

Ammoniakemissie- metingen in een modelsysteem van een rundveestal: Theoretische beschouwingen

*Ammonia emission measurements
in a model system of a dairy cattle
housing: Theoretical considerations*

Dr. A. Elzing, Ing. W. Kroodsmā, Ir. R. Scholtens
en Ing. G.H. Uenk

imag-dlo



CIP-GEGEVENS KONINKLIJKE BIBLIOTHEEK DEN HAAG

Ammoniakemissiemetingen

Ammoniakemissiemetingen in een modelsysteem van een rundveestal : theoretische beschouwingen / A. Elzing . . . [et al.]. – Wageningen : Dienst Landbouwkundig Onderzoek, Instituut voor Mechanisatie, Arbeid en Gebouwen ; III. – Rapport 92-3

Met lit. opg. – Met een samenvatting in het Engels.

ISBN 90-5406-018-2 geb.

NUGI 849

Trefw.: ammoniakemissie ; rundveehouderij

© 1992

IMAG-DLO

Postbus 43 – 6700 AA Wageningen

Telefoon 08370-76300

Telefax 08370-25670

Alle rechten voorbehouden. Niets uit deze uitgave mag worden verveelvoudigd, opgeslagen in een geautomatiseerd gegevensbestand, of openbaar gemaakt, in enige vorm of op enige wijze, hetzij elektronisch, mechanisch, door fotokopieën, opnamen, of enig andere manier zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van de uitgever.

All rights reserved. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system of any nature, or transmitted, in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording or otherwise, without the prior written permission of the publisher.

Voorwoord

Door onderzoek en praktijk worden grote inspanningen geleverd in het kader van de ontwikkeling van technische mogelijkheden voor de vermindering van de ammoniakemissie vanuit de veehouderij. Nieuwe methoden voor mestbehandeling op de boerderij zijn en worden ontwikkeld en metingen hebben aangetoond dat er voor de verschillende veehouderijtakken goede perspectieven zijn voor de emissievermindering.

Een belangrijke schakel in de ontwikkeling van emissie-arme stalsystemen vormt het modelonderzoek. Een modelopstelling in de vorm van de stalsimulator is daarbij een nuttig hulpmiddel. Door middel van gericht onderzoek naar de chemische en fysische processen, die bij het ontstaan en het ontwijken van ammoniak een rol spelen, wordt de dynamiek van de ammoniakemissie onder geconditioneerde omstandigheden in beeld gebracht. Tevens is het mogelijk om met behulp van het stalsimulatoronderzoek gericht te zoeken naar oplossingsrichtingen voor de emissieproblematiek. Met behulp van dergelijk onderzoek kunnen oplossingsrichtingen snel en betrekkelijk eenvoudig op hun perspectieven worden beoordeeld. Dit maakt dat een eventuele vertaling van oplossingen naar verder onderzoek en de praktijk effectiever kan verlopen.

Het voorliggende rapport beschrijft de mogelijkheden van een stalsimulatoropstelling. Aandacht wordt besteed aan de bevuilingsprocedures van vloeroppervlakken. Daarnaast worden de uitkomsten van modelmatig onderzoek naar de ammoniakemissie besproken.

Dit onderzoek is mogelijk gemaakt mede dankzij de steun van het Financieringsoverleg Mest- en Ammoniakonderzoek.

Ir. A.A. Jongebreur
directeur

Inhoud

| | |
|--|----|
| Voorwoord | 3 |
| Samenvatting | 5 |
| 1 Inleiding | 6 |
| 2 Materiaal en methoden | 7 |
| 2.1 Meetopstelling | 7 |
| 2.2 Testprocedure | 7 |
| 2.3 Omstandigheden | 8 |
| 2.4 Bevuilingsprocedures | 9 |
| 2.5 Urine en faeces | 9 |
| 2.6 Urease-activiteit | 10 |
| 2.7 Theoretische beschrijving van de roosteremissie | 10 |
| 3 Resultaten | 13 |
| 3.1 Testprocedure | 13 |
| 3.2 Roosteremissie na bevuiling met de mengselmethode | 13 |
| 3.3 Totale emissie na bevuiling met de mengselmethode | 15 |
| 3.4 Totale emissie na bevuiling met de urine-sproeimethode | 16 |
| 3.5 Ammoniakemissie onder niet-standaard omstandigheden | 16 |
| 4 Discussie | 20 |
| 4.1 Testprocedure | 20 |
| 4.2 Roosteremissie na bevuiling met de mengselmethode | 20 |
| 4.3 Totale emissie na bevuiling met de mengselmethode | 21 |
| 4.4 Totale emissie na bevuiling met de urine-sproeimethode | 21 |
| 4.5 Ammoniakemissie onder niet-standaard omstandigheden | 22 |
| 5 Conclusies | 23 |
| Summary | 24 |
| Literatuur | 25 |

Samenvatting

Een modelsysteem voor het meten van de invloed van vloermaterialen, mestbehandelings-technieken en klimaatomstandigheden op de ammoniakemissie vanuit dierhuisvestingen wordt beschreven. Voor het opbrengen van faeces en urine over het vloeroppervlak, waarvan de ammoniakemissie wordt gemeten, zijn twee protocollen ontwikkeld. Het eerste protocol bestaat uit het homogeen verdeeld aanbrengen van 5 kg urine-faeces-mengsel (2:3) over een rooster. Bij het tweede protocol wordt een hoeveelheid urine (2 kg) over een van te voren met faeces bevuild rooster gespreid.

De resultaten laten zien dat enkele uren (1 à 2 uur) na het aanbrengen op een 'vuil' vloeroppervlak van een urine-faecesmengsel, afkomstig van melkvee, een emissiemaximum ontstaat. Daarna treedt een geleidelijke daling op totdat na circa één etmaal alle gevormde ammoniak vervluchtigd is. Het aanbrengen van alleen urine leidt tot een kwalitatief vergelijkbaar emissieverloop. Deze resultaten kunnen beschreven worden met een model waarin een snelle ureumafbraak wordt gevolgd door een relatief langzame ammoniakvervluchtiging. De ureumafbraak op een 'vuil' oppervlak is sneller dan op grond van de urease-activiteit van melkveefaeces te verwachten is. Dit kan toegeschreven worden aan een stijging van de microbiële activiteit op het oppervlak.

Een verhoging van de omgevingstemperatuur van 9,5 naar 19,0 °C leidt tot een toename van de emissiepiek met 50%. Een toename van de luchtsnelheid over het roosteroppervlak van 12 naar 19 cm.s⁻¹ leidt tot een toename van de emissiepiek met 20%. Voor zowel de temperatuurverhoging als de luchtsnelheidstoename voorspelt het model een sterkere toename van de emissiepiek.

Experimenten met urine-faecesmengsels, waarbij de hoeveelheid stikstof (N_k) in de gebruikte urine varieerde, tonen aan dat de emissie lineair afhankelijk is van de stikstofconcentratie in de urine.

1 Inleiding

De veehouderij draagt in belangrijke mate bij aan de verzuring van het milieu. Van de bij de veehouderij vrijkomende verbindingen is vooral ammoniak aan te merken als een veroorzaker van deze verzuring. Ammoniak komt op verschillende plaatsen vrij, in feite overal waar urine en faeces met lucht in aanraking komen. Eén van deze plaatsen is de stal. Voor de realisatie van de ten aanzien van het milieubeleid geformuleerde doelstellingen, 70% reductie van de ammoniakemissie in het jaar 2000, is het noodzakelijk dat, naast het bereiken van reductie van de ammoniakemissie bij mestaanwending en mestopslag, ook een reductie van de stalemissie wordt bewerkstelligd (Hey en Schneider, 1991; Anonymus, 1991). Om de vervluchtiging uit de stal tegen te gaan, zullen er maatregelen genomen moeten worden op het gebied van de stalrichting en/of de mestbehandeling (Groot Koerkamp et al., 1990).

Het effect van een maatregel is in een complete stal moeilijk te meten. Het is moeilijk om een goede vergelijking te maken tussen de situatie voor de introductie van de maatregel en de situatie erna. Het aanpassen van een stal is een kostbare zaak. Daarnaast moet rekening worden gehouden met de tijd die nodig is om een aanpassing in een stal te realiseren.

De laatste jaren is de Lindvall-doos (Lindvall et al., 1974) gebruikt om een uitspraak te kunnen doen over het effect van een vloerconstructie op de ammoniakemissie zonder dat de vaststelling van de totale stalemissie noodzakelijk is (Huis in 't Veld et al., 1992). In een stal zijn de temperatuur, de luchtvochtigheid en de condities van het vloeroppervlak niet constant. Bij de metingen met behulp van de Lindvall-doos zullen de resultaten afhangen van de plaatselijke omstandigheden. Het vergelijken van verschillende situaties is hierdoor nog steeds een gecompliceerde zaak.

Dit heeft geleid tot de vraagstelling of er een systeem ontwikkeld kan worden waarmee -evenals bij de Lindvall-doosmetingen- in een korte periode de emissie van vloerdelen vastgesteld kan worden, maar waarbij de omstandigheden wel goed controleerbaar zijn. De volgende vraag die hierbij onmiddellijk naar voren komt, is hoe de metingen in een dergelijk modelsysteem uitgevoerd moeten worden zodat ze reproduceerbaar zijn en daaraan gekoppeld hoe de resultaten vertaald kunnen worden naar praktijkstallen. Om deze reden is de ontwikkeling van een modelsysteem en een meetprocedure in gang gezet.

