mit einer konstanten Menge von ca. 350 g Methanol (1:5) pro Tag. Später erfolgte die Methanoldosierung automatisch in Abhängigkeit des Redoxpotenzials, wobei bis zu 350 g Methanol (1:5) pro Tag dosiert wurden. Die täglich erfassten Werte wurden für den Betrachtungszeitraum summiert, anschließend auf die reine Natriumhydrogencarbonat- bzw. Methanolmenge umgerechnet und auf Tierplatz und Jahr bezogen.

Anschließend wurde eine Hochrechnung der Verbrauchsmengen für alle drei Medien auf 100 % Anlagenleistung vorgenommen.

Die Medienverbräuche wurden für drei Varianten berechnet:

- Variante 1: $2.038 \text{ g N TP}^{-1} \text{ a}^{-1} = 68 \% \text{ N-Emissionsminderung (2-fache Winterluftrate, maximale Auslegung der Versuchsanlage)}$
- Variante 2: $1.019 \text{ g N TP}^{-1} \text{ a}^{-1} = 34 \% \text{ N-Emissionsminderung (1-fache Winterluftrate)}$
- Variante 3: $957 \text{ g N TP}^{-1} \text{ a}^{-1} = 40 \% \text{ N-Emissionsminderung (Emissionsminderung ab 2029 ausgehend von } 2,91 \text{ kg NH}_3 \text{ TP}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ laut TA LUFT 2021)}$

Für die Kostenkalkulation wurden die auf 100 % Anlagenleistung hochgerechneten Medienverbräuche für die drei Varianten und die in Tabelle 4 genannten Preise zugrunde gelegt.

Tabelle 4: Preisüberblick (netto) für die Verbrauchsmedien der Versuchsanlage

Kostenpunkt	Nettopreis	Referenz
Wasser in € m^{-3} (Preis über 10.001 m^3 Verbrauch pro Jahr)	2,14	(BS ENERGY, BRAUNSCHWEIGER VERSORGUNGS-AG & Co. KG 2021)
Natriumhydrogencarbonat in € kg^{-1}	0,33	(KTBL 2020)
Methanol HP in $\text{€ } 760 \text{ kg}^{-1}$	706,80	(KLEIN 2023)

Im letzten Schritt wurden die Medienverbräuche der Versuchsanlage mit denen eines Chemowäschers mengen- und kostenmäßig verglichen. Für die Medienverbräuche und die Kosten beim Chemowäscher wurde auf Literaturangaben zurückgegriffen (HAHNE 2006, KTBL 2020). Da die Versuchsanlage ein Prototyp war und der Chemowäscher ein in der Praxis bereits zertifiziertes und im Einsatz befindliches System ist, wurde bei der Versuchsanlage eine Kostendegression von 50 % aufgrund von Skalierungseffekten unterstellt. Zudem wurde bei der Versuchsanlage eine Gegenüberstellung der ermittelten Medienverbräuchen beim Puffer und Methanol mit den stöchiometrisch kalkulierten Puffer- und Methanolverbräuchen durchgeführt. Der Wasserverbrauch der Anlage blieb dabei unverändert, da in der Denitrifikationseinheit der Stickstoff aus dem Wasser entfernt wird und somit das Wasser wiederverwendet werden kann.

Ergebnisse

Wartungs- und Betreuungsaufwand

Nach der Inbetriebnahme wurde ein kontinuierlicher Anlagenbetrieb, bei dem die Nitrifikations- und Denitrifikationseinheit ständig miteinander verbunden waren, kurzzeitig getestet. Allerdings führten wiederholte Überträge von Methanol aus der Denitrifikations- in die Nitrifikationseinheit dazu, dass dieser Betriebsmodus als nicht praktikabel erachtet wurde, woraufhin auf einen diskontinuierlichen Betrieb umgestellt wurde. Methanolüberträge hemmten die Nitrifikation und führten zu Leistungseinbrüchen. Auch im diskontinuierlichen Betrieb waren diese Überträge nicht gänzlich vermeidbar und wurden oft erst verzögert erkannt, was die Stabilität der Anlage beeinträchtigte.

Je nach Menge der übertragenen Methanolfracht erforderte die Wiederherstellung der Nitrifikationsleistung ein paar Tage oder gar ein bis zwei Wochen und war mit einem erheblichen Arbeitszeitmehrabbedarf verbunden.

Sekundäre Spurengase

In der Versuchsphase zur Bestimmung des Umfangs der Bildung sekundärer Spurengase wurden insgesamt 2.710 g N in die Versuchsanlage eingetragen. Die Prozessbedingungen, die während dieser Phase in der Nitrifikation und Denitrifikation vorgelegen haben, zeigt Tabelle 5. Die Verluste über sekundäre Spurengase betragen 0,5 % bei der Nitrifikationseinheit und 0,8 % bei der Denitrifikationseinheit, jeweils bezogen auf den N-Eintrag (Abbildung 2). In der Nitrifikationseinheit waren die N-Verluste über N_2O mit einem relativen Anteil von 90 % am höchsten, während in der Denitrifikationseinheit NH_3 mit 45 % am stärksten zu den N-Verlusten beigetragen hat.

Tabelle 5: Betriebsbedingungen der Nitrifikations- und der Denitrifikationseinheit während der Ermittlung der sekundären Spurengase und der kalkulatorischen Bewertung des Gesamtverfahrens (Daten werden als Median mit Minimum und Maximum in Klammern dargestellt)

Verfahrensstufe	Parameter	Messwert	Anzahl Messwerte
Nitrifikationseinheit	pH-Wert	6,6 (6,1–7,7)	3.984
	O ₂ -Gehalt in mg l ⁻¹	5,2 (0,1 ¹)–7,9)	3.984
	Wassertemperatur in °C	24,2 (20,9–28,0)	3.984
	Luftgeschwindigkeit in m s ⁻¹	5,1 (4,4–5,4)	43
Denitrifikationseinheit	pH-Wert	8,6 (7,0–9,4)	3.984
	Redoxpotenzial in mV	-169,7 (-498,7–57,1)	3.984
	Wassertemperatur in °C	24,3 (22,4–27,3)	3.984
	Volumenstrom in m ³ d ⁻¹	1,4 (0,0 ²)–1,6)	85

Alle Messwerte, außer Luftgeschwindigkeit und Volumenstrom, basieren auf den geloggtten Halbstundenmittelwerten der Anlage.

