
Cours VET

« Environnement atmosphérique et qualité de l'air »

Émissions

Christian Seigneur
Cerea

Michel André
Ifsttar

Plan du cours

- Sources de polluants atmosphériques
- Formation et émission des polluants atmosphériques
- Inventaires d'émissions de polluants atmosphériques
- Réductions des émissions de polluants émis par les sources fixes
- Émissions du trafic routier : Michel André, IFSTTAR

Polluants atmosphériques

- Polluants primaires : émis directement dans l'atmosphère
 - particules, monoxyde de carbone, oxydes d'azote, composés organiques volatiles, dioxyde de soufre, etc.
- Polluants secondaires : formés par réactions chimiques dans l'atmosphère
 - ozone, pluies acides, particules secondaires, etc.

Sources anthropiques et naturelles



Sources de pollution atmosphérique

- Sources anthropiques (dues aux activités humaines)
 - Transports (routier, aérien, maritime, ferroviaire...)
 - Industrie (centrales électriques, incinérateurs, sidérurgie...)
 - Agriculture (engrais, élevage...)
 - Secteur résidentiel (chauffage, produits sanitaires...)
- Sources naturelles
 - Végétation
 - Sols (érosion éolienne...)
 - Océans
 - Volcans, sources géothermales, foudre, feux de forêts...

Émissions de polluants atmosphériques

Polluants formés lors de la combustion

- à partir de l'air
- à partir d'éléments présents dans le combustible et émis lors de la combustion (sous diverses formes chimiques)

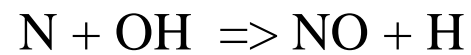
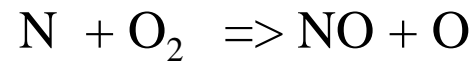
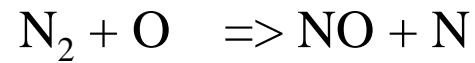
Polluants émis par volatilisation

Polluants émis par des processus mécaniques

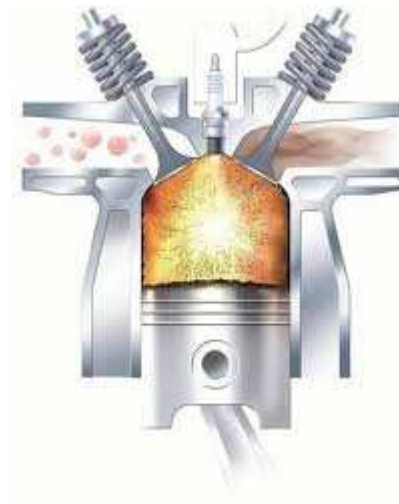
Polluants produits par des processus naturels, puis émis naturellement ou suite à des perturbations anthropiques

Émissions de polluants Combustion

- Polluants formés lors de la combustion à partir de l'air
 - Oxydes d'azote (NO_x) : NO, NO_2 et HONO



...



Émissions de polluants

Combustion

- Polluants formés à partir d'éléments présents dans le combustible (hydrocarbure, charbon... + impuretés telles que soufre, mercure...)
 - Dioxyde de carbone (CO_2)
 - Monoxyde de carbone (CO)
 - Composés organiques volatils (benzène, formaldéhyde...)
 - Composés organiques semi-volatils et non-volatils (hydrocarbures aromatiques polycycliques, dioxines et furanes...)
 - Particules de suie
 - Oxydes de soufre (SO_2 et SO_3)
 - Composés minéraux halogénés (HCl)
 - Mercure (Hg^0 , HgCl_2 ...)
 - ...



Émissions de polluants

Volatilisation

- Polluants émis par volatilisation
 - Composés organiques volatils (essences, peintures...)
 - Mercure élémentaire (sols, océans...)
 - Ré-émission de composés déposés sur les sols (POPs, mercure...)



Émissions de polluants

Processus mécaniques

- Polluants émis par des processus mécaniques
 - Métaux (abrasion des freins, usure des caténaires, activités industrielles...)
 - Poussières (activités agricoles, construction, resuspension due au trafic...)



Émissions de polluants

Processus naturels

- Polluants émis par des processus naturels
 - Composés organiques volatils émis par la végétation (isoprène, méthylbuténol, monoterpènes, sesquiterpènes, terpénoïdes...)
 - Méthane
 - Composés soufrés (diméthylsulfure des océans, H₂S des sources géothermiques, SO₂ des volcans)
 - Composés azotés (ammoniac, protoxyde d'azote (N₂O) ...émis en surface ; NO₂ émis par les éclairs en altitude)
 - Poussières éoliennes
 - Sels marins
 - Produits des feux de biomasse (CO₂, CO, NO_x, COV, particules...)
 - ...



Dioxyde de soufre (SO₂)

- Émissions globales annuelles*
 - Énergies fossiles
et sources industrielles : 70 Tg
 - Feux de biomasse : 3 Tg
 - Volcans : 8 Tg

* en Tg (10¹² g) de soufre

Oxydes d'azote (NO et NO₂)

- Émissions globales annuelles*
 - Énergies fossiles : 25 Tg
 - Sols : 12 Tg
 - Feux de biomasse : 8 Tg
 - Foudre : 5 Tg
 - Aviation : 0,5 Tg
- Formation dans l'atmosphère*
 - Oxydation de l'ammoniac : 3 tonnes

* en Tg (10¹² g) d'azote

Ammoniac (NH₃)

- Émissions globales annuelles*
 - Élevage : 22 Tg
 - Engrais : 6 Tg
 - Feux de biomasse : 2 Tg
 - Végétation : 5 Tg
 - Animaux sauvages : 3 Tg
 - Océans : 7 Tg

* en Tg (10¹² g) d'azote

Monoxyde de carbone (CO)

- Émissions globales annuelles
 - Activités humaines : 400 Tg
 - Feux de biomasse : 500 Tg
 - Végétation : 100 Tg
 - Océans : 100 Tg
- Formation dans l'atmosphère
 - Oxydation du méthane : 700 Tg
 - Oxydation d'autres COV : 400 Tg

Méthane (CH₄)

- Émissions globales annuelles
 - Énergies fossiles : 100 Tg
 - Activités agricoles : 275 Tg
 - Sources naturelles : 160 Tg

Composés organiques volatils (COV)

- Émissions globales annuelles*
 - Transport routier : 40 Tg
 - Combustion du bois : 25 Tg
 - Utilisation de solvants : 20 Tg
 - Production d'énergies fossiles : 20 Tg
 - Autres sources anthropiques : 40 Tg
 - Végétation : 1150 Tg

* en Tg (10^{12} g) de C ; les émissions de COV listées ici excluent celles du méthane (peu réactif)

Particules

- Émissions globales annuelles
 - Industrie : 100 Tg
 - Transport : 10 Tg
 - Sources naturelles (sels marins, poussières éoliennes, volcans, pollens...) : 3000 Tg
- Formation dans l'atmosphère
 - Activités humaines : 350 Tg
 - Sources naturelles : 250 Tg

Particules fines

- Pour les particules, la taille et la composition chimique sont très importantes pour déterminer leur impact sanitaire et environnemental
- Les inventaires de particules ne reflètent donc pas les impacts potentiels de ces émissions

Mercure

- Émissions globales annuelles
 - Industrie* : 2200 Mg
 - Sols et végétation§ : 2200 Mg
 - Volcans : 120 Mg
 - Océans§ : 2000 Mg

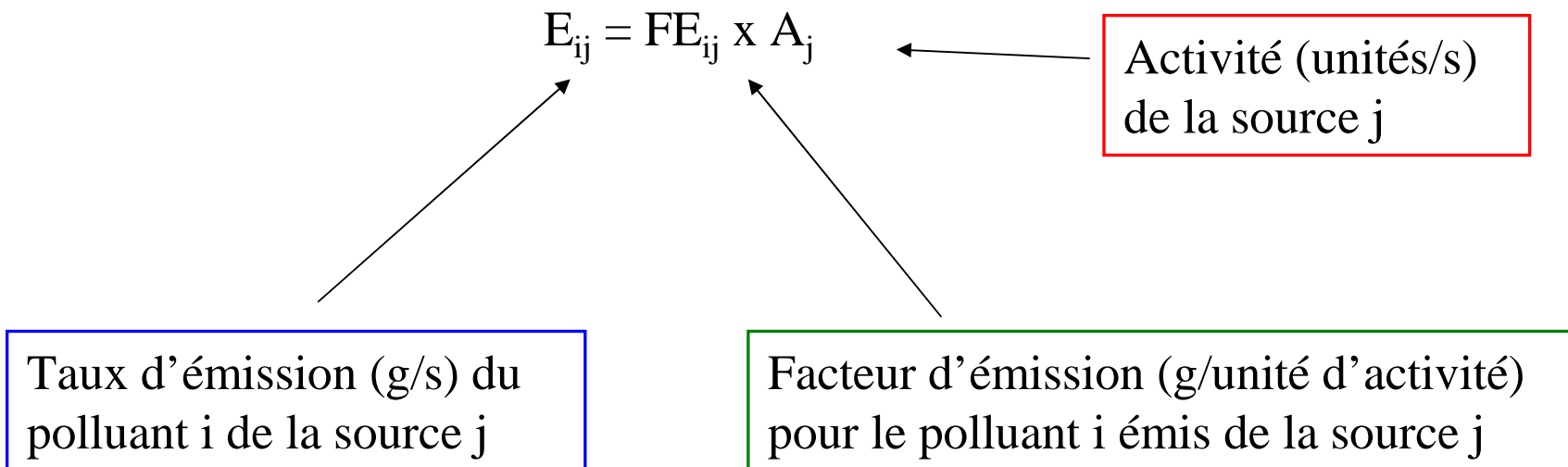
* centrales électriques au charbon, incinérateurs, etc.