In dit rapport wordt in hoofdstuk 2 eerst het modelsysteem nader beschreven, waarbij ook aandacht wordt gegeven aan de wijze waarop enkele controle-metingen zijn uitgevoerd om het gehele systeem te testen. De wijze waarop de ammoniakemissiemetingen zijn verricht, wordt ook in dit hoofdstuk besproken. Hierna wordt een theoretisch model opgesteld waarmee de emissie vanaf het vloeroppervlak, zoals dat in het modelsysteem aanwezig is, beschreven kan worden.

In hoofdstuk 3 worden de resultaten van de controlemetingen gegeven. Tevens worden de resultaten behandeld van de metingen die zijn uitgevoerd aan mest, aangebracht op een standaard rundveerooster zoals dat in ligboxenstallen wordt gebruikt. Hierbij komt ook de invloed van de mestsamenstelling, de wijze van bevuilding en de omgevingsfactoren als temperatuur en luchtsnelheid aan de orde. De resultaten van de berekeningen die uitgevoerd zijn met behulp van het theoretische model staan ook in hoofdstuk 3.

In hoofdstuk 4 volgt een discussie over de resultaten. Deze discussie leidt tot enige conclusies die in hoofdstuk 5 worden vermeld.

2 Materiaal en methoden

2.1 Meetopstelling

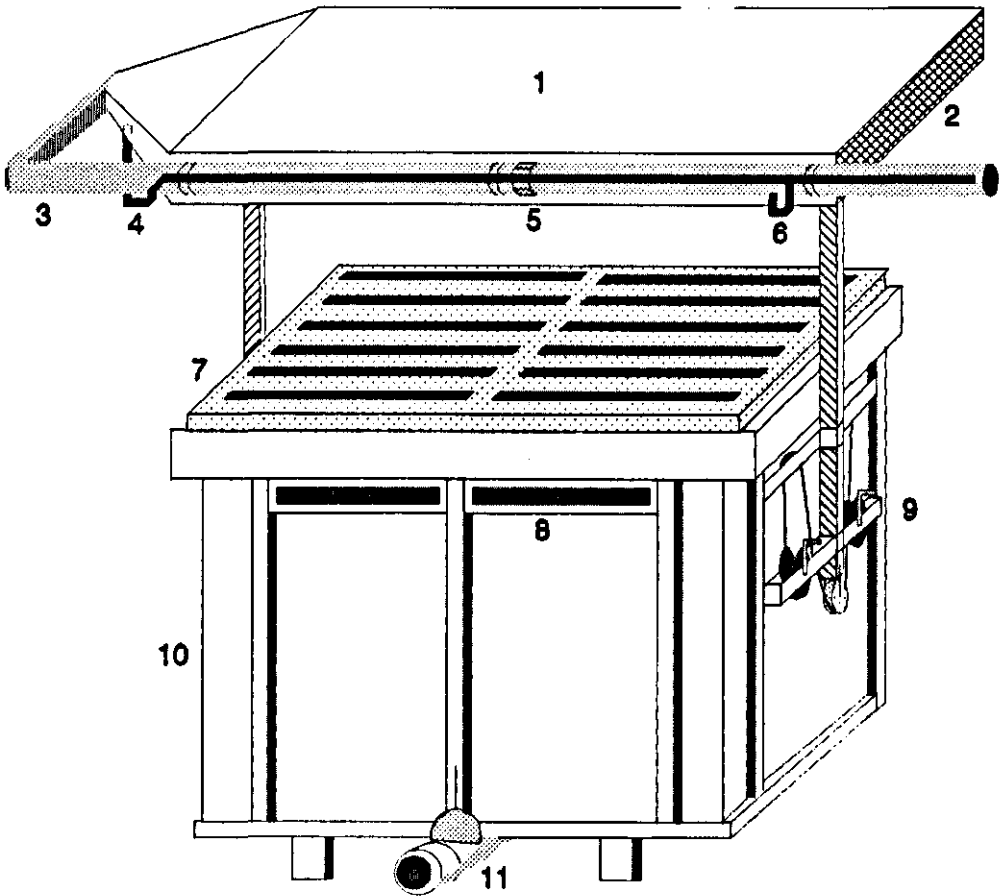
Het ontwikkelde modelsysteem bestaat uit een bak met de afmetingen 210*110*160 cm³ (l*b*h) die met mest gevuld kan worden en zo een keldersegment voorstelt. Boven deze kelder kan een vloerelement geplaatst worden. Op dit geheel wordt een Lindvall-doos (Lindvall et al., 1974) geplaatst, die nodig is om een controleerbare luchtstroming over de roosters te realiseren en die tegelijkertijd wordt gebruikt om de ammoniakemissie te meten. Figuur 1 toont een schematische weergave van de opstelling.

De Lindvall-doos wordt tijdens de meting zodanig over het rooster geplaatst dat er geen luchtdoorstroming mogelijk is tussen de randen van de bodemloze doos en het vloeroppervlak. Via een aluminium plaat met gaten, die voor de opening van de Lindvall-doos is geplaatst, wordt de lucht met behulp van een centrifugaalventilator over het rooster gezogen. Deze ventilator (niet op de tekening aanwezig) is aangebracht aan het einde van de afvoerbuis die langs de Lindvall-doos loopt. In de afvoerbuis is een smoorklep opgenomen zodat de luchtsnelheid over het rooster gevarieerd kan worden. De monsternamenpunten, hiermee wordt bedoeld de plaats van waar de lucht door de ammoniakmonitor (zie verderop) wordt gezogen, zijn respectievelijk aangebracht in het eindstuk van de Lindvall-doos (punt 4 in figuur 1) en in de luchtafvoerbuis ter hoogte van de luchtinlaat van de Lindvall-doos (punt 6 in figuur 1). Het geheel (keldergedeelte en Lindvall-doos) is in een geconditioneerde ruimte geplaatst, waardoor de temperatuur en de luchtvochtigheid geregeld kunnen worden. Het instelbaar zijn van de luchttemperatuur en de luchtvochtigheid in de klimaatcel -het is namelijk deze lucht die over het rooster wordt gezogen- en tevens van de luchtsnelheid over het rooster, maakt het mogelijk om de invloed van deze factoren op het ammoniakemissieproces te onderzoeken. Tevens is het van groot belang dat door het constant kunnen houden van deze factoren verschillende vloerconstructies en mestbehandelingstechnieken vergeleken kunnen worden ten aanzien van hun invloed op de ammoniakemissie. Met behulp van dit modelsysteem is het mogelijk om onderzoek te doen dat een aanvulling is op het ammoniakemissie-onderzoek zoals dat in een stal wordt verricht.

De temperatuur (T) en de luchtvochtigheid (R.H.) in de klimaatcel zijn gemeten met behulp van een Rotronic sensor. In de afvoerbuis is een, op debiet geijkte, ventilatoranemometer (Wilh. Lambrecht KG, no. 1468) opgenomen, waarmee het luchtdebiet door de Lindvall-doos gemeten kan worden. De ammoniakconcentratie in de afgezogen lucht is bepaald met een NO_x-analyser (Monitor Labs, model 8840). Voor de omzetting van NH₃ naar NO is gebruik gemaakt van een converter met als katalysator roestvrij staal. De conversie vindt plaats bij 775 °C. Zie voor een nadere beschrijving van deze apparatuur en de toegepaste meetprincipes (Scholtens, 1990).

2.2 Testprocedure

Met behulp van een thermische anemometer (Wilh. Lambrecht KG, no. 642), in de Lindvall-doos aangebracht via gaten in de bovenkant, is op verschillende plaatsen de luchtsnelheid gemeten om vast te stellen hoe homogeen deze over de Lindvall-doos is verdeeld.



1: Lindvall-does, 2: instroomopening, 3: afvoerbuis, 4: monsternamepunt, 5: anemometer, 6: monsternamepunt, 7: rooster, 8: venster, 9: lierinstallatie, 10: keldergedeelte, 11: vulopening

Figuur 1 Modelstelsel om de ammoniakemissie vanaf vloermaterialen te onderzoeken.
Figure 1 Model system to study the ammonia emission from floor materials.

De opstelling is hierna getest door middel van meting van de emissie uit een gebufferde ammoniakoplossing die de volgende samenstelling had: 0,4% NH_3 , 0,2M NaH_2PO_4 en 0,5M Na_2HPO_4 . De pH van deze oplossing bedraagt circa 8,5 en komt overeen met de pH van urine-faecesmengsels zoals die op de vloer van een rundveestal kunnen voorkomen. De basische component van het buffermengsel (Na_2HPO_4) is slecht oplosbaar. Tijdens de meting treedt ook waterverdamping op met als gevolg dat de basische component in steeds grotere mate neerslaat. Dit veroorzaakt een daling van de pH, wat een verlagend effect heeft op de ammoniakemissie. Voor de start van de meting werd de oplossing in kunststof bakken van ca. 5 cm diep gegoten die in de simulator waren geplaatst op een zodanige wijze, dat het vloeistofoppervlak op dezelfde hoogte was als waar zonder deze bakken het oppervlak van het rooster zou zijn.

2.3 Omstandigheden

De ammoniakemissiemetingen zijn, tenzij anders vermeld, verricht onder de volgende

omstandigheden: temperatuur: 9,5 °C; R.H.: 70%; luchtsnelheid op 5 cm boven het roosteroppervlak: 0,19 m.s⁻¹. Deze waarden komen globaal overeen met de gemiddelden zoals die over een stalperiode in een rundveestal optreden (Oosthoek, 1989).

Voor het rooster is een standaardrooster gebruikt dat gemaakt is volgens de specificatie NEN-3873.

