

Série Émissions provenant des animaux

Validation de la méthode des gaz traceurs pour mesurer les émissions en cas de ventilation naturelle

Sabine Schrade¹, Kerstin Zeyer², Margret Keck¹, Markus Keller¹, Michael Zähler¹ et Joachim Mohn²¹Agroscope, 8356 Ettenhausen, Suisse²Laboratoire fédéral d'essai des matériaux et de recherche Empa, 8600 Dübendorf, Suisse

Renseignements: Sabine Schrade, e-mail: sabine.schrade@agroscope.admin.ch



Dans l'étable expérimentale sur les émissions de Tänikon, il a été démontré que les deux gaz traceurs étudiés se comportaient de la même manière. Cela permet d'évaluer les mesures de réduction des émissions d'ammoniac et de gaz à effet de serre. (Photo: Gabriela Brändle, Agroscope)

Introduction

L'agriculture, en particulier l'élevage de vaches laitières, est responsable d'une grande partie des émissions d'ammoniac (NH_3) et de gaz à effet de serre (GES) en Suisse. Conformément aux objectifs environnementaux pour l'agriculture (OFEV et OFAG 2008), les émissions de NH_3 doivent être réduites d'environ 40 % sur l'ensemble du territoire. En outre, les émissions de gaz ayant un impact

sur le climat provenant de l'agriculture suisse doivent être réduites d'un tiers d'ici 2050, conformément à la stratégie Climat pour l'agriculture (OFAG 2011). Pour atteindre ces objectifs, les mesures de réduction les plus prometteuses pour les vaches laitières doivent être systématiquement examinées, évaluées et finalement mises en œuvre à l'échelle de la pratique.

La méthode des gaz traceurs permet de déterminer les émissions dans les étables à ventilation naturelle ainsi que les émissions provenant de sources diffuses telles que les aires d'exercice extérieures ou les stocks d'engrais de ferme. Un gaz traceur est libéré dans la zone de la source émettrice. Le flux d'air mélange l'air ambiant et le gaz traceur. Comme le gaz traceur se comporte comme le gaz émis (NH_3 , GES), il reproduit la propagation et la dilution de ce dernier. Le gaz traceur le plus couramment utilisé, l'hexafluorure de soufre (SF_6), est chimiquement inerte, non toxique et a une concentration ambiante basse et constante. Le pentafluorure de soufre trifluorométhyle (SF_5CF_3) présente des propriétés similaires et peut donc également être utilisé comme deuxième gaz traceur, par exemple pour déterminer deux sources distinctes (Schrade *et al.* 2012).

Afin de déterminer de manière fiable le potentiel des mesures de réduction des émissions de NH_3 et de GES, Agroscope effectue à Tänikon des mesures comparatives en utilisant la méthode des gaz traceurs dans une étable divisée en deux compartiments - l'un pour les mesures de référence, l'autre pour les mesures de réduction (Mohn *et al.* 2018). L'objectif de cette étude était de vérifier si les deux gaz traceurs SF_6 et SF_5CF_3 se comportaient de la même manière et s'ils convenaient à la fois aux sources ponctuelles et aux sources diffuses. L'étude avait également pour but de quantifier le déplacement des gaz entre les deux compartiments de l'étable.

Matériel et méthodes

Étable expérimentale sur les émissions

L'étable expérimentale sur les émissions d'Agroscope sur le site de Tänikon a été spécialement conçue pour les mesures comparatives d'émissions. L'étable se compose de deux compartiments séparés avec chacun trois rangées de logettes et des matelas de paille pour vingt vaches, ainsi que d'une zone intermédiaire pour la traite, l'équipement technique, le bureau et les analyses (fig. 1). Sur le grand côté, les façades sont conçues de manière flexible avec des rideaux modulables (stores roulants). Les deux compartiments d'étable séparés dans l'espace permettent d'avoir des conditions d'essai comparables (p. ex. en termes de climat) à l'échelle pratique (Schrade *et al.* 2015).