§ émissions directes et ré-émissions partielles de dépôts de mercure

1 Mg = 10^6 g = 1 tonne

Inventaires d'émissions

L'équation fondamentale pour l'estimation des émissions de polluants d'une source est :



Inventaires d'émissions

Activité d'une source

L'activité d'une source est définie de façon différente selon les types de sources, par exemple :

- Trafic automobile : kilomètres parcourus par heure
- Centrale électrique : production électrique par an
- Chauffage résidentiel : quantité de combustible consommée par an

Pour les sources biogéniques, le taux d'émission est calculé directement

Pour les polluants de certaines sources industrielles (SO_2 et NO_x des centrales électriques par exemple), le taux d'émission est mesuré directement à l'émission (dans la cheminée)

Inventaires d'émissions

Facteurs d'émission d'une source

Les facteurs d'émissions peuvent être obtenus de plusieurs façons :

- mesures à la source (pour un type de source)
- estimation à partir d'un bilan matière (par exemple concentration d'un élément dans le charbon)
- simulation (par exemple pour la spéciation de certaines espèces)

Inventaires d'émissions

Résolution spatio-temporelle

Une fois les taux d'émissions calculés, ils doivent être répartis dans l'espace (cadastre d'émissions) et dans le temps (profils temporels)

- Résolution spatiale

- sources ponctuelles : elles peuvent être localisées exactement
- sources surfaciques : on utilise des facteurs suppléants qui permettent de distribuer spatialement les émissions totales
- sources linéiques : elles peuvent être localisées exactement et sont généralement attribuées aux mailles d'un cadastre avec un système d'information géographique (SIG)

- Résolution temporelle

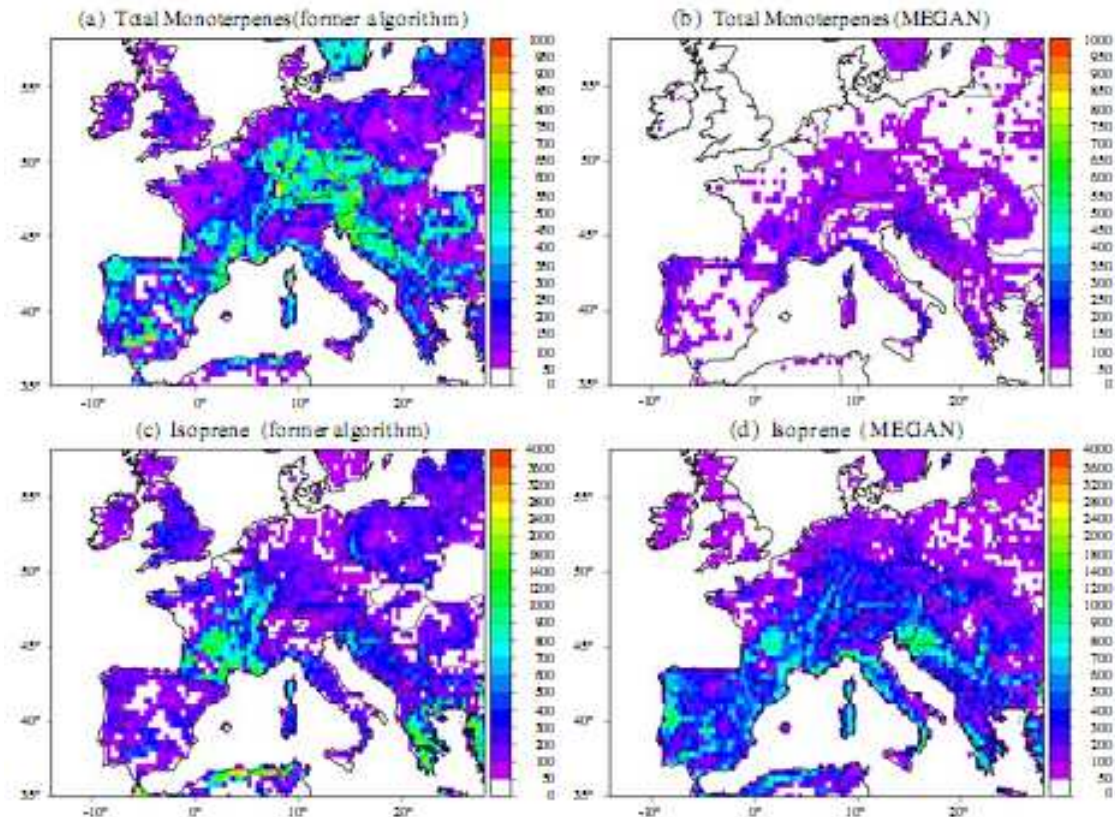
- Des profils horaires sont généralement nécessaires

Émissions biogéniques de COV

Modèle EMEP

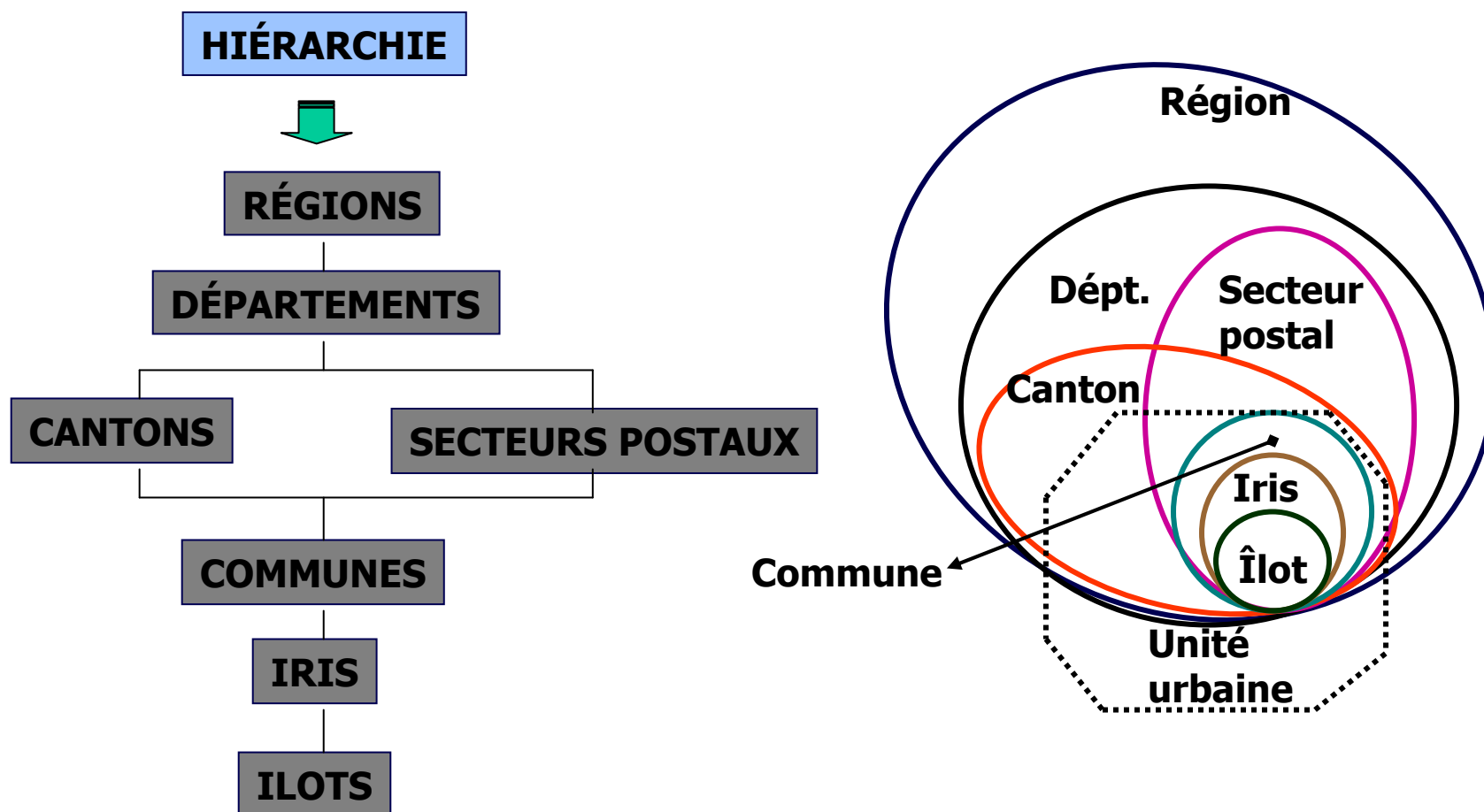
Modèle MEGAN

Monoterpènes



Isoprène

Résolution spatiale administrative (INSEE)

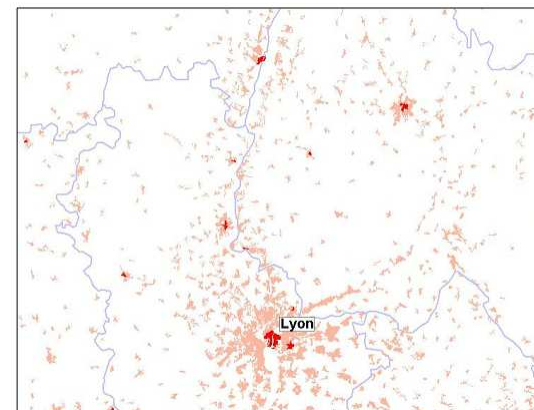
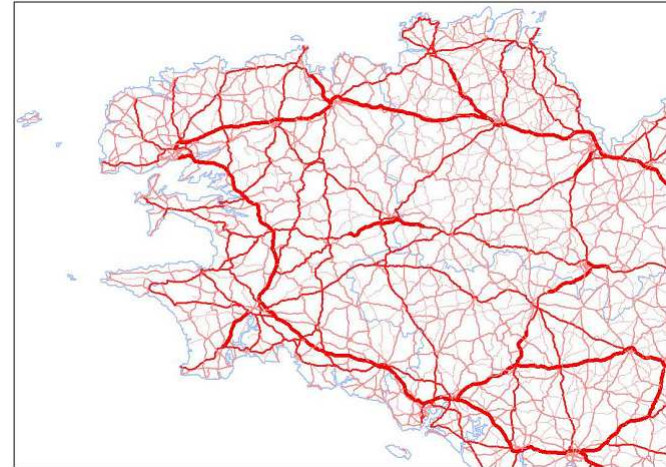


INSEE : Institut national de la statistique et des études économiques

IRIS : Îlots regroupés pour l'information statistique

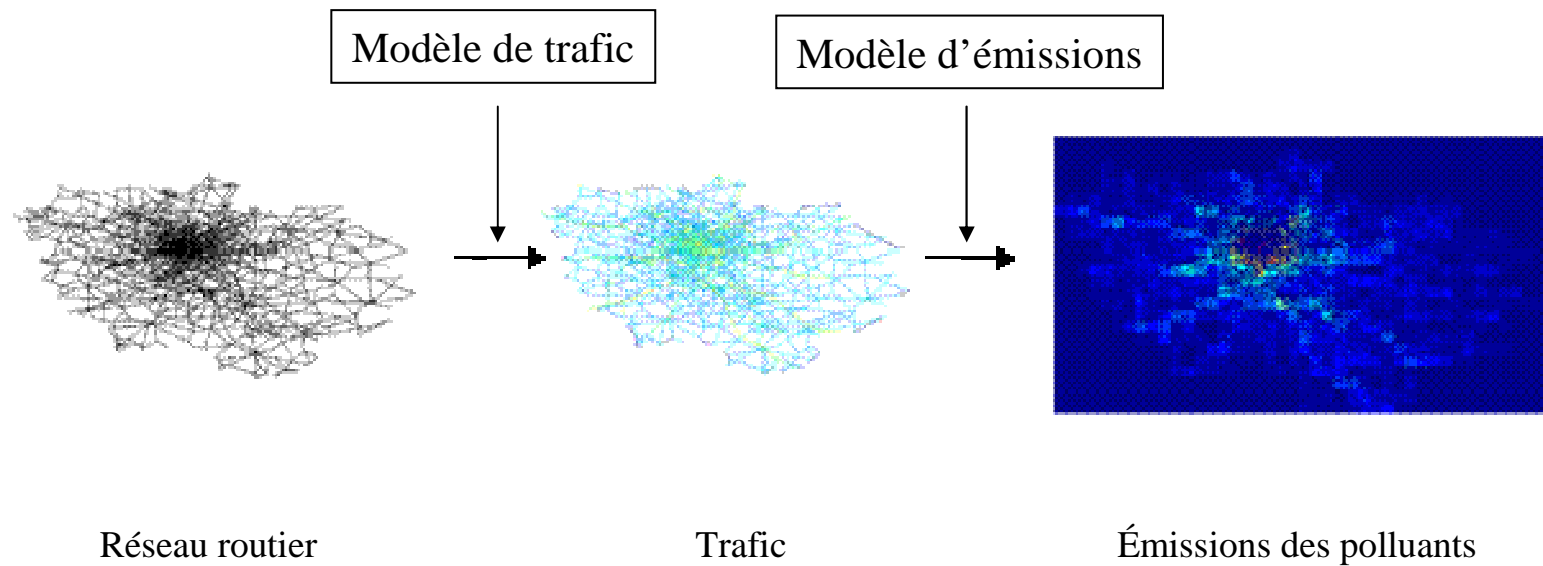
Trafic routier

- Trafic des grands axes (autoroutes, nationales & départementales)
 - modèles de trafic (Paris, ESCOMPTE)
 - compteurs de trafic (SIREDO...)
 - valeurs par défaut
- Trafic diffus
 - répartition sur les communes
- Stationnement