¹⁾ Sensor an einem Tag für einige Stunden mit Biomasse bedeckt.

²⁾ 2 Tage ohne aktive Stickstoffbegasung aufgrund von Tests am FTIR.

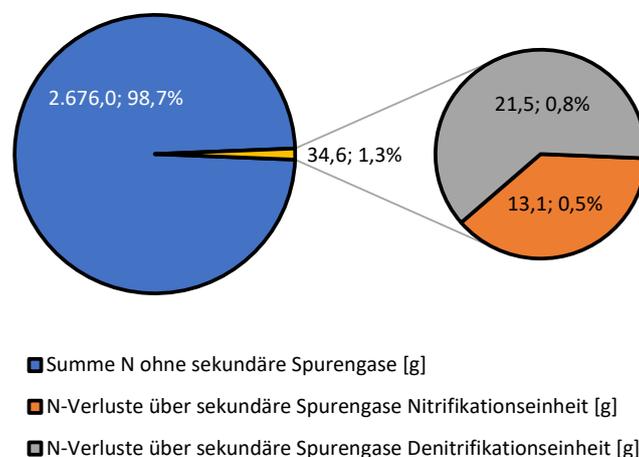


Abbildung 2: N-Verluste an sekundären Spurengasen aus der Nitrifikations- und der Denitrifikationseinheit bezogen auf den N-Eintrag von 27 10,6 g über die Harnstoffdosierung (= 100 %); Summe N ohne sekundäre Spurengase = N im Abschlammwasser beider Behälter + N-Anreicherung im Wasser beider Behälter + abgegebenes Stickstoffgas

Leistungsermittlung der Anlage

Im Rahmen der Leistungsermittlung wurden die in Tabelle 6 dargestellten Prozessbedingungen für beide Behälter aus den Halbstundenmittelwerten ermittelt.

Tabelle 6: Anlagenparameter während der Leistungsermittlung für die Nitrifikations- und Denitrifikationseinheit (Daten werden als Median mit Minimum und Maximum in Klammern dargestellt)

Verfahrensstufe	Parameter	Messwerte	Anzahl Messwerte (Halbstundenmittelwerte)
Nitrifikationseinheit	pH-Wert	6,6 (6,4–8,5)	400
	O ₂ -Gehalt in mg l ⁻¹	6,1 (0,1 ¹⁾ –8,8)	400
	Wassertemperatur in °C	25,7 (21,0–28,2)	400
Denitrifikationseinheit	pH-Wert	9,2 (7,9–9,5)	224
	Redoxpotenzial in mV	-113,7 (-392,2–33,8)	224
	Wassertemperatur in °C	25,0 (22,1–28,0)	224

¹⁾ Sauerstoffsensoren an einem Tag gestört, Handmessungen ergaben Werte zwischen 2,6–3,2 mg l⁻¹, n = 12.

Die Oxidationsleistung der Nitrifikationseinheit konnte bei sieben unterschiedlichen N-Dosierungen ermittelt werden. Dabei zeigte sich, dass auch bei einer fehlenden N-Dosierung eine Oxidationsleistung messbar war. In der Denitrifikation konnte die Abbauleistung bei drei unterschiedlichen N-Dosierungen analysiert werden. Das C:N-Verhältnis lag dabei im Mittel bei 0,69:1 bzw. das CH₃OH:N-Verhältnis bei 1,85:1. In beiden Behältern wurden starke Schwankungen der Oxidations- bzw. Abbauleistung innerhalb der jeweiligen N-Dosierungen beobachtet (Abbildung 3). Ausgehend von den Oxidations- und Abbauleistungen konnte eine mittlere Anlagenleistung von 33 % bezogen auf die Auslegung der Anlage für die Gesamtanlage ermittelt werden (Tabelle 7).

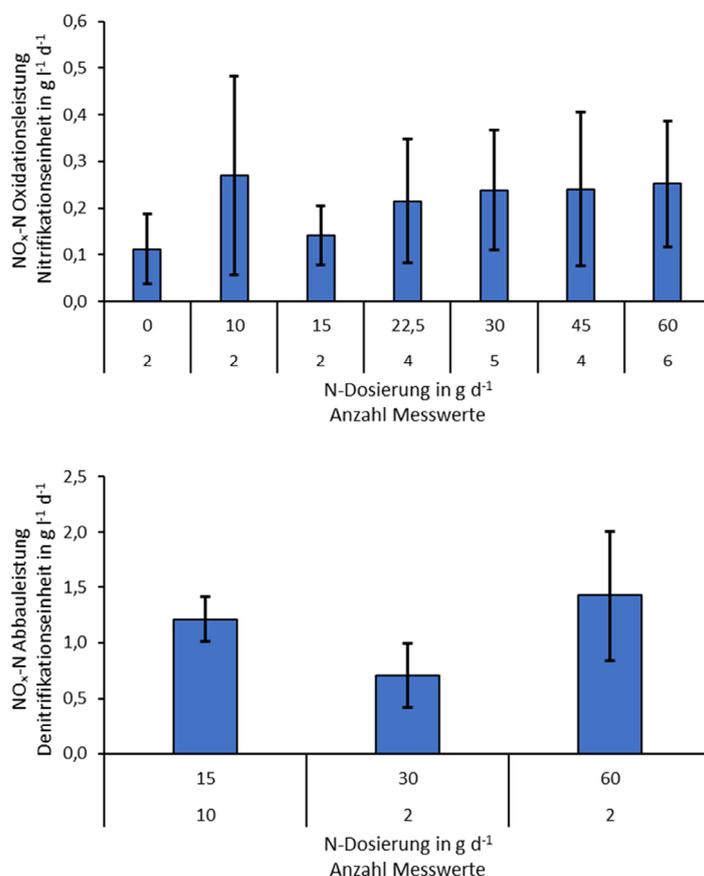


Abbildung 3: Ermittelte Oxidationsleistung der Nitrifikationseinheit (oben) und ermittelte Abbauleistung der Denitrifikationseinheit (unten) bei unterschiedlichen N-Dosierungen bezogen auf das jeweilige Behältervolumen (Mittelwert ± Standardabweichung)