Dosage des gaz traceurs

Deux gaz traceurs différents SF_6 et SF_5CF_3 sont utilisés dans les deux compartiments de l'étable afin de détecter tout déplacement entre ces compartiments. Les gaz traceurs sont libérés par un système de conduits composés

Résumé

La méthode Tracer-Ratio permet de quantifier, à l'aide de gaz traceurs, les émissions de gaz cibles dans les étables à ventilation naturelle. L'Empa et Agroscope ont développé une méthode avec deux gaz traceurs afin de réaliser des mesures comparatives dans une étable expérimentale divisée en deux compartiments. Les gaz traceurs hexafluorure de soufre (SF_6) et pentafluorure de soufre trifluorométhyle (SF_5CF_3) ont été libérés en continu à proximité du sol par l'intermédiaire d'un système de conduites à capillaires critiques. Ceux-ci représentaient donc les sources d'émission. Les échantillons ont été prélevés à différents endroits par des conduits collecteurs d'air et des capillaires critiques. Les gaz traceurs et les gaz cibles ont ensuite été analysés et les émissions calculées. Les résultats de l'étude montrent que les deux gaz traceurs se comportent de manière équivalente. Le principe utilisé pour doser et prélever les échantillons permet de déterminer les émissions provenant de sources diffuses et de sources ponctuelles. De plus, l'utilisation de deux gaz traceurs différents permet de mettre en évidence et de quantifier tout déplacement de gaz entre les deux compartiments de l'étable. Ainsi, la méthode des gaz traceurs convient bien pour comparer et déterminer l'efficacité des différentes mesures de réduction de l'ammoniac et des gaz à effet de serre, méthane et dioxyde de carbone.

de capillaires en acier (ID $30\mu\text{m}$). Ceux-ci sont montés à 10–15 cm au-dessus des surfaces de circulation et représentent donc les sources émettrices. Selon l'essai, l'addition de gaz n'a lieu que dans l'étable (18 capillaires) ou également dans l'aire d'exercice extérieure (cinq capillaires supplémentaires). Les conduits et capillaires sont protégés des animaux et des souillures par des profilés métalliques. Des régulateurs de débit massique permettent d'obtenir un débit constant de gaz traceurs dilués (2000 ppm SF_6 ou SF_5CF_3 dans l'air de synthèse). Les impuretés mineures de SF_6 dans le gaz traceur SF_5CF_3 (1 % de SF_6 dans SF_5CF_3) sont prises en compte dans le traitement des données.