SIREDO : système informatisé de recueil de données

Résolution spatiale pour les émissions du trafic



Exemple de spatialisation des émissions du trafic routier sur l'Île-de-France

Polluants atmosphériques

- Polluants pris en compte par le ministère de l'Écologie (MEEDDM) :
 - monoxyde de carbone (CO)
 - oxydes d'azote (NO_x)
 - dioxyde de soufre (SO₂)
 - composés organiques volatils (COV), y compris benzène (C₆H₆) et formaldéhyde (HCHO)
 - ammoniac (NH₃)
 - particules (PM)
 - métaux (As, Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Se, V et Zn)
 - POP (HAP et dioxines/furannes)
 - GES (CO₂, CH₄ et N₂O)

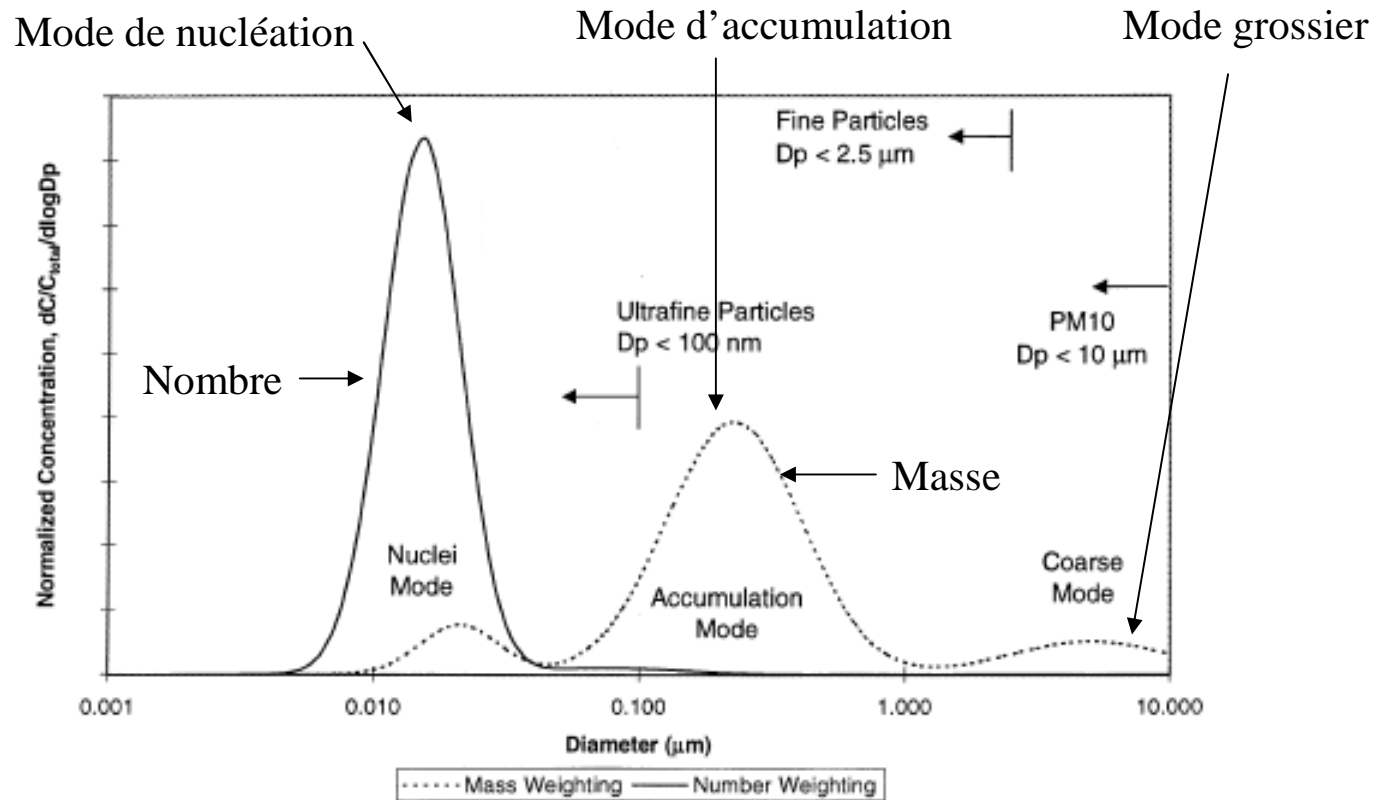
Polluants atmosphériques

- Autres polluants :
 - produits phytosanitaires
 - PCB, HCl, HF
 - autres GES
 - autres métaux lourds (Co, Mn, Pd, Pt, Sb...)
 - HNO₃
 - autres POP (HCB, PCPh...)

Spéciation chimique

- COV :
 - Spéciation par molécules
 - Regroupement par espèces « modèle »
- NO_x: NO et NO₂
- SO_x: SO₂ et SO₃ (H₂SO₄)
- HAP : par exemple 8 composés (toxicité)
- PM : sulfate, carbone organique (OC), carbone suie (EC) et NaCl pour les sels marins
- Produits phytosanitaires (toxicité)
- Chrome : Cr^{VI} (cancérogène) et Cr^{III}
- Mercure : Hg⁰, Hg^{II} et Hg_p

Granulométrie des particules



Source : adapté de Kittelson, *JAS*, **29**, 575, 1998

Géoréférencement

- Lambert 2 : utilisé par des AASQAs et les administrations
- UTM : utilisé par des AASQAs avec des situations trans-frontalières
- Latitude/longitude : utilisé par des organismes d'études et de recherche

- La possibilité de spatialiser l'inventaire avec plusieurs systèmes de projection est souhaitable

AASQA : Association agréée de surveillance de la qualité de l'air

Résolution spatiale

- Mailles de 1 km pour les inventaires régionaux réalisés par les Agences de surveillance de la qualité de l'air (AASQAs) et l'inventaire national du ministère de l'Écologie (MEEDDM)
- Mailles de 50 km environ pour l'inventaire européen (EMEP)
- Mailles de l'ordre de 1° (environ 1000 km) à $0,25^\circ$ pour les inventaires globaux

Référentiels des sources

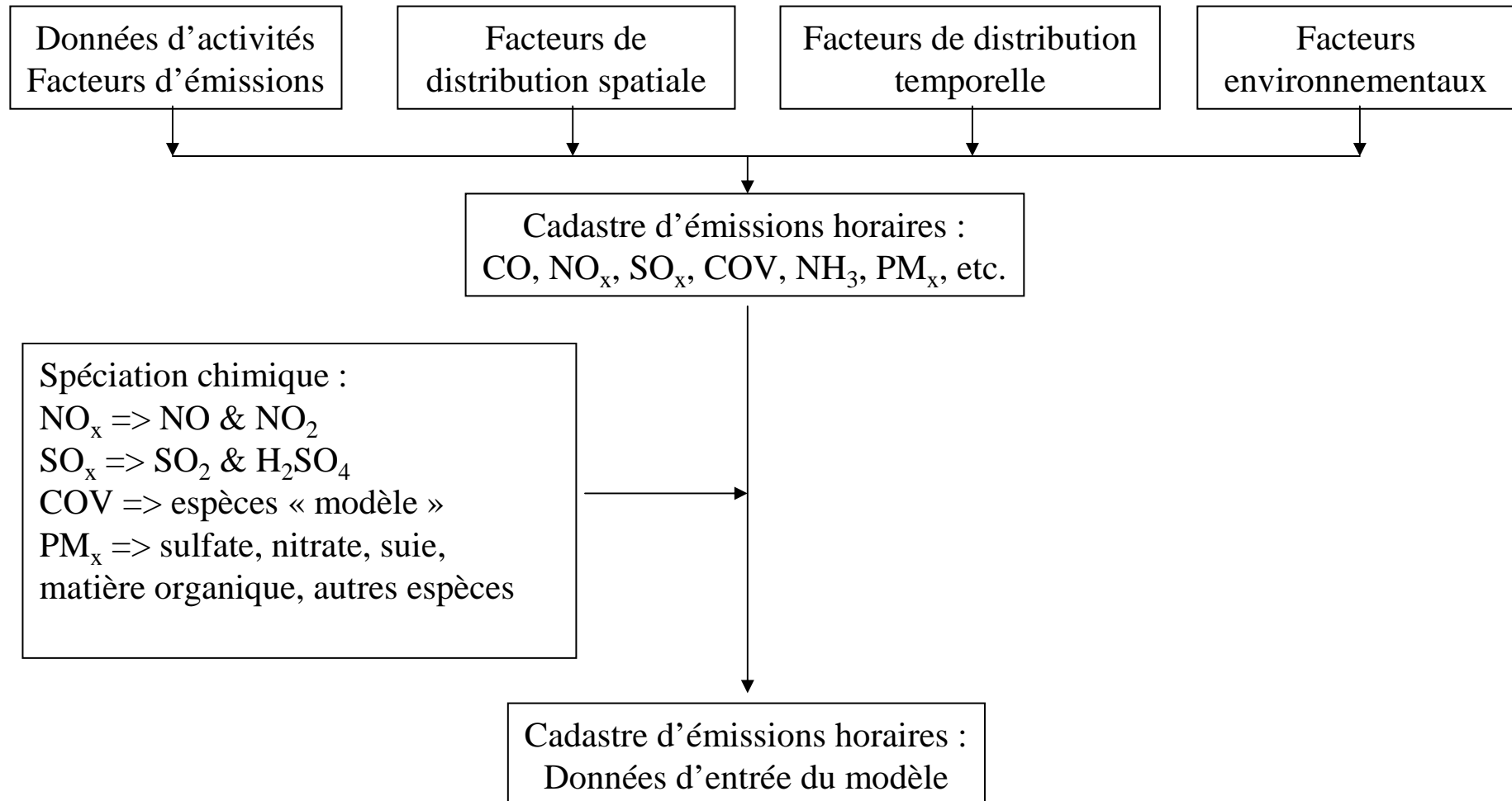
- Élaboration de l'inventaire :
 - SNAP : “Selected nomenclature for air pollution”

- Format de sorties :
 - SECTEN (Secteurs économiques et énergie)
 - SNAP
 - NFR (format européen, “nomenclature for reporting”), CRF, etc.

