

# Détermination de la granulométrie des aérosols dans les émissions canalisées : cas d'une cimenterie.

I Fraboulet\*(1), X. Chaucherie (2), F. Gouriou (3), B. Graziotin (2), N. Karoski (1), H. Thille(4),  
O. Le Bihan (1)

(1) Direction des risques chroniques, Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques,  
Parc Technologique ALATA, BP 2, 60550 Verneuil-en-Halatte,

(2) SECHAUD Environnement (LECES) BP 40223 – 57282 Maizières-Lès-Metz,

(3) CERTAM, 1 rue J. Fourier, Technopôle du Madrillet, 76800 Saint-Etienne du Rouvray,

(4) Holcim (France) S.A.S., 192, avenue Charles de Gaulle 2200 Neuilly-sur-Seine

## TITLE

**Aerosol size distribution determination from stack emissions: the case of a cement plant.**

## ABSTRACT

Monitoring emissions of particles with a diameter smaller than 10  $\mu\text{m}$  (PM10) has become of growing interest. However, measuring such particles is rather difficult, it appears as a result necessary to develop and assess measurement methods for the monitoring of PM10 from stack and fugitive emissions. The aim of the GAEC program [Granulométrie des Aérosols dans les Emissions Canalisées : Aerosol size distribution from stack emissions] is double: developing monitoring methods and improving knowledge on fine particulate stack emissions. Three institutes are involved in the program: Séchaud Environnement (formerly LECES), INERIS and CERTAM.

This paper concerns the results obtained from the first two steps of the program:

- a state of the art of the available techniques,
- the evaluation of the selected techniques during a sampling campaign at a cement plant.

## RESUME

Face à l'intérêt grandissant concernant les émissions de particules de diamètre inférieur à 10  $\mu\text{m}$  et aux difficultés rencontrées lors de la mesure de ces particules, des développements métrologiques et l'évaluation des méthodes de mesurage en émissions canalisées et diffuses sont nécessaires. Le projet GAEC [Granulométrie des Aérosols dans les Emissions Canalisées] s'inscrit dans ce double contexte de développement métrologique et d'amélioration des connaissances sur les sources d'émission de particules fines. Il porte plus précisément sur la «Détermination de la granulométrie des aérosols dans les émissions industrielles canalisées : PM10, PM<sub>2,5</sub>, PM<sub>1</sub> et PM<sub>0,1</sub>». Il réunit trois partenaires : Séchaud Environnement (anciennement LECES), INERIS et CERTAM.

L'intervention proposée ici a pour objectif de rapporter les résultats obtenus lors des deux premières phases du projet, à savoir :

- une étude bibliographique de l'état de l'art sur les techniques de mesure disponibles
- la mise en œuvre des techniques retenues lors d'une campagne de mesure menée sur une cimenterie.

## 1. INTRODUCTION

Afin de répondre à l'intérêt grandissant concernant les émissions de particules de diamètre inférieur à 10 µm et aux difficultés rencontrées lors de la mesure de ces particules, un cadre normatif a été mis en place : un groupe de travail international s'est constitué en 2003 sur le sujet de la mesure de PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub> à l'émission des sources fixes (ISO TC 146 SC1 GT 20). Le projet GAEC [Granulométrie des Aérosols dans les Emissions Canalisées] objet de cette communication, s'inscrit dans un double contexte de développement métrologique et d'amélioration des connaissances sur les sources d'émission de particules fines. Financée par le MEDD et l'ADEME (convention ADEME n° 02-74-C0018), cette étude porte plus précisément sur la « Détermination de la granulométrie des aérosols dans les émissions industrielles canalisées : PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, PM<sub>1</sub> et PM<sub>0,1</sub> ». Elle réunit trois partenaires : Séchaud Environnement (anciennement LECES), INERIS et CERTAM.

Les objectifs généraux du projet GAEC sont au nombre de quatre :

- définir une méthodologie de mesurage de la granulométrie des aérosols dans les émissions canalisées,
- tester des techniques de mesurage manuelles et automatiques permettant de couvrir un large spectre granulométrique : de 0,03 à 10 µm,
- étudier, sur 3 émetteurs industriels, les résultats obtenus par les différentes techniques retenues,
- soutenir par des données expérimentales les travaux du groupe de normalisation ISO TC 146 SC1 GT 20 relatif aux PM à l'émission.