Tabelle 7: Leistungsermittlung für die Nitrifikations- und Denitrifikationseinheit sowie die Gesamtanlagenleistung bezogen auf die maximale Auslegung der Anlage

Nitrifikationseinheit		Denitrifikationseinheit	
Anzahl Messwerte	25	Anzahl Messwerte	14
Oxidationsleistung NO _x -N in g l ⁻¹ d ⁻¹ (Mittelwert ± Standardabweichung)	0,21 ± 0,06	Abbauleistung NO _x -N in g l ⁻¹ d ⁻¹ (Mittelwert ± Standardabweichung)	1,11 ± 0,37
Oxidationsleistung NO _x -N in g d ⁻¹ (Mittelwert ± Standardabweichung)	27,12 ± 7,72	Abbauleistung NO _x -N in g d ⁻¹ (Mittelwert ± Standardabweichung)	32,34 ± 10,70
Oxidationsleistung NO _x -N in g a ⁻¹	9.898,76	Abbauleistung NO _x -N in g a ⁻¹	11.802,34
N-Emissionen ¹⁾ in g TP ⁻¹ a ⁻¹	2.038,19	N-Emissionen ¹⁾ in g TP ⁻¹ a ⁻¹	2.038,19
Oxidationsleistung NO _x -N in TP ⁻¹	4,86	Abbauleistung NO _x -N in TP ⁻¹	5,79
Auslegung der Anlage in TP ⁻¹	16	Auslegung der Anlage in TP ⁻¹	16
Anlagenleistung ²⁾ in %	30,35	Anlagenleistung ²⁾ in %	36,19
Mittlere Gesamtanlagenleistung aus Nitrifikation und Denitrifikation ²⁾ in %			33,27

TP = Tierplatz

¹⁾ Basis: 3.000 g N TP⁻¹ a⁻¹ (TA LUFT 2021), 2.038,19 g N TP⁻¹ a⁻¹ entsprechen der maximalen Anlagenauslegung bei der Versuchsanlage (doppelte Winterluftfrate).

²⁾ Anlagenleistung bezogen auf die maximale Auslegung der Anlage von 16 Tierplätzen.

Kalkulatorische Bewertung des Verfahrens

Der Wasserverbrauch setzte sich aus den abgeschlammten Volumina von 129 l (Nitrifikationseinheit) und 11 l (Denitrifikationseinheit) sowie Wasserdampfverlusten von 29 l in der Nitrifikationseinheit und 12 l in der Denitrifikationseinheit zusammen. Der Verbrauch an Natriumhydrogencarbonat (Reinsubstanz) betrug 10,7 kg. Der Pufferverbrauch war damit 4-mal so hoch wie die dosierte N-Menge von 2,7 kg. Der Methanolverbrauch (Reinsubstanz) lag bei 0,546 kg. Das C:N-Verhältnis lag bei 0,08:1.

Ausgehend von den gemessenen Verbräuchen wurden die in Tabelle 8 dargestellten Verbrauchswerte kalkuliert. Im Rahmen der Kostenkalkulation schnitt die Versuchsanlage unter Berücksichtigung einer Kostendegression von 50 % mit fast doppelt so hohen Kosten im Vergleich zu einem Chemowäscher ab (Tabelle 9). Werden für den Puffer- und Methanolverbrauch die stöchiometrischen Verbräuche unter Optimalbedingungen unterstellt, schneidet die Versuchsanlage mit etwas geringeren Kosten im Vergleich zum Chemowäscher ab (Tabelle 8, Tabelle 9).

Tabelle 8: Gegenüberstellung der kalkulierten (stöchiometrischen) und gemessenen Medienverbräuche für die Versuchsanlage und einen Chemowäscher nach Literaturangaben

Wäschersystem	Versuchsanlage ¹⁾			Chemowäscher			
	kalkulierte (stöchiometrische) Optimalbedingungen für den Puffer- und Methanolverbrauch ²⁾	gemessene Werte			Werte nach Literaturangaben ³⁾		
Reinigungsleistung in g N TP ⁻¹ a ⁻¹	2.038 = 2-fache Winterluftfrate	2.038 = 2-fache Winterluftfrate	1.019 = einfache Winterluftfrate	957 = Minderung ab 2029 auf Basis von 2,91 kg NH ₃ TP ⁻¹ a ⁻¹ ⁴⁾	3.000 ⁴⁾	1.500	957 = Minderung ab 2029 auf Basis von 2,91 kg NH ₃ TP ⁻¹ a ⁻¹ ⁴⁾
Kalkulatorische Emissionsminderung in %	68	68	34	40	100	50	40
Wasserverbrauch in l TP ⁻¹ a ⁻¹	432,1	432,1	216,0	203,1	40,0	20,0	12,8
Pufferverbrauch ⁵⁾ in kg TP ⁻¹ a ⁻¹	2,0	25,6	12,8	12,0	/	/	/
Methanolverbrauch in kg TP ⁻¹ a ⁻¹	3,9	1,3	0,7	0,6	/	/	/
Säureverbrauch ⁶⁾ in kg TP ⁻¹ a ⁻¹	/	/	/	/	10,9	5,5	3,5

TP = Tierplatz

¹⁾ Die Daten beziehen sich auf eine Anlagenleistung von 100 % auf Grundlage der in Tabelle 7 ermittelten tatsächlichen Anlagenleistung.

²⁾ Beim Pufferverbrauch wurde stöchiometrisch ein Verhältnis 1 g Natriumhydrogencarbonat zu 1 g dosiertem N unterstellt. Aus der Denitrifikation werden dabei stöchiometrisch 50 % des Puffervermögens zurückgewonnen (VAN RIJN et al. 2006). Beim Methanolverbrauch wurde stöchiometrisch ein Verhältnis von 2,32 g Methanol pro g Nitrat unterstellt. Dies entspricht einem C:N-Verhältnis von 0,71:1 (SAUTHIER et al. 1998).

³⁾ HAHNE (2006).