Réalisation de l'inventaire

- Inventaire des émissions
 - activités
 - facteurs d'émission
 - méthodes de répartition spatiale
 - clefs de répartition temporelle
 - spéciations chimiques
 - granulométrie des PM
- Logiciels pour la réalisation d'un inventaire spatialisé : « modèle d'émissions »

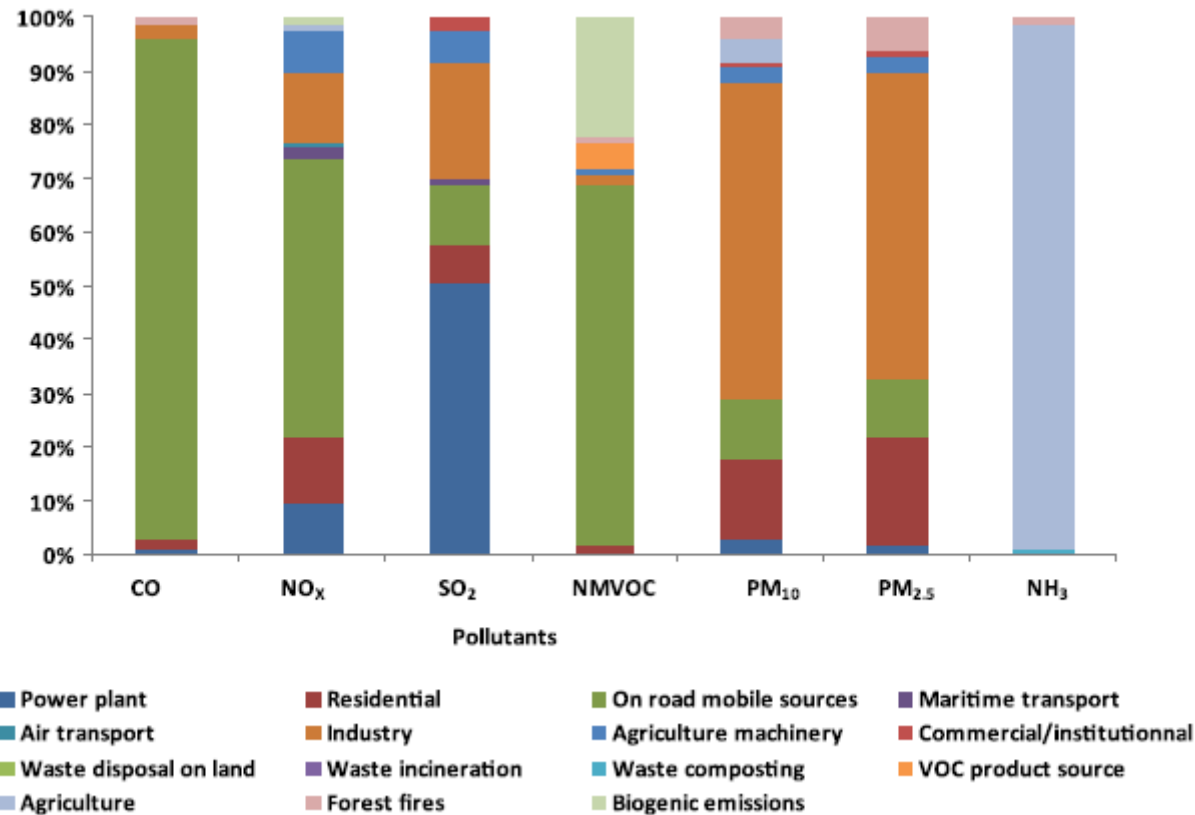
Réalisation d'un inventaire d'émissions



Manuels pour inventaires d'émissions

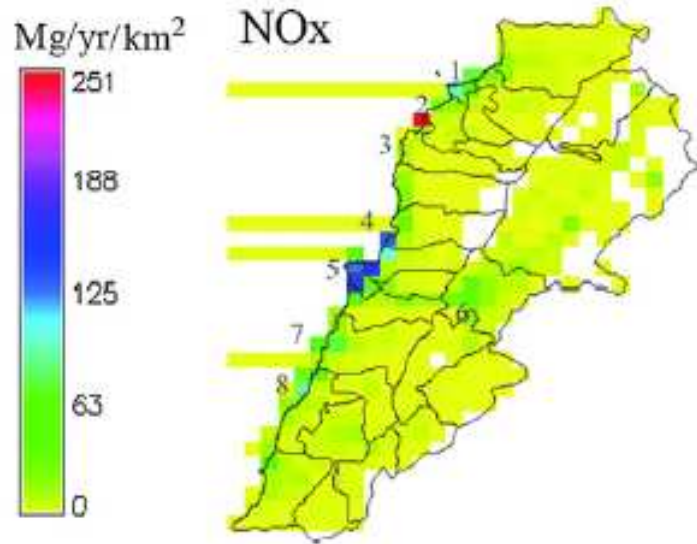
- Europe : EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook – 2009
<http://www.eea.europa.eu/publications/emep-eea-emission-inventory-guidebook-2009>
- France : Organisation et méthodes des inventaires nationaux des émissions atmosphériques en France (OMINEA)
<http://citepa.org/emissions/methodologie/index.htm>
- États-Unis : AP-42 Compilation of air pollutant emission factors
<http://www.epa.gov/ttnchie1/ap42/>

Exemple d'inventaire d'émissions



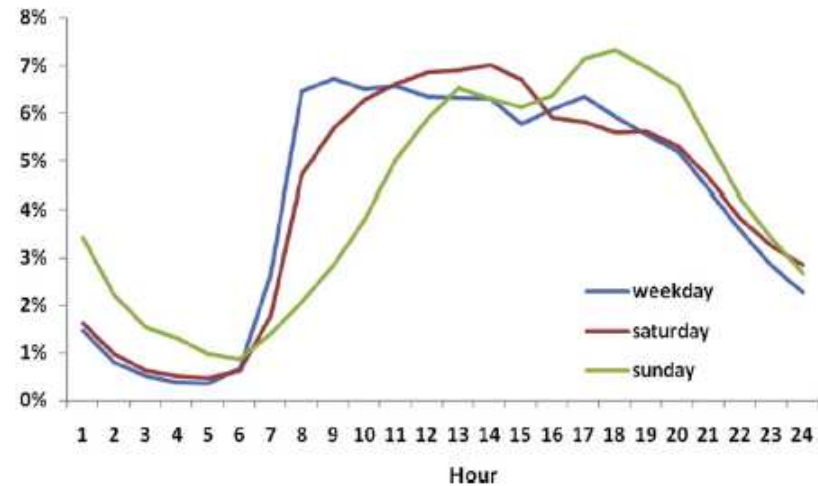
Émissions par catégorie de sources pour le Liban
Waked et al., *Atmos. Environ.*, **50**, 88-96 (2012)

Exemple d'inventaire d'émissions



Représentation spatiale des émissions d'oxydes d'azote (NO_x)

Représentation temporelle des émissions du trafic routier

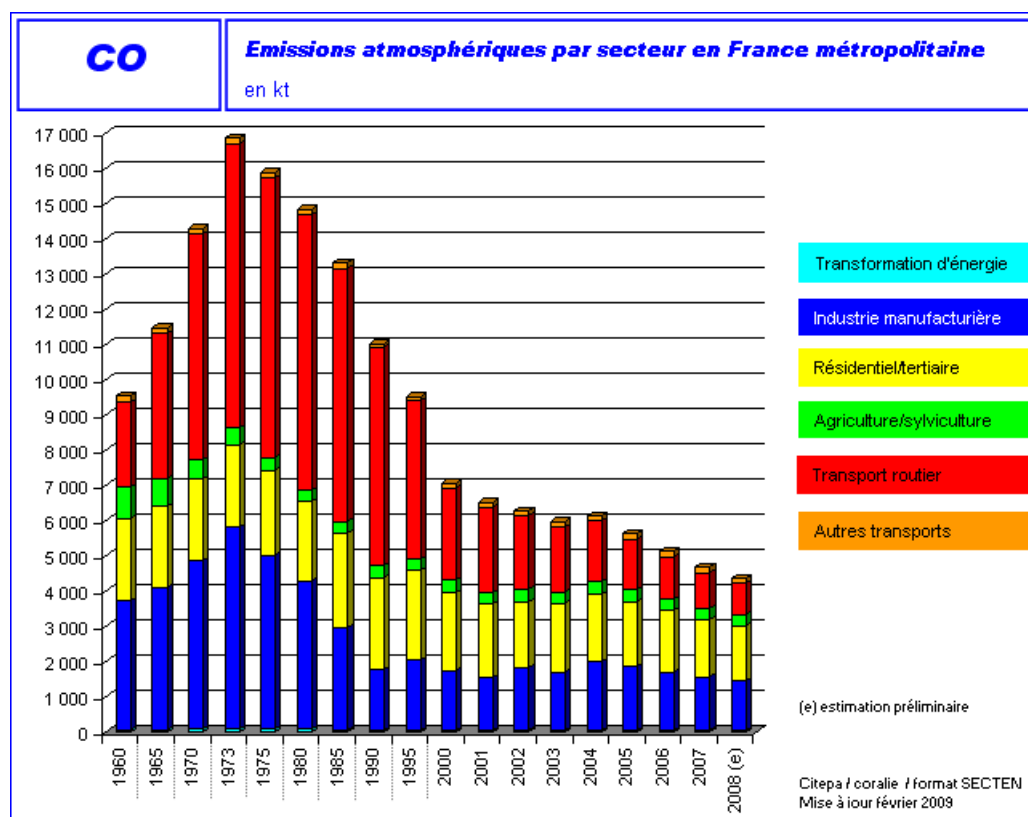


Représentation spatio-temporelle des émissions pour le Liban
Waked et al., *Atmos. Environ.*, **50**, 88-96 (2012)

