

GAEC&D+

**GRANULOMETRIE DES AEROSOLS DANS LES
EMISSIONS CANALISEES ET DIFFUSES INDUSTRIELLES,
ET CHIMIE ASSOCIEE**

**AEROSOL SIZE DISTRIBUTION AT INDUSTRIAL STACK AND FUGITIVE EMISSIONS,
AND ASSOCIATED CHEMICAL COMPOSITION**

Septembre 2016

N° de contrat : 1381C0046
Projet de recherche coordonné par : *EuroLorraine SAS*
Appel à projet de recherche : CORTEA, édition 2013

Coordination technique ADEME : FIANI Emmanuel – Direction\Service : ANGERS DPED SEET



SYNTHESE DE RECHERCHE

En partenariat avec :



REMERCIEMENTS

Aux membres du consortium de projet, membres du comité de pilotage de GAEC&D⁺, et/ou simples mais précieux facilitateurs.

A **Emmanuel Fiani**, notre correspondant technique et meilleur soutien à la Direction productions et énergies durables de l'ADEME,

A l'équipe EuroLorraine, toujours vaillante, **Serge Faiseur**, directeur technique, **Emmanuelle Vaucher-Robert**, chef du pôle caractérisation des impacts environnementaux et sanitaires, **Agnès Segondy**, expert ICPE,

et bien-sûr à **Pascal Claus**, tout à la fois membre du comité de direction d'EuroLorraine, dirigeant d'AgilePartner, conseiller avisé, ami fidèle et développeur acharné de l'IHM prototype toute auréolé d'une nuit blanche dans les fumées violettes.

ADEME. Hervé FISCHER - 2016. GAEC&D+ Granulométrie des aérosols dans les émissions canalisées et diffuses industrielles, et chimie associée – Synthèse. 10 pages + 1 page en anglais.

Toute représentation ou reproduction intégrale ou partielle faite sans le consentement de l'auteur ou de ses ayants droit ou ayants cause est illicite selon le Code de la propriété intellectuelle (art. L 122-4) et constitue une contrefaçon réprimée par le Code pénal. Seules sont autorisées (art. 122-5) les copies ou reproductions strictement réservées à l'usage privé de copiste et non destinées à une utilisation collective, ainsi que les analyses et courtes citations justifiées par le caractère critique, pédagogique ou d'information de l'œuvre à laquelle elles sont incorporées, sous réserve, toutefois, du respect des dispositions des articles L 122-10 à L 122-12 du même Code, relatives à la reproduction par reprographie.

Any representation or reproduction of the contents herein, in whole or in part, without the consent of the author(s) or their assignees or successors, is illicit under the French Intellectual Property Code (article L 122-4) and constitutes an infringement of copyright subject to penal sanctions. Authorised copying (article 122-5) is restricted to copies or reproductions for private use by the copier alone, excluding collective or group use, and to short citations and analyses integrated into works of a critical, pedagogical or informational nature, subject to compliance with the stipulations of articles L 122-10 – L 122-12 incl. of the Intellectual Property Code as regards reproduction by reprographic means.

TABLE DES MATIERES

1. Contexte et objectifs du projet GAEC&D⁺	2
2. LIVRABLE 1-1 : facteurs d'émissions canalisées et diffuses de l'aciérie et de la fonderie	3
3. LIVRABLE 1-2 : recommandations pour l'évaluation par modélisation de l'impact des rejets atmosphériques industriels sur la qualité de l'air	5
4. LIVRABLE 2 : avis sur la hiérarchie entre différentes technologies de filtration en termes de performance d'abattement des TSP et des PM	7
5. LIVRABLE 3 : démonstration de la validité de la mesure optique des concentrations massiques en PM aux rejets canalisés et diffus	9
Présentation sommaire du dispositif	9
Interprétation des données fournies par les compteurs de particules	9
Evaluation de la validité du dispositif de mesure en continu des PM et performance du prototype	10
Evolutions du prototype de mesure en continu des PM	11
SYNTHESIS	12

Figure n°1 : Aciérie – Bilan général des émissions totales de TSP et PM à l'aciérie

Figure n°2 : Fonderie – Bilan général des émissions totales de TSP et PM à la fonderie

Tableau n°1 : Aciérie – Bilan général des émissions totales de métaux à l'aciérie

Tableau n°2 : Fonderie – Bilan général des émissions totales de métaux à la fonderie

Tableau n°3 : Performance de filtration des TSP et PM par 5 dépoussiéreurs différents

Tableau n°4 : Grandeurs caractéristiques de la performance du dispositif de mesure optique pour la mesure des concentrations en masse de PM

1. Contexte et objectifs du projet GAEC&D⁺

Le volet air du deuxième Plan National Santé Environnement (PNSE2 2009-2013), matérialisé par l'action REISTA (action de Réduction des Emissions Industrielles des Substances Toxiques dans l'Air), est structuré autour de 2 axes stratégiques :

- 1- acquisition des connaissances relatives aux émissions des ICPE,
- 2- réduction des émissions de ces installations classées.

L'appel à Projets de R&D CORTEA « Connaissances, Réduction à la source et Traitement des Emissions dans l'Air » est le programme ADEME visant à contribuer à l'atteinte des objectifs du PNSE2.

Le projet GAEC&D⁺ lauréat de l'APR CORTEA a pris corps sur le constat suivant : en 2011 l'industrie manufacturière a été le 2^{ème} contributeur aux émissions de PM_{2,5}. Les industries sidérurgiques et métallurgiques contribuent significativement à ce bilan. En particulier, le secteur de la 2^{ème} fusion de l'acier et de l'aluminium, avec des facteurs d'émission de poussières totales (TSP) compris entre 8 et 25 kg/t, émet chaque année 1000 à 3000 tonnes de poussières totales dans l'environnement, sur un nombre restreint de sites (< 30 aciéries électriques, < 10 affineurs alu.). Ces poussières sont susceptibles de contenir des quantités importantes de poussières fines et inhalables (PM_{2,5} et PM₁₀), de métaux lourds (Cd, Hg, As, Pb, Cr, Cu, Ni, Zn), et éventuellement d'être accompagnées d'émissions de polluants issus de processus de combustion incomplète de type carbone-suie, PCDD/F et PCB, autant de polluants visés par CORTEA.