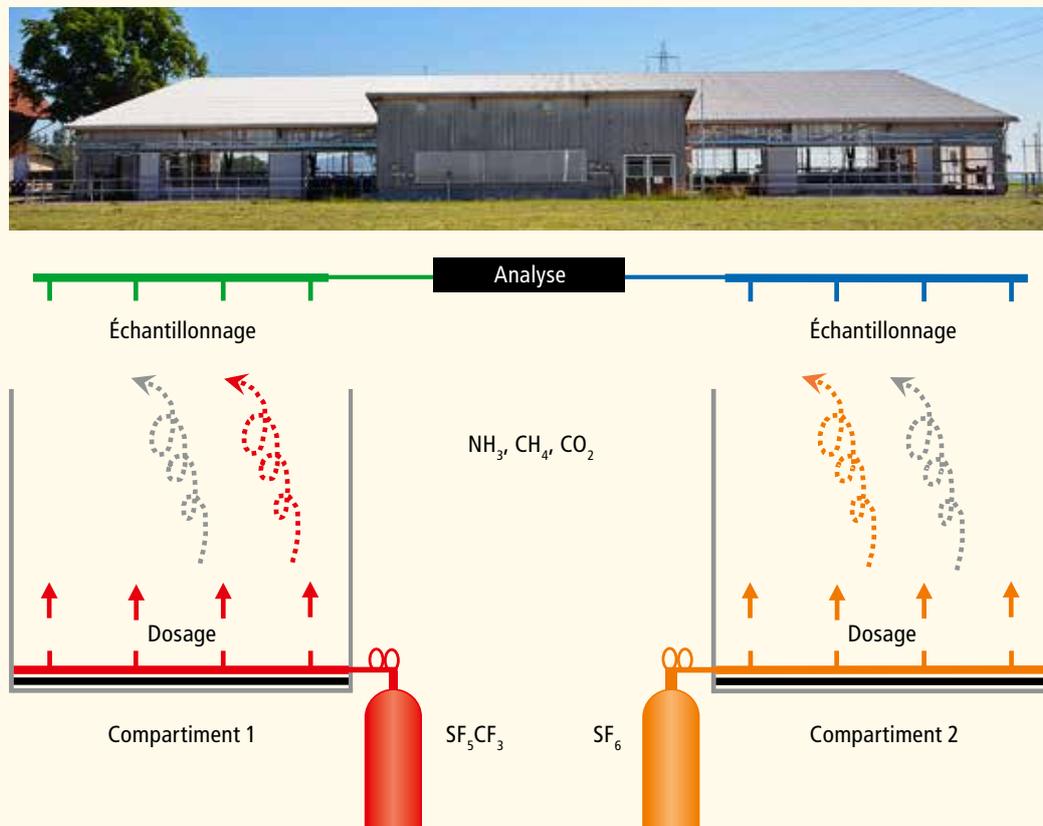


Figure 1 | Dispositif d'essai dans l'étable expérimentale sur les émissions sur le site Agroscope de Tänikon (TG). L'étable se compose de deux compartiments séparés pour vingt vaches chacun et d'une zone intermédiaire pour la traite, l'équipement technique, le bureau et l'analyse. Les gaz traceurs pentafluorure de soufre trifluorométhyle (SF_5CF_3) et hexafluorure de soufre (SF_6) sont ajoutés dans chaque compartiment de l'étable. Les gaz traceurs reflètent le comportement de l'ammoniac (NH_3), du méthane (CH_4) et du dioxyde de carbone (CO_2).

Prélèvement

Les échantillons de gaz sont prélevés dans le compartiment le plus vaste de l'étable par des tubes en téflon (AD 8 mm) avec des capillaires en verre (ID $250\ \mu\text{m}$) sous forme d'échantillon d'air. Comme pour le dosage de gaz traceur, le prélèvement peut se faire uniquement dans l'étable (24 capillaires) ou également dans l'aire d'exercice extérieure (6 capillaires). Les capillaires sont protégés des souillures par des filtres en Téflon (épaisseur $5,0\ \mu\text{m}$, diamètre 37 mm). Un prélèvement supplémentaire de gaz est effectué dans la zone intermédiaire ainsi qu'à un point de mesure d'arrière-plan situé à 30 m dans le prolongement de l'axe de l'étable. Les échantillons de gaz provenant des différentes zones de mesure sont aspirés en continu dans des conduits séparés par quatre pompes à membrane revêtues de téflon et dirigés vers des vases d'expansion. Le débit de gaz est d'environ 10 l/min pour le prélèvement dans les compartiments de l'étable et d'environ 2,5 l/min pour le prélève-

ment dans la zone intermédiaire et au point de mesure d'arrière-plan. Un commutateur des points de mesure permet de tester un vase d'expansion ou une plage de mesure pendant dix minutes, c'est-à-dire de diriger les prélèvements vers les appareils d'analyse.

Analyse

Les appareils de mesure sont placés dans une remorque de mesure climatisée dans la zone intermédiaire de l'étable. Les concentrations de SF_6 et SF_5CF_3 sont déterminées par un chromatographe en phase gazeuse avec détecteur à capture d'électrons dont la limite de détection est de 2 ppt (GC-ECD, 7890A, Agilent Technologies AG, Bâle, Suisse). L'analyse des concentrations de NH_3 , de méthane (CH_4) et de dioxyde de carbone (CO_2) est effectuée à l'aide de deux spectromètres Cavaty Ring Down (NH_3 : G2103, CH_4 et CO_2 : G2301, Picarro Inc., Santa Clara, USA). Les concentrations de CH_4 et de CO_2 dans l'étable sont corrigées en fonction de la variation de la concentration