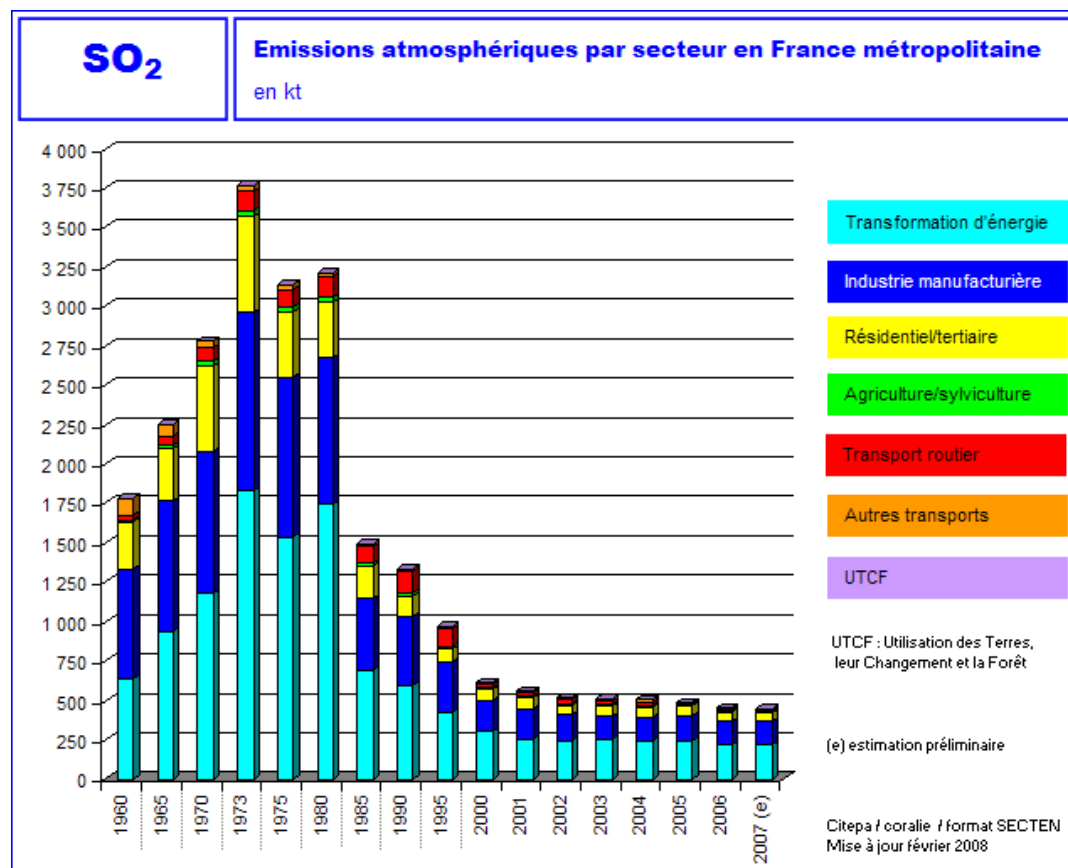
Évolution des émissions de polluants atmosphériques en France

- Polluants primaires qui sont émis directement dans l'atmosphère
 - particules, monoxyde de carbone, oxydes d'azote, composés organiques volatils, dioxyde de soufre, plomb, etc.
- Précurseurs de polluants secondaires qui sont formés par réactions chimiques dans l'atmosphère
 - oxydes d'azote, composés organiques volatils, dioxyde de soufre, ammoniac

Les émissions de monoxyde de carbone en France

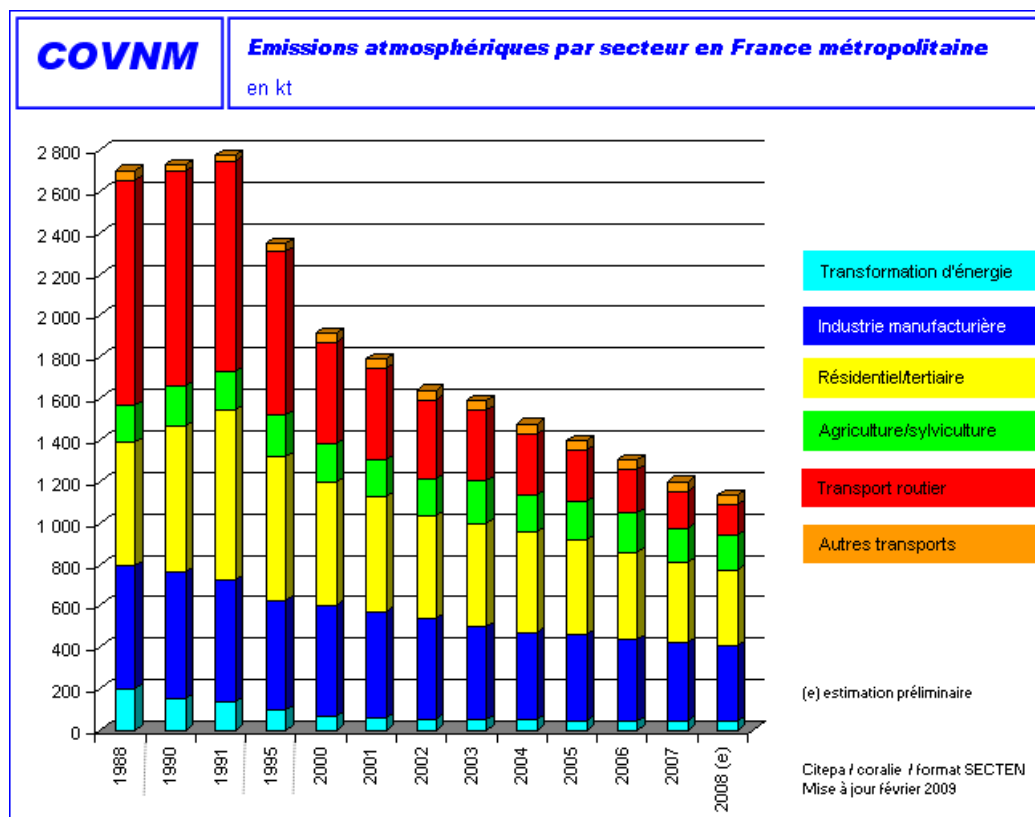


Les émissions de dioxyde de soufre en France

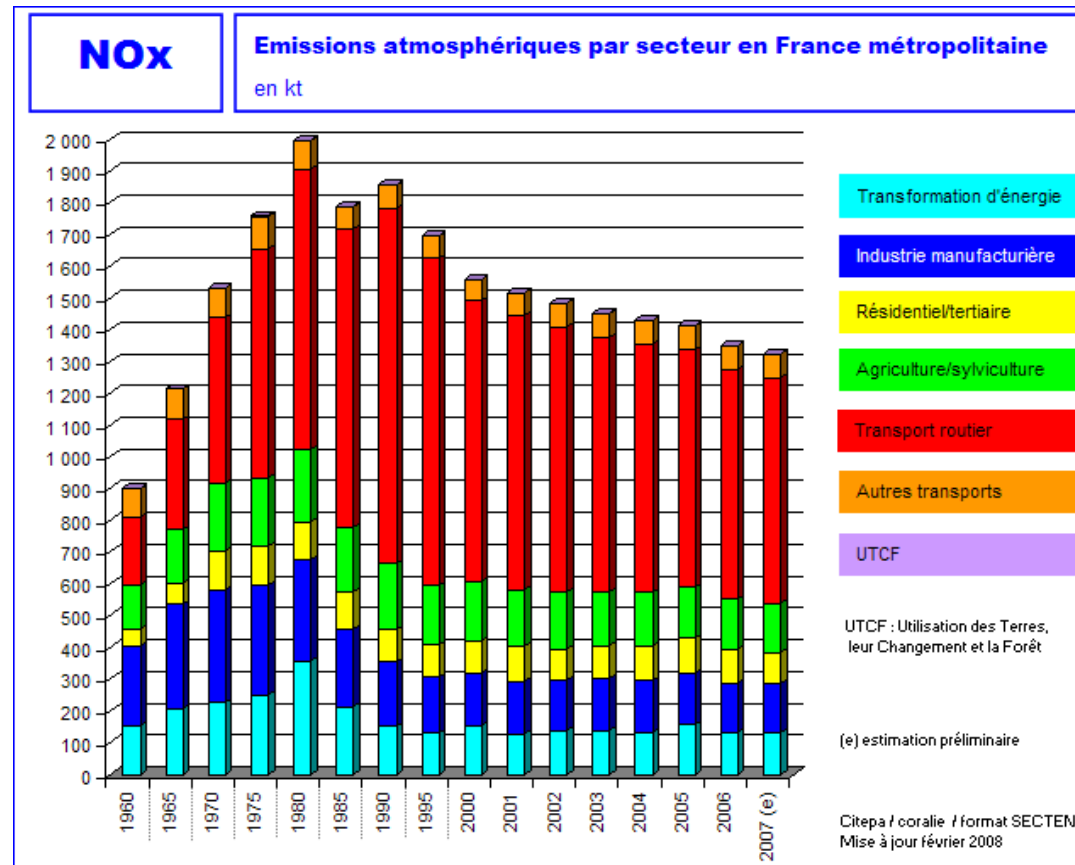


Source : www.citepa.org

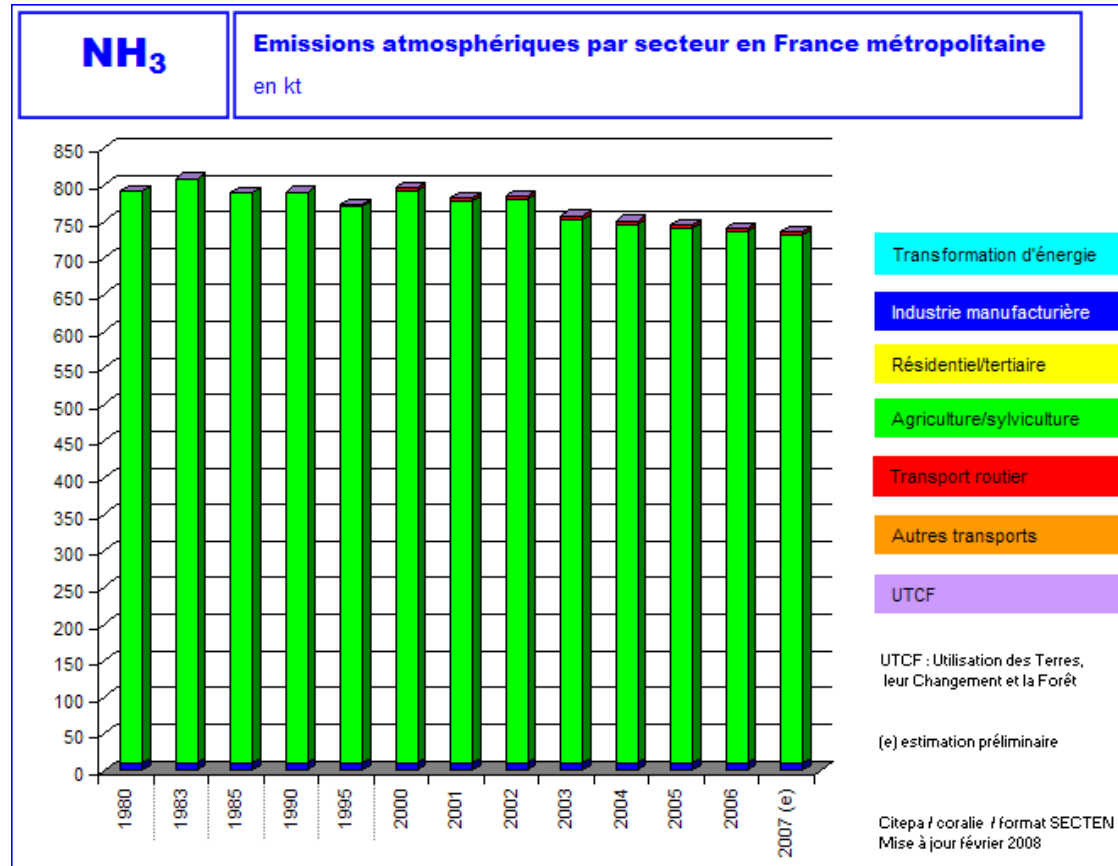
Les émissions de composés organiques volatils en France