Ainsi le projet GAEC&D⁺ s'est donné **4 objectifs** :

- 1- **caractériser de nouveaux facteurs d'émissions canalisées et diffuses** de poussières, de métaux et de carbone-suie, différenciés en fonction de leur taille (PM₁, PM_{2,5}, PM₁₀ et TSP) aux rejets d'une aciérie et d'une affinerie d'aluminium. Compléter ces éléments d'inventaire par des mesures de PCDD/F, PCB et PeCB (tâche 1-1).
- 2- **préciser l'impact de l'amélioration de la connaissance du spectre physico-chimique des émissions sur la qualité de l'évaluation du risque sanitaire** induit pour les riverains de ces sources industrielles (tâche 1-2).
- 3- **évaluer la capacité des MTD** pour l'abattement des émissions à la source de ces deux secteurs industriels, **à réduire les flux de polluants particuliers à l'émission sur toute l'étendue de leur spectre physico-chimique**, et en particulier les PM_{2,5} (tâche 2).
- 4- **tester un dispositif métrologique simple et robuste capable de mesurer en temps réel les concentrations de PM_{2,5} et PM₁₀** émises dans l'environnement, et décrire les conditions de sa mise en œuvre industrielle pour une intégration dans l'autosurveillance des émissions (tâche 3).

Sur ces 4 points, GAEC&D⁺ a livré des **résultats** :

Livrable 1-1 : **synthèse des facteurs d'émissions canalisées et diffuses** de l'aciérie et de la fonderie (Cf. chapitre 2, page 3).

Livrable 1-2 : **recommandations pour l'évaluation par modélisation de l'impact des rejets atmosphériques industriels sur la qualité de l'air** (Cf. chapitre 3, page 5).

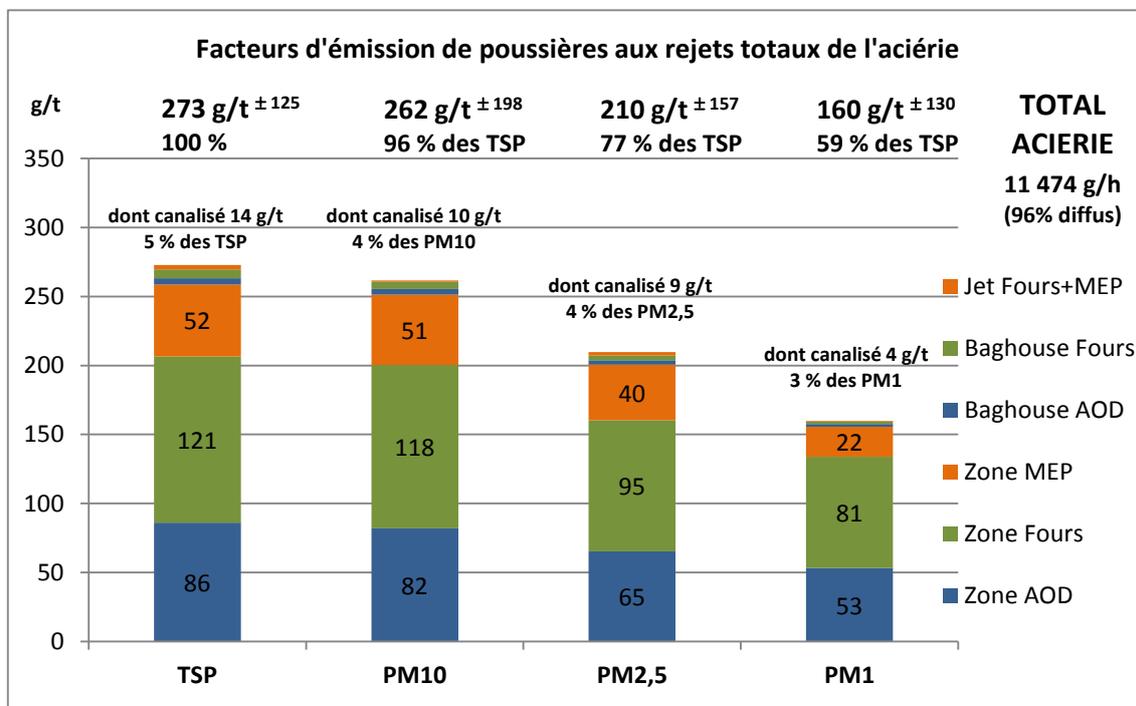
Livrable 2 : **avis sur la hiérarchie entre différentes technologies de filtration en termes de performance d'abattement des TSP, des PM et des ML** (Cf. chapitre 4 page 7).

Livrable 3 : **démonstration de la validité de la mesure optique des concentrations massiques en PM aux rejets canalisés et diffus**, au regard des méthodes de référence, et principales pistes de consolidation du **prototype de mesures** en vue de son exploitation industrielle (Cf. chapitre 5 page 9).

2. LIVRABLE 1-1 : facteurs d'émissions canalisées et diffuses de l'aciérie et de la fonderie

Les facteurs d'émission synthétiques de l'aciérie sont livrés aux figure n°1 et tableau n°1.

Figure n°1 : Aciérie – Bilan général des émissions totales de TSP et PM à l'aciérie



On observe que les rejets totaux de TSP de l'aciérie, qui totalisent 273 g/t émis à l'atmosphère majoritairement sous la forme de PM1, et à 96 % sous une taille inférieure à 10 µm (PM10), principalement du fait de l'activité des fours électriques de fusion et du convertisseur AOD, sont constitués de rejets diffus à 95 %.

Tableau n°1 : Aciérie – Bilan général des émissions totales de métaux à l'aciérie