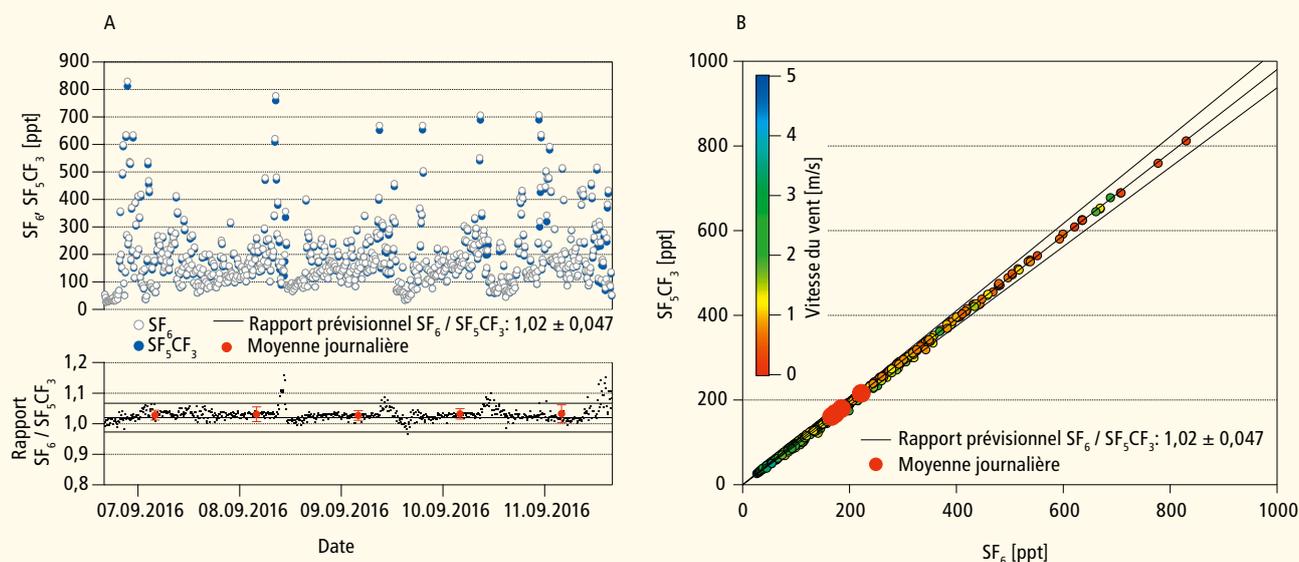


Figure 2 | Les résultats de la variante d'essai avec ajout simultané des deux gaz traceurs dans le même système de dosage montrent l'équivalence du SF₆ et du SF₅CF₃. Le rapport de dilution dépend clairement de la vitesse du vent (Mohn *et al.* 2018).

à l'arrière-plan. Pour SF₆ (8,04 ppt; valeur mesurée sur 24 h avant le début du dosage) et pour SF₅CF₃ (0,15 ppt; valeur tirée de la littérature selon Sturges *et al.* 2012), une correction constante est effectuée. Pour NH₃, une valeur recueillie pendant quatre jours avec des capteurs passifs à environ 100 m au nord-ouest de l'étable est utilisée pour la correction d'arrière-plan.

D'autres détails et spécifications relatifs au dosage, au prélèvement et à l'analyse sont décrits dans Mohn *et al.* (2018).

Calcul des émissions

Le débit massique de la substance cible (\dot{m}_{Cible}) est calculé à partir du rapport de concentration de la substance cible (c_{Cible}) et du gaz traceur ($c_{Traceur}$) et du débit massique ajouté du gaz traceur ($\dot{m}_{Traceur}$):

$$\dot{m}_{Cible} = \frac{\dot{m}_{Traceur} \times c_{Cible}}{c_{Traceur}} \quad (1)$$

Données relatives au vent

Les données relatives au vent sont mesurées à 60 m au sud-ouest de l'étable à une hauteur de 10 m avec un anémomètre à ultrasons 3D (USA-1-Scientific, METEK, Elmshorn, Allemagne ou anémomètre à ultrasons 3D, Adolf Thies GmbH & Co. KG, Göttingen, Allemagne). De plus, la vitesse et la direction du vent sont chacune mesurées à un point de mesure au milieu des deux compartiments de l'étable ainsi qu'au bord de l'aire d'exercice extérieure, à une hauteur de 2,5 m, à l'aide d'anémomètres à ultrasons 3D.

Tests de validation

L'applicabilité de la méthode des gaz traceurs est basée sur une série d'hypothèses qui ont été testées dans l'étable expérimentale sur les émissions dans le cadre de différents essais avec diverses expériences:

- **Les deux gaz traceurs SF₆ et SF₅CF₃ se comportent de manière équivalente:** Dans un compartiment de l'étable, les deux gaz traceurs ont été ajoutés ensemble en continu via le système de dosage (150 ml/min SF₆; 150 ml/min SF₅CF₃, 18 capillaires critiques). Cet essai a été réalisé pendant cinq jours en présence des animaux.
- **La méthode des gaz traceurs permet de quantifier les émissions provenant de sources diffuses dans différentes conditions de ventilation:** Dans un compartiment d'étable vide et nettoyé (sans vaches), du SF₆ a été ajouté comme gaz traceur via le système de dosage fixe (100 ml/min, 18 capillaires critiques). La source diffuse a été simulée à l'aide d'un deuxième système de dosage indépendant dans le même compartiment de l'étable, avec cette fois du SF₅CF₃ (100 ml/min, 18 capillaires critiques) comme substance cible. Pour étudier différentes conditions de ventilation, les rideaux ont été fermés pendant quatre jours et ouverts pendant trois jours.
- **La méthode des gaz traceurs convient pour déterminer les sources ponctuelles d'émissions:** Comme pour l'essai ci-dessus, le SF₆ a été utilisé comme gaz traceur