⁴⁾ TA LUFT (2021).

⁵⁾ Puffer = Natriumhydrogencarbonat.

⁶⁾ Kalkulationsbasis: 3 kg Säure je kg NH₃-Eintrag (HAHNE 2006) und 3,64 kg NH₃-Emissionen je Tierplatz und Jahr (TA LUFT 2021).

Tabelle 9: Gegenüberstellung der Nettokosten für die kalkulierten (stöchiometrischen) und gemessenen Medienverbräuche für die Versuchsanlage und einen Chemowäscher nach Literaturangaben

Wäschersystem	Versuchsanlage ¹⁾				Chemowäscher		
	kalkulierte (stöchiometrische) Optimalbedingungen für den Puffer- und Methanolverbrauch ²⁾	gemessene Werte			Werte nach Literaturangaben ³⁾		
Reinigungsleistung in g N TP ⁻¹ a ⁻¹	2.038 = 2-fache Winterlufttrate	2.038 = 2-fache Winterlufttrate	1.019 = einfache Winterlufttrate	957 = Minderung ab 2029 auf Basis von 2,91 kg NH ₃ TP ⁻¹ a ^{-1 4)}	3.000 ⁴⁾	1.500	957 = Minderung ab 2029 auf Basis von 2,91 kg NH ₃ TP ⁻¹ a ^{-1 4)}
Kalkulatorische Emissionsminderung in %	68	68	34	40	100	50	40
Wasser in € TP ⁻¹ a ⁻¹	0,93	0,93	0,46	0,44	0,48	0,24	0,15
Säure in € TP ⁻¹ a ⁻¹	/	/	/	/	2,28	1,14	0,73
Puffer ⁵⁾ in € TP ⁻¹ a ⁻¹	0,67	8,44	4,22	3,97	/	/	/
Methanol in € TP ⁻¹ a ⁻¹	3,61	1,21	0,61	0,57	/	/	/
Summe Kosten in € TP ⁻¹ a ⁻¹	5,21	10,58	5,29	4,97	2,76	1,38	0,88
Summe Kosten mit Kostendegression ⁶⁾ in € TP ⁻¹ a ⁻¹	2,61	5,29	2,65	2,49	2,76	1,38	0,88

Alle Kosten entsprechen Nettokosten; TP = Tierplatz

¹⁾ Die Daten beziehen sich auf eine Anlagenleistung von 100 % auf Grundlage der in Tabelle 7 ermittelten tatsächlichen Anlagenleistung.

²⁾ Beim Pufferverbrauch wurde stöchiometrisch ein Verhältnis 1 g Natriumhydrogencarbonat zu 1 g dosiertem N unterstellt. Aus der Denitrifikation werden dabei stöchiometrisch 50 % des Puffervermögens zurückgewonnen (VAN RIJN et al. 2006). Beim Methanolverbrauch wurde stöchiometrisch ein Verhältnis von 2,32 g Methanol pro g Nitrat unterstellt. Dies entspricht einem C:N-Verhältnis von 0,71:1 (SAUTHIER et al. 1998).

³⁾ KTBL (2020).

⁴⁾ TA LUFT (2021).

⁵⁾ Puffer = Natriumhydrogencarbonat.

⁶⁾ Eine Kostendegression aufgrund von Skalierungseffekten von 50 % wurden bei der Versuchsanlage unterstellt, da es sich um einen Prototyp handelte. Der Chemowäscher ist eine Standardanlage mit praxisüblichen Kosten.

Diskussion

Der störungsfreie Betrieb der Versuchsanlage konnte selbst bei einem hohen Betreuungsaufwand nicht durchgehend gewährleistet werden. Es kam wiederholt zum Methanolübertrag aus der Denitrifikationseinheit in die Nitrifikationseinheit, was zu einer nachhaltigen Hemmung der Nitrifikation und damit zu Leistungseinbußen führte. DEMMERS (1992) machte an einem Biowäscher mit angeschlossener Denitrifikation im Hinblick auf die Hemmung der Nitrifikation durch Methanolüberträge und die notwendige intensive Anlagenbetreuung ähnliche Erfahrungen.

Der Betrieb der Versuchsanlage zeigte nur sehr geringe N-Verluste über sekundäre Spurengase von 0,5 % in der Nitrifikationseinheit und 0,8 % in der Denitrifikationseinheit bezogen auf die dosierte N-Menge. Aus beiden Behältern zusammen entwichen 0,6 % N_2O -Emissionen bezogen auf die N-Dosierung. Im Vergleich zu anderen Anlagen waren diese Werte sehr niedrig und damit als sehr positiv zu werten. In der Literatur sind folgende Werte zu finden:

- 4 % (durchschnittlich) N_2O -Emissionen bezogen auf NH_3 -N bei einem Biotropfkörperfilter (MELSE et al. 2012)
- 3 % N_2O -Emissionen bezogen auf den NH_3 -Eintrag bei einem zweistufig mit Wasser betriebenen Füllkörperwäscher (HAHNE und VORLOP 2004)
- 0,9–1,3 % N_2O -Emissionen bezogen auf die Stickstofffracht in einem Deammonifikationsverfahren (WEISSENBACHER et al. 2012)
- 3 % in Kläranlagen (KAMPSCHREUR et al. 2009)

DUMONT (2018) gibt an, dass der Einsatz von Biowäschern zur Entfernung von NH_3 akzeptabel ist, sofern weniger als 3 % N_2O bezogen auf den NH_3 -Eintrag emittiert werden. Die Emissionen von Distickstoffmonoxid (N_2O) sind besonders kritisch, da es ein klimaschädliches Gas ist, das über einen Zeitraum von 100 Jahren eine fast 300-fache Treibhauswirkung im Vergleich zu Kohlenstoffdioxid besitzt (WEISSENBACHER et al. 2012).