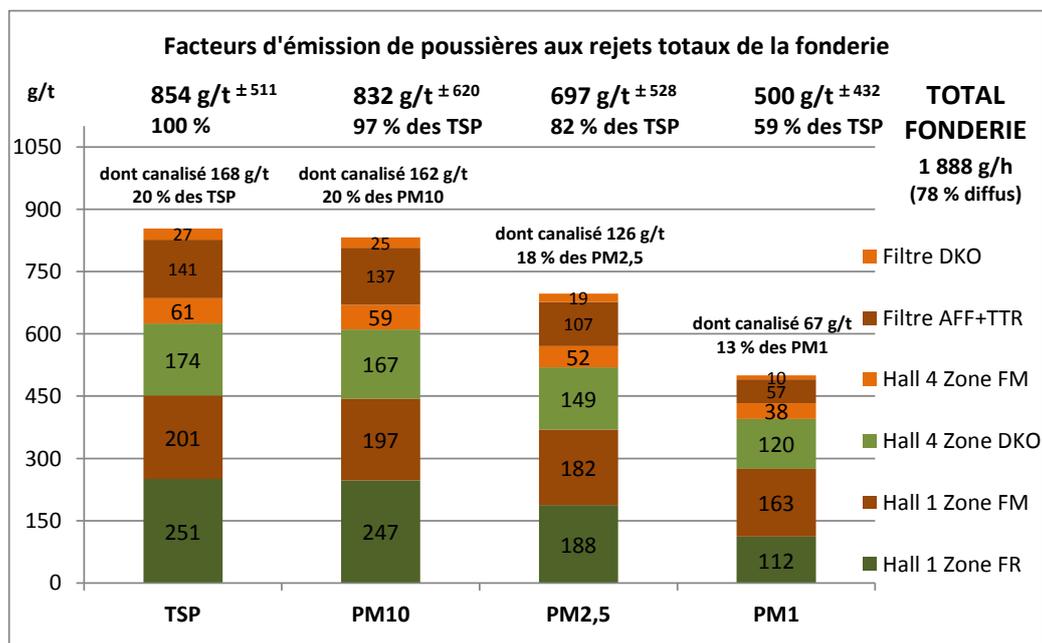
	Facteurs d'émission totaux métaux ACIERIE (g/t)			
	dans les TSP	dans les PM10	dans les PM2,5	dans les PM1
Cadmium	0,04	< 0,05	< 0,04	< 0,03
Mercuré	< 0,003	< 0,01	< 0,009	< 0,005
Arsenic	0,02	< 0,03	< 0,02	< 0,01
Plomb	3,14	3,16	2,96	2,48
Chrome	5,26	4,53	3,80	3,12
Cuivre	0,97	0,80	0,68	0,53
Manganèse	8,14	7,38	6,86	6,11
Nickel	1,54	1,43	1,21	0,97
Zinc	71,6	65,3	57,5	40,9
Carbone suie	5,13	97% diffus	5,13	97% diffus

On observe parmi les 9 métaux visés par GAEC&D⁺ :

- des rejets totaux de métaux dans les TSP très majoritairement composés de zinc,
- des rejets de manganèse, chrome et plomb compris entre 1 et 4 % des TSP,
- des rejets de nickel et de cuivre inférieurs à 1 %, de l'ordre d'1 g/t,
- des rejets de cadmium et d'arsenic très faibles et voisin d'1 g/h,
- l'absence de problématique mercure,
- des métaux majoritairement rejetés à l'atmosphère sous la forme de particules de moins de 1 µm (PM1), et associés à des PM10 à plus de 80 %.

Les facteurs d'émission synthétiques de la fonderie sont livrés aux figure n°2 et tableau n°2.

Figure n°2 : Fonderie – Bilan général des émissions totales de TSP et PM à la fonderie



On observe que les rejets totaux de TSP de la fonderie, qui totalisent 854 g/t émis à l'atmosphère majoritairement sous la forme de PM1, et à 97 % sous une taille inférieure à 10 µm (PM10), principalement du fait de l'activité des fours de fusion FR et de leurs fours de maintien FM, sont constitués de rejets diffus à 80 %.

Tableau n°2 : Fonderie – Bilan général des émissions totales de métaux à la fonderie

	Facteurs d'émission totaux de métaux FONDERIE (g/t)				
	dans les TSP	dans les PM10	dans les PM2,5	dans les PM1	
Cadmium	0,52	< 0,45	< 0,48	0,40	
Mercure	< 0,03	< 0,32	< 0,28	< 0,16	
Arsenic	< 0,02	< 0,05	< 0,04	< 0,03	
Plomb	1,14	< 0,91	< 0,96	0,79	
Chrome	0,51	< 0,27	< 0,28	< 0,23	
Cuivre	3,12	< 1,78	< 1,70	1,38	
Manganèse	1,49	< 0,85	0,78	0,61	
Nickel	0,44	< 0,37	< 0,38	< 0,35	
Zinc	27,1	20,3	21,7	17,8	
Carbone-suie	7,70	88% diffus	4,12	5,17	89% diffus
PCDD/F	9,63	µgITEQ/t	canalisés à 71%		
PCB-DL	3,80	µgITEQ/t	canalisés à 93%		
PCBi	1,38	mg/t	canalisés à 56%		
PeCB	23,5	mg/t	canalisés à 90%		

On observe parmi les 9 métaux visés par GAEC&D⁺ :

- des rejets totaux de métaux dans les TSP très majoritairement composés de zinc, pour un total de 27 g/t et moins de 4 % des TSP,
- des rejets de cuivre, manganèse et plomb compris entre 1 et 3 g/t,
- des rejets de cadmium, chrome et nickel voisins d'un demi g/t,
- l'absence de problématique mercure et arsenic,
- des métaux majoritairement rejetés à l'atmosphère sous forme de PM10, avec des rejets de cadmium, plomb et zinc plus fins que pour les autres métaux.

3. LIVRABLE 1-2 : recommandations pour l'évaluation par modélisation de l'impact des rejets atmosphériques industriels sur la qualité de l'air

L'objectif est de vérifier l'impact sur les niveaux de concentrations ambiantes et de dépôts aux sols des polluants particulaires émis par un site industriel, d'une hypothèse de modélisation d'un flux de polluants à la source dont le spectre physicochimique est multi-étagé, c'est-à-dire de la modélisation séparée de la dispersion des moyennes aérodynamiques de 4 classes granulométriques distinctes et dotées chacune de leur propre composition chimique, telles qu'obtenues par les campagnes de mesures synthétisées dans le livrable 1-1.

L'impact de l'introduction de telles hypothèses dans le calcul est jugé au regard des différences d'immissions (concentrations ambiantes et déposées) qu'elles génèrent dans l'environnement du site industriel, vis-à-vis des impacts obtenus selon la méthode habituelle, consistant à modéliser la dispersion des polluants émis suivant une seule classe granulométrique centrée sur sa moyenne, et dont la composition chimique est jugée homogène.

La modélisation de référence (détaillée) de la dispersion atmosphérique des émissions de TSP est effectuée suivant 4 classes granulométriques de médianes aérodynamiques 0,5 µm, 1,75 µm, 6,25 µm, 20 µm. La modélisation mono-étagée (simplifiée) retient une médiane aérodynamique des TSP égale à 6,25 µm (moyenne de la tranche 2-5-10 µm). Les modélisations sont effectuées avec le logiciel ADMS5, validé par l'INERIS, et prenant en compte les données météorologiques horaires, le relief et l'occupation des sols.