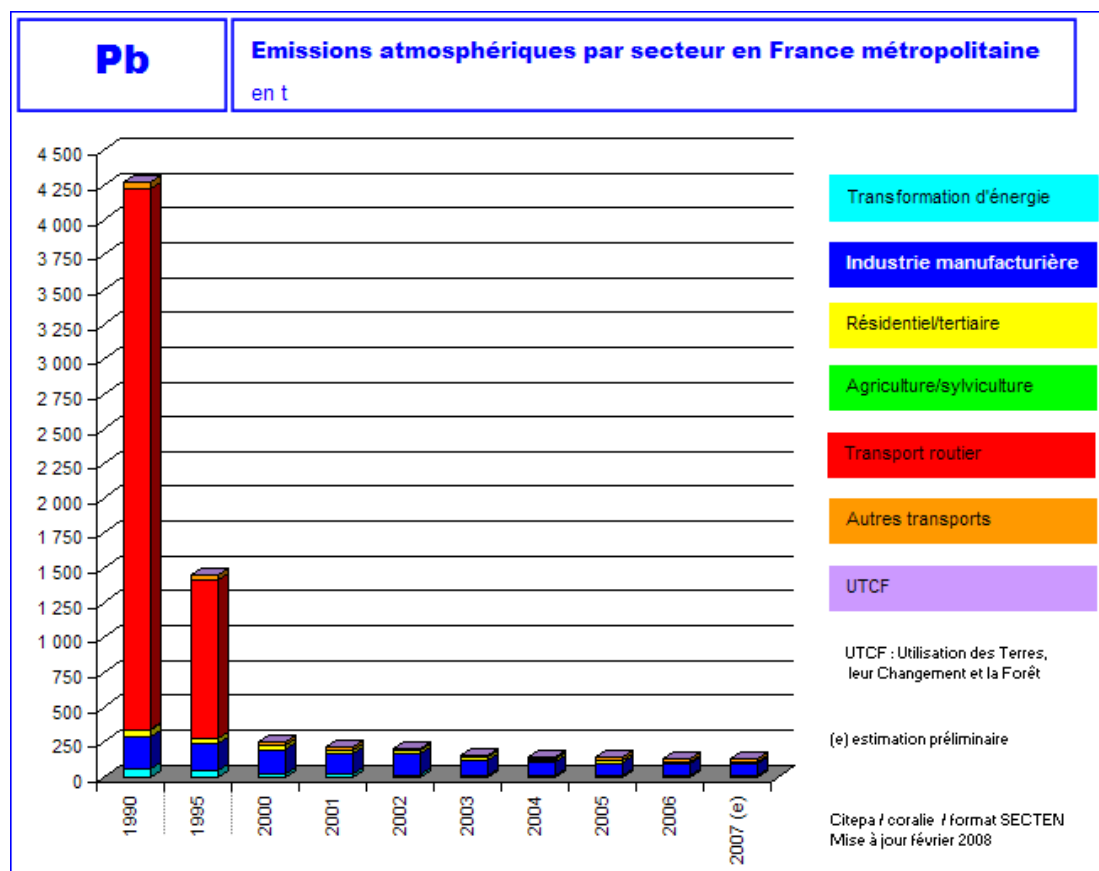
Les émissions d'oxydes d'azote en France



Les émissions d'ammoniac en France



Les émissions de plomb en France



Source : www.citepa.org

Réduction des émissions

L'équation fondamentale pour l'estimation des émissions de polluants d'une source peut être augmentée d'un terme caractérisant la réduction des émissions :

$$E_{ij} = FE_{ij} \times A_j \times (1 - RE_{ij})$$



Fraction de réduction des émissions du polluant i émis de la source j

Réduction des émissions de polluants gazeux

- Les principales méthodes pour réduire les émissions de gaz sont :
 - Absorption dans un liquide
 - Adsorption sur un solide
 - Transformation chimique
 - Incinération
 - Condensation

Absorption dans un liquide

- La méthode est fondée sur la différence entre la concentration du polluant à la surface du liquide et sa pression dans l'écoulement du rejet. Il faut donc que le polluant soit très soluble.
 - Pour des polluants très solubles dans l'eau (acide chlorhydrique, HCl, et acide fluorhydrique, HF) : absorption dans l'eau
 - Pour des polluants moins solubles dans l'eau mais acides (dioxyde de soufre, SO₂) : absorption dans une solution alcaline (basique) afin de déplacer l'équilibre vers la phase liquide
 - L'absorption peut être augmentée si le polluant absorbé est ensuite transformé chimiquement en une espèce non-volatile (conversion de SO₂ en sulfate)

Adsorption sur un solide

- La méthode est fondée sur la formation d'une liaison entre une molécule de gaz et la surface du solide. Ce phénomène d'adsorption peut être catégorisé selon trois grands principes :
 - Adsorption sur un solide non-polaire (carbone activé ou charbon actif)
 - Adsorption sur un solide polaire (alumine, silice...) : ces solides vont cependant aussi adsorber l'eau, ce qui peut diminuer l'efficacité
 - Chimie-sorption : une réaction chimique a lieu sur le solide avec possible désorption du produit moins polluant

Adsorption sur un solide

- Exemple du transfert de masse du gaz dans une colonne de charbon actif
- Utilisé pour réduire les émissions d'hydrocarbures et de mercure gazeux
- Il faut ensuite disposer de façon propre du produit avec le polluant adsorbé

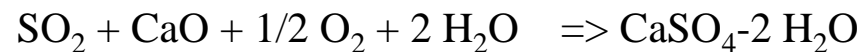
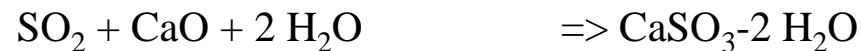
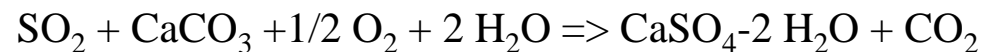
Transformation chimique

- La transformation chimique du polluant permet soit de former un produit polluant qui est plus facilement capté, soit de former un produit non polluant qui peut être émis dans l'atmosphère
 - Réduction des émissions de SO_2
 - Réduction des émissions de NO_x

Transformation chimique

Réaction de SO₂

Le dioxyde de soufre émis par les centrales électriques au charbon peut être capté après réaction avec la chaux (CaO) ou le calcaire (CaCO₃)



CaSO₄·2 H₂O (gypse) est un solide qui peut encrasser le laveur, mais qui peut aussi être vendu comme produit dans la construction. On minimise la formation du gypse si on maintient le pH > 6.

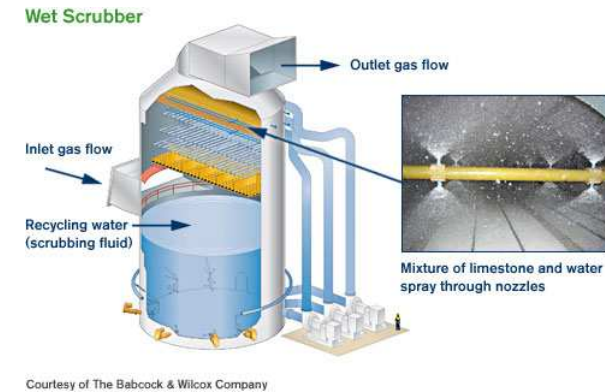
La réaction avec CaO est plus efficace que celle avec CaCO₃, mais CaO coûte plus cher.

Transformation chimique

Réaction de SO_2

Le dioxyde de soufre émis par les centrales électriques au charbon peut être capté après réaction avec la chaux (CaO) ou le calcaire (CaCO_3)

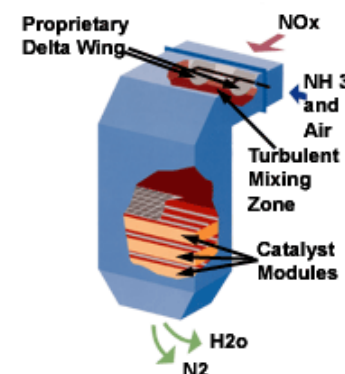
Le processus peut avoir lieu dans un laveur en milieu aqueux (voir absorption dans un liquide) ou avec pulvérisation de gouttelettes de chaux ou de calcaire dans l'écoulement contenant du SO_2 . Ces gouttelettes s'évaporent avant d'atteindre le bas de la colonne et les particules sèches sont ensuite collectées par filtration.



