

Gaseous emissions from biogas-digestate management and from fertilized soils: A study with special reference to nitrous oxide determination by stable isotope and isotopomer techniques

MSc Jan Reent Köster

1. Berichterstatter: Prof. Dr. K.H. Mühling

Biogasproduktion aus Energiepflanzen und organischen Abfällen zur Stromerzeugung wird in verschiedenen europäischen Ländern gefördert, um Emissionen von Treibhausgasen (THGs) zu reduzieren, und somit die globale Erwärmung und den Klimawandel zu verlangsamen. Bei der Biogaserzeugung anfallende Gärreste werden als Wirtschaftsdünger auf landwirtschaftlichen Flächen ausgebracht. Jedoch können bei der Gärrestlagerung vor der Feldausbringung erhebliche THG- (v.a. Methan – CH_4 und Lachgas – N_2O) sowie Ammoniak-Emissionen (NH_3) auftreten, wenn die entsprechenden Lagerstätten nicht luftdicht abgedeckt sind. Das Ausmaß dieser Emissionen ist kaum bekannt, jedoch wichtig für die ökologische Bewertung von Biogas-Strom. Für Emissionsmessungen an offenen Gärrestlagunen wurde daher die Open-Path FTIR-Methodik in Kombination mit einem mikrometeorologischen Transportmodell als sensitives nicht-invasives Fernmessverfahren validiert. In sechs z.T. mehrtägigen Messkampagnen wurden die Spurengasemissionen aus zwei Gärrestlagunen ermittelt, welche von CH_4 und NH_3 dominiert wurden und deren Ausmaß die Klimabilanz von Biogas-Strom der untersuchten Anlagen deutlich verschlechterte.

Auch während der Feldausbringung von Gärresten können erhebliche NH_3 -Emissionen auftreten. Bei der Ausbringung im Winter werden diese Emissionen zumeist als gering eingeschätzt. Jedoch konnte hier gezeigt werden, dass auch bei kalter Witterung hohe NH_3 -Emissionen auftreten können, vor allem wenn bei gefrorenem Boden die Infiltration der Gärreste in den Boden eingeschränkt ist.

N_2O als besonders wirksames Treibhausgas wird vor allem durch biochemische Prozesse in Böden gebildet, wobei organische Düngung z.B. mit Gärresten die N_2O -Freisetzung beträchtlich erhöhen kann. In einem Bodeninkubationsversuch wurde die Produktion von N_2O als auch von molekularem N_2 nach Gärrest- und Gülledüngung untersucht. Dabei wurden geringere N_2O - und N_2 -Emissionen nach Gärrestbehandlung beobachtet, was auf den durch den Gärprozess reduzierten Kohlenstoffanteil der Gärreste zurückgeführt wurde. Die Abschätzung der N_2O -Beiträge verschiedener Bodenprozesse ist von großer Bedeutung für das Prozessverständnis und daher essentiell für die Entwicklung von N_2O -Minderungsstrategien. Die Bestimmung der intramolekularen ^{15}N -Verteilung im asymmetrischen N_2O -Molekül (die sogenannte ‚site preference‘, SP) ermöglicht gewisse Rückschlüsse über die involvierten Ursprungsprozesse und wies hier auf die überwiegende N_2O -Bildung durch Denitrifikation hin.

Die Isotopenfraktionierungsfaktoren während der N_2O -Produktion und -Reduktion durch Denitrifikation stellen noch einen Unsicherheitsfaktor bei der Nutzung natürlicher Isotopenverhältnisse dar. Daher wurden diese Fraktionierungsfaktoren mit Hilfe verschiedener Bodeninkubationstechniken näher untersucht. Die aus diesen Versuchen resultierenden Fraktionierungsfaktoren stimmen zum Teil gut mit Literaturwerten überein, in einigen Fällen jedoch weichen diese Werte deutlich voneinander ab, was wahrscheinlich in versuchsbedingten Unterschieden gegenüber den vorangegangenen Studien begründet liegt.

Die Bestimmung von N_2O -Isotopomerverhältnissen erfolgt i.d.R. durch Isotopenverhältnis-Massenspektrometrie (IRMS), die jedoch nur einen relativ geringen Probendurchsatz erlaubt und keine Echtzeit-Analysen ermöglicht. Daher wurde anhand eines Bodeninkubationsversuchs ein neuartiger Laserspektroskopischer Messansatz zur positionsspezifischen ^{15}N -Analyse von N_2O getestet, mit welchem die N_2O SP-Werte in höchster zeitlicher Auflösung kontinuierlich über mehrere Tage bestimmt werden konnten. Die Ergebnisse stimmten gut mit IRMS-Vergleichsmessungen überein, wodurch sich der genutzte Laser-basierte Messansatz als vielversprechende Technik für N_2O -Isotopenanalysen in Bodenstudien herausstellte.