2.4 Bevuilingsprocedures

In de experimenten werd eerst op een bepaalde manier (zie verderop) mest (urine + faeces) op het roosteroppervlak aangebracht, waarna de ammoniakemissie vanaf het rooster en uit de mestkelder over een periode van 24 uur werd gevolgd. Ten aanzien van het aanbrengen van urine en faeces op het roosteroppervlak is ernaar gestreefd een methode te ontwikkelen die reproduceerbaar is. Ook is getracht de methode zoveel mogelijk overeen te laten komen met de manier van bevuiling zoals die in een rundveestal kan optreden. De reproduceerbaarheid heeft de prioriteit gekregen, vooral om na afloop van de metingen uitspraken te kunnen doen over het alternatief waarmee de grootste reductie van de ammoniakemissie te bereiken is. Dit heeft ertoe geleid dat de twee volgende opbrengmethoden zijn gebruikt.

De eerste verloopt als volgt: 2 kg urine wordt gemengd met 3 kg faeces; dit geeft een mengsel met een drogestofgehalte van circa 10%. Deze verhouding komt overeen met de verhouding tussen de hoeveelheid urine en de hoeveelheid faeces die gemiddeld door een melkkoe wordt geproduceerd. Dit mengsel wordt hierna homogeen over het rooster (110 cm x 220 cm) verdeeld, waarna met een handveger de mest verder wordt uitgewreven. Bij metingen van het gewicht van de door de roosterspleten gevallen mest, bleek dat circa 2,4 kg materiaal op (of aan) het rooster achterblijft. Na het opbrengen van de laag wordt de optredende emissie gedurende een etmaal gemeten. Voor het opbrengen van een nieuwe laag wordt met behulp van een vloerentrekker de oude laag zo goed mogelijk verwijderd. Deze methode wordt verder in dit artikel aangeduid als de mengselmethode.

Bij de tweede methode wordt uitgegaan van de eerder genoemde hoeveelheden. De 3 kg faeces wordt nu op dezelfde manier als bij de eerste methode over het rooster verdeeld. Direct hierna wordt met behulp van een vloerentrekker deze vaste mest weer verwijderd zodat er alleen een dunne film achterblijft. Hierover wordt met behulp van een gieter 2 kg urine zo homogeen mogelijk gespreid. Deze methode wordt verder aangeduid als de urine-sproeimethode.

2.5 Urine en faeces

De bij de experimenten gebruikte urine en faeces waren van te voren gescheiden opgevangen en bewaard bij circa 4 °C. Onder deze omstandigheden verlopen de afbraakprocessen traag. Voor urine van melkvee is in een experiment vooraf vastgesteld dat er pas na 10 dagen bewaring sprake is van een aanzienlijke afbraak van ureum en andere stikstofbevattende componenten naar ammoniak (20%). Dit is af te leiden uit het feit dat na deze tijd de ammoniakconcentratie in de urine duidelijk stijgt. Bij de hieronder beschreven experimenten is altijd gebruik gemaakt van urine en faeces die korter dan 10 dagen gekoeld bewaard zijn geweest. Bij het aanbrengen van mest op een roosteroppervlak is dit voor de experimenten, die in dit rapport beschreven worden, altijd een dunne laag (0,2 cm of minder) die snel opwarmt. Bij metingen bleek het dan ook geen verschil te maken of de gekoelde mest direct of pas na opwarming tot 30 °C werd gebruikt. Op grond hiervan is besloten om de urine en faeces te gebruiken zoals deze uit de koeling komen.

Van alle opgevangen urine en faeces zijn routinematig de volgende analyses uitgevoerd: $\text{NH}_4\text{-N}$ en N_{N} .

Tijdens de meeste metingen was het keldergedeelte van de simulator gevuld tot 40 cm onder het rooster met dunne rundveemest afkomstig van de IMAG-DLO proefboerderij "De Vijf Roeden". De samenstelling van deze rundveemest staat vermeld in tabel 1.

Tabel 1 Samenstelling van de gebruikte urine, faeces en mest.

Table 1 Composition of the used urine, faeces and manure.

| mestsoort | N_{N} (g N/kg) | NH_4^+ (g N/kg) | DS (g/kg) | pH |
|--------------------|--------------------------------|--------------------------|-----------|-----|
| urine (gemiddeld) | 10,0 | 0,1 | – | 7,8 |
| faeces (gemiddeld) | 5,5 | 0,4 | 120 | 6,8 |
| mest in kelder | 4,2 | 2,0 | 64 | 7,3 |

In deze tabel staan ook de resultaten van de analyse vermeld van de gescheiden opgevangen urine en faeces. De mest in de kelder heeft tijdens de meetperiode geen speciale behandeling ondergaan. Door het aanbrengen van een 'verse' laag mest op het roosteroppervlak komt er natuurlijk ook indirect een nieuwe laag op het mestoppervlak in de kelder terecht. De mest in de kelder is gedurende een periode van enkele maanden gebruikt. Om korstvorming te voorkomen is af en toe in de mest geroerd.

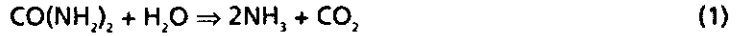
2.6 Urease-activiteit

Het vrijmaken van ammoniak uit ureum of andere stikstofbevattende verbindingen gaat via processen die gekatalyseerd worden door enzymen. Voor ureum, in dit geval de belangrijkste verbinding, is dit het enzym urease. Deze enzymen zijn van microbiële oorsprong en voor een gedeelte al in de faeces aanwezig. Ook kunnen deze enzymen geproduceerd worden door micro-organismen die op een stalvloer aanwezig zijn. Om een indruk te krijgen van de activiteit van de stalvloer om ureum in ammoniak om te zetten, zijn monsters genomen van de (mest)laag op het roosteroppervlak. Hierbij is uitgegaan van een oppervlak zoals dit in een standaard ligboxenstal wordt aangetroffen en van een rooster in de simulator na behandeling gedurende een week met een urine-faecesmengsel op de bovenbeschreven wijze. In het geval van de ligboxenstal is, nadat het oppervlak was schoongeschoven door de mestschuif, met behulp van een spatel en een fijne borstel zo goed mogelijk al het materiaal van een 1500 cm² groot oppervlak verwijderd en als monster gebruikt. Om de mestschuif in de simulator na te bootsen is, voor het nemen van het monster, eerst het rooster schoongetrokken met een vloerentrekker. De urease-activiteit is gemeten door een hoeveelheid van het monster aan een ureumoplossing toe te voegen en hierna de vormingssnelheid van ammoniak spectroscopisch te meten. Op dezelfde wijze is ook de urease-activiteit bepaald van het urine-faecesmengsel.

2.7 Theoretische beschrijving van de roosteremissie

Bij de experimenten wordt een hoeveelheid mest (een mengsel van urine en faeces) of alleen urine op een vloeroppervlak aangebracht. Voor de theoretische beschrijving wordt uitgegaan van de eenvoudigste situatie. Het te beschrijven systeem bestaat in dit geval uit een oppervlak (roostervloer) waarop zich een laag mest bevindt, terwijl de onderliggende mestkelder geheel leeg is. Deze situatie kan ook in werkelijkheid gemeten worden door het rooster buiten de meetopstelling te bevuilen en hierna meteen in de opstelling te

plaatsen. Direct na het aanbrengen van de mestlaag start de afbraak van stikstof-bevattende verbindingen tot ammoniak. De belangrijkste verbinding in dit verband is ureum en deze wordt via een enzymgekatalyseerde reactie afgebroken tot ammoniak:



Dit leidt tot een toename van de hoeveelheid ammoniak in de mestlaag. Na de vorming van de ammoniak start ook de ammoniakemissie. Bij deze emissie komt de ammoniak terecht in de lucht die door de Lindvall-doos over het rooster stroomt. (In de luchtafvoerbuis wordt de ammoniakconcentratie gemeten en tegelijkertijd wordt het debiet van de luchtstroom bepaald. Hieruit is de totale hoeveelheid geëmitteerde ammoniak vast te stellen.)

Voor de beschrijving van deze processen is gebruik gemaakt van het model zoals dat beschreven is door Muck en Steenhuis (1981; 1982; 1983). De afbraak van ureum (en eventueel andere stikstofbevattende verbindingen) wordt in dit model beschreven met de Michaelis-Menten (differentiaal)vergelijking (Moore, 1972):

$$\frac{d[U]}{dt} = \frac{-S_m \cdot [U]}{K_m + [U]} \quad (2)$$

Hierin is [U] de ureumconcentratie (Mol.l⁻¹), S_m de maximumreactiesnelheid die optreedt voor hoge ureumconcentraties (Mol.l⁻¹.s⁻¹) en K_m de Michaelis-constante (Mol.l⁻¹).

Voor de ammoniakconcentratie (ammoniak en ammonium) in de mestlaag geldt dat deze toeneemt met twee keer de snelheid waarmee de ureumconcentratie afneemt (zie vergelijking 1).