Les modélisations fournissent les enseignements suivants :

Plus le diamètre moyen retenu pour la modélisation simplifiée est élevé par rapport à celui constitutif des rejets réels, approché par les 4 tranches granulométriques de la modélisation détaillée, plus :

- la sous-évaluation des concentrations ambiantes de TSP est marquée,
- la sur-évaluation des dépôts de TSP est importante.

Le choix d'un diamètre moyen trop faible provoque l'effet inverse.

Ces effets sont à moduler pour les métaux, en fonction de leur distribution dans les différentes tranches granulométriques des poussières totales :

- plus les métaux sont proportionnellement représentés dans les hautes tranches granulométriques (métaux de procédés comme Cr, Cu ou Mn), plus l'erreur relative de modélisation se distingue de celle commise sur les TSP, pour venir éventuellement se réduire à presque rien si le diamètre moyen de représentation des métaux approche suffisamment le diamètre moyen des TSP retenu dans la modélisation simplifiée,
- pour les métaux les plus volatils préférentiellement présents dans les fractions granulométriques les plus fines (Cd, Pb ou Zn), l'erreur relative de modélisation se rapproche de celle commise sur les TSP, dont le diamètre moyen est également faible dès lors que ces poussières sont principalement produites par voie thermique. Il s'agit donc pour limiter l'erreur sur les immissions calculées de tenter d'introduire dans la modélisation simplifiée le diamètre aérodynamique moyen équivalent à celui de l'ensemble des sources d'émission, relativement bas (< 2,5 µm).

Or le diamètre aérodynamique moyen équivalent du spectre global d'émission des TSP canalisées et diffuses du site à modéliser peut être obtenu relativement simplement à partir de la caractérisation physico-chimique des TSP prélevées à chacune des sources d'émission. Une bonne approximation liant le diamètre aérodynamique D_a au diamètre volumique équivalent $D_{[4,3]}$ est en effet donnée par l'expression suivante :

$$D_a = D_{[4,3]} \cdot (d/F_v)^{0,5}$$

Avec :

d = densité des particules = masse volumique réelle des particules / masse volumique de l'eau

F_v = facteur de forme volumique = (diamètre volumique $D_{[4,3]}$ / diamètre surfacique $D_{[3,2]}$)²

Les diamètres volumiques et surfaciques moyens sont mesurables par diffractométrie laser, et peuvent donc être obtenus pour chaque source d'émission à partir d'un simple prélèvement de poussières. La masse volumique réelle des particules est estimée pour chaque source d'émission à partir de la composition chimique des TSP.

Ne reste alors plus qu'à calculer le diamètre aérodynamique moyen de modélisation simplifiée, comme la moyenne des diamètres de chaque source d'émission du site industriel considéré, pondérée par les flux d'émission de chacune de ces sources.

Recommandations synthétiques de modélisation

Sous conditions, il est donc possible de caractériser convenablement l'impact moyen sur la qualité de l'air des émissions atmosphériques d'un site industriel en effectuant une modélisation simplifiée de la dispersion des poussières canalisées et diffuses émises par le site.

Par modélisation simplifiée on entend la modélisation d'un diamètre aérodynamique moyen unique de poussières pour toutes les sources d'émission du site, et une composition chimique moyenne jugée valable sur tout le spectre granulométrique des poussières émises.

Par caractérisation convenable, on entend une modélisation fournissant des résultats comparables à ceux fournis par une modélisation intégrant 4 tranches granulométriques étagées dotée chacune de leur propre composition chimique, tous les autres paramètres de modélisation étant identiques.

Les conditions sont les suivantes :

- le diamètre aérodynamique moyen retenu doit correspondre au diamètre moyen équivalent du spectre global d'émission des TSP canalisées et diffuses du site à modéliser,
- seul un bilan effectif et soigné des émissions du site peut fournir ce diamètre à modéliser, calculé comme la moyenne des diamètres aérodynamiques moyens de chaque source, pondérée par les flux unitaires d'émission,
- les diamètres aérodynamiques moyens doivent être soit directement mesurés, soit évalués à l'aide de la mesure de la masse volumique moyenne et du diamètre volumique équivalent des poussières totales,
- on veillera à calculer les niveaux de concentrations ambiantes en poussières et le niveau de risque sanitaire induit par inhalation à proximité immédiate de l'usine, car l'impact d'une erreur d'appréciation du diamètre aérodynamique moyen à disperser sur le résultat de modélisation des concentrations ambiantes en poussières est croissant avec la distance aux sources d'émission (au champ lointain, sous-évaluation d'environ 10 % par μm en excès sur le diamètre, erreur réduite à 2 % / μm environ au champ proche),
- en revanche en cas de doute raisonnable sur le diamètre aérodynamique moyen évalué, on préférera calculer des dépôts moyens de poussières aux sols et le niveau de risque sanitaire induit par ingestion à distance moyenne de l'usine (entre les points d'exposition maximale et les zones de fond hors impact de l'activité de l'usine), car l'impact d'une erreur d'appréciation du diamètre aérodynamique moyen à disperser sur le résultat de modélisation des dépôts de poussières est décroissant avec la distance aux sources d'émission, et le niveau d'erreur est rapidement réductible (au champ proche, environ 30 % de sur-évaluation par μm en excès sur le diamètre, erreur réduite à 10 % / μm environ au champ lointain).
- les métaux de procédé (Cr, Cu, Mn, Ni) souvent présents en quantités significatives dans les hautes tranches granulométriques, ne devront pas constituer des traceurs de risque sanitaire, sous peine de voir leurs concentrations ambiantes d'autant plus sur-évaluées, et leurs dépôts aux sols d'autant plus sous-évalués, que leur diamètre moyen de représentation sera éloigné (par excès) du diamètre moyen de modélisation simplifiée.
- les métaux les plus volatils (Hg, Cd, Pb, Zn) souvent présents en quantités significatives dans les fractions les plus fines des poussières, ne devront pas constituer des traceurs de risque sanitaire, sous peine de voir leurs concentrations ambiantes d'autant plus sous-évaluées, et leurs dépôts aux sols d'autant plus sur-évalués, que leur diamètre moyen de représentation sera éloigné (par défaut) du diamètre moyen de modélisation simplifiée.