Une première phase a permis la réalisation d'un état de l'art sur l'enjeu sanitaire des particules et les techniques de mesurage disponibles ; un certain nombre de techniques ont alors été sélectionnées pour être mises en œuvre et testées sur le terrain lors d'une première campagne de mesurage (phase 2). Les objectifs de cette première campagne ont été d'évaluer l'aspect opérationnel des appareillages ainsi que de vérifier leur cohérence en terme de métrologie. Il ne s'agissait en aucun cas de démontrer leur équivalence, ce qui nécessiterait un nombre plus important d'essais et d'appareils.

## 2. CONDITIONS EXPERIMENTALES

### 2.1 SITE DE MESURE

La première campagne a eu lieu en cimenterie. La fabrication du ciment comprend principalement 4 étapes :

➤ Extraction des matières premières :

Les matières premières qui entrent dans la fabrication du ciment, essentiellement le calcaire et l'argile, sont extraites de carrière. D'autres produits sont utilisés pour corriger les teneurs en silice (sables de fonderie), en fer (oxydes de fer) et éventuellement en alumine (boues d'alumine).

➤ Séchage et broyage des matières premières :

Pour favoriser les réactions chimiques ultérieures, ces matières sont séchées et broyées très finement pour en faire une farine crue.

➤ Cuisson :

La cuisson du mélange cru a lieu dans un four rotatif.

Au cours de la cuisson, les réactions chimiques suivantes se produisent :

- le calcaire est décarbonaté (formation de chaux),
- l'argile est dissocié (silice et alumine) et se combine avec la chaux pour former des silicates et aluminates de chaux constituant le clinker.

➤ Préparation pour passer du clinker au ciment.

Le clinker est ensuite stocké puis subit différentes opérations (broyage, ajout de différents éléments comme le gypse ou d'autres minéraux) pour en faire du ciment.

Les mesures ont été réalisées sur la cheminée principale d'évacuation des fumées d'un des fours après dépoussiérage par électrofiltre ; ce four fonctionne par voie semi sèche (grille LEPOL à chaîne)

## 2.2 TECHNIQUES MISES EN OEUVRE

Les techniques sélectionnées pour cette campagne sont présentées ci-dessous :

- Méthodes manuelles
  - Un impacteur en cascade JOHNAS (Hermans, 2001)
  - Un impacteur en cascade DEKATI
  - La méthode de référence TSP
- Méthodes automatiques : granulomètres
  - Un impacteur électrique ELPI avec diluteur préleveur FPS (avec tête de prélèvement PM2,5) ; taux de dilution 9
  - Un analyseur de mobilité SMPS avec diluteur préleveur FPS et diluteur PALAS VKL10 (avec tête de prélèvement PM2,5), taux de dilution 90
- Méthodes automatiques : massiques
  - Une microbalance TEOM 7000 (version PM2,5)
  - Une microbalance TEOM 1105 avec préleveur diluteur FPS (avec tête de prélèvement PM2,5)

## 3. RESULTATS ET DISCUSSION

### 3.1 METHODES MANUELLES

Les objectifs de la comparaison des méthodes manuelles étaient d'évaluer l'aspect opérationnel des impacteurs ainsi que de vérifier la cohérence des résultats fournis. Il ne s'agissait pas de démontrer leur équivalence, ce qui nécessiterait un nombre plus important d'essais et d'appareils permettant de réaliser une étude statistique des résultats.

D'un point de vue opérationnel, durant la campagne, il n'y a pas eu de problème relatif à la mise en œuvre des deux impacteurs, contrairement à ce qui avait été observé pour la génération précédente de ce type d'appareils. Les résultats bruts obtenus par les deux impacteurs et la méthode TSP ainsi que les répartitions par fraction sont présentés dans les deux tableaux suivants.