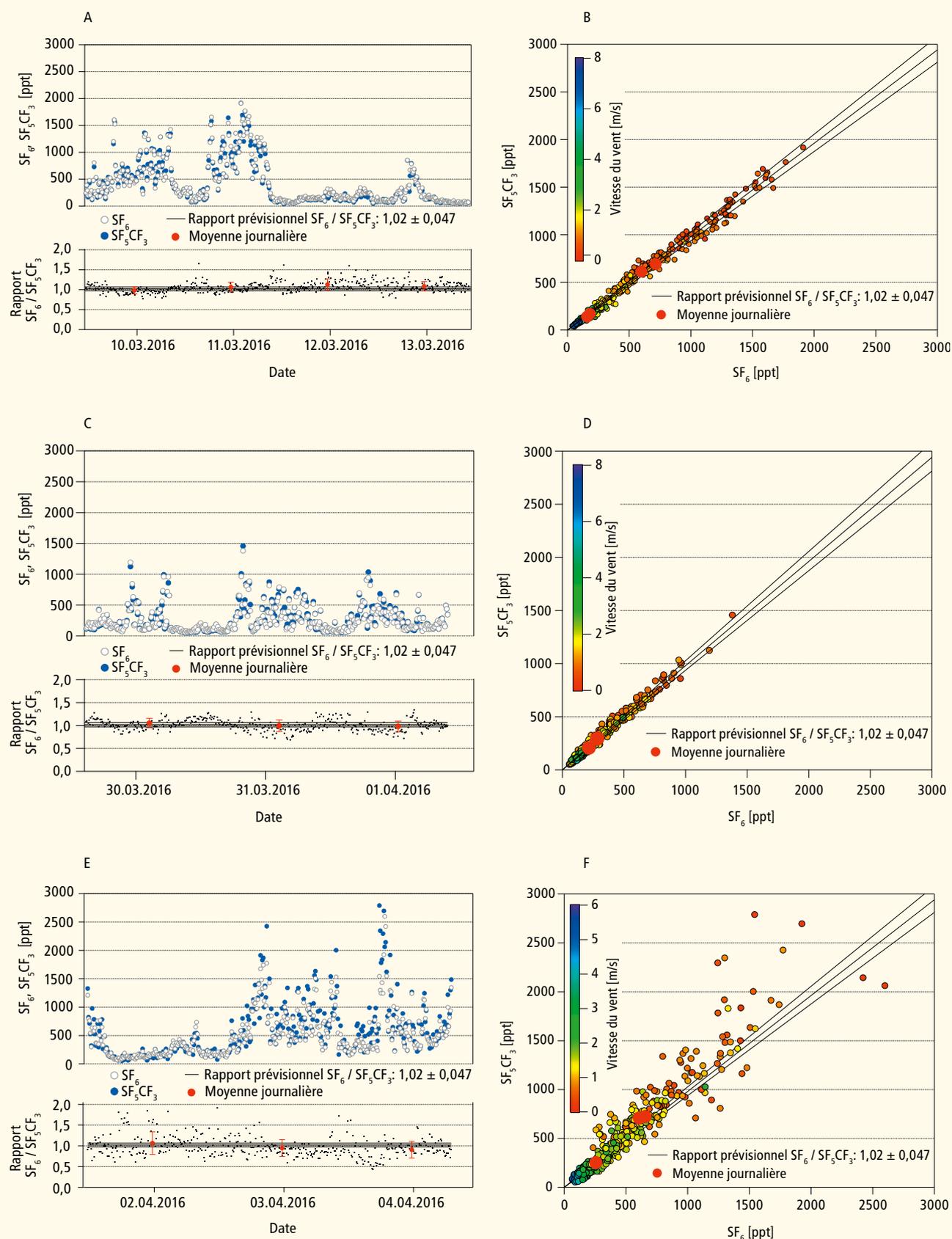


Figure 3 | Les résultats des variantes d'essai pour les sources diffuses avec rideaux fermés (A, B) et ouverts (C, D) ainsi que pour les sources ponctuelles avec rideaux fermés (E, F) montrent une bonne concordance entre les rapports SF₆/SF₅CF₃ et les valeurs prévisionnelles. Cependant, la variation des valeurs isolées sur 10 minutes est nettement plus importante que celle des moyennes journalières (Mohr *et al.* 2018).

et ajouté par l'intermédiaire du système de conduites fixe (100 ml/min, 18 capillaires critiques). Du SF₅CF₃ a été ajouté comme source ponctuelle depuis un point situé au milieu de l'étable (100 ml/min, cinq capillaires critiques). L'expérience a été réalisée durant trois jours consécutifs avec les rideaux fermés.