Die Anlagenleistung lag bezogen auf die Anlagendimensionierung bei nur 33 % und zeigte die noch fehlende Praxistauglichkeit. Die Ergebnisse der Oxidationsleistung in der Nitrifikationseinheit zeigten erhebliche Schwankungen. Eine mögliche Erklärung für die starken Schwankungen könnte in einer sehr langsamen Harnstoffhydrolyse liegen. Dies bedeutet, dass der dosierte Harnstoff nicht unmittelbar, sondern mit einer zeitlichen Verzögerung in Ammonium umgewandelt und anschließend zu Nitrat oxidiert werden konnte. Die Verschiebung der Oxidation führte dann dazu, dass die ermittelten Oxidationsraten nicht mehr mit den tatsächlich dosierten Stickstoffmengen an dem Probenahmetag übereinstimmten. Auch die Abbauleistung der Denitrifikationseinheit variierte erheblich und zeigte insbesondere bei der N-Dosierung von 15 g d^{-1} sehr hohe Leistungen. Es ist auch hier möglich, dass die verzögerte Bereitstellung von Nitrat durch die Nitrifikation hier eine Rolle gespielt hat. In beiden Verfahrensstufen konnten schlechte Rahmenbedingungen aber ausgeschlossen werden (Tabelle 6). Das C:N-Verhältnis von 0,69:1 bzw. Methanol:N-Verhältnis von 1,85:1 lagen bei der Leistungsermittlung dagegen am unteren Ende in der Literatur angegebenen Werte. Während des Zeitraums zur Bewertung des kalkulatorischen Gesamtverfahrens lag das C:N-Verhältnis mit 0,08:1 noch deutlich tiefer und somit weit deutlich unter den Literaturangaben:

- 2,3:1 C:N (TORNO et al. 2018)
- 1,5:1 C:N (KAISER 1987)
- 1:1 C:N (BALDERSTON und SIEBURTH 1976)
- 0,71:1 C:N stöchiometrisch für eine vollständige Denitrifikation (SAUTHIER et al. 1998)

- 1,3:1 C:N (LOMPE und WIESMANN 1991)
- 2–3 mg Methanol pro mg zu N_2 reduziertem NO_3-N (BECKER 1979)
- 1,90 g Methanol pro g Nitrat-N zuzüglich 0,57 g Methanol für das Bakterienwachstum, woraus sich eine Gesamtmenge von 2,47 g Methanol pro g Nitrat-N ergibt (KADLEC und WALLACE 2009)
- 2,7:1 Methanol zu NO_3-N (CLIFFORD und LIU 1993)

Die niedrigen Methanolverbräuche während des Zeitraums zur Bewertung des kalkulatorischen Gesamtverfahrens ergaben sich aus dem unter dem Sollwert bleibenden Redoxpotenzial von -150 mV. Hier kann ein Effekt durch das N_2 -Gas der aktiven Begasung nicht vollständig ausgeschlossen werden. Vermutlich hat das N_2 -Gas an mehreren Tagen die Messsonde beeinflusst und zur Messung von niedrigeren Redoxpotenzialen geführt, der Sollwert nicht überschritten wurde und somit keine Zudosierung von Methanol erfolgte. Dies könnte auch eine Erklärung für die zum Teil extrem niedrigen Messwerte beim Redoxpotenzial und das sehr niedrige C:N-Verhältnis sein, da alle anderen Parameter keine Auffälligkeiten zeigten (Tabelle 5).

Entgegen den theoretischen Grundlagen war der Verbrauch an Natriumhydrogencarbonat 4-mal höher als die N-Dosierung. Die Ursache hierfür könnte eine verzögerte Harnstoffhydrolyse sein, wodurch mehr NH_4^+ im Betrachtungszeitraum gebildet wurde, als durch die zugeführte Stickstoffdosierung erwartet wurde. Trotzdem erreichte die Denitrifikationseinheit nicht ihr volles Leistungspotenzial, wodurch eine ausreichende Produktion von pH-stabilisierenden Hydroxidionen verhindert wurde. Hervorzuheben ist, dass die Rahmenbedingungen in beiden Behältern optimal waren (Tabelle 5).

Bei der Kostenkalkulation für die Versuchsanlage fallen die deutlich höheren Kosten für die Verbrauchsmedien mit $5,29 \text{ € TP}^{-1} \text{ a}^{-1}$ im Vergleich zu einem Chemowäscher mit $2,76 \text{ € TP}^{-1} \text{ a}^{-1}$ auf. Bei einer stöchiometrischen Kalkulation des Puffer- und Methanolverbrauchs sinken die Kosten knapp unter die Kosten der Chemowäsche. Zu beachten ist allerdings, dass die stöchiometrische Kalkulation eine theoretische Menge darstellt und in der Praxis höher liegen würde. Dies liegt daran, dass nicht der gesamte Kohlenstoff aus dem Methanol im Denitrifikationsprozess genutzt werden kann, wie SAUTHIER et al. (1998) feststellten.

Es zeigte sich, dass die Versuchsanlage in dieser Konstellation sowohl vom Arbeitsaufwand, der Zuverlässigkeit, den Medienverbräuchen und den Kosten bisher nicht praxistauglich ist. Positiv dagegen war die sehr geringe Bildung von sekundären Spurengasen.

Schlussfolgerungen

Insgesamt ist die Stallumluftwäsche mit Nitrifikations- und Denitrifikationseinheit ein aufwändiges und noch nicht praxisreifes Verfahren. Es lassen sich für die Praxis aber einige Schlussfolgerungen ziehen:

1. Die Trennung der Verfahrensstufen Nitrifikation und Denitrifikation ist erforderlich, da nicht verbrauchtes Methanol zu erheblichen Leistungseinbußen in der Nitrifikation führt.
2. Der mögliche Methanoleintrag in die Nitrifikationsstufe muss über eine bessere verfahrenstechnische Regelung unterbunden werden.
3. Die Medienverbräuche des Verfahrens müssen für eine praktische Umsetzung des Verfahrens, auch im Vergleich zum Chemowäscher, deutlich reduziert werden.
4. Da die Stallumluftwäsche aus Umwelt-, Tierwohl- und Arbeitsplatzgründen ein interessantes Verfahren ist, wäre die Untersuchung der Teilluftreinigung mit einer schwefelsauren Betriebsweise empfehlenswert.