Finalement, si les concentrations ambiantes ou les dépôts de poussières et/ou métaux évalués en premier niveau d'approche par la modélisation simplifiée sont significativement inférieurs ou supérieurs aux valeurs de gestion environnementale, ou que les quotients de danger et excès de risque individuel déduits de ces immissions sont inférieurs ou supérieurs aux seuils sanitaires admissibles d'au moins un facteur 2, de sorte que les conclusions à en tirer sont claires et peuvent supporter l'incertitude de modélisation, on pourra se contenter des résultats fournis par la modélisation simplifiée.

Dans tous les autres cas on recommandera la modélisation détaillée, qui devra s'appuyer sur des mesures préalables à l'émission capables de déterminer les spectres physico-chimiques des poussières rejetées à l'atmosphère par l'ensemble des sources canalisées et diffuses à modéliser. Si les rejets canalisés ne représentent qu'une faible fraction des rejets totaux du site industriel (moins de 20 %), on pourra se contenter d'une modélisation détaillée pour les seuls rejets diffus, dont les immissions représentent dans ce cas toujours au moins 90 % des impacts environnementaux.

4. LIVRABLE 2 : avis sur la hiérarchie entre différentes technologies de filtration en termes de performance d'abattement des TSP et des PM

Le tableau n°3 synthétise les niveaux de performances atteints par les 5 filtres de la fonderie et de l'aciérie, dont l'efficacité de filtration a fait l'objet de mesures visant à hiérarchiser leurs performances en termes d'abattement des TSP et des PM (et donc des métaux lourds distribués dans les différentes classes granulométriques).

Tableau n°3 : Performance de filtration des TSP et PM par 5 dépoussiéreurs différents

	Filtre DKO			Filtre AFF+TTR		
	Amont	Aval	Efficacité	Amont	Aval	Efficacité
Concentration moyenne en TSP (mg/Nm3)	513	0,1	99,98%	556	0,4	99,87%
Débit de fumées pendant les mesures (Nm3/h)	73 200	76 200		50 200	83 900	
Facteur d'émission de TSP (g/tliq)	15 453	3,4		12 737	15,9	
Fraction de PM10 dans les TSP	99%	94%	99,98%	98%	97%	99,88%
Facteur d'émission de PM10 (g/tliq)	15 303	3,2		12 461	15,4	
Fraction de PM2,5 dans les TSP	91%	83%	99,98%	57%	80%	99,90%
Facteur d'émission de PM2,5 (g/tliq)	14 082	2,8		7 247	12,7	
Fraction de PM1 dans les TSP *	88%	50%	99,99%	33%	48%	99,94%
Facteur d'émission de PM1 (g/tliq) *	13 609	1,7		4 149	7,6	

* Mesures amont effectuées sur 50% des mesures aval

	Baghouse FOURS			Jet FOURS+MEP			Baghouse AOD		
	Amont	Aval	Efficacité	Amont	Aval	Efficacité	Amont	Aval	Efficacité
Concentration moyenne en TSP (mg/Nm3)	3 741	1,7	99,91%	26	0,3	99,03%	1 370	0,5	99,87%
Débit de fumées pendant les mesures (Nm3/h)	103 700	207 000		403 000	427 000		109 700	297 000	
Facteur d'émission de TSP (g/tliq)	11 178	10,3		318	3,1		2 851	10,3	
Fraction de PM10 dans les TSP	98%	74%	99,93%	81%	95%	99,08%	99%	89%	99,89%
Facteur d'émission de PM10 (g/tliq)	10 909	7,6		256	2,9		2 815	3,2	
Fraction de PM2,5 dans les TSP	71%	44%	99,94%	67%	71%	99,32%	94%	69%	99,91%
Facteur d'émission de PM2,5 (g/tliq)	7 980	4,6		212	2,2		2 679	2,5	
Fraction de PM1 dans les TSP *	57%	38%	99,94%	39%	16%	99,85%	84%	47%	99,93%
Facteur d'émission de PM1 (g/tliq) *	6 335	3,9		123	0,5		2 404	1,7	

* Mesures amont effectuées sur 50% des mesures aval

Les principaux messages tirés de l'évaluation de la performance des filtres sont les suivants :

- la technologie du filtre (en pression ou dépression), des manches filtrantes (horizontales ou verticales, en tissu de verre, feutre polyester ou acrylique, avec ou sans membrane PTFE) et de son mode de décolmatage (air comprimé ou contre-courant, offline ou semi-offline), n'a pas d'influence directe sur la performance de filtration des poussières à traiter. Ces propriétés technologiques ont en revanche un impact certain sur la maintenabilité du filtre au regard des propriétés des flux incidents de poussières à traiter, et donc un impact indirect sur les niveaux de rejets.

- les filtres à manches présentent une efficacité de traitement essentiellement absolue, c'est-à-dire peu dépendante du niveau de flux incident de poussières à traiter. C'est pourquoi les filtres les moins sollicités (Jet FOURS+MEP) présentent une efficacité relative légèrement plus faible que les filtres traitant les plus gros flux de poussières.
- l'âge du filtre est mieux corrélé au facteur d'émission à l'atmosphère que tout autre paramètre (les deux filtres les plus récents - Filtre DKO et Jet FOURS+MEP - présentent des facteurs d'émission similaires, tout comme les 3 autres filtres plus anciens). Par âge du filtre, il faut plus comprendre accroissement de la contrainte de maintenabilité qu'obsolescence technologique, comme en témoigne l'évolution annuelle similaire de la performance des filtres DKO et AFF+TTR, âgés de 4 ans pour le premier et de 21 ans pour le second.
- ainsi, les NEA-MTD pour la réduction à la source des émissions de poussières totales des secteurs de la sidérurgie et des métaux non-ferreux auxquels appartiennent l'aciérie et la fonderie, valant 5 mg/Nm^3 dans les 2 secteurs, sont assez aisément respectés, dès lors qu'une maintenance adaptée des filtres - plus ou moins contraignante selon la technologie de filtration retenue - peut être assurée tout au long de l'année.
- les résultats de mesures suggèrent que la performance de filtration des PM pourrait apparaître très légèrement croissante avec la réduction de la taille des poussières, mais ces résultats, systématiques sur tous les filtres, sont peu robustes, pour deux motifs principaux :
 - l'échantillonnage par classification inertielle des PM en amont des filtres, réalisé à l'aide d'un impacteur en cascade sur des fumées très lourdement chargées en poussières, a pu systématiquement favoriser l'accroissement artificiel de la proportion des particules les plus fines accumulées sur les étages inférieurs de l'appareil, par effet rebond des particules sur les plateaux supérieurs chargés à la limite admissible,
 - des mécanismes de coagulation des poussières favorisés par le refroidissement et l'apport d' O_2 atmosphérique au passage des fumées dans les filtres ont pu modifier la structure granulométrique des aérosols prélevés, et, en faisant baisser la proportion de fines aux rejets des filtres, augmenter le taux d'abattement calculé des particules les plus fines, sans que cette augmentation soit attribuable à la performance intrinsèque de filtration.

C'est pourquoi on considèrera simplement que la performance de filtration des PM est au moins égale à celle des TSP.

- Enfin, les mesures ne montrent pas de façon convaincante de variation de la performance de filtration des métaux particulaires, en fonction de leur nature chimique ou de la taille des poussières qui les supportent.

Une exception notable à ce constat pourrait être relevée pour le mercure, qui pourrait déjouer partiellement l'efficacité du filtre à manches, à peu près uniformément sur toutes les catégories de PM. Le mécanisme responsable pourrait être celui d'une condensation différenciée de ce métal particulièrement volatil entre l'amont et l'aval du filtre.

Les mesures réalisées dans le cadre du présent projet ne permettent cependant pas de conclure, non seulement du fait de seuils analytiques souvent atteints pour l'analyse chimique du mercure extrêmement peu présent dans les rejets de l'aciérie et de la fonderie, mais également du fait du protocole de mesures qui n'a pas permis l'exacte concomitance des prélèvements amont/aval filtres.

Des mesures complémentaires, effectuées à l'aide d'un préleveur à cascade de cyclones permettant d'allonger les temps de prélèvements, et des analyses chimiques du mercure contenu dans ces échantillons effectuée avec des appareils à plus bas seuils de détection, permettraient de valider ou pas cette observation.

5. LIVRABLE 3 : démonstration de la validité de la mesure optique des concentrations massiques en PM aux rejets canalisés et diffus

Présentation sommaire du dispositif

Les principaux points du cahier des charges du dispositif étaient les suivants :

- mesure des PM10 et PM2,5, seuil de sensibilité < 5 µg/m³ dans l'intervalle 0,01/10 mg/m³,
- appareil de mesure en continu, portable et bon marché (< 5 000 €),
- fonctionnement sur secteur avec secours sur batterie sans interruption de mesurage,
- double mesurage simultané des concentrations en PM, permettant de prévoir des protocoles d'inter-comparaison des données, de détection de dérive, de maintenance et d'alerte,
- stockage/sauvegarde et communication des données mesurées, délivrées en (quasi) temps réel, via des interfaces filaire et radio, capables d'adresser des commandes au dispositif de mesures,
- dispositif accompagné d'une IHM (interface homme-machine) programmable.

Le principe de mesure repose sur des compteurs de particules qui sont des diffractomètres intégrant des fonctionnalités leur conférant une robustesse a priori compatible avec les conditions d'emploi envisagées. Ils présentent de plus l'avantage d'avoir déjà fait l'objet d'études d'intégration dans des dispositifs de mesure de la qualité de l'air offrant une base documentaire facilitant leur mise en œuvre.

La première version du prototype a été développée avec l'aide d'un laboratoire de l'université de Lorraine et mise en service en novembre 2014. Comme il est courant au cours d'un prototypage, des difficultés de mise en œuvre ont été rencontrées. Elles ont été de plusieurs ordres :

- faiblesse de conception du PCB, de l'architecture composants, et de la communication radio,
- défauts de programmation du micro-contrôleur et d'isolement électrique des composants,
- défauts d'équipotentialité électrique des structures et réseaux électriques industriels,
- bruits électromagnétiques induits par l'activité industrielle et bâtiments métalliques écrans.

Ces difficultés ont réduit de moitié le nombre de campagnes de mesures exploitables, lesquelles ont néanmoins été suffisamment variées (large gamme de concentrations mesurées, sources canalisées et diffuses, mesures en aciérie et en fonderie) pour pouvoir évaluer la validité du dispositif de mesure et les performances du prototype, et définir ses voies de consolidation matérielle et logicielle.

Interprétation des données fournies par les compteurs de particules

Chaque compteur de particules fournit des valeurs homogènes à une concentration exprimée en nombre n de particules par m³, pour 2 voies de mesure dont les pics de tension sont réglés sur 0,5 et 2,5 µm respectivement, de sorte que les particules de taille > 0,5 µm et > 2,5 µm sont comptées distinctement, les fractions plus petites étant écartées. Le compteur écarte donc les particules de taille inférieure à 0,5 µm, majoritaires en nombre mais minoritaires en masse. Un compteur doté d'une voie calibrée à 0,1 µm permettrait de réduire cette approximation.

La taille de particules fournie par le compteur est homogène à un diamètre volumique, et leur nombre est évalué moyennant un traitement mathématique incluant des hypothèses sensibles à la forme et la composition des aérosols, ainsi que - s'agissant d'un couple laser-photodiode - à l'humidité relative du gaz support. Pour transformer le signal S fourni par le compteur de particules en $100.n/ft^3$ en concentration massique C_n de PM2,5 ou de PM10 exprimée en µg/Nm³, il convient donc, moyennant l'hypothèse de particules sphériques de diamètre moyen D_p (µm) et une évaluation de la masse volumique moyenne ρ (t/m³) des poussières comptées, d'effectuer le calcul suivant :

$$C_n = S.T/T_0.3,5315.10^{-3}.\rho.II/6.Dp^3.\varphi$$

$T_0/T.3,5315.10^{-3}$ permet d'exprimer la concentration massique en µg/Nm³. La température de référence T_0 est égale à 273 K, et la température locale de mesure T est égale à 273 + la température en °C mesurée au compteur. La correction de pression barométrique est négligée.

φ est l'inverse du coefficient de réponse du diffractomètre propre à chaque zone d'émission. Il est obtenu par calage des moyennes des données instantanées fournies par le compteur au regard des données de référence obtenues au même instant par les mesures gravimétriques.

Finalement, la comparaison de la population de réponses moyennes corrigées du compteur avec celle obtenue à partir des séries d'échantillons de référence doit fournir une corrélation stable pour valider le principe de mesure en continu.

Calcul des concentrations en masse de PM_{2,5} et PM₁₀

Il s'agit ensuite de discriminer les concentrations en PM_{2,5} et PM₁₀ à partir du signal S fourni par le compteur. L'approche pour le calcul des PM_{2,5} consiste à assimiler la concentration en nombre de PM_{2,5} à la différence entre les signaux fournis par le compteur sur ses voies 0,5 et 2,5. Puis on évalue le diamètre volumique moyen des particules de la tranche 0,5-2,5 μm , et la masse volumique moyenne de ces poussières, à partir de mesures directes effectuées par granulométrie laser et analyse chimique (ou picnométrie à gaz) des PM_{2,5} préalablement prélevées. On détermine enfin φ , qui fournit une image de l'influence du facteur de forme, de la nature chimique et de l'indice de réfraction des poussières sur la réponse du diffractomètre.

On note qu'une fonction de transfert permettant d'ajuster la corrélation entre les deux méthodes de mesures en fonction de l'humidité des fumées peut s'avérer nécessaire.

Pour le calcul des PM₁₀, on additionne à la concentration massique de PM_{2,5}, la concentration massique de la tranche PM_{2,5}-PM₁₀ directement déterminée à partir de la concentration en nombre des particules de taille comprise entre 2,5 et 10 μm , assimilée au signal fourni par le compteur sur sa voie 2,5. Le nombre de particules de plus de 10 μm comptées est négligé. Un compteur doté d'une voie calibrée à 10 μm permettrait d'écarter véritablement la fraction supérieure à 10 μm . Puis on évalue par des mesures directes le diamètre moyen et la volumique moyenne des particules de la tranche granulométrique 2,5-10 μm . On déduit enfin le facteur de réponse φ du diffractomètre.

Evaluation de la validité du dispositif de mesure en continu des PM et performance du prototype

Validité comparée de la mesure optique des PM

Le coefficient de corrélation évalue l'intensité de la liaison entre les mesures optiques et gravimétriques de référence. Plus il est proche de 1 est plus le lien est fort. On utilise une relation simple (régression linéaire). La corrélation est jugée forte au-dessus de 75 %, moyenne entre 60 % et 75 %, et nulle en dessous.

Le coefficient de détermination mesure la qualité de la prédiction fournie par la droite de régression linéaire. Plus le coefficient s'approche de 1 et mieux le modèle est capable de convertir les concentrations en nombres fournies par le compteur en concentrations massiques de PM_{2,5} et PM₁₀. Un modèle doté d'un coefficient de détermination supérieur à 60 % est jugé digne d'intérêt.

Les coefficients de réponse du compteur en fonction de la taille des particules visées (PM_{2,5} ou PM₁₀), donnent à voir le lien entre les concentrations en nombre et les concentrations en masse, comme une fonction des propriétés physiques, chimiques et optiques des poussières. Fiables pour les mesures effectuées à l'aciérie, ils ne sont qu'indicatifs aux rejets de la fonderie (granulométries faussées par agglomération post-prélèvement des poussières alcalines).

Tableau n°4 : Grandeurs caractéristiques de la performance du dispositif de mesure optique pour la mesure des concentrations en masse de PM

	Facteurs caractéristiques de la mesure optique de PM			
	Corrélation gravimétrie	Détermination gravimétrie	Réponse PM _{2,5}	Réponse PM ₁₀
Diffus hall 1 FR	97%	95%	0,60	4,68
Baghouse FOURS	97%	94%	0,32	2,60
Diffus Hall 4 DKO	95%	89%	0,06	1,75
Baghouse AOD	93%	86%	0,30	2,45
Jet FOURS	84%	71%	1,31	4,34
Filtre DKO	79%	63%	0,57	9,33
Diffus hall 1 FM	-62%	39%	0,14	4,24

Toutes les campagnes de mesures ont donné en moyenne des coefficients de corrélation et de détermination satisfaisants, aussi bien pour caractériser des rejets diffus que canalisés. Seule une campagne de mesures n'a pas donné satisfaction, mais le faible nombre d'échantillons au regard de leur dispersion statistique conduit à penser que la mesure optique y est possible.

On constate également que le calage de l'algorithme de conversion des concentrations n'a pas nécessité l'introduction d'un facteur correctif tenant compte de l'humidité du gaz porteur, comme c'est généralement le cas aux très faibles teneurs en poussières constatées lors de mesures de la qualité de l'air ambiant.

On dispose donc d'un dispositif de mesure valide des concentrations massiques de PM canalisées et diffuses, fournissant avec une bonne précision au regard des méthodes séquentielles de référence, l'évolution temporelle des concentrations en PM_{2,5} et PM₁₀ moyennées sur le cycle d'élaboration des procédés suivis. Il fournit de plus des informations précieuses sur l'évolution des concentrations en temps réel, permettant d'associer les niveaux instantanés d'émission aux événements process, et offrant à l'exploitant des éléments de compréhension de l'impact de ses pratiques sur les rejets, en particulier diffus.

La méthode consistant à comparer les moyennes des mesures automatiques continues fournies par les compteurs optiques aux mesures manuelles séquentielles de référence, ne permet cependant pas tout à fait de conclure sur la validité des signaux instantanés, et donc d'offrir un véritable dispositif de quantification continue des rejets de PM. Pour ce faire il conviendrait de prolonger les tests par des campagnes d'intercomparaison des mesures fournies par le prototype de mesure optique à celles fournies dans les mêmes conditions par un dispositif de mesures automatiques continues des concentrations massiques de PM, tel qu'un appareil de référence à balance piézoélectrique de type TEOM.

Reproductibilité de la mesure optique et conditionnement des échantillons

La reproductibilité de la mesure entre les deux compteurs de particules utilisés, évaluée par leur mise en service en strict parallèle, est bonne, puisque les 2 compteurs affichent des résultats corrélés à plus de 99 % sur toute leur gamme de mesures. On observe néanmoins un écart relatif systématique de 12 % entre les données fournies par les 2 compteurs, sans discrimination de voie de mesure et sur toute leur gamme.

Toutes les données calculées l'ont été à partir de la moyenne des deux signaux délivrés par chacune des voies des deux compteurs, de sorte que l'écart relatif moyen des données fournies par chaque compteur à la moyenne des données des deux compteurs n'excède pas 6 %. Cet écart systématique est faible, et permet d'envisager d'exploiter un mode de marche dégradée du dispositif de mesure en continu des PM fonctionnant avec un seul compteur.