- **L'utilisation des deux gaz traceurs permet de détecter un éventuel déplacement de gaz entre les deux compartiments de l'étable séparés dans l'espace:** Cet essai a été effectué dans les deux compartiments de l'étable en fonctionnement normal (avec des vaches). Pour ce faire, l'un des deux gaz traceurs SF₆ et SF₅CF₃ a été ajouté pendant quatre jours dans chacun des deux compartiments de l'étable avec le même débit (100 ml/min). La concentration du gaz traceur ajouté est mesurée dans l'autre compartiment de l'étable et fournit des indications sur un éventuel déplacement de gaz entre les deux compartiments de l'étable.

la variation de la vitesse du vent, qui entraîne une dilution plus importante des gaz. Le rapport de concentration SF₆/SF₅CF₃ ne présente qu'une légère variabilité ($1,03 \pm 0,02$; sauf indication contraire, incertitude toujours ± 1 SD [Standard Deviation]) même en considérant les valeurs isolées sur 10 minutes, la variation des moyennes journalières est nettement plus faible ($1,03 \pm 0,002$) (fig. 2B). La plus grande variabilité des valeurs isolées sur 10 minutes peut être due à des fluctuations à court terme des débits de dosage du gaz traceur ou à des variations dans la méthode analytique utilisée pour déterminer les gaz traceurs. Le rapport de concentration SF₆/SF₅CF₃ correspond très bien à la valeur prévisionnelle calculée à partir des quantités de gaz traceur ajoutées ($1,02 \pm 0,05$). Les écarts entre la valeur mesurée et la valeur prévisionnelle sont nettement inférieurs aux incertitudes estimées. Cette approche expérimentale montre donc que les deux gaz traceurs SF₆ et SF₅CF₃ se comportent de manière équivalente.

Résultats et discussion

Équivalence des deux gaz traceurs

Les concentrations de SF₆ et de SF₅CF₃ évoluent en parallèle (fig. 2A). Les variations de concentration des gaz traceurs au cours de la journée peuvent s'expliquer par

Adéquation pour les sources diffuses et les sources ponctuelles

Si le deuxième gaz traceur (SF₅CF₃) est ajouté via un système de conduits séparé, pour simuler une source diffuse ou une source ponctuelle, on observe une plus grande variation du rapport de concentration SF₆/SF₅CF₃

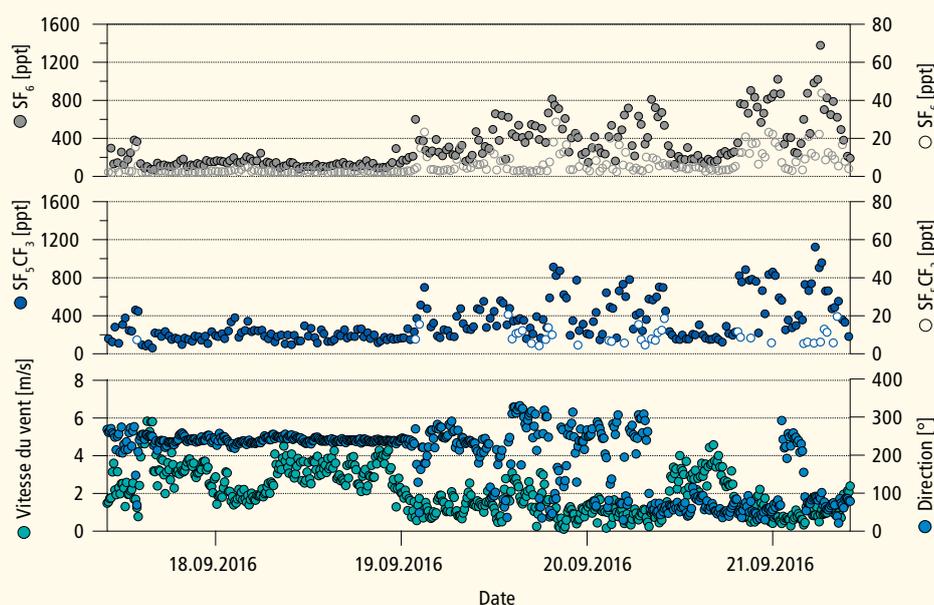


Figure 4 | Résultats relatifs au déplacement de gaz: les concentrations de gaz traceurs dans le compartiment d'étable où le gaz est libéré (symboles pleins) et dans l'autre compartiment de l'étable (symboles vides) n'indiquent qu'un léger déplacement de gaz lorsque les vitesses du vent sont limitées (Mohn *et al.* 2018).