De emissie vanuit de mestlaag naar de lucht die door de Lindvall-doos stroomt, kan in het twee-filmmodel of gasfilmmodel (Westerterp et al., 1987) beschreven worden met:

$$E = \frac{k_{dif} \cdot A \cdot [C] \cdot f}{H \cdot V} \quad (3)$$

Hierin stelt [C] voor de som van de ammoniak (NH₃) en de ammonium (NH₄⁺) concentratie (Mol.l⁻¹). A is het oppervlak (dm²) en V het volume van de mestlaag (l). De overdrachtssnelheidsconstante (k_{dif}) hangt af van de luchtsnelheid terwijl de invloed van de temperatuur in het traject van 0 tot 20 °C verwaarloosbaar is (Haslam et al., 1924):

$$k_{dif} = 0,193 \cdot v^{0,8} \quad (4)$$

Hierin is v de luchtsnelheid in m.s⁻¹. Deze formule levert een k_{dif} in dm.s⁻¹. Dit is een enigszins afwijkende eenheid voor de beschrijving van fysische transportverschijnselen. Hiervoor is gekozen om aan te sluiten bij de eenheden zoals die gebruikt worden in vergelijking 2.

H is de constante in de verdelingswet van Henry (Hashimoto en Ludington, 1971):

$$H = 1382 \cdot (1,053)^{(293-T)} \quad (5)$$

met T in K. Hierbij is deze constante die vaak wordt gegeven in de eenheid g.cm⁻³.atm⁻¹ in een dimensieloze eenheid omgezet door de partiële druk van het ammoniak

in een concentratie om te rekenen.

De fractie ongeïoniseerde ammoniak in de mest wordt aangegeven met f . Deze fractie is op grond van zuur-base evenwichten theoretisch af te leiden. De zuur-base theorie geldt echter voor verdunde oplossingen en zal dus niet gelden voor mestmengsels. Om deze reden is hier de volgende empirische relatie gebruikt (Muck en Steenhuis, 1983):

$$f = \frac{1}{1 + \frac{[H_3O^+]}{0,81 \cdot 10^{-10} \cdot (1,07)^{(T-29.3)}}} \quad (6)$$

De in deze vergelijking voorkomende H_3O^+ -concentratie (Mol.l⁻¹) kan ook berekend worden op grond van de volgens reactievergelijking (1) geproduceerde ammoniak en de buffercapaciteit van het mestmengsel. In veel publikaties wordt gemeld dat het inbouwen van de pH in het model niet succesvol was (Muck en Steenhuis, 1983). In dit model wordt daarom gekozen voor het afzonderlijk meten van de pH, waarna de hieruit af te leiden H_3O^+ -concentratie als een externe variabele in het model wordt geïntroduceerd. De constante $0,81 \cdot 10^{-10}$ is te associëren met een gecorrigeerde evenwichtsconstante voor de reactie van ammoniak in water en heeft dus een dimensie van Mol.l⁻¹.

De combinatie van de emissie- en de produktieterm levert voor de ammoniakconcentratie in de mestlaag de volgende vergelijking op:

$$\frac{d[C]}{dt} = \frac{-k_{diff} \cdot A \cdot [C] \cdot f}{H \cdot V} + \frac{2 \cdot S_m \cdot [U]}{K_m + [U]} \quad (7)$$

Het oplossen van het stelsel gekoppelde differentiaalvergelijkingen (vergelijkingen 2, 3 en 7) levert de emissie op. Door deze over de tijd te integreren kan de cumulatieve emissie berekend worden. Voor het oplossen van dit stelsel is gebruik gemaakt van de simulatietaal Personal Prosim.

3 Resultaten

3.1 Testprocedure

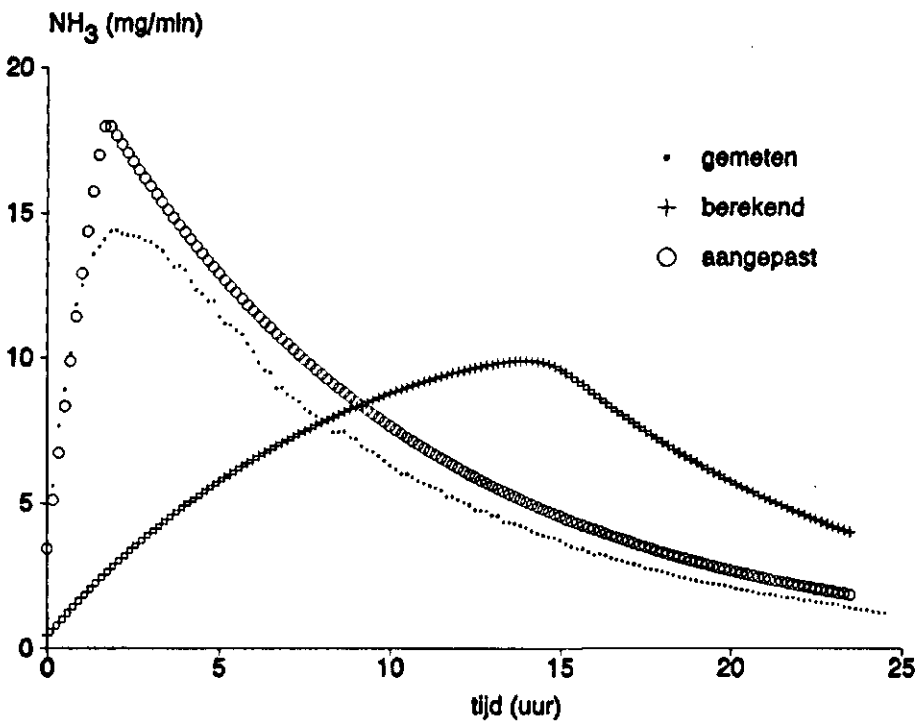
Tijdens de testprocedure bleek dat de luchtsnelheid onderin de Lindvall-doos (dus vlak boven het rooster) globaal 2/3 van de gemiddelde snelheid door de doos is. Deze metingen waren om verschillende redenen moeilijk uit te voeren. Ten eerste zijn de snelheden laag, in de orde van grootte van 10-30 cm.s⁻¹, en daarom niet nauwkeurig te meten. Ten tweede veroorzaakt de in de klimaatcel geplaatste koeler met bijhorende circulatieventilator een zekere mate van turbulentie in de luchtstroming door de Lindvall-doos. De aluminium plaat met gaten voor de luchtinlaat houdt blijkbaar niet alle luchtwervelingen tegen.

Bij theoretische berekeningen van de ammoniakemissie wordt in dit rapport uitgegaan van de luchtsnelheid zoals die gemeten is dicht boven het roosteroppervlak. De emissiemetingen aan de ammoniakhoudende oplossing gaven te zien dat de ammoniakconcentraties op de twee monsternamepunten van elkaar verschilden. Bij het monsternamepunt in het eindstuk van de Lindvall-doos, waarbij het punt ligt in het onderste deel van de 20 cm hoge doos, werd een NH₃-concentratie gemeten die globaal een factor 3 hoger was dan wanneer het monsternamepunt in de afvoerbuis ter hoogte van de luchtinlaat van de Lindvall-doos is aangebracht. Afzonderlijke metingen in de aangezogen lucht toonden aan dat de achtergrondconcentratie van ammoniak te verwaarlozen is ten opzichte van de ammoniakconcentraties die in de afgezogen lucht worden gemeten. In een hieropvolgend experiment werd bij de start en aan het einde van de emissiemeting de ammoniakconcentratie van de oplossing bepaald met behulp van chemische analyse. Tevens werd het vloeistofniveau in de bakken aan het begin en aan het einde van de emissiemeting vastgelegd. Uit de NH₃-concentratieverschillen gecombineerd met het verschil in het vloeistofniveau kan de totale hoeveelheid ammoniak die vervluchtigd is, worden bepaald. Voor beide monsternamepunten kan de cumulatieve ammoniakemissie berekend worden door de gemeten concentratie te vermenigvuldigen met het debiet en dit over de tijd te sommeren. Van de zo berekende cumulatieve emissies stemt alleen die, die berekend is voor het monsternamepunt in de afvoerbuis overeen met de langs chemische weg bepaalde totale emissie. Verderop in dit rapport wordt dan ook de emissie bepaald met behulp van de op dit monsternamepunt gemeten concentratie.

3.2 Roosteremissie na bevulling met de mengselmethode

Figuur 2 toont de ammoniakemissie vanaf een rundveerooster nadat 5 kg van een urine-faeces (2:3) mengsel op de hiervoor beschreven wijze homogeen verdeeld hierover aangebracht is. (Voorafgaande aan deze meting is het rooster gedurende een week elke dag met 5 kg mengsel bevuld. De reden voor deze bevulling vooraf komt in het volgende hoofdstuk aan de orde.) De laag is aangebracht op het rooster buiten de simulatoropstelling. Direct hierna is het rooster in de opstelling gelegd en is de Lindvall-doos in de juiste positie geplaatst. De waargenomen ammoniakemissie is dus afkomstig van de mest op (of aan) het rooster. In de figuur is zichtbaar dat na een aanloopfase van 2-3 uur de maximale emissie wordt bereikt. Na een etmaal treedt er nagenoeg geen emissie meer op vanaf het rooster.