Literatur

- Arends, F.; Franke, G.; Grimm, E.; Gramatte, W.; Häuser, S.; Hahne, J. (2006): Zusammenfassung und Empfehlungen. In: Abluftreinigung für Tierhaltungsanlagen Verfahren - Leistungen - Kosten. KTBL-Schrift 451. Darmstadt, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V (KTBL)
- Balderston, W. L.; Sieburth, J. M. (1976): Nitrate removal in closed-system aquaculture by Columnar Denitrification. *Applied and Environmental Microbiology* 32(6), S. 808–818, <https://doi.org/10.1128/aem.32.6.808-818.1976>
- Becker, K.-P. (1979): Das Oxitron-System, ein neues biologisches Abwasserreinigungs-Verfahren für den BSB₅-Abbau sowie zur Nitrifikation und Denitrifikation. *Chemie Ingenieur Technik* 51(6), S. 549–559, <https://doi.org/10.1002/cite.330510603>
- BlmSchV (2021): Vierte Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über genehmigungsbedürftige Anlagen – 4. BImSchV) vom 12. Januar 2021
- Boon, B.; Laudelout, H. (1962): Kinetics of Nitrite Oxidation by *Nitrobacter winogradskyi*. *The Biochemical Journal* 85(3), S. 440–447, <https://doi.org/10.1042/bj0850440>
- BS ENERGY, Braunschweiger Versorgungs-AG & Co. KG (2021): Netz, Wasser und Abwasser - bei BS ENERGY. <https://www.bs-energy.de/geschaeftskunden/services/netz/>, Zugriff am 30.11.2022
- Cheremisinoff, P. N. (1995): *Waste Minimization and Cost Reduction for the Process Industries*. New Jersey, Noyes Publications
- Clifford, D.; Liu, X. (1993): Biological denitrification of spent regenerant brine using a sequencing batch reactor. *Water Research* 27(9), S. 1477–1484, [https://doi.org/10.1016/0043-1354\(93\)90028-G](https://doi.org/10.1016/0043-1354(93)90028-G)
- Collins, M. T.; Gratzek, J. B.; Shotts Jr., E. B.; Dawe, D. L.; Campbell, L. M.; Senn, D. R. (1975): Nitrification in an aquatic recirculating system. *Journal of the Fisheries Research Board of Canada* 32(11), S. 2025–2031, <https://doi.org/10.1139/f75-238>
- Demmers, T. (1992): Ammoniakentfernung aus Stallabluft in der intensiven Tierhaltung. In: *Biotechniques for Air Pollution Abatement and Odour Control Policies. Proceedings of an International Symposium, Maastricht, the Netherlands, 27. – 29. Oktober 1991*. Hg. Dragt, A. J.; van Ham, J., Amsterdam/New York, Elsevier, S. 255–261
- DIN 18910:2017-08 (2017): Wärmeschutz geschlossener Ställe – Wärmedämmung und Lüftung – Planungs- und Berechnungsgrundlagen für geschlossene zwangsbelüftete Ställe. DIN Deutsches Institut für Normung e. V., DIN-Normenausschuss Bauwesen (NaBau), Beuth Verlag GmbH, Berlin
- DIN 38406-5:1983-10 (1983): Deutsche Einheitsverfahren zur Wasser-, Abwasser- und Schlammuntersuchung; Kationen (Gruppe E); Bestimmung des Ammonium-Stickstoffs (E 5). Deutsches Institut für Normung e. V., Normenausschuss für Wasserwesen (NAW), Berlin
- DIN EN 27888:1993-11 (1993): DIN EN 27888:1993-11, Wasserbeschaffenheit; Bestimmung der elektrischen Leitfähigkeit (ISO 7888:1985); Deutsche Fassung EN 27888:1993. Deutsches Institut für Normung e. V., Normenausschuss für Wasserwesen (NAW), Berlin (DIN EN 27888:1993-11)
- DIN EN ISO 10304-1:2009-07 (2009): Wasserbeschaffenheit – Bestimmung von gelösten Anionen mittels Flüssigkeits-Ionenchromatographie – Teil 1: Bestimmung von Bromid, Chlorid, Fluorid, Nitrat, Nitrit, Phosphat und Sulfat (ISO 10304-1:2007); Deutsche Fassung EN ISO 10304-1:2009. Deutsches Institut für Normung e. V., Normenausschuss für Wasserwesen (NAW), Berlin
- DIN ISO 15705:2003-09 (2003): Deutsche Einheitsverfahren zur Wasser-, Abwasser- und Schlammuntersuchung; Wasserbeschaffenheit: Bestimmung des chemischen Sauerstoffbedarfs (ST-CSB) Küvettestest. Deutsches Institut für Normung e. V., Normenausschuss für Wasserwesen (NAW), Berlin
- DLG (2018): DLG-Merkblatt 403 Hinweise zum Betrieb von Abluftreinigungsanlagen für die Schweinehaltung. Hg. DLG e. V., Fachzentrum Landwirtschaft, Frankfurt am Main, https://www.dlg.org/fileadmin/downloads/landwirtschaft/themen/publikationen/merkblaetter/dlg-merkblatt_403.pdf, Zugriff am 28.04.2022
- Donham, K. J. (1991): Association of environmental air contaminants with disease and productivity in swine. *American Journal of Veterinary Research* 52(10), S. 1723–1730
- Dumont, É. (2018): Impact of the treatment of NH₃ emissions from pig farms on greenhouse gas emissions. Quantitative assessment from the literature data. *New Biotechnology* 46, S. 31–37, <https://doi.org/10.1016/j.nbt.2018.06.001>