(fig. 3) par rapport à l'addition commune des deux gaz traceurs via un système de dosage (fig. 2). Toutefois, les moyennes journalières du rapport de concentration SF₆/SF₅CF₃ correspondent aux valeurs prévisionnelles (1,02 ± 0,05) aussi bien pour les deux sources diffuses avec rideaux fermés (1,06 ± 0,05, fig. 3A-B) ou ouverts (1,01 ± 0,03, fig. 3C-D) que pour les sources ponctuelles (0,98 ± 0,07, fig. 3E-F) dans la plage d'incertitudes. Comme on pouvait s'y attendre, la variabilité des intervalles de 10 minutes est plus grande pour la source ponctuelle (0,24) que pour les variantes avec sources diffuses (rideaux fermés: 0,13; rideaux ouverts: 0,12). Cela peut être dû à un mélange moins bon des deux gaz avec des sources qui ne sont pas réparties uniformément dans l'espace.

Ces résultats correspondent cependant plus au scénario le plus pessimiste, car le NH₃ est émis par l'ensemble de la surface de circulation souillée et que le dosage du gaz traceur s'effectue de manière analogue dans l'espace dans les mesures comparatives des émissions. De même, le nombre de sources ponctuelles est nettement plus élevé dans l'exemple des vingt vaches qui libèrent du CH₄ et il est plus ou moins réparti sur l'ensemble du compartiment de l'étable. Par conséquent, ces variantes d'essai montrent que la méthode appliquée avec addition des gaz traceurs via un système de conduits avec capillaires critiques directement au niveau des sources émettrices et l'échantillon d'air à haute résolution spatiale à une hauteur de 2,5 m convient à la fois pour déterminer les émissions des sources diffuses dans des conditions de ventilation différentes et pour quantifier des sources ponctuelles. C'est ce que confirment les études de Mendes *et al.* (2015), qui ont constaté la présence d'un mélange homogène du gaz traceur SF₆ avec les deux substances cibles (CO₂, NH₃) à 2 m de hauteur au-dessus de l'aire où séjournent les animaux.

Déplacement de gaz entre les compartiments

L'un des avantages de la méthode des gaz traceurs utilisée dans l'étable expérimentale sur les émissions est que tout déplacement de gaz entre les compartiments de l'étable peut être identifié et quantifié grâce à l'utilisation de deux gaz traceurs différents. À des vitesses de vent supérieures à 2 m/s, des concentrations de gaz traceurs comprises entre 100 et 400 ppt ont été détectées dans un compartiment, tandis que dans l'autre compartiment de l'étable, les concentrations se situaient à la limite de détection ou en-dessous (fig. 4). À des vitesses de vent plus faibles, les concentrations de gaz traceurs ont augmenté à plus de 1000 ppt dans le compartiment où avait lieu le dosage et de 20 à 40 ppt dans l'autre compartiment en raison de la dilution plus faible. Ces

résultats permettent de conclure que le transfert de gaz entre les compartiments de l'étable est négligeable lorsque la vitesse du vent est élevée. Un déplacement de gaz peut être observé à des vitesses de vent plus basses, mais il est très faible en proportion.

Conclusions

La méthode utilisée avec les gaz traceurs SF₆ et SF₅CF₃ permet de déterminer de manière fiable des émissions dans une étable de vaches laitières à ventilation naturelle. Les hypothèses de travail ont été confirmées par les mesures de validation. Une expérience au cours de laquelle le SF₆ et le SF₅CF₃ ont été libérés par l'intermédiaire d'un système de conduits avec capillaires critiques a montré que l'évolution des deux gaz traceurs était parallèle dans la journée et que leur rapport de concentration était stable. Cela prouve que le SF₆ et le SF₅CF₃ se comportent de manière équivalente.

Les essais avec des sources diffuses et des sources ponctuelles ont montré que la méthode des gaz traceurs appliquée avec le système de dosage réticulaire à proximité du sol et l'échantillon d'air à haute résolution spatiale prélevé à une hauteur de 2,5 m convenait pour quantifier les émissions provenant de sources diffuses (p. ex. surfaces de circulation souillées) et de sources ponctuelles (p. ex. vaches). Dans des conditions de ventilation différentes, courantes dans les étables, les résultats des mesures correspondaient aux valeurs prévisionnelles.