Tableau 1 : Résultats bruts méthodes manuelles

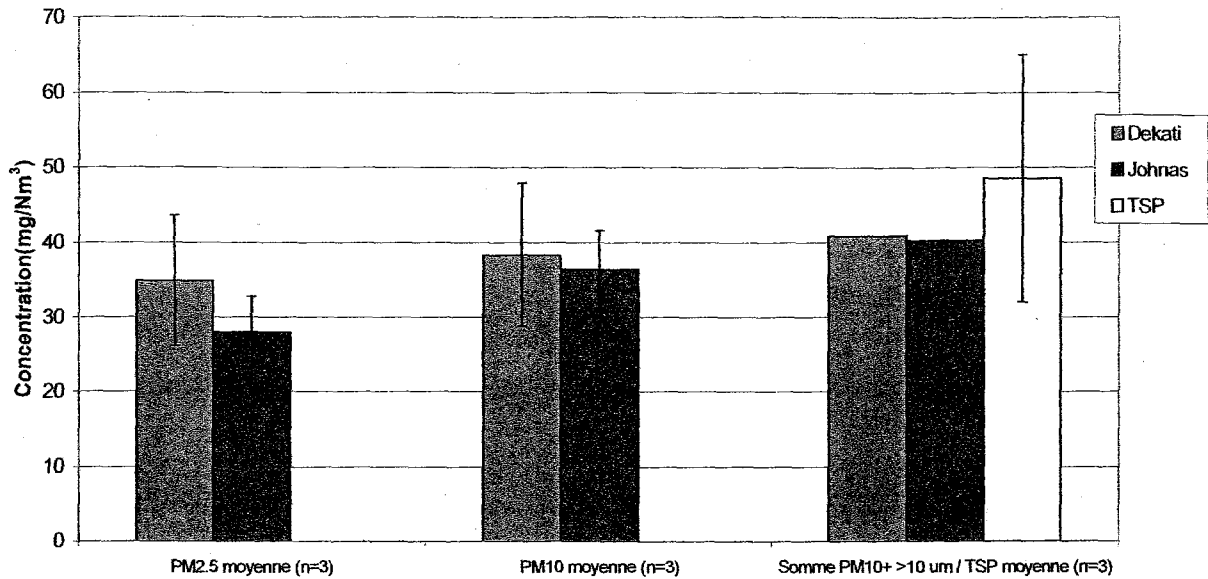
	Essai 1			Essai 2			Essai 3		
	DEKATI	JOHNAS	TSP	DEKATI	JOHNAS	TSP	DEKATI	JOHNAS	TSP
PM1 mg/m <sup>3</sup> *	26,4			34,9			29,3		
PM2,5 mg/m <sup>3</sup>	31,5	19,4		39,8	38,8		33,4	25,8	
PM10 mg/m <sup>3</sup>	35,3	28,1		43,3	49,9		37,3	32,4	
Total mg/m <sup>3</sup>	36,7	31,9	43,8	47,1	54,8	56,6	39,8	35,0	45,2

\* volume rapporté aux conditions normales de pressions et de température (t : 0°C, P : 1013 hPa)

Tableau 2 : Répartition (%) par fractions

	Essai 1		Essai 2		Essai 3	
	DEKATI	JOHNAS	DEKATI	JOHNAS	DEKATI	JOHNAS
PM1	72		74		74	
PM2,5	85	61	85	71	85	74
PM10	96	88	92	91	94	93

Figure 1 : Comparaison des résultats moyens obtenus avec les deux impacteurs et la méthode de référence