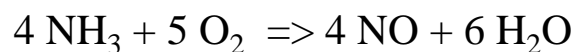
Transformation chimique

Réaction de NO_x

Les oxydes d'azote émis par les centrales électriques au charbon peut être captés après réduction sélective catalytique (« SCR ») ou réduction sélective non-catalytique (« SNCR »)



La réduction non-catalytique a lieu en phase gazeuse (homogène) ; la réduction catalytique a lieu à la surface du catalyseur solide (hétérogène). Le catalyseur est généralement TiO₂ et/ou V₂O₅. Le terme « sélective » caractérise le fait que l'ammoniac réagit préférentiellement avec NO ou NO₂ plutôt qu'avec O₂ (à des températures entre 1200 et 1300 K).



$$T > 1370 \text{ K}$$

Réduction des émissions de polluants gazeux : Efficacités

Efficacité des équipements utilisés pour réduire les émissions de SO₂ et NO_x des centrales électriques au charbon

Équipement	Polluant	Efficacité
Laveur (FGD)	SO ₂	75 à 90%
Réduction sélective non-catalytique	NO _x	30 à 80%
Réduction sélective catalytique	NO _x	90%

Réduction des émissions de polluants particulaires

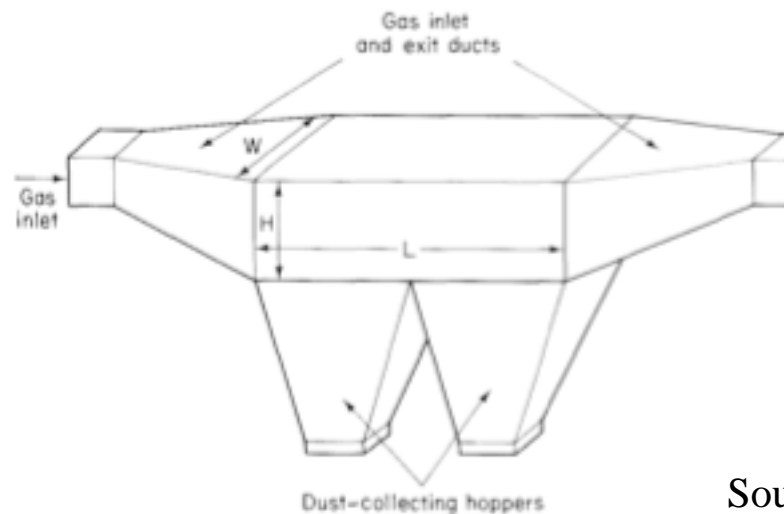
- Les principales méthodes pour réduire les émissions de particules sont :
 - Filtration
 - Collection électrostatique
 - Collection par inertie aérodynamique

Réduction des émissions de polluants particulaires

- Les processus physiques qui gouvernent l'abattement des particules dans un écoulement fluide gazeux sont principalement les suivants :
 - Impact par inertie et interception
 - Diffusion brownienne
 - Sédimentation
 - Migration dans un champ électrique (électrophorèse)
- Les deux premiers processus sont aussi importants pour les dépôts atmosphériques et lors de l'inhalation, le troisième est important pour les dépôts atmosphériques secs.

Réduction des émissions de polluants particulaires

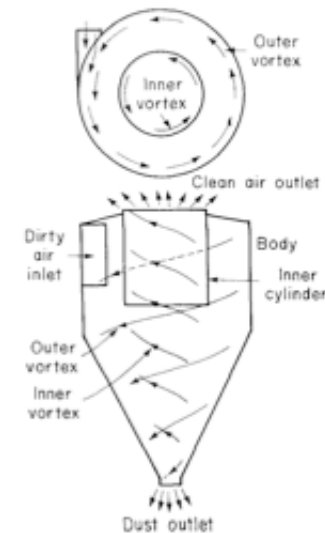
- Chambre de sédimentation
 - Ce procédé est efficace seulement pour les poussières de taille suffisante pour que la vitesse de sédimentation soit suffisamment élevée.



Source : Flagan et Seinfeld, 1988

Réduction des émissions de polluants particulaires

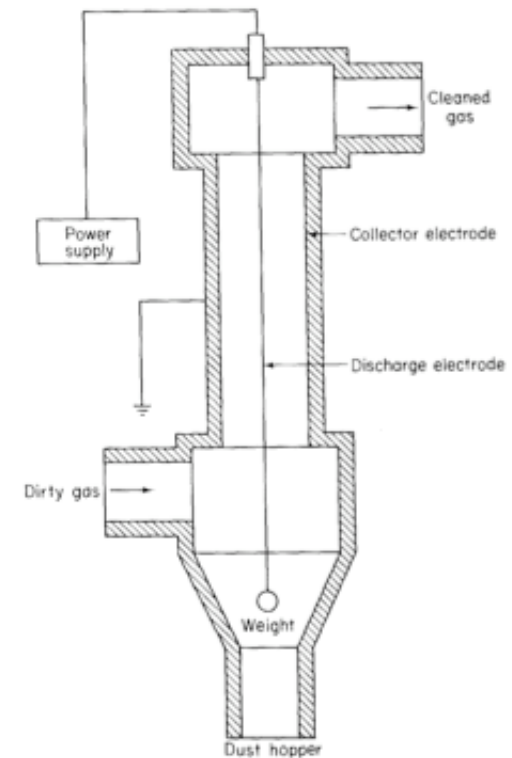
- Cyclones
 - Ces appareils utilisent principalement l'inertie des particules dans un écoulement pour les capter sur la paroi ou des gouttelettes.



Source : Flagan et Seinfeld, 1988

Réduction des émissions de polluants particulaires

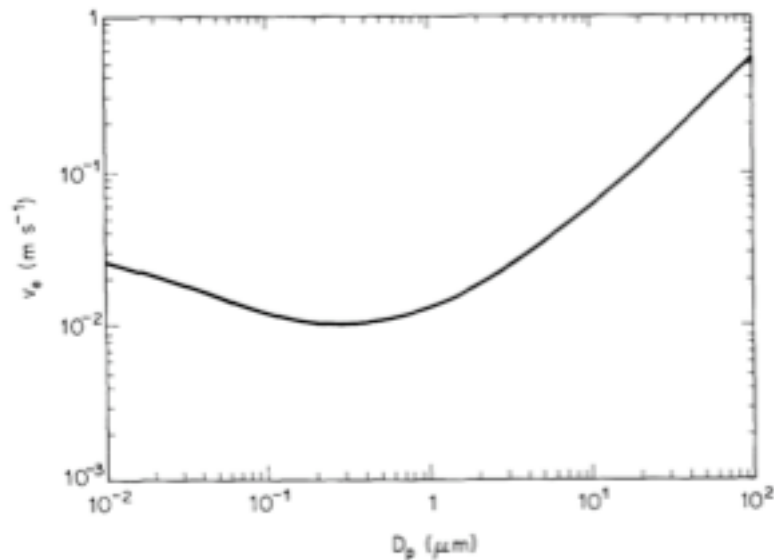
- Précipitateurs électrostatiques
 - Une décharge électrique est effectuée dans l'écoulement pour charger les particules électriquement.
 - Les particules chargées migrent alors vers la paroi « électrode »



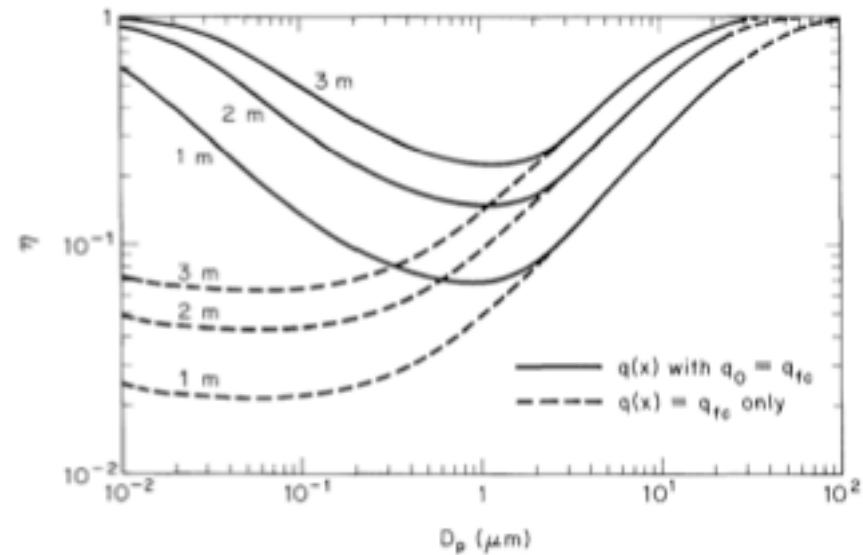
Source : Flagan et Seinfeld, 1988

Réduction des émissions de polluants particulaires : ESP

Dans un précipitateur électrostatique (ESP), les particules grossières ($> \sim 1$ micron) se chargent principalement par captage direct des ions gazeux alors que les particules fines ($< \sim 1$ micron) se chargent par diffusion des ions gazeux vers les particules



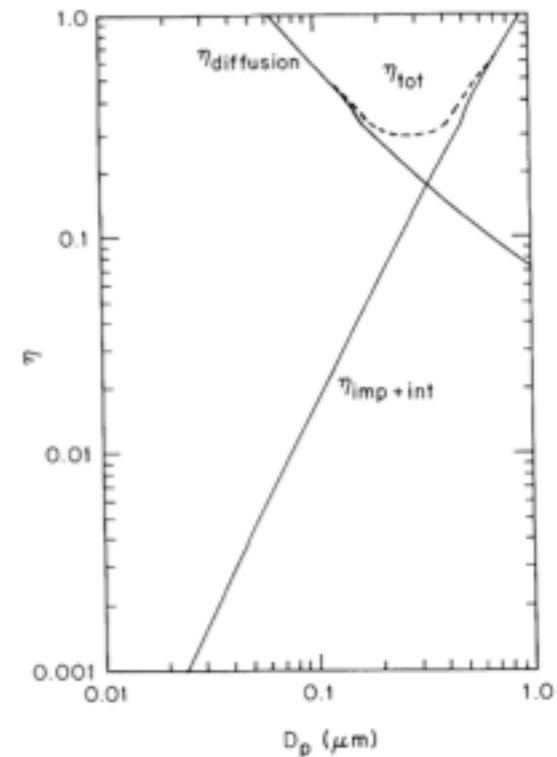
Vitesse de migration dans un champ électrique
Source : Flagan et Seinfeld, 1988



Efficacité de l'ESP avec et sans l'effet de la charge par diffusion

Réduction des émissions de polluants particulaires : Filtration

Les filtres à particules collectent les particules selon les mêmes processus que ceux qui affectent les dépôts atmosphériques secs : impact par inertie, interception et diffusion brownienne (les forces électrostatiques peuvent aussi jouer un rôle)



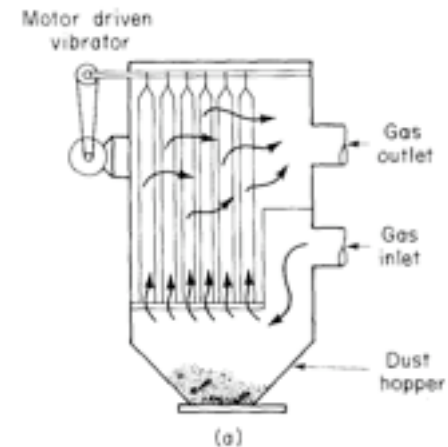
Efficacité pour impact par inertie et interception et par diffusion brownienne pour un cylindre placé transversalement à l'écoulement

Source : Flagan et Seinfeld, 1988

Réduction des émissions de polluants particulaires : Filtration

Les filtres à particules collectent les particules avec une très bonne efficacité.