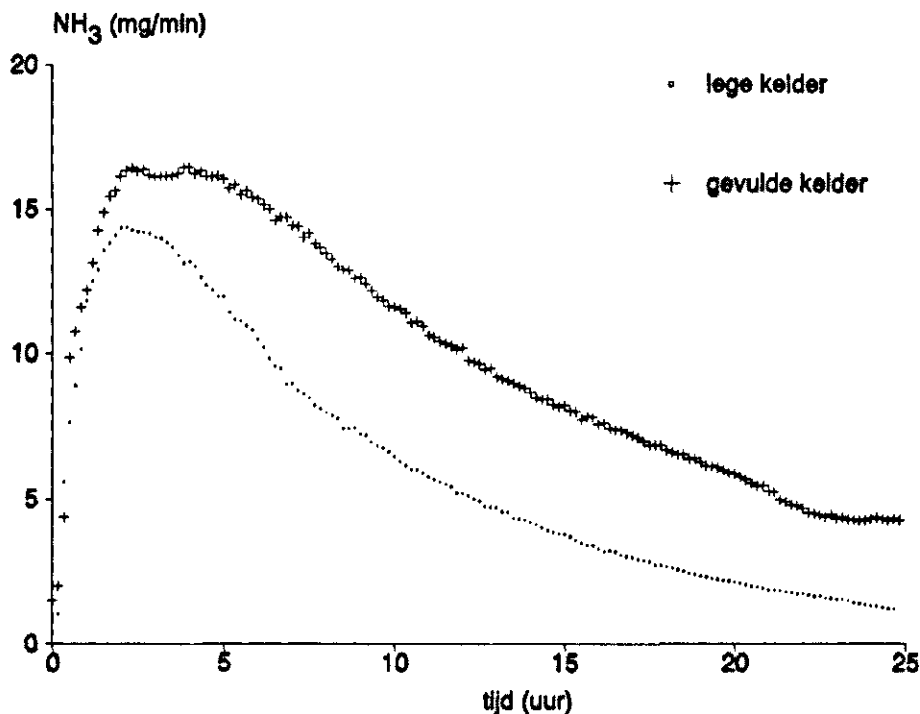
De curve aangegeven met een + in figuur 2 is het resultaat van een simulatierun met het



Figuur 2 De NH_3 -emissie na het aanbrengen van mest op het rooster.
Figure 2 The NH_3 -emission after applying manure on the slatted floor.

gegeven model. Voor de fysische parameters van het model zijn de volgende keuzen gemaakt. Voor A is het loopoppervlak van het rooster genomen: 20800 cm^2 . Bij het onderdeel 'Materiaal en methoden' is al gemeld dat van de 5 kg mengsel er 2,4 kg op het rooster achterblijft, dus voor het mestvolume kan 2400 cm^3 worden genomen. Een factor die moeilijk in rekening is te brengen, is de pH. In principe is deze te berekenen op grond van de gevormde ammoniak en de buffercapaciteit van het urine-faecesmengsel. In veel publikaties wordt gemeld dat het inbouwen van de pH in het model niet succesvol was (Muck en Steenhuis, 1983). Bij pH-metingen aan de mestlaag op het roosteroppervlak bleek dat vanaf het aanbrengen van de laag de pH snel tot omstreeks 8,6 steeg, waarna er nagenoeg geen verandering meer werd waargenomen. In het model is daarom gekozen voor een pH van 8,6. De stijging van de pH kan ook gebruikt worden als een maat voor de roosteractiviteit (Mobley en Hausinger, 1989). Urease-activiteitsmetingen, uitgevoerd in het laboratorium aan het urine-faecesmengsel gaven, een maximum ureumafbraaksnelheid van $0,17 \mu\text{Mol ureum} \cdot \text{min}^{-1} \cdot \text{g}^{-1}$ mengsel. Voor K_m is een waarde van $2000 \mu\text{Mol} \cdot \text{l}^{-1}$ vastgesteld. Dit alles met $T = 9,5 \text{ }^\circ\text{C}$, $v = 19 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ en een ureumconcentratie van $10 \text{ g N} \cdot \text{kg}^{-1}$ urine leidt tot de berekende waarden voor de ammoniakemissie aangegeven met een + in figuur 2.

De andere curve is het resultaat van een aanpassing van de ureumafbraaksnelheid tot de modelsimulatie en het gemeten gedrag vrijwel overeenkomen. Hierbij is de curve die de modelsimulatie oplevert een half uur in de tijd verschoven om te compenseren voor de tijd die er verstrijkt tussen het begin van het aanbrengen van de mestlaag en de meting van de ammoniak in de monitor. Dit tijdverlies is te wijten aan de tijd die nodig is voor het plaatsen van de Lindvall-does en het zich opnieuw moeten instellen van het luchtstromingspatroon in de does.



Figuur 3 NH₃-emissie vanaf het rooster met lege en gevulde kelder.
Figure 3 NH₃-emission from the slatted floor with empty and filled cellar.

De ureumafbraaksnelheid of -meer algemeen- de ammoniakvormingssnelheid is voor de aangepaste curve 1,25 $\mu\text{Mol ureum}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{g}^{-1}$ mengsel (zie ook tabel 2). Om deze hoge activiteit ook op een meer directe wijze te kunnen meten, zijn monsters genomen van het roosteroppervlak, zoals bij 'Materiaal en methoden' is beschreven. Hierbij is de mate van indroging van de mestlaag op het rooster niet goed in de hand te houden. Hiervoor kan gecorrigeerd worden door de activiteit uit te drukken per gram droge stof. De resultaten staan in tabel 2.

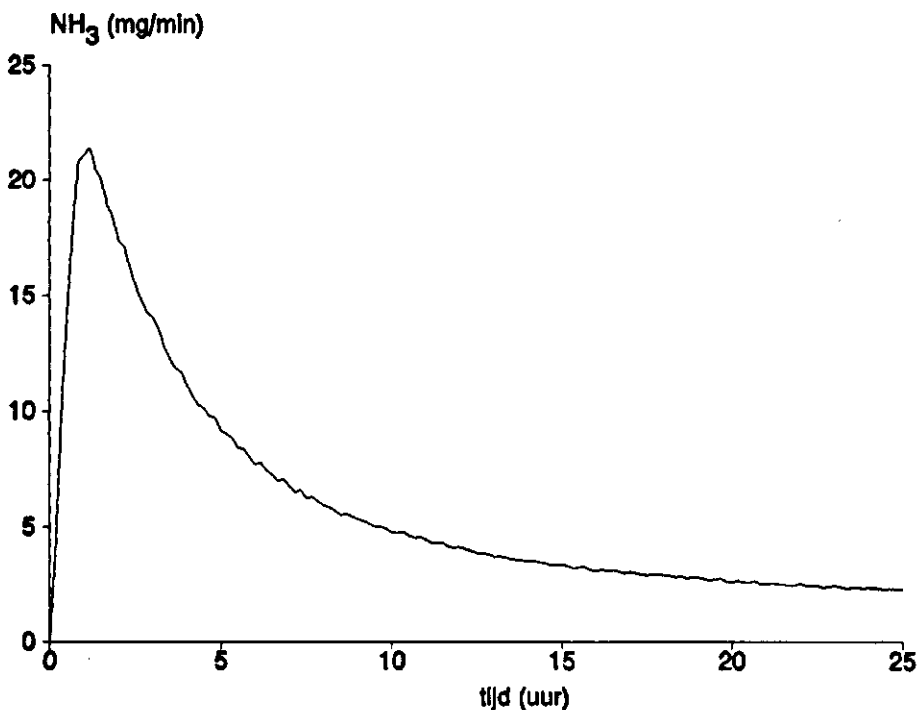
Tabel 2 Ureumafbraaksnelheid van verschillende monsters.
Table 2 Urea decomposition rate of various samples.

| Ureumafbraaksnelheid | Mengsel | Aangepaste waarde | Rooster in simulator | Rooster in stal |
|---|---------|-------------------|----------------------|-----------------|
| in $\mu\text{Mol}/\text{min}\cdot\text{g}$ | 0,17 | 1,25 | – | – |
| in $\mu\text{Mol}/\text{min}\cdot\text{g DS}$ | 2,27 | 16,67 | 3,95 | 3,20 |

Monsters genomen van de roostervloer in een loopstal voor melkvee gaven een urease-activiteit van gemiddeld 3,2 $\mu\text{Mol}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{g}^{-1}$ droge stof.

3.3 Totale emissie na bevulling met de mengselmethode

In figuur 3 wordt de ammoniakemissie vanaf een rooster waaronder zich een lege kelder bevindt, vergeleken met de ammoniakemissie vanaf een rooster dat ligt boven een met mest gevulde kelder.



Figuur 4 Ammoniakemissie na het sproeien van 2 kg urine over het rooster.
Figure 4 Ammonia emission after sprinkling of 2 kg urine over the slatted floor.

In beide gevallen is aan het begin van de meting 5 kg urine-faecesmengsel homogeen verdeeld over het rooster. De afstand van het mestniveau in de kelder tot de onderkant van het rooster bedroeg circa 40 cm.

3.4 Totale emissie na bevulling met de urine-sproeimethode

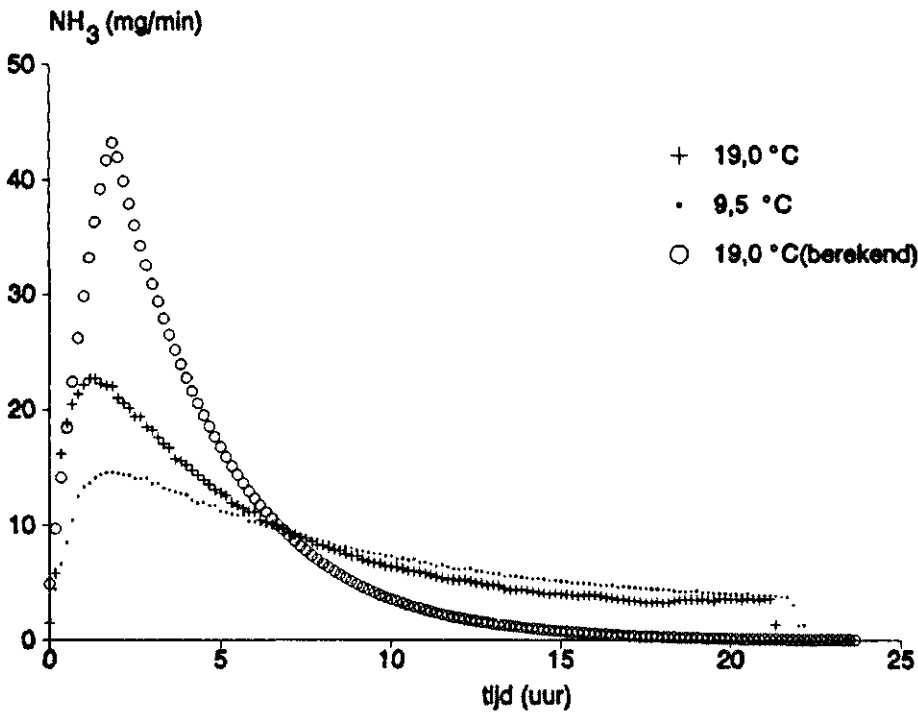
Bij de urine-sproeimethode wordt 2 kg urine homogeen over het roosteroppervlak gespreid (zie ook het onderdeel 'Materiaal en methoden').

