

Émissions diffuses et fugitives

Définitions et principes de quantification

Diffuse and fugitive emissions

Definitions and principles of quantification

R. BOUSCAREN (Directeur du CITEPA)*

RÉSUMÉ

Face à l'importance relative croissante des émissions de polluants atmosphériques dites diffuses et fugitives, il devient urgent de les définir plus précisément et de développer l'usage de méthodes de mesure. Le document propose donc des définitions pour les mots : émission canalisée, émission diffuse qui sous-entend une notion géographique ou géométrique et émission fugitive qui implique évidemment une notion de fuite. On rappelle ensuite les principales méthodes de mesure de ces émissions diffuses et fugitives. Les méthodes par analogie avec les émissions canalisées (hotte/cheminée mobile ; mesure en toiture ; méthode au vent/sous le vent). Méthodes par bilan matières utilisables surtout pour les solvