



PARTICULES FINES PM_{2.5} ET ULTRAFINES PM_{0.1} À L'ÉMISSION DES CHAUDIÈRES COLLECTIVES ET INDUSTRIELLES

FINE PM_{2.5} AND ULTRAFINE PM_{0.1} PARTICLE EMISSIONS FROM SHARED AND INDUSTRIAL BOILERS

Synthèse

10 août 2014

REMERCIEMENTS

Patrick BLANC (Leroux et Lotz Technologies),
Gwénaelle TROUVE (Laboratoire Gestion des Risques et Environnement-Université de Haute
Alsace),
Xavier CHAUCHERIE (Veolia),
Sébastien CAILLAT (Armines)

CITATION DE CE RAPPORT

ADEME, Leroux et Lotz Technologies, Veolia Environnement, ARMINES, École des Mines de Douai et
Université de Haute Alsace. 2014. **Particules fines PM2.5 et ultrafines PM0.1 à l'émission des
chaudières collectives et industrielles**. 276 pages.

Cet ouvrage est disponible en ligne <https://librairie.ademe.fr/>

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

Convention ADEME N°1101C0067

Coordination technique : Florence PROHARAM, Service Bioressources (SBIO) – Direction
Production et Énergie Durable (DPED) – ADEME Angers

Étude réalisée pour le compte de l'ADEME par : Leroux et Lotz Technologies, Veolia Environnement
Recherche et Innovation, ARMINES - École des Mines de Douai et Université de Haute Alsace - Laboratoire
Gestion des Risques et Environnement

Synthèse

Le présent projet, intitulé « EMIPAR », vise à développer les connaissances concernant les particules fines ($PM_{2,5}$) et ultrafines ($PM_{0,1}$) émises des chaudières biomasse d'une puissance inférieure à 20 MW (chaudières collectives/industrielles) en vue de proposer des recommandations/solutions pour réduire ces émissions. Pour ce faire, le projet EMIPAR a pour objectif de caractériser les paramètres contrôlant les émissions de poussières à l'origine, c'est-à-dire lors de la combustion. Cette connaissance permettra de réduire, à la source, les émissions de particules fines et ultrafines.

L'atteinte de cet objectif passe par une méthodologie en cinq points :

- le développement d'une technique de prélèvement de particules à haute température, en vue de quantifier et analyser les particules $PM_{2,5}$ et ultrafines au sein de la chambre de combustion ($600^{\circ}C$ - $900^{\circ}C$) et au niveau des échangeurs ($180^{\circ}C$ - $300^{\circ}C$) ;
- la mesure des concentrations en particules dans des foyers industriels, à l'aide des techniques de prélèvement ainsi développés, pour des conditions opératoires données (régime de fonctionnement et type de biomasse) ;
- étude paramétrique menée sur un pilote de combustion de laboratoire, permettant de faire varier les paramètres opératoires de combustion, pour des combustibles choisis, afin de mesurer leur impact sur la production de particules fines et ultrafines ;
- des tests de validation sur pilote industriel : afin de valider les hypothèses obtenues par les essais de laboratoire, des tests seront menés sur un pilote industriel, capable de reproduire les conditions opératoires optimisées souhaitées. Ces tests en pilote industriel permettront de valider ou d'infirmer la pertinence des recommandations issues de l'étude paramétrique de laboratoire et garantiront ainsi l'applicabilité, à l'échelle industrielle, des bonnes pratiques qui en découleront.
- caractérisation physico-chimique détaillée des échantillons solides (particules fines et ultrafines, ainsi que le combustible, les mâchefers et les cendres volantes) prélevés lors des travaux menés aux échelles de laboratoire, semi-industrielle et industrielle.

I- Développement et validation d'une ligne de prélèvement et de mesure des particules fines ($PM_{2,5}$ et PM_1) et nanoparticules ($PM_{0,1}$) à haute température

Les chaînes métrologiques utilisées dans le cadre de ce projet se sont montrées fiables, notamment la solution avec la sonde FPS-400 « revampée » proposée pour le prélèvement à haute température. Les lignes métrologiques avec les sondes de dilution USD 1000 et USD 2000, développées ici et qui malheureusement n'ont pas pu être testées, ni validées, mériteraient une mention particulière. En effet, les problèmes techniques rencontrés, qui concernaient notamment le boîtier de contrôle, seront sûrement surmontés. Des tests complémentaires basés sur les protocoles mis en place dans le cadre de ce projet permettront leur valorisation.

En ce qui concerne les dispositifs retenus pour la mesure des concentrations de $PM_{2,5}$ en masse et en nombre, on note que l'ELPI surestime énormément la concentration massique, et ce de façon plus marquée pour les mesures au-dessus du foyer de combustion qu'en sortie échangeur thermique. Cependant, ce problème peut être remédié en déterminant la concentration à posteriori, par pesage des particules collectées sur ses plateaux, comme ça a été réalisé avec l'impacteur manuel LPI à trois étages. Toutefois, on se doit de noter que l'ELPI a permis d'obtenir les distributions granulométriques d'une manière fiable.

En revanche, le PPS, qui est moins connu que les autres analyseurs, s'est avéré simple d'utilisation et robuste (pas d'entretien car pas d'encrassement grâce à son principe de mesure). Les concentrations massiques de particules affichées par le PPS étaient dans un bon accord avec le TEOM, qui en est la référence. Cependant, l'ELPI reste nécessaire lors de l'utilisation du PPS afin d'affiner le traitement du signal électrique (utilisation de constantes obtenues par l'ELPI qui permettent de remonter aux concentrations massiques et numériques du PPS). Cet affinage a été nécessaire car le PPS n'avait encore jamais été utilisé pour la mesure de particules issues de la combustion du bois.

II- Pilote de laboratoire : développement, validation, tests et prélèvements

Les tests réalisés à l'échelle de laboratoire montrent que la préparation du combustible influence le profil de température au sein du réacteur. Ainsi, pour le même combustible initial (plaquettes forestières P45), le combustible ayant subi le protocole de redimensionnement affiche un niveau de température plus faible que celui broyé tout simplement à 4 mm. Le mode de combustion ne montre pas une différence notable sur le profil de température dans la colonne de combustion. En revanche, il semblerait que le mode avec busette aboutit à une meilleure combustion que la grille.

Le nombre de particules mesuré avec l'ELPI 12 étages, ainsi que la concentration en nombre, ne semble pas être impacté par le mode de broyage ou l'humidité du combustible. Toutefois, à des niveaux d'humidité équivalents, il paraît que le mode grille favoriserait la production de particules par rapport au mode busette.

La répartition par classe granulométrique du nombre de particules collectées en zone de combustion montre que la majorité (environ 97 %) est regroupée dans la classe PM0.1, quels que soient le mode de combustion, l'humidité et la préparation du combustible.

La concentration massique mesurée avec le TEOM ne semble pas être influencée ni par le mode de combustion, ni par la préparation des plaquettes et ni par l'humidité du combustible.

En ce qui concerne la nature du combustible, les émissions de gaz en sortie du pilote de laboratoire mesurées lors des essais avec le combustible réel montrent un meilleur rendement de combustion que pour le combustible de référence. Il est possible que les réglages (notamment le débit et la distribution de l'air de combustion) soit plus proches de l'optimum pour le cas du combustible industriel.

Par rapport aux essais avec le combustible de référence, le combustible industriel affiche 80 % moins de particules. Cet écart est réduit à 47 % pour la concentration moyenne en nombre, exprimée à 6 % d'oxygène.

En revanche, la répartition en nombre est identique. De même pour la distribution par classes granulométriques de la concentration en nombre, qui est identique pour les deux combustibles.

La concentration massique de particules donnée par le TEOM est de 83 mg/Nm³, ce qui est très proche du résultat obtenu avec le combustible de référence.

III- Pilote industriel : Validation, test et prélèvements

Les résultats obtenus lors de l'étude sur pilote industriel montrent que le recyclage des fumées, l'humidité du combustible, les modifications de réglage et le fonctionnement en charge partielle, n'ont pas d'impact significatif sur les émissions moyennes de particules fines. Seul un niveau faible d'oxygène provoque une augmentation importante de la concentration en particules dans le foyer. De ce fait, une valeur seuil du taux d'oxygène dans les fumées a un impact majeur sur les émissions de particules.

L'allure des distributions granulométriques met en évidence une nature différente de particules émises selon la valeur de l'excès d'air :

- une combustion en faible excès d'air, $O_2 < 11 \%$, conduit à une émission massive de particules ayant un diamètre moyen de 100 nm, classe de particules attribuée à une mauvaise combustion ;
- une combustion en plus fort excès d'air, $O_2 > 11 \%$, les émissions de particules sont réduites et ces particules présentent un diamètre de 80 nm.
- une combustion à la valeur seuil d'excès d'air de 11 %, donne une distribution granulométrique bimodale.

Une autre observation concerne l'arrêt de l'installation. En effet, la phase d'arrêt pouvait être critique pour les émissions de poussières et qu'elle contribue significativement à l'encrassement de la chaudière.

Finalement, les paramètres étudiés, conformément au plan d'expériences proposé, semblent avoir peu d'effet sur la formation des particules fines en foyer. L'adaptation sans faille de la consigne d'oxygène et la qualité de la mesure de l'oxygène sont cependant les paramètres critiques à surveiller.

IV- Émissions de particules sur sites industriels

Les résultats de mesures de concentrations des particules et distributions granulométriques obtenus lors des campagnes menées sur sites industriels ont permis de mettre en évidence des comportements spécifiques liés à la technologie et à l'exploitation de celles-ci.

Sur le site de la chaudière n°1, l'allure de la chaudière a modulé. Si on ajoute la qualité irrégulière du bois, ceci expliquerait l'observation des distributions granulométriques très variables. Cependant, celles-ci présentent des caractéristiques spécifiques pour chaque point de prélèvements :

- pour le foyer, il s'agit de légères bimodales avec un pic dominant étalé (100 à 400 nm) ;
- pour la sortie échangeur, les distributions granulométriques ressemblent à des bimodales avec un mode ultrafin (inférieur à 40 nm) et un mode plus grossier (100-200 nm).

Les granulométries en sortie échangeur sont donc plus fines qu'au foyer, une explication pourrait être le fait que les particules continuant leur trajectoires à partir du point de prélèvement en sortie foyer ont subi un grossissement (par condensation et/ou agglomération) jusqu'à une taille propice au dépôt sur les parois refroidies de la chaudière et des tubes de fumées. De ce fait, ces particules ne seraient plus présentes au niveau du deuxième point de prélèvement (c.-à-d. à la sortie de l'échangeur). En parallèle, il se peut que les conditions locales sur l'ensemble de la section de passage correspondante au point de prélèvement situé au-dessus du foyer permettent encore l'existence de certains constituants des aérosols à leur état de vapeur. Ensuite, la chute et les profils de température de plus en plus uniformes en allant vers la sortie de l'échangeur auraient déclenché la coagulation de ces composés dans leur forme particulaire. Ceci pourrait expliquer donc la granulométrie plus fine.

En ce qui concerne la chaudière n°2, les distributions granulométriques faites sur chaque point de mesures (foyer et après un premier surchauffeur) ont montré une forte répétabilité, la qualité du bois et le régime de la chaudière ayant très peu variés lors des mesures.

Les granulométries obtenues au foyer sont caractéristiques d'aérosols ultrafins avec un mode majoritaire centré sur 40 nm. Après le premier surchauffeur, les granulométries ressemblent à des bimodales avec un mode centré sur 120 nm et un mode ultrafin (inférieur à 40 nm).

Sur la chaudière n°2 (spreader-stoker) contrairement à la chaudière n°1 (alimentation par poussoir), un mode plus grossier est mesuré plus en aval dans les parcours échangeurs qui pourrait correspondre à la coagulation de petites particules entre elles et à la condensation d'espèces gazeuses. Le second mode ultrafin également mesuré sur la chaudière n°1 (mode inférieur à 40 nm) pourrait trouver la même explication sur la réduction de la taille des suies.

L'ordre de grandeur général concernant les concentrations numériques mesurées au foyer et après surface d'échange est de 10^7 p/Ncm³ sur les deux installations. Par contre, une répartition différente est observée entre les deux sites quant à la répartition des PM_{0,1} par rapport au PM_{2,5}.

Concernant les concentrations massiques, dans les deux cas, elles sont plus importantes après la surface d'échanges thermiques, 2 fois plus importantes sur la chaudière n°1 et 15 fois sur la chaudière n°2.

Sur la chaudière n°1, la granulométrie plus fine en sortie échangeur aurait pu laisser penser à l'obtention d'une concentration massique plus faible. Une explication potentielle serait l'encrassement et de nouvelles coagulations de particules (comme évoqué plus haut) avec de compositions différentes de certains métaux entre les deux points de prélèvement. En revanche, sur la chaudière n°2, l'augmentation de la masse des particules après surface d'échange est certainement à relier à l'augmentation de leur taille.

Après les deux campagnes sur sites industriels, il semble probable que la technologie, la stabilité de fonctionnement de la chaudière et la nature du bois influencent notablement la synthèse particulaire.

Cependant, il faut garder à l'esprit que les mesures n'ont pas pu être réalisées sur les deux sites au même stade d'évolution des particules. Sur une chaudière comme la chaudière n°1, les temps de séjour des produits de combustion dans le foyer sont courts et les mesures foyers ont été réalisées en milieu de voûte (combustion probablement non terminée), alors que la chaudière n°2 est une grande installation de combustion qui respecte le T2S (temps de séjour à 850°C pendant 2 secondes) avant surchauffeur. Il en va de même pour les mesures après échangeur.

V- Analyses physico-chimiques

Les échantillons de combustibles, cendres et PM_{2.5} collectées aux différentes échelles ont fait l'objet d'une caractérisation physico-chimique extensive. Les protocoles de prélèvement et d'analyse, ainsi que le couplage des différentes techniques d'analyse permettant une caractérisation détaillée des particules en corrélation avec le combustible et les cendres résultantes (p. ex. fluorescence X, chromatographie ionique, ICP-AES et MS, HPLC/fluorimétrie, imagerie par microscopes électroniques à balayage et transmission) utilisés dans le cadre de ce projet font l'objet d'une originalité certaine. Le volume de données ainsi obtenues est assez important et l'interprétation globale de ces données demeure assez délicates. Ceci n'est pas lié uniquement à la complexité du mécanisme de formation d'aérosols, mais aussi à la grande disparité entre les compositions des combustibles (notamment en éléments minoritaires tels que le S, Cl et les métaux qui interviennent directement dans la physique et la chimie de particules), leurs granulométries et les conditions de combustion. En effet, bien que le rôle de la technologie de combustion (grille ou assimilé) semble avoir peu d'influence, les conditions locales de prélèvement (écoulement, température, composition des gaz) ont été bien différentes entre les trois échelles considérées, voir même dans le cadre d'une seule installation. De plus, les particules échantillonnées sur l'ensemble des essais n'avaient pas le même « âge ». D'autres phénomènes influençant la formation de particules fines peuvent encore s'ajouter, telles que la fragmentation du combustible et des cendres.

Par conséquent, il est difficile d'extrapoler les résultats (notamment celles concernant la fraction ultrafine) d'une échelle à l'autre. Néanmoins, les analyses de composition chimique ont permis de mettre en évidence les principales voies de formation d'aérosols : la coagulation, la coalescence, la condensation et l'agglomération. Compte tenu de l'emplacement des points de prélèvement (au-dessus du foyer et en sortie d'échangeur thermique), c.-à-d. après que la combustion en phase homogène soit finie, on peut noter, d'une manière simpliste, que les principaux mécanismes de formation sont :

- la condensation de sels particuliers sur un substrat de nucléi composés de matières organiques, de métaux (le cas pour le point de prélèvement de la chaudière industrielle n°2 ; point situé le plus proche de la zone de combustion et donc à la plus haute température), de suies¹ et dans une moindre mesure sur des particules de fragments cendres volantes préexistantes ;
- la coagulation/cristallisation des sels particuliers sous l'effet de gradient thermique négatif.

Ces premières particules ainsi formées semblent constituer le support pour les étapes d'agglomération, ainsi que de condensation surfacique de COV et HAP. Cependant, aucune information n'est disponible entre le point où les espèces chimiques détectées quittent la particule de combustible et le premier point de prélèvement, quelle que soit l'installation étudiée.

Bien que les conditions de prélèvement soient disparates, quelques observations communes à l'ensemble des essais ont pu être enregistrées. Ainsi, la majorité des échantillons récoltés présente une forte concentration d'ions hydrosolubles, notamment du K⁺, Na⁺, Cl⁻ et SO₄²⁻. Ces cations et anions sont bien corrélés, ce qui indiquerait la présence de sels particuliers (KCl et K₂SO₄ notamment). De plus, des cristaux particuliers ont été observés par microscopie. De même, les métaux majoritaires présents dans les échantillons collectés sont, dans tous les cas de figures, le fer, le magnésium et le zinc. Ces métaux seraient liés sans doute sous une forme volatile.

Un autre facteur influant la formation des particules fines et ultrafines est l'humidité du combustible. Ainsi, les observations, en termes de concentration massique, sur pilote industriel ont été confirmées par les analyses de composition. L'augmentation de l'humidité semble réduire la concentration massique et accroître la part d'ions hydrosolubles. On se doit de noter que la présence d'eau contenue dans le combustible peut avoir des effets directs (interactions physico-chimiques) et indirects (cinétique et température de combustion, nature de l'écoulement² et transferts thermiques). Il semblerait que l'évolution de la concentration des particules fines et ultrafines en fonction de l'humidité du combustible serait expliquée plutôt par ses effets indirects.

¹ On remarque l'absence de suies dans les échantillons récoltés dans le cas de la chaudière industrielle n°2, ce qui indique une meilleure combustion des gaz.

² En effet, pour le même niveau de puissance, plus le combustible est humide, plus son pouvoir fumigène est important est donc les vitesses locales des gaz augmentent.

VI- Conclusion

L'ensemble des résultats ci-dessus montre que la formation des particules est principalement influencée par l'humidité du combustible et le niveau d'O₂ dans le gaz. Les analyses physico-chimiques ont mis en évidence que les particules fines et ultrafines sont essentiellement composées d'ions hydrosolubles sous forme de sels particuliers (principalement KCl et K₂SO₄), pour l'ensemble de biomasses utilisées. Il semblerait donc que les particules fines et ultrafines soient des produits intrinsèques de la combustion des biomasses étudiées dans le cadre des technologies visées (grille mobile ou assimilé).

En absence d'informations concernant la nature des aérosols entre le point où les espèces chimiques les constituant quittent la particule de combustible et le premier point de prélèvement, la seule méthode primaire envisageable, si on l'accepte que telle, serait un contrôle accru de la consigne d'oxygène imposée à la sortie de l'installation de combustion. Ceci nécessite une étude plus approfondie du système de régulation de la combustion. Par ailleurs, la logique de régulation est tributaire à la technologie de combustion (grille mobile « classique » ou spreader-stoker, par exemple) et à l'application (chauffage collectif, chaleur process, cogénération, etc.).

D'autres méthodes possibles de réduction des émissions de particules fines et ultrafines sont le lavage du combustible et/ou le lavage des fumées. La littérature recense des travaux de lessivage de différents types de biomasses à l'échelle de laboratoire. Cette piste serait intéressante pour des biocombustibles de type paille. Enfin, le lavage de fumées avec de l'eau ordinaire pourrait s'avérer assez efficace, compte tenu de la présence d'ions hydrosolubles. En contrepartie, le traitement des fumées par voie humide n'est pas souvent utilisé à cause des problématiques (volume, exutoire et coûts) d'effluents liquides à traiter.

Les résultats obtenus dans le cadre de ce projet mériteraient d'être confortés par quelques études complémentaires. Ainsi, dans un premier temps, il serait pertinent de caractériser en détail les aérosols résultants de la dégradation thermique d'un échantillon de biomasse (parfaitement maîtrisé) à hautes température et vitesse de chauffe et en différents atmosphères (réductrice à oxydante). Ceci permettra une meilleure connaissance de l'évolution de différentes espèces chimiques entre leurs phases solide (combustible) et particulaire (aérosols), en fonction de la température et de la composition locale de gaz.

Ensuite, il serait intéressant de réaliser des prélèvements simultanés en plusieurs points d'une installation (par exemple, juste au-dessus du lit de combustible, avant et après l'arrivée d'air secondaire, avant et après l(es) échangeur(s) de chaleur et après le traitement de fumées), accompagnés par de mesures de température, de vitesse (dans la mesure du possible) et concentration de gaz aux mêmes endroits. Afin de dresser un bilan de matière le plus précis possible, une collecte de cendres et d'échantillons des dépôts sur les parois de la chaudière et des tubes d'échange de chaleur serait nécessaire. L'analyse des échantillons ainsi récoltés, couplée à une caractérisation de l'écoulement des gaz sur l'ensemble de l'installation (possible par calcul de mécanique de fluides numérique), permettra de trancher sur la possibilité d'appliquer des techniques primaires d'abattement des particules ultrafines.

Dans tous les cas de figures, on tient à souligner l'importance cruciale de la maîtrise de flux entrants et sortants, ainsi que la connaissance détaillée des conditions locales (température, écoulement et composition des gaz).

L'ADEME EN BREF

À l'ADEME - l'Agence de la transition écologique -, nous sommes résolument engagés dans la lutte contre le réchauffement climatique et la dégradation des ressources.

Sur tous les fronts, nous mobilisons les citoyens, les acteurs économiques et les territoires, leur donnons les moyens de progresser vers une société économe en ressources, plus sobre en carbone, plus juste et harmonieuse.

Dans tous les domaines - énergie, économie circulaire, alimentation, mobilité, qualité de l'air, adaptation au changement climatique, sols... - nous conseillons, facilitons et aidons au financement de nombreux projets, de la recherche jusqu'au partage des solutions.

À tous les niveaux, nous mettons nos capacités d'expertise et de prospective au service des politiques publiques.

L'ADEME est un établissement public sous la tutelle du ministère de la Transition écologique et du ministère de l'Enseignement supérieur, de la Recherche et de l'Innovation.

LES COLLECTIONS DE L'ADEME



FAITS ET CHIFFRES

L'ADEME référent : Elle fournit des analyses objectives à partir d'indicateurs chiffrés régulièrement mis à jour.



CLÉS POUR AGIR

L'ADEME facilitateur : Elle élabore des guides pratiques pour aider les acteurs à mettre en œuvre leurs projets de façon méthodique et/ou en conformité avec la réglementation.



ILS L'ONT FAIT

L'ADEME catalyseur : Les acteurs témoignent de leurs expériences et partagent leur savoir-faire.



EXPERTISES

L'ADEME expert : Elle rend compte des résultats de recherches, études et réalisations collectives menées sous son regard



HORIZONS

L'ADEME tournée vers l'avenir : Elle propose une vision prospective et réaliste des enjeux de la transition énergétique et écologique, pour un futur désirable à construire ensemble.