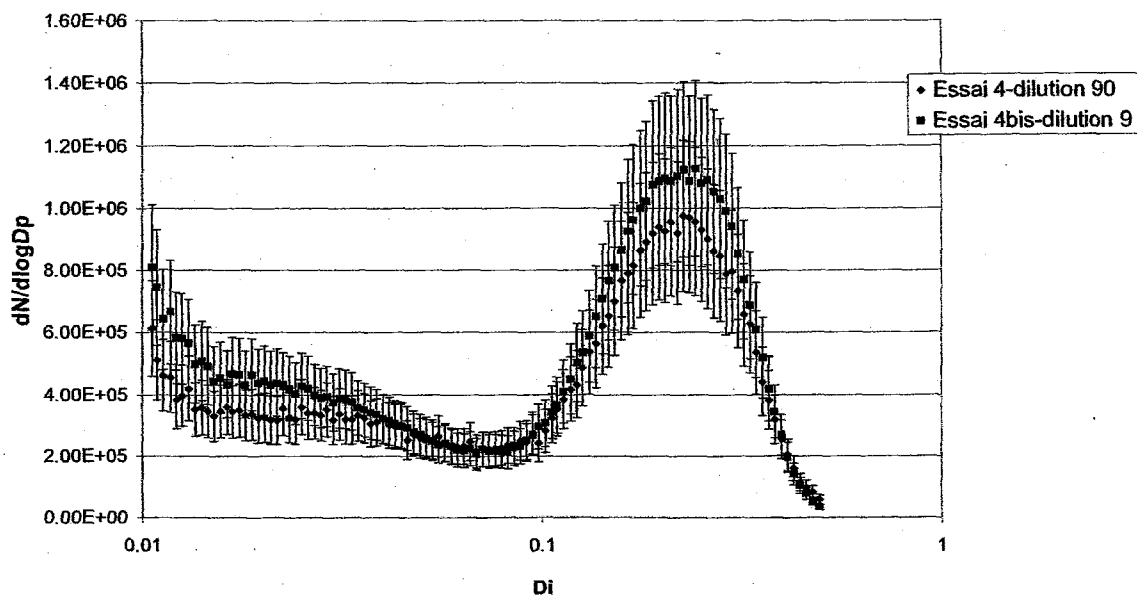


Pour les mesures PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub>, sur la base des intervalles de confiance de répétabilité définis dans le projet de norme ISO, les résultats obtenus par les deux impacteurs peuvent être considérés comme comparables (Figure 1).

### 3.2 GRANULOMETRIE

La comparaison des granulométries obtenues par le SMPS à deux taux de dilution (9 et 90) différents a permis de montrer que la multiplication du taux de dilution par un facteur 10 n'entraîne pas de variation significative de la granulométrie, tout particulièrement, nous n'observons pas de transformation telle qu'un grossissement (Figure 2).

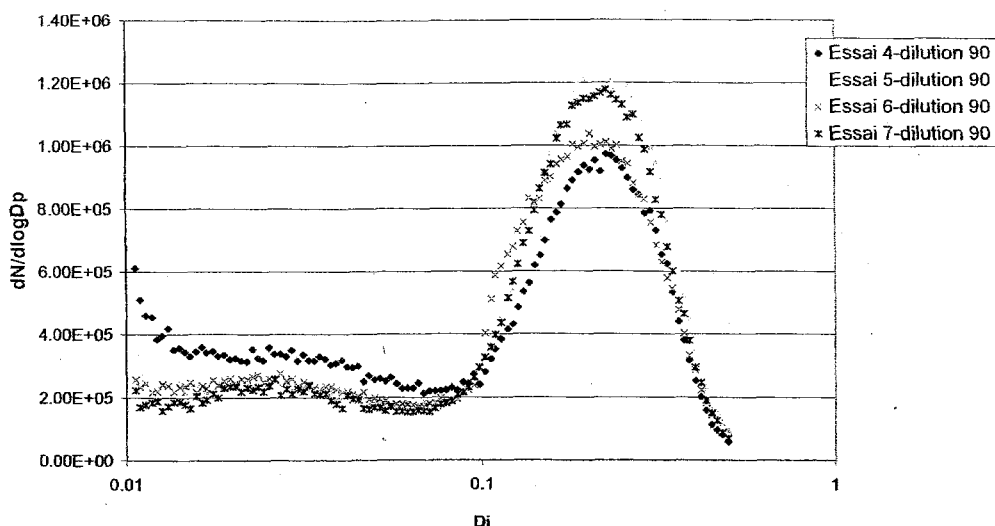
Figure 2 : Comparaison des granulométries obtenues par le SMPS à deux taux de dilution



Les granulométries obtenues par le SMPS au cours de la campagne sont très comparables, puisque le mode (Dp pour lequel dN/dlogDp est maximal) pour les quatre essais est situé vers 200 nm, et que

le  $dN/d\log D_p$  max varie de  $1.0 \text{ E}+6$  à  $1.2 \text{ E}+6$  (Figure 3). La granulométrie de l'aérosol étant à priori fortement liée au régime du procédé, les résultats obtenus suggèrent que celui-ci était stable au cours des essais.

Figure 3 : Comparaison des granulométries obtenues par le SMPS



L'utilisation conjointe de l'ELPI et du SMPS pour mesurer la granulométrie des aérosols a été décrite précédemment (Keskinen et al, 1998 ; Ristimäki et al, 2002); si cette pratique a montré de bons résultats dans le cas de particules sphériques et dans une moindre mesure de particules non sphériques compactes, elle s'applique difficilement aux aérosols plus complexes tels que les agrégats de suie. Après évaluation des diamètres de Stokes mesurés par l'ELPI à différentes densités, il est possible de comparer les diamètres mesurés par l'ELPI et le SMPS. La méthode de comparaison utilisée ici, permet d'émettre l'hypothèse d'une valeur de densité de l'aérosol égale à 3 ; il est intéressant de souligner le fait que cette valeur est compatible avec la valeur de densité du produit fini obtenu par l'exploitant du site industriel.