Un mécanisme (vibration, jet d'air, nettoyage mécanique) doit être utilisé pour enlever les particules collectées sur les filtres et les récupérer dans le fond de l'appareil

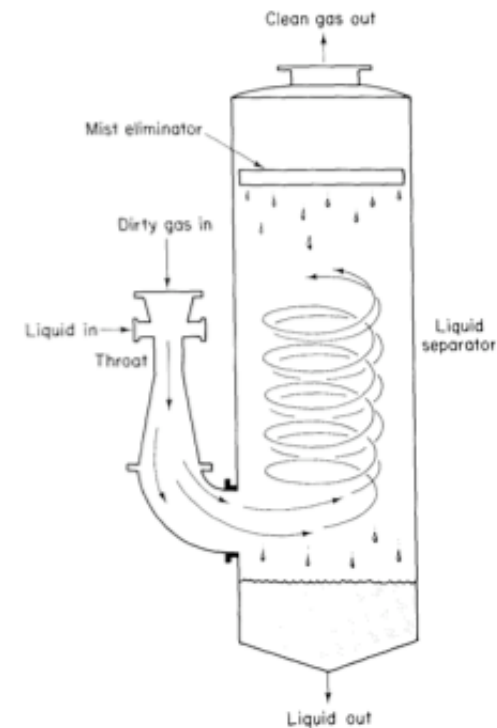


Exemple d'un appareil de filtration

Réduction des émissions de polluants particulaires : Laveurs

Différents appareils existent pour collecter les particules au moyen de gouttelettes : laveurs avec pulvérisation, laveurs de type venturi, tours

Dans un laveur venturi, l'effet venturi (accélération des particules et des gouttelettes) permet d'augmenter l'efficacité de collision entre particules et gouttelettes

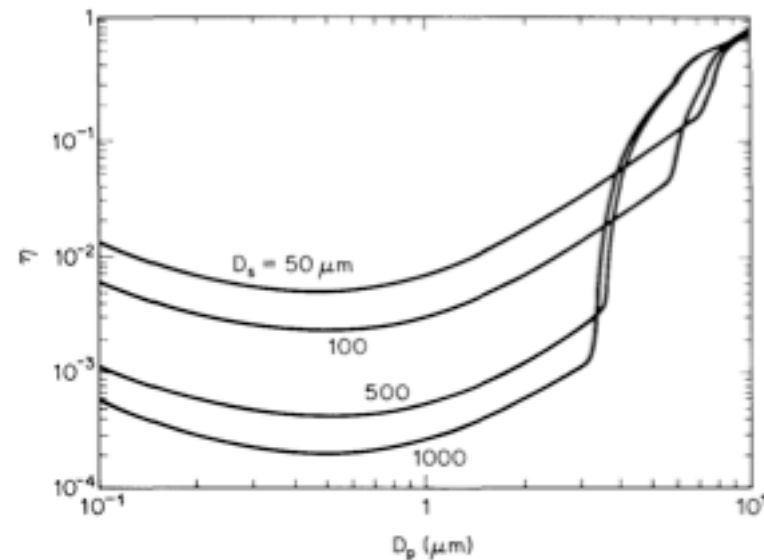


Exemple d'un laveur venturi

Source : Flagan et Seinfeld, 1988

Réduction des émissions de polluants particulaires : Laveurs

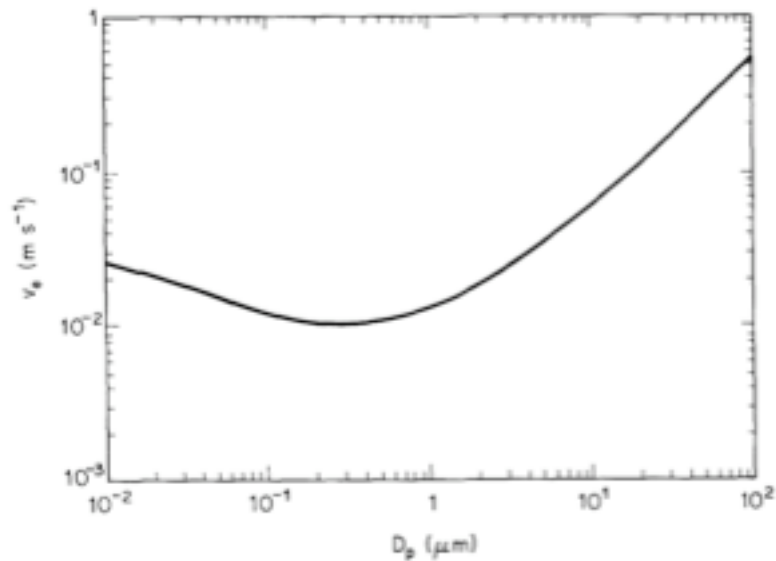
Les processus d'impact par inertie, interception et diffusion brownienne gouvernent l'efficacité de ces appareils de type laveur. Comme pour les dépôts humides atmosphériques, ce sont les plus grosses particules qui sont lessivées le plus efficacement



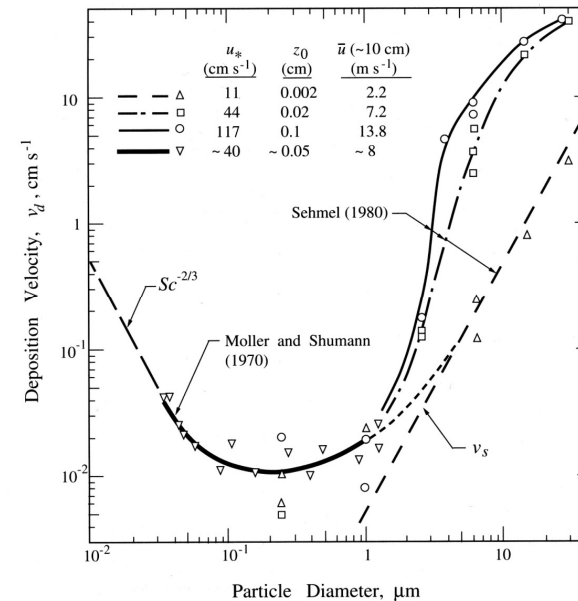
Efficacité de captage d'une particule par une goutte d'eau en fonction de la taille

Réduction des émissions de polluants particulaires

Tous ces processus sont efficaces pour les très grosses particules (poussières), modérément efficaces pour les particules ultra fines et le moins efficaces pour les particules fines (0,1 à 2,5 microns)



Vitesse de migration dans un champ électrique



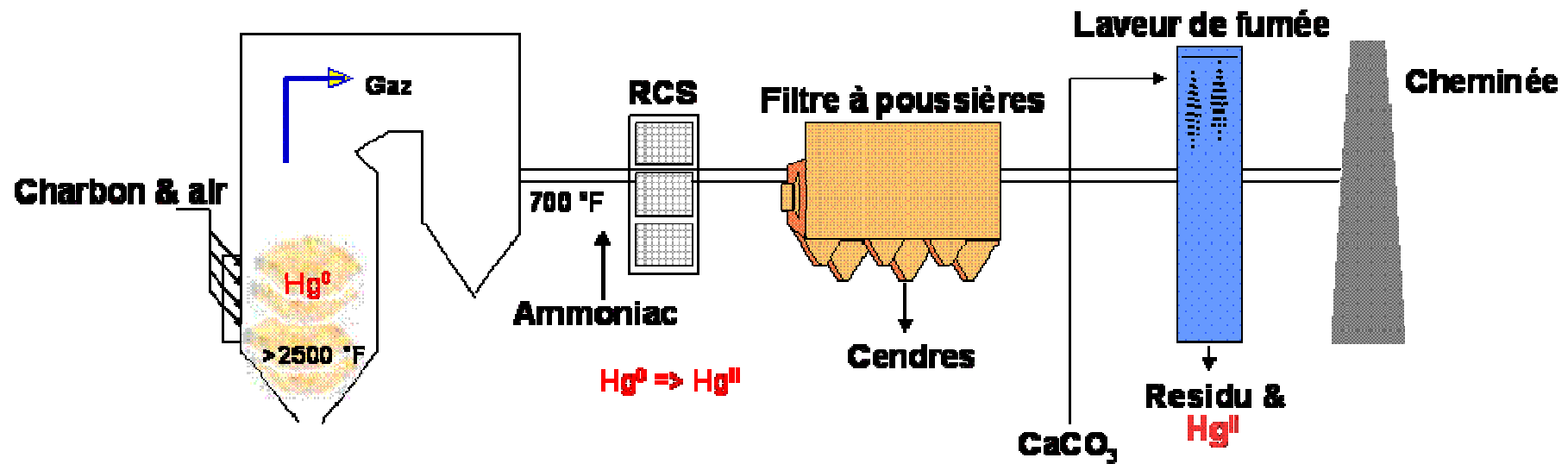
Vitesse de dépôt sur une surface

Réduction des émissions de polluants particulaires : Efficacités

Appareil	Diamètre minimum des particules collectées	Efficacité
Chambre de sédimentation	> 50 microns	< 50 %
Cyclone	5 à 25 microns	50 à 90 %
Laveur venturi	> 0,5 micron	< 99 %
Précipitateur électrostatique	< 1 micron	95 à 99 %
Filtre	< 1 micron	> 99 %

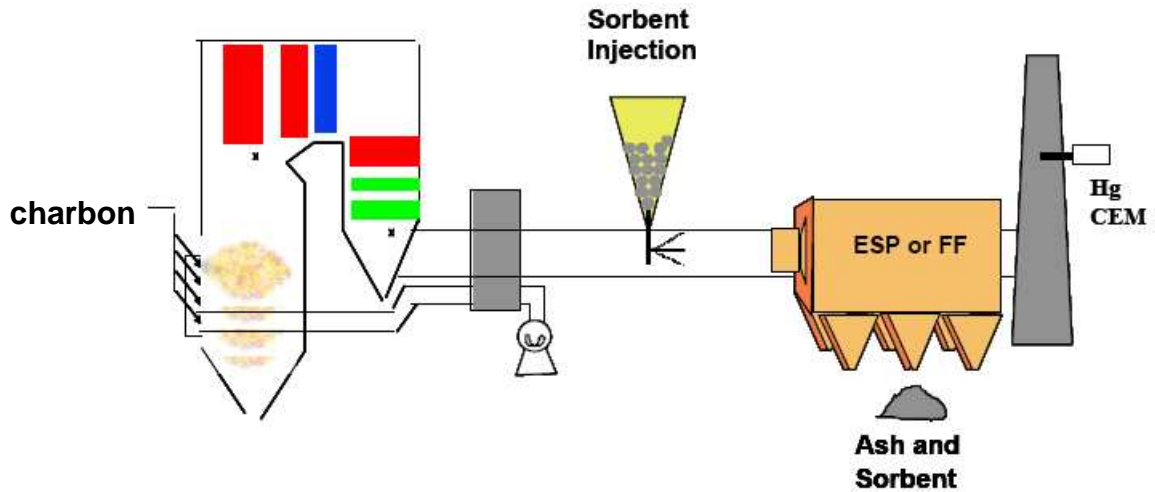
Réduction des émissions de mercure par transformation chimique et absorption

Réduction de façon indirecte à travers les réductions de NO_x et de SO_2



Les systèmes d'abattement des émissions de NO_x (réduction catalytique sélective) et de SO_2 (laveur de fumées) diminuent les émissions de mercure

Réduction des émissions de mercure par adsorption et abattement des particules



Réduction de façon directe :
Injection de charbon actif