Enfin, on constate que l'encrassement progressif des parties actives du coffret prototype n'a pas engendré de surévaluation perceptible des concentrations mesurées par les compteurs de particules.

Evolutions du prototype de mesure en continu des PM

Afin de disposer d'un outil de mesure en continu suffisamment robuste et performant pour pouvoir être mis en service en milieu industriel, il convient de préparer les évolutions suivantes :

- reconception d'une électronique embarquée évitant la perte des signaux de mesures, améliorant la robustesse du signal radio, et permettant d'obtenir la certification CE du dispositif,
- customisation des compteurs par l'ajout de 2 voies de mesures améliorant la précision de calcul des concentrations en masse de PM₁₀ et permettant le calcul des PM₁ et des TSP,
- amélioration des composants et fonctionnalités du coffret (report extérieur d'alarme, reconception des parties aérauliques pour une meilleure intégration dans le coffret et avec les compteurs, et la possibilité d'installer aux choix un ventilateur axial ou centrifuge à vitesse variable).

Ces évolutions sont en voie de réalisation. Cette nouvelle version du prototype constituera un dispositif suffisamment robuste pour pouvoir être proposé aux industriels, et intercomparé aux dispositifs de référence de la mesure en continu des concentrations ambiantes de PM.

SYNTHESIS

The REISTA action (*action de Réduction des Emissions Industrielles des Substances Toxiques dans l'Air*, Action for reducing industrial toxic pollutant emission in the air) is the air aspect of the *Deuxième Plan National Santé Environnement* (second edition of the french Health and Environment National Plan, *PNSE2 2009-2013*). This action is structured around two main themes:

- 1- improve knowledge concerning air emission from facilities requiring environmental impact assessment (*Installations classées pour la protection de l'environnement, ICPE*),
- 2- reduce these air pollutant emissions.

The CORTEA call for research and development projects (*Connaissances, Réduction à la source et Traitement des Emissions dans l'Air*, knowledge, source control and air emission treatment) is the ADEME program to contribute to achieve PNSE2's goals.

The GAEC&D⁺ project, selected as part of CORTEA call for research projects, took place regarding following considerations: the manufacturing sector was in 2011 the second contributor for PM_{2.5} air emission. Iron and steel industry, as well as non-ferrous industry, are major contributors. Especially, secondary steel and aluminum sectors, having dust emission factors between 8 and 25 kg/t, emit 1000 to 3000 tons of dust a year in the air, released from a limited number of spots (< 30 steel shops, < 10 refineries). These dust emissions are liable to contain large amounts of fine and inhalable particles (PM_{2.5} and PM₁₀), heavy metals (Cd, Hg, As, Pb, Cr, Cu, Ni, Zn), in association with organic pollutants generated by incomplete combustion process, like black carbon, dioxins and PCBs, which are all targeted by CORTEA.

Then the GAEC&D⁺ project focused on **4 main objectives**:

- 1- **quantify new industrial stack and fugitive dust emission factors**, and associated metals and black carbon particle, differentiated depending on their size (PM₁, PM_{2.5}, PM₁₀ and TSP). Complete this release inventory from steel shop and aluminum refinery with additional measurements of dioxins, PCBs and PeCB (pentachlorobenzene) emissions.
- 2- **precise the impact of this knowledge improvement regarding physical and chemical structure of dust emissions on the quality of the health risk assessment** applied to the neighboring people of industrial sources.
- 3- **evaluate the ability of the best available technologies** for industrial dust emission control, **to reduce with the best efficiency the particle emissions on their whole physicochemical spectrum**, and especially at PM_{2.5} level.
- 4- **Test a simple and rugged measurement device ensuring real-time monitoring of PM_{2.5} and PM₁₀ concentrations** at industrial source emissions, and describe its implementation requirements under industrial conditions, with the objective of self-monitoring and reporting of polluting emissions.

On all these points, the GAEC&D⁺ project has returned results:

Deliverable 1-1: **industrial stack and fugitive emission factors for the steel shop and the aluminum refinery** (chapter 2 page 3).

Deliverable 1-2: **recommendations for air quality assessment made up of dispersion modeling from industrial source emissions** (chapter 3 page 5).

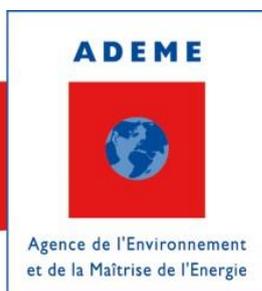
Deliverable 2: **opinion on hierarchy among different filtration technologies in terms of TSP, PM and heavy metal abatement efficiency** (chapter 4 page 7).

Deliverable 3: **claims of validity regarding laser-optic method for massic concentration measurement of PM at stack and fugitive emissions**, against the reference method, and the main areas for improvement of the **measurement prototype** in an industrial way (chapter 5 page 9).

L'ADEME EN BREF

L'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) participe à la mise en œuvre des politiques publiques dans les domaines de l'environnement, de l'énergie et du développement durable. Elle met ses capacités d'expertise et de conseil à disposition des entreprises, des collectivités locales, des pouvoirs publics et du grand public, afin de leur permettre de progresser dans leur démarche environnementale. L'Agence aide en outre au financement de projets, de la recherche à la mise en œuvre et ce, dans les domaines suivants : la gestion des déchets, la préservation des sols, l'efficacité énergétique et les énergies renouvelables, la qualité de l'air et la lutte contre le bruit.

L'ADEME est un établissement public sous la tutelle conjointe du ministère de l'Ecologie, du Développement durable et de l'Energie, et du ministère de l'Éducation nationale, de l'Enseignement supérieur et de la Recherche.



ADEME
20, avenue du Grésillé
BP 90406 | 49004 Angers Cedex 01

www.ademe.fr

ABOUT ADEME

The French Environment and Energy Management Agency (ADEME) is active in the implementation of public policy in the areas of the environment, energy and sustainable development. The Agency provides expertise and advisory services to businesses, local authorities and communities, government bodies and the public at large, to enable them to establish and consolidate their environmental action. As part of this work ADEME helps finance projects, from research to implementation, in the areas of waste management, soil conservation, energy efficiency and renewable energy, air quality and noise abatement.

ADEME is a public agency under the joint authority of the Ministry for Ecology, Sustainable Development and Energy, and the Ministry for Education, Higher Education and Research.



ADEME
20, avenue du Grésillé
BP 90406 | 49004 Angers Cedex 01

www.ademe.fr