Het resultaat is te zien in figuur 4.

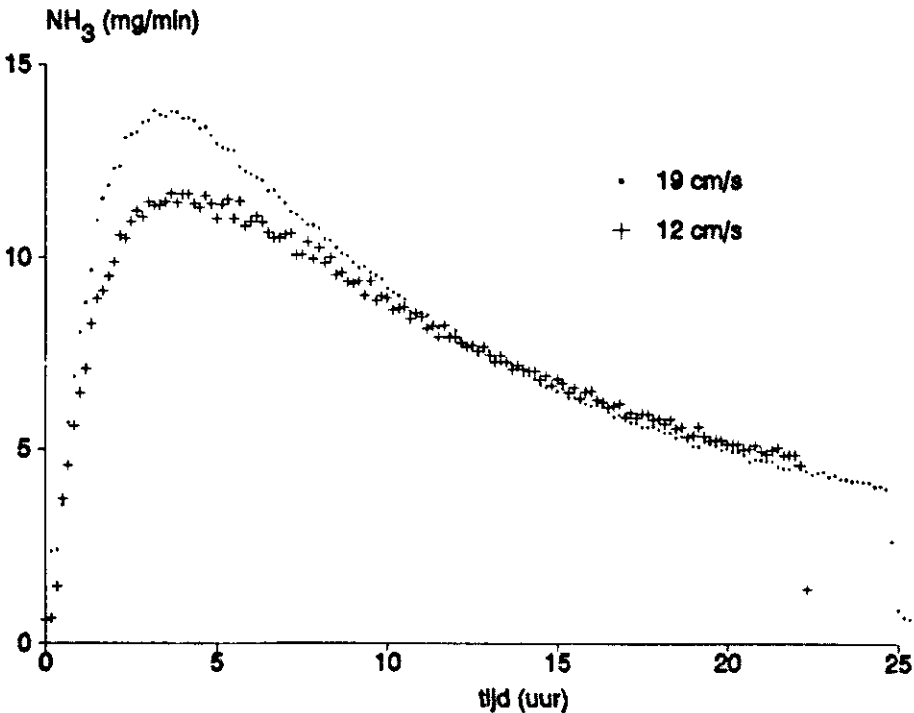
Ook hier is het rooster vooraf gedurende een week elke dag met 5 kg urine-faecesmengsel bevuld. Bij deze meting was de kelder gevuld met mest. Wanneer niet vlak vóór het sproeien van de urine een faeceslaag over het rooster wordt uitgesmeerd, wordt nagevoel een zelfde emissieverloop waargenomen. Ook het drie dagen laten indrogen van het roosteroppervlak leidt niet tot een daling van de emissiepiek zoals die optreedt na het weer aanbrengen van urine. In dit geval is er zelfs sprake van een lichte stijging van de piekemissie.

3.5 Ammoniakemissie onder niet-standaard omstandigheden

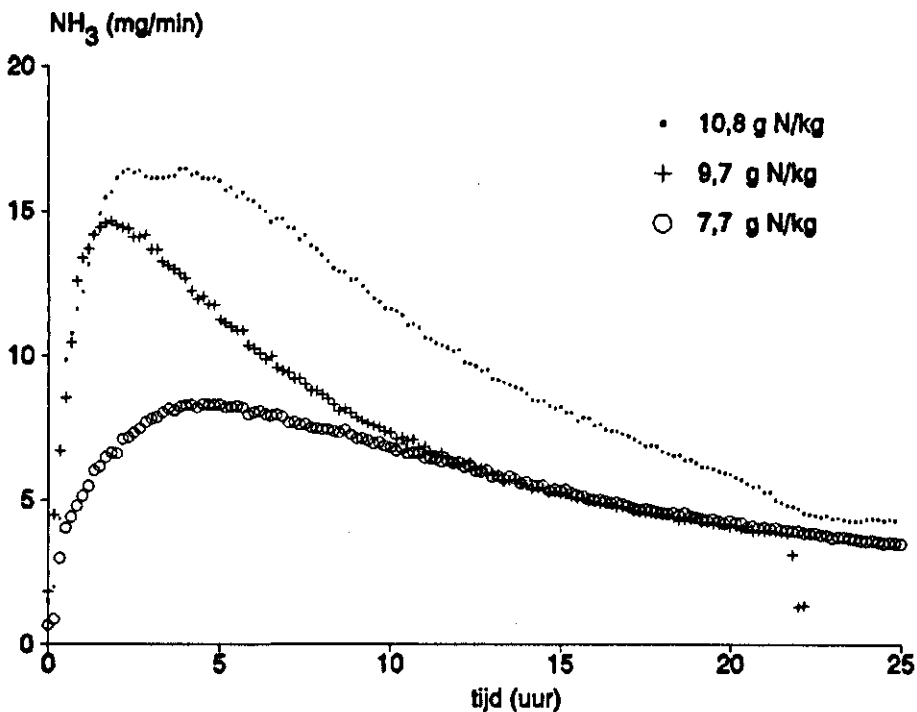
De tot nu toe beschreven metingen zijn allemaal verricht bij een vaste waarde voor de temperatuur, de lichtsnelheid, de luchtvochtigheid en de ureumconcentratie. Deze laatste parameter is niet volledig in de hand te houden, omdat de door het dier geproduceerde urine niet constant van samenstelling is. Voor de hierboven beschreven metingen was de ureumconcentratie in de urine circa 10 mg N.g⁻¹ (+1 of -1 mg N.g⁻¹). In het geval van



Figuur 5 Ammoniakemissie van een mestlaag bij verschillende temperaturen.
Figure 5 Ammonia emission of a manure layer at various temperatures.



Figuur 6 Ammoniakemissie van een mestlaag bij verschillende lichtsnelheden.
Figure 6 Ammonia emission of a manure layer at various air velocities.



Figuur 7 Ammoniakemissie van een mestlaag bij verschillende ureumconcentraties.
Figure 7 Ammonia emission of a manure layer at various urea concentrations.

bovenstaande vergelijkingen is ernaar gestreefd de metingen direct na elkaar uit te voeren, zodat er urine kon worden gebruikt die op dezelfde dag was opgevangen. Deze handelwijze garandeert dat de bovenbeschreven verschillen niet aan concentratieverschillen toegeschreven moeten worden.

Het model geeft aan wat theoretisch te verwachten is voor wat betreft de invloed van de temperatuur, de luchtsnelheid en de ureumconcentratie op het emissieproces. Er zijn enkele metingen uitgevoerd onder niet-standaard omstandigheden om na te gaan in hoeverre dit theoretisch te verwachten gedrag ook in de praktijk wordt waargenomen. In figuur 5 wordt de ammoniakemissie die optreedt na het aanbrengen van een urine-faecesmengsel bij twee verschillende temperaturen met elkaar vergeleken.

Voor de temperaturen zijn respectievelijk 9,5 en 19,0 °C gekozen.

Door de toename in de temperatuur neemt de emissiepiek circa 50% toe. De derde curve in de figuur is het resultaat van een simulatierun met het bovenbeschreven model waarbij voor de temperatuur 19 °C is gekozen. Voor de urease-activiteit is de aangepaste waarde (zie § 3.2) gebruikt waarbij geen rekening is gehouden met de mogelijke invloed van de temperatuurverhoging op deze activiteit.

Het effect van de luchtsnelheid op de emissie wordt getoond in figuur 6. De hier gegeven resultaten zijn gemeten met de mengselmethode. Een verlaging van de luchtsnelheid vlak boven het roosteroppervlak van 19 naar 12 cm.s⁻¹ leidt tot een daling van de ammoniakemissie. De verhouding tussen de twee emissiepieken bedraagt 1,2:1.

Tot slot van dit onderdeel wordt in figuur 7 de ammoniakemissie gegeven bij verschillende ureumconcentraties of, nauwkeuriger geformuleerd, bij verschillende N_{ki} -waarden voor de in het mengsel gebruikte urine. De N_{ki} -waarden waren 10,8, 9,7 en 7,7 mg N.g⁻¹ urine. Deze verschillende stikstofconcentraties in de urine zijn gedeeltelijk te verklaren uit de

biologische variaties die kunnen optreden en voor een ander deel uit een iets verschillende samenstelling van het gevoerde rantsoen. Hier zullen we in dit verband niet nader op ingaan. De piekmissies die gemeten zijn na het opbrengen van een urine-faeceslaag, waren respectievelijk 16,5 , 14,6 en 8,3 mg NH₃.min⁻¹.