- Forster, J. (1974): Studies on nitrification in marine biological filters. *Aquaculture* 4, S. 387–397, [https://doi.org/10.1016/0044-8486\(74\)90067-2](https://doi.org/10.1016/0044-8486(74)90067-2)
- Gramatte, W.; Häuser, S. (2006): Zertifizierungsprüfung von Abluftreinigungsanlagen (DLG-Signum-Test). In: *Abluftreinigung für Tierhaltungsanlagen Verfahren - Leistungen - Kosten*. KTBL-Schrift 451. Darmstadt, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL), S. 72–75
- Hahne, J. (2006): Welche Verfahren gibt es? In: *Abluftreinigung für Tierhaltungsanlagen Verfahren - Leistungen - Kosten*. KTBL-Schrift 451. Darmstadt, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL), S. 12–45
- Hahne, J. (2019): Überwachung von biologisch arbeitenden Rieselbettfiltern in der Mastschweinehaltung. *Landtechnik* 74(6), S. 145–155, <https://doi.org/10.15150/LT.2019.3216>
- Hahne, J.; Arends, F.; Beverborg, R.; Niehoff, A.-L.; Bönsch, S.; Hortmann-Scholten, A. (2016): Aktuelle Entwicklung Kosten-Nutzenanalyse und Vollzugempfehlungen für den Einsatz von Abluftreinigungsanlagen in der Tierhaltung. Hg. Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau, https://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/1968/publikationen/aktuelle_entwicklung_kosten-nutzen_analyse_und_vollzugempfehlungen_fur_den_einsatz_von_abluftreinigungsanlagen_in_der_tierhaltung_v2.pdf, Zugriff am 19.01.2023
- Hahne, J.; Pfeifer, T. (2017): Ammoniakabscheidung in neuartigen Biofiltern. *Landtechnik* 72(2), S. 76–90, <https://doi.org/10.15150/lt.2017.3155>
- Hahne, J.; Vorlop, K.-D. (2004): Sind Abluftwäscher zur Minderung von Ammoniakemissionen geeignet? *Landtechnik* 59(2), S. 106–107, <https://doi.org/10.15150/LT.2004.1301>
- Henze, M.; Harremoës, P.; La Jansen, J. C.; Arvin, E. (1995): *Wastewater Treatment Biological and Chemical Processes*. Berlin, Heidelberg, New York, Springer-Verlag
- Iversen, M.; Dahl, R.; Korsgaard, J.; Hallas, T.; Jensen, E. J. (1988): Respiratory symptoms in Danish farmers: an epidemiological study of risk factors. *Thorax* 43(11), S. 872–877, <https://doi.org/10.1136/thx.43.11.872>
- Kadlec, R. H.; Wallace, S. D. (2009): *Treatment Wetlands*. Boca Raton, CRC Press
- Kaiser, H. (1987): Steuerung der Wasserqualität nach N-Bilanzierung durch Pufferung oder Denitrifikation in einer Anlage mit Wasserrückführung zur Forellenmast. Dissertation, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität zu Bonn
- Kampschreur, M. J.; Temmink, H.; Kleerebezem, R.; Jetten, M. S. M.; van Loosdrecht, M. C. M. (2009): Nitrous oxide emission during wastewater treatment. *Water Research* 43(17), S. 4093–4103, <https://doi.org/10.1016/j.watres.2009.03.001>
- Klein, T. (2023): Preisanfrage Methanol IBC-Container. E-Mail vom 10. Januar 2023. BÜFA Chemikalien GmbH & Co. KG, Hude
- Kliche, R.; Mehlhorn, G. (1979): Gasförmige Luftverunreinigungen in Tierproduktionsanlagen. In: *Lehrbuch der Tierhygiene Teil 1*. Hg. Mehlhorn, G., Jena, VEB Gustav Fischer Verlag
- Kölbeck, K.-G.; Ehnhage, A.; Juto, J.-E.; Forsberg, S.; Gyllenhammar, H.; Palmberg, L.; Larsson, K. (2000): Airway reactivity and exhaled NO following swine dust exposure in healthy volunteers. *Respiratory Medicine* 94(11), S. 1065–1072, <https://doi.org/10.1053/rmed.2000.0885>
- Krüner, G.; Rosenthal, H. (1983): Efficiency of Nitrification in Trickle Filters using Different Substrates. *Aquacultural Engineering* 2(1), S. 49–67, [https://doi.org/10.1016/0144-8609\(83\)90005-5](https://doi.org/10.1016/0144-8609(83)90005-5)
- KTBL (2020): *Betriebsplanung Landwirtschaft 2020/21 Daten für die Betriebsplanung in der Landwirtschaft*. Darmstadt, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL)
- Larsson, K. A.; Eklund, A. G.; Hansson, L. O.; Isaksson, B. M.; Malmberg, P. O. (1994): Swine Dust Causes Intense Airways Inflammation in Healthy Subjects. *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine* 150(4), S. 973–977, <https://doi.org/10.1164/ajrccm.150.4.7921472>
- Lee, P.; Lea, R.; Dohmann, E.; Prebilsky, W.; Turk, P.; Ying, H.; Whitson, J. (2000): Denitrification in aquaculture systems: an example of a fuzzy logic control problem. *Aquacultural Engineering* 23(1-3), S. 37–59, [https://doi.org/10.1016/S0144-8609\(00\)00046-7](https://doi.org/10.1016/S0144-8609(00)00046-7)
- Lompe, D.; Wiesmann, U. (1991): Biologische Denitrifikation nitrathaltiger Abwässer und Grundwässer. *Chemie Ingenieur Technik* 63(7), S. 692–699, <https://doi.org/10.1002/cite.330630709>