Grâce à l'utilisation de deux gaz traceurs différents avec des mesures comparatives dans l'étable expérimentale sur les émissions, tout déplacement de gaz entre les deux compartiments distincts de l'étable peut être contrôlé et quantifié. Les essais de validation ont montré que le transfert des gaz était négligeable avec des vitesses de vent élevées > 2 m/s et très faible proportionnellement avec des vitesses de vent plus basses < 2 m/s. ■

Riassunto**Convalidazione del metodo Tracer-Ratio per misurazioni delle emissioni in caso ventilazione naturale**

Il metodo Tracer-Ratio serve alla quantificazione delle emissioni nelle stalle con ventilazione naturale. Empa e Agroscope hanno sviluppato il metodo Tracer-Ratio con due gas traccianti per effettuare misurazioni comparative nella stalla del test delle emissioni con due compartimenti di stalla diversi. I gas traccianti esafluoruro di zolfo (SF_6) e trifluorometil pentafluoruro di zolfo (SF_5CF_3) sono immessi continuamente a livello del suolo tramite un sistema di tubazioni con tubi capillari critici. Questi rappresentano quindi le fonti di emissione. Il prelievo di campioni avviene in vari punti tramite i collettori d'aria e capillari critici. Successivamente i gas traccianti e i gas bersaglio sono analizzati e le emissioni calcolate. I tentativi di convalidazione sistematici mostrano che i due gas traccianti si comportano in maniera equivalente. Il principio applicato per il dosaggio e il prelievo di campioni permette la rilevazione delle emissioni di fonti superficiali e di quelle puntuali. Inoltre, mediante i due diversi gas traccianti, si può dimostrare e quantificare un'eventuale trasmissione di gas tra i due compartimenti della stalla. In tal modo il metodo Tracer-Ratio si presta alla determinazione comparativa della riduzione delle emissioni delle misure contenitive.

Summary**Validation of the tracer ratio method for emission measurements in naturally ventilated housing**

The tracer ratio method serves to quantify emissions in naturally ventilated animal housing systems. Empa and Agroscope have developed a tracer ratio method with two tracer gases for comparative emission measurements in Agroscope's experimental dairy housing, with its two spatially separated compartments. In this method, the tracer gases sulphur hexafluoride (SF_6) and trifluoromethyl sulphur pentafluoride (SF_5CF_3) are continuously dosed near to the floors via a tube system with critical capillaries, thus representing the emission sources. Spatially distributed sampling is performed via air manifolds and critical capillaries. Tracer and target gases are then analysed and the emissions calculated. Systematic validation trials show that both tracer gases behave equivalently. The dosing and sampling scheme allows emissions to be determined for both areal and point sources. In addition, the two different tracer gases can be used to detect and quantify any possible gas transport between the two housing compartments. Consequently, the tracer ratio method is suitable for the comparative determination of the emission-reduction potential of abatement measures.

Key words: emission, tracer ratio method, experimental dairy housing.

Bibliographie

- Mendes L. B., Edouard N., Ogink N. W. M., van Dooren H. J. C., Tinôco I. d. F. F. & Mosquera J., 2015. Spatial variability of mixing ratios of ammonia and tracer gases in a naturally ventilated dairy cow barn. *Biosystems Engineering* **129**, 360–369.
- Mohn J., Zeyer K., Keck M., Keller M., Zähler M., Poteko J., Emmenegger L. & Schrade S., 2018. A dual tracer ratio method for comparative emission measurements in an experimental dairy housing. *Atmospheric Environment* **179**, 12–22.
- OFAG, 2011. Stratégie Climat pour l'agriculture - Protection du climat et adaptation au changement climatique pour une agriculture et une économie alimentaire suisses durables. Office fédéral de l'agriculture OFAG, Berne.
- OFEV & OFAG, 2008. Objectifs environnementaux pour l'agriculture. A partir de bases légales existantes. *Connaissances de l'environnement* **221**, Office fédéral de l'environnement OFEV et Office fédéral de l'agriculture OFAG, Berne.
- Schrade S., Zeyer K., Gygax L., Emmenegger L., Hartung E. & Keck M., 2012. Ammonia emissions and emission factors of naturally ventilated dairy housing with solid floors and an outdoor exercise area in Switzerland. *Atmospheric Environment* **47**, 183–194.
- Schrade S., Zähler M., Poteko J., Steiner B., Keck M., Sax M., Herzog D. & Schick M., 2015. Versuchsstall zur Entwicklung und Quantifizierung von Massnahmen zur Minderung von Emissionen. In: Bau, Technik und Umwelt in der landwirtschaftlichen Nutztierhaltung (Ed. Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft, Freising), p. 450–455.
- Sturges W. T., Oram D. E., Laube J. C., Reeves C. E., Newland M. J., Hogan C., Martinerie P., Witrant E., Brenninkmeijer C. A. M., Schuck T. J. & Fraser P. J., 2012. Emissions halted of the potent greenhouse gas SF_5CF_3 . *Atmospheric Chemistry and Physics* **12**, 3653–3658.