4 Discussie

4.1 Testprocedure

In het vorige hoofdstuk is al geconstateerd dat de luchtstroming in de Lindvall-does niet homogeen is. Alle metingen worden in gelijke mate hierdoor beïnvloed en daarom zijn er geen verdere maatregelen genomen om dit te voorkomen. Het debiet wordt bepaald in de afvoerbuis zodat het niet homogeen zijn van de luchtsnelheid in de Lindvall-does op geen enkele manier de debietmeting en de hiermee samenhangende bepaling van de ammoniakemissie beïnvloedt.

De verklaring voor het gemeten verschil in concentratie op de twee monsternamenpunten is te wijten aan het nog niet goed gemengd zijn van de lucht in het eindstuk van de Lindvall-does. De ammoniak vervluchtigt uit de bakken die gevuld zijn met de oplossing en die in het onderste deel van de Lindvall-does staan. Hierdoor is de ammoniakconcentratie in het onderste deel hoger dan in het bovenste deel. Na het passeren van enkele bochten in de buis en een meetventilator is wel volledige menging opgetreden. Voor de juiste bepaling van de emissie moet de concentratie op een plaats worden gemeten waar de afgezogen lucht homogeen gemengd is.

4.2 Roosteremissie na bevuilding met de mengselmethode

De in figuur 2 waar te nemen aanlooptijd is toe te schrijven aan de tijd die nodig is voor de omzetting van ureum naar ammoniak. De afname in de emissie wordt veroorzaakt door het uitgeput raken van de laag mest op het rooster.

In deze figuur is duidelijk te zien dat de modelsimulatie een te lage en ook -in de tijd- te late emissiepiek geeft. Dit berekende emissiegedrag lijkt op de gemeten ammoniakemissie vanuit een mestlaag aangebracht op een schoon roosteroppervlak van een nieuw rooster. Herhaalt men de behandeling elke dag dan blijkt dat het emissiemaximum toeneemt en dat de tijd tussen het aanbrengen van het mengsel en het optreden van het maximum steeds korter wordt. Na circa 7 dagen wordt een stabiele situatie bereikt en verandert het emissieverloop, zoals dat optreedt na het aanbrengen van een mestlaag, niet meer. De curve in figuur 2 die het gemeten ammoniakemissieverloop representeert is dan ook een weergave van de emissie zoals deze gemeten is nadat de situatie stabiel is geworden. In tabel 2 is te zien dat de monsters van het rooster dat enige tijd in de simulator is gebruikt, een hogere urease-activiteit hebben dan het urine-faecesmengsel. Voor de vergelijking is uitgegaan van de activiteiten uitgedrukt per gram droge stof, waarbij het mengsel een drogestofgehalte had van 75 g.kg⁻¹. De activiteit van het roostermonster is dus 1,8 keer groter dan die van het mengsel. In de aanpassing in figuur 2 is een ongeveer 7,5 x grotere activiteit dan de activiteit van het mengsel gebruikt. Bij de monsternamen vanaf het roosteroppervlak is er blijkbaar materiaal achtergebleven dat het grootste deel van de enzymactiviteit bezit. Vermoedelijk bestaat dit uit micro-organismen die zich aan het oppervlak hebben gehecht.

Men kan zich afvragen of de overeenkomst tussen de modelberekening en de emissiemeting ook te bereiken is door het aanpassen van andere grootheden in het model. Als bij de start van de behandeling een schoon rooster wordt gebruikt, neemt elke dag de emissie, zoals die gemeten wordt na het aanbrengen van een nieuwe laag, toe. Alle omstandigheden, behalve uiteraard de voorgeschiedenis van het rooster, blijven hierbij

gelijk. Het is zeer aannemelijk dat de voorgeschiedenis van het rooster invloed heeft op de snelheid waarmee het ureum afgebroken wordt. Om deze reden is het voor de hand liggend om in het model de ureumafbraaksnelheid te verhogen. Door het aanpassen van andere grootheden dan de ureumafbraaksnelheid in het model is het overigens niet mogelijk om de emissiemeting en de modelberekening met elkaar in overeenstemming te brengen.

4.3 Totale emissie na bevulling met de mengselmethode

In figuur 3 is duidelijk zichtbaar dat bij een gevulde kelder de emissie hoger ligt. De mest in de kelder blijkt een continue achtergrond in de ammoniakemissie te veroorzaken. Tijdens het over het rooster aanbrengen van het mengsel valt er natuurlijk ook een gedeelte door de roosterspleten op het oppervlak van de mest in de kelder waardoor de top laag ook enigszins wordt verversd. De cumulatieve emissies 20 uur na het opbrengen van het urine-faecesmengsel zijn in het geval van een lege en volle mestkelder respectievelijk 8,15 en 12,76 g ammoniak. De emissie van het rooster is dan 64% van de totale emissie bij een gevulde mestkelder.

Op grond van deze metingen kan geconcludeerd worden dat het aandeel van de emissie vanaf het rooster aan de totale emissie vanuit een stal aanzienlijk kan zijn. Een vast percentage is niet te geven voor dit aandeel, want grootheden als de frequentie waarmee en de mate waarin een rooster in een stal bevuild wordt, spelen hierbij ook een grote rol. In een stal zijn dan ook grote verschillen te verwachten in de emissie vanaf verschillende plaatsen van het vloeroppervlak.

4.4 Totale emissie na bevulling met de urine-sproeimethode

De vloeistoffilm die na het sproeien van de urine op het oppervlak blijft staan, heeft een hoger ureumgehalte dan het mengsel dat achterblijft op het oppervlak bij de mengselmethode. Dit leidt tot een hoge piek in de ammoniakemissie zoals in figuur 4 ook duidelijk zichtbaar is. Door de geringe dikte van de urinefilm daalt de emissie ook weer snel. Bij het laten indrogen van het roosteroppervlak en het achterwege laten van het insmeren met faeces, is er zelfs sprake van een lichte stijging van de piekemissie vanwege het feit dat de urine nu niet verdund wordt met het vocht van de faeces dat na het verwijderen van de faeceslaag op het rooster achterblijft.

De cumulatieve emissie is 20 uur na het sproeien van urine over het roosteroppervlak 8,33 g ammoniak. Het aandeel van de emissie vanaf het rooster aan de totale emissie moet nu op een andere manier berekend worden dan hierboven voor de mengselmethode uitgevoerd is. Gaan we er vanuit dat 20 uur na het sproeien van de urine er geen emissie meer optreedt vanaf het roosteroppervlak, dan kunnen we op dat tijdstip een kelderemissie vaststellen van $2,67 \text{ mg} \cdot \text{min}^{-1}$. Nemen we tevens aan dat deze kelderemissie over de gehele meetperiode constant is geweest, dan levert de vermindering van de gemeten emissiewaarden met $2,67 \text{ mg} \cdot \text{min}^{-1}$ de emissie vanaf het roosteroppervlak op. Dit leidt tot een cumulatieve emissie vanaf het rooster van 5,14 g ammoniak. Dit betekent dat 62% van de totale emissie afkomstig is vanaf het rooster. Hierbij moet opgemerkt worden dat, evenals in de vorige paragraaf, de frequentie waarmee en de mate waarin een oppervlak wordt bevuild, bepalend zijn voor de verhouding tussen de rooster- en de kelderemissie. Voor de mestbehandeling in stallen wordt gezocht naar systemen waarbij de hoeveelheid urine en faeces die op de stalvloer achterblijft zo minimaal mogelijk is. Dit heeft geleid tot de ontwikkeling van roosters en hellende stalvloeren met een speciale top laagafwerking.

Om het effect van deze vloerafwerkingen op de ammoniakemissie vanuit een stal goed te kunnen inschatten, kan in de simulator voor deze gevallen niet de mengselmethode worden gebruikt. Bij deze methode zou namelijk bij dichte vloeren al het aangebrachte materiaal op de vloer achterblijven en dit zou zeker tot een hoge emissie leiden. Bij de urine-sproeimethode zal een vergelijkbaar afspoeleffect optreden als bij een urinelozing door een koe op een hellende vloer. Alleen de laatste methode is dan ook bruikbaar om de invloed van vloervarianten op de ammoniakemissie te bestuderen.

4.5 Ammoniakemissie onder niet-standaard omstandigheden

Van te voren staat eigenlijk al vast dat enige afwijkingen zullen optreden tussen het resultaat van de experimenten en het gegeven model. Zo gaat de theorie uit van volledig homogene, goed geroerde oplossingen. In werkelijkheid zal bij hoge emissiesnelheden de diffusie in de urine-faeceslaag een snelheidsbeperkende factor vormen.

In figuur 5 is te zien dat bij de hoge temperatuur (19 °C) de mest op het roosteroppervlak eerder uitgeput raakt met als gevolg dat de emissie zelfs daalt tot onder de curve voor de ammoniakemissie bij 9,5 °C. Ook is in de figuur te zien dat de emissiecurven elkaar nog een keer kruisen. De verklaring hiervoor is dat, als ook bij 9,5 °C de mest op het rooster uitgeput raakt, de gemeten emissie in beide gevallen alleen afkomstig is uit de kelder en een mestkelder emitteert meer ammoniak bij 19 °C dan bij 9,5 °C. Ondanks de verwaarlozing van de kelderemissie in het model geeft de simulatie een veel hogere emissie. Blijkbaar is de aanname dat de mestlaag op het rooster te vergelijken is met een goed geroerde oplossing vooral bij hoge temperaturen niet correct.