- Melse, R. W.; Ploegaert, J. P.; Ogink, N. W. (2012): Biotrickling filter for the treatment of exhaust air from a pig rearing building: Ammonia removal performance and its fluctuations. *Biosystems Engineering* 113(3), S. 242–252, <https://doi.org/10.1016/j.biosystemseng.2012.08.010>
- Mudrack, K.; Kunst, S. (2003): *Biologie der Abwasserreinigung*. Heidelberg, Berlin, Spektrum Akademischer Verlag GmbH
- Ødegaard, H.; Rusten, B.; Westrum, T. (1994): A new moving bed biofilm reactor - applications and results. *Water Science and Technology* 29(10-11), S. 157–165, <https://doi.org/10.2166/wst.1994.0757>
- Radon, K.; Garz, S.; Riess, A.; Koops, F.; Monso, E.; Weber, C.; Danuser, B.; Iversen, M.; Opravil, U.; Donham, K.; Hartung, J.; Pedersen, S.; Nowak, D. (2003): Atemwegs- und Lungenerkrankungen in der Europäischen Landwirtschaft - Teil 2: Ergebnisse der europäischen Landwirtschaftsstudie -. *Pneumologie* 57(9), S. 510–517, <https://doi.org/10.1055/s-2003-42215>
- Rennert, B. (1981): Beeinflussung des pH-Wertes durch Nitrifikation und Denitrifikation in geschlossenen Kreislaufanlagen. *Zeitschrift für die Binnenfischerei der DDR* 28(11), S. 337–342
- Richter, A. (2015): Der Einfluss von Haltungsbedingungen auf Parameter der Tiergesundheit unter besonderer Berücksichtigung von Atemwegserkrankungen in fünf Schweinemastbetrieben im Raum Thüringen. Dissertation, Universität Leipzig
- Richtlinie (EU) 2016/2284: Richtlinie (EU) 2016/2284 des Europäischen Parlaments und des Rates vom 14. Dezember 2016 über die Reduktion der nationalen Emissionen bestimmter Luftschadstoffe, zur Änderung der Richtlinie 2003/35/EG und zur Aufhebung der Richtlinie 2001/81/EG
- Rusten, B.; Hem, L. J.; Ødegaard, H. (1995): Nitrification of municipal wastewater in moving-bed biofilm reactors. *Water Environment Research* 67(1), S. 75–86, <https://doi.org/10.2175/106143095X131213>
- Sauthier, N.; Grasmick, A.; Blancheton, J. P. (1998): Biological denitrification applied to a marine closed aquaculture system. *Water Research* 32(6), S. 1932–1938, [https://doi.org/10.1016/S0043-1354\(97\)00406-5](https://doi.org/10.1016/S0043-1354(97)00406-5)
- Statistisches Bundesamt (2023): Viehbestandserhebung Schweine. Wiesbaden, Zugriff am 14.02.2023
- TA Luft (2021): Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft – TA Luft) vom 18. August 2021
- TierSchNutzV (2017): Verordnung zum Schutz landwirtschaftlicher Nutztiere und anderer zur Erzeugung tierischer Produkte gehaltener Tiere bei ihrer Haltung (Tierschutz-Nutztierhaltungsverordnung - TierSchNutzV) vom 30. Juni 2017
- TierSchNutzV (2021): Verordnung zum Schutz landwirtschaftlicher Nutztiere und anderer zur Erzeugung tierischer Produkte gehaltener Tiere bei ihrer Haltung (Tierschutz-Nutztierhaltungsverordnung - TierSchNutzV) vom 29. Januar 2021
- Torno, J.; Naas, C.; Schroeder, J. P.; Schulz, C. (2018): Impact of hydraulic retention time, backflushing intervals, and C/N ratio on the SID-reactor denitrification performance in marine RAS. *Aquaculture* 496, S. 112–122, <https://doi.org/10.1016/j.aquaculture.2018.07.004>
- van Rijn, J.; Tal, Y.; Schreier, H. J. (2006): Denitrification in recirculating systems: Theory and applications. *Aquacultural Engineering* 34(3), S. 364–376, <https://doi.org/10.1016/j.aquaeng.2005.04.004>
- VERA (2018): VERA-Prüfprotokoll für Abluftreinigungssysteme. Version 2:2018-09. https://www.vera-verification.eu/app/uploads/sites/9/2019/05/VERA_Pruefprotokoll_Abluftreinigung_v2_2018.pdf Zugriff am 20.10.2022
- Vos, C.; Rösemann, C.; Haenel, H.-D.; Dämmgen, U.; Döring, U.; Wulf, S.; Eurich-Menden, B.; Freibauer, A.; Döhler, H.; Schreiner, C.; Osterburg, B.; Fuß, R. (2022): Calculations of gaseous and particulate emissions from German agriculture 1990–2020: Report on methods and data (RMD) submission 2022. Berechnung von gas- und partikelförmigen Emissionen aus der deutschen Landwirtschaft 1990 - 2020: Report zu Methoden und Daten (RMD) Berichterstattung 2022. Thünen Report 91, Braunschweig, https://www.thuenen.de/media/publikationen/thuenen-report/Thuenen_Report_91.pdf, <https://doi.org/10.3220/REP1646725833000>, Zugriff am 27.04.2022
- Weissenbacher, N.; de Clippeleir, H.; Hell, M.; Wett, B. (2012): Lachgasemissionen bei der Behandlung von Prozesswässern im Deammonifikationsverfahren. *Österreichische Wasser- und Abfallwirtschaft* 64(1-2), S. 247–252, <https://doi.org/10.1007/s00506-011-0369-4>

Autoren

M. Sc. Patrick Schale, Wissenschaftlicher Mitarbeiter, Johann Heinrich von Thünen-Institut, Bundesforschungsinstitut für Ländliche Räume, Wald und Fischerei, Institut für Agrartechnologie, Bundesallee 47, 38116 Braunschweig, patrick.schale@stud.uni-goettingen.de

Prof. Dr. Eva Gallmann, Leiterin Zentrum für Tierhaltungstechnik, Fakultät Agrarwissenschaften, Universität Hohenheim, Garbenstraße 9, 70599 Stuttgart

Prof. Dr. Armin O. Schmitt, Leiter der Abteilung Züchtungsinformatik, Georg-August-Universität Göttingen, Department für Nutztierwissenschaften, Margarethe von Wrangell-Weg 7, 37075 Göttingen

Prof. Dr. Engel F. Arkenau, Unterabteilungsleiterin, Bundesministerium für Ernährung und Landwirtschaft, Unterabteilung 82 Digitale Innovation, Wilhelmstraße 54, 10117 Berlin

Dr. Jochen Hahne, Wissenschaftlicher Mitarbeiter, Johann Heinrich von Thünen-Institut, Bundesforschungsinstitut für Ländliche Räume, Wald und Fischerei, Institut für Agrartechnologie, Bundesallee 47, 38116 Braunschweig, jochen.hahne@thuenen.de

Hinweise und Danksagungen

Die Förderung erfolgte aus Mitteln des Zweckvermögens des Bundes bei der Landwirtschaftlichen Rentenbank.

Die Autoren erklären, dass kein Interessenskonflikt besteht.

Die Autoren bedanken sich bei dem beteiligten Personal des Thünen-Instituts für Agrartechnologie für die große Unterstützung bei der Durchführung des Projekts.