### 3.3 METHODES AUTOMATIQUES MASSIQUES

Les mesures massiques automatiques (n=4) ont été réalisées avec les TEOMs d'une part et l'ELPI d'autre part. Les concentrations massiques obtenues par les méthodes automatiques sont du même ordre de grandeur, cependant nous avons noté que l'ELPI surestimait la détermination massique alors que les TEOMs ont tendance à la sous-estimer par rapport à la méthode gravimétrique.

En ce qui concerne le TEOM 7000, la mesure des  $PM_{2.5}$  à l'émission constituait une première ; si une bonne cohérence a été démontrée dans le passé entre le TEOM 7000 et la méthode TSP pour la mesure des particules totales (Chaucherie et Gonnet, 2003), des essais supplémentaires sont nécessaires afin de pouvoir conclure sur la mesure des  $PM_{2.5}$ .

### 3.4 CONCLUSION

Cette campagne réalisée en cimenterie a constitué une étape très importante du projet GAEC. En effet, son objectif a été de mettre en œuvre, sur le terrain l'ensemble des instruments sélectionnés dans la première phase du projet.

En ce qui concerne les méthodes manuelles, les impacteurs DEKATI et JOHNAS ont montré de bonnes qualités opérationnelles et une bonne cohérence au niveau des mesures  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$ . L'un et l'autre seront utilisés indifféremment pour la suite du projet.

S'agissant des méthodes automatiques, les résultats obtenus pour la détermination de la masse par les TEOMs et l'ELPI sont du même ordre de grandeur. La configuration  $PM_{2.5}$  du TEOM7000 semble prometteuse ; cependant ses qualités de mise en œuvre doivent être confirmées.

En terme de granulométrie submicronique, le site a montré des caractéristiques très intéressantes avec une grande stabilité granulométrique (équivalence des granulométries d'heure en heure et

même d'un jour à l'autre), mais aussi en terme d'évolution avec des résultats très comparables après des dilutions d'un facteur dix et cent. La sonde de prélèvement et de dilution FPS atteint d'ores et déjà, pour un produit récent, un très bon niveau de maturité. Elle devrait se révéler un pré requis indispensable à la mise en œuvre des granulomètres.

Le couplage des granulomètres ELPI et SMPS s'est avéré très utile, d'une part parce qu'il facilite la validation des observations et d'autre part parce qu'il ouvre la voie à la détermination de la masse volumique du rejet particulaire.

## REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient l' ADEME (Contrat 04-74-C0018), le Ministère de L'Ecologie et du Développement Durable (programme INERIS/DRC07) et la société HOLCIM.

## REFERENCES

Chaucherie X et Gonnet, Mesure en temps réel des concentrations massiques de poussières à l'émission de sources fixes. CFA, 2003

ISO TC 146/SC 1 Stationary source emissions – Determination of PM10/PM2,5 primary particle mass concentration in flue gas

John AC, Kuhlbusch TAJ, Fissan H, Broker G, Geueke KJ, Development of a PM10/PM2.5 cascade impactor and in-stack measurements, *Aerosol Science and Technology*, 37(9) : 694-702, Sep 2003

Keskinen J, Virtanen A, Ahlvik P, Ntziachristos L, Estimation of effective density of diesel particles , *Journal of Aerosol Science*, Volume 29, Supplement 2, Pages S1007-S1008, September 1998

Marjamaki M.; Keskinen J.; Chen D.-R.; Pui D.Y.H. Performance evaluation of the electrical low-pressure impactor (ELPI), *Journal of Aerosol Science*, Volume 31, Number 2, pp. 249-261(13), February 2000

Ristimaki J.; Virtanen A.; Marjamaki M.; Rostedt A.; Keskinen J, On-line measurement of size distribution and effective density of submicron aerosol particles, *Journal of Aerosol Science*, Volume 33, Number 11, pp. 1541-1557(17), November 2002,

Vincent, J. J. *Aerosol Science for Industrial Hygienists*. New York: Pergamon, 1995