De overdrachtssnelheidsconstante (k_{diff}) hangt af van de luchtsnelheid. In het bovenbeschreven model wordt een empirische relatie gebruikt waarin de luchtsnelheid voorkomt tot de macht 0,8. Voor de gebruikte snelheden betekent dit dat de piekemissie bij de hoge luchtsnelheid 1,4 keer groter is dan bij de lage luchtsnelheid. De gevonden verhouding bedraagt 1,2:1. Blijkbaar zijn ook andere processen zoals bijvoorbeeld de diffusie in de mestlaag op het rooster en de diffusie van de ammoniak uit de kelder snelheidsbepalend. Deze worden door de luchtsnelheid boven het roosteroppervlak niet beïnvloed. In figuur 7 valt op dat de laagste concentratie een beeld geeft dat nogal afwijkt van de twee andere concentraties. De oorzaak hiervan is waarschijnlijk dat tengevolge van de lage concentratie ook de pH gemiddeld lager is tijdens het emissieproces. Daarnaast is het mogelijk dat de roosteractiviteit iets is gedaald door het lagere ureumgehalte in de urine. Ondanks deze afwijking kan geconstateerd worden dat de ammoniakemissie globaal rechtvaardig is met de ureumconcentratie, zoals door de theorie ook voorspeld wordt.

5 Conclusies

De tot nu toe verkregen resultaten laten zien dat de opstelling geschikt is om het directe effect van een wijziging in de constructie van een rooster, of eventueel zelfs het gebruik van een andere type vloerdeel, op de ammoniakemissie te meten. Vooral het controleerbaar zijn van alle van belang zijnde factoren levert een groot voordeel op ten opzichte van emissiemetingen in echte dierhuisvestingen. Met behulp van dit modelsysteem is dan ook het effect van een mestbehandelingstechniek op de ammoniakemissie goed in te schatten, waarna een volgens de simulatormetingen veelbelovende techniek nader onderzocht kan worden in praktijksituaties.

Het waargenomen emissiegedrag na het aanbrengen van urine of een urine-faecesmengsel op een 'vuil' vloeroppervlak kan verklaard worden met een model waarin een snelle ureumafbraak, binnen 1-2 uur, wordt gevolgd door de ammoniakvervluchtiging die onder standaard omstandigheden relatief langzaam verloopt. Na circa 24 uur is de totale hoeveelheid gevormde ammoniak vervluchtigd. In het modelsysteem is het aandeel van de emissie vanaf het roosteroppervlak aan de totale emissie uit het systeem zeer aanzienlijk (circa 60%). Er zijn sterke aanwijzingen dat dit ook geldt voor praktijkstallen voor rundvee (Huis in 't Veld et al., 1992). Emissiebeperkende maatregelen waarbij deze roosteremissie wordt tegengegaan, zijn voor rundveestallen dan ook belangrijk als mogelijke richting waarin de oplossing voor het ammoniakemissieprobleem gezocht kan worden.

Uit de metingen blijkt duidelijk het belang van een 'vuil' oppervlak bij de omzetting van gemakkelijk afbreekbare stikstofverbindingen tot ammoniak. Toevoeging van verse faeces heeft bij een 'vuil' oppervlak dan ook geen snelheidsverhogend effect op de ureumafbraak. De oorzaken van de activiteitsstijging van het oppervlak verdienen in toekomstig onderzoek meer aandacht. Onderzocht zou kunnen worden of de in dit rapport genoemde vermoedelijke oorzaak, namelijk de stijging van de microbiële activiteit op het oppervlak, ook inderdaad als de belangrijkste oorzaak moet worden aangemerkt. Ook kan onderzocht worden of deze activiteitsstijging te voorkomen is.

De toevoeging van urine (hoeveelheid en frequentie) blijkt van zeer grote invloed te zijn op de ammoniakemissie. Mestbehandelingstechnieken waarbij het contact tussen urine en bevulde stalvloeren zo minimaal mogelijk wordt gehouden, zijn dan ook aan te bevelen als mogelijke emissiebeperkende maatregelen. Hiertoe moet de urine snel van de stalvloer afgevoerd worden naar een nagenoeg gesloten kelder.

Een temperatuurverhoging van 9,5 naar 19,0 °C leidt tot een toename van de emissiepiek met 50%. Deze toename is minder sterk dan op grond van het opgestelde model te verwachten is. Een toename van de luchtsnelheid over het roosteroppervlak van 1? naar 19 cm.s⁻¹ leidt tot een toename van de emissiepiek met 20%, ook dit is minder dan theoretisch uit het model afgeleid kan worden. Misschien zou het model verfijnd kunnen worden door ook de diffusie van ammoniak in de mestlaag zelf in de beschouwing mee te nemen. In ieder geval is het gewenst om de ammoniakemissie bij meer temperaturen en luchtsnelheden te meten en dit te vergelijken met de voorspellingen die uit het model voortkomen.

Het effect van de totale stikstofconcentratie ($N_{t,i}$) van de urine op de ammoniakemissie is sterk. Er is nagenoeg een lineair verband te constateren tussen de ammoniakemissie en de totale stikstofconcentratie. Op grond van deze constatering verdient het aanbeveling om te onderzoeken of door veranderingen in de voersamenstelling ook een reductie van de ammoniakemissie is te bewerkstelligen.

Summary

A model system to measure the influence of floor materials, manure treatment techniques and climate conditions on the ammonia emission from livestock buildings is described. Two procedures have been developed to spread the faeces and urine over the floor surface from which the ammonia emission was measured. The first procedure consists of homogeneously spreading 5 kg urine-faeces mixture (2:3) over the slatted floor. In the second procedure an amount of urine (2 kg) is sprinkled over a previously with faeces treated surface. The results show that a few hours (1 à 2 hours) after applying the urine-faeces mixture from dairy cattle on a 'dirty' floor surface a peak in the ammonia emission is recorded. Hereafter, a slow decrease starts till after one 24 hours' day all the produced ammonia has been volatilized. The treatment with only urine results in a qualitatively comparable emission behaviour. These results can be described by a model in which a rapid urea decomposition is followed by a relatively slow ammonia volatilization. The urea decomposition on a 'dirty' surface is faster than can be predicted on the basis of the urease activity of the used dairy cattle faeces. This can be ascribed to an increase in the microbiological activity on the floor.

An increase in the environment temperature from 9.5 to 19.0 °C causes an increase of the emission peak by 50%. The emission peak is about 20% higher when the air velocity over the slatted floor is varied from 12 to 19 cm.s⁻¹. The model predicts for both increases a stronger effect on the ammonia emission than has been observed.

Experiments with urine-faeces mixtures in which the amount of nitrogen in the used urine varies, show that the emission linearly depends on the nitrogen concentration of the urine.

Literatuur

- Anonymus, 1991. Richtlijn ammoniak en veehouderij 1991 (richtlijn in het kader van de hinderwet). Ministerie van Landbouw, Natuurbeheer en Visserij en Ministerie van Volkshuisvesting, Ruimtelijke Ordening en Milieubeheer, Den Haag, pp 36.
- Groot Koerkamp, P.W.G., N. Verdoes, G.J. Monteny en T. de Haan, 1990. Naar stallen met beperkte ammoniak-uitstoot; Bronnen, processen en factoren, deel 1, Stuurgroep emissie-arme huisvestingssystemen, DLO Wageningen, pp 83.
- Hashimoto, A.G. en D.C. Ludington, 1971. Ammonia desorption from concentrated chicken manure slurries. In: *Livestock Waste Management and Pollution Abatement*, ASAE, St. Joseph, MI 49085, p. 117-121.
- Haslam, R.T., R.L. Hershey en R.H. Keen, 1924. Effect of gas velocity and temperature on rate of absorption. *Industries and Engineering Chemistry* 16, p. 1224-1231.
- Heij, G.J. en T. Schneider, 1991. Dutch Priority Programme on Acidification, Final Report Second Phase Dutch Priority Programme on Acidification, RIVM no 200-09, pp 24.
- Huis in 't Veld, J.W.H., P.P. Kant, en W. Kroodsmas, 1992. Ammoniakemissie van vervuilde oppervlakken in ligboxenstallen. IMAG rapport, in press, Wageningen.
- Mobley, H.L.T. en R.P. Hausinger, 1989. Microbial ureases: Significance, regulation and molecular characterization. *Microbiological Reviews*, 53(1), p 85-108.
- Muck, R.E. en T.S. Steenhuis, 1981. Nitrogen losses in free stall dairy barns. *Livestock Waste: A Renewable Resource*, ASAE, p. 406-409.
- Muck, R.E. en T.S. Steenhuis, 1982. Nitrogen losses from manure storages. *Agricultural Wastes* 4, p. 41-54.
- Muck, R.E. en T.S. Steenhuis, 1983. Losses of manurial nitrogen in free-stall barns. *Agricultural Wastes* 7, p. 65-79.
- Oosthoek, J., 1989. Mogelijkheden voor rundveebedrijven. In: *Perspectieven voor de aanpak van de mest- en ammoniakproblematiek op bedrijfsniveau. Financieringsoverleg mest- en ammoniakonderzoek, themadag mestbehandeling op de boerderij*, Ede, p. 61-74.
- Scholtens, R., 1990. Ammoniakemissionsmessungen in zwangsbelüfteten Ställen. In: *Ammoniak in der Umwelt, Proceedings Symposium, Braunschweig, KBTL, Darmstadt, beitrags-Nr. 20*, pp 9.
- Westerterp, K.R., W.P.M. van Swaaij en A.A.C.M. Beenackers, 1987. *Chemical reactor design and operation*. John Wiley & Sons, Student edition, New York, p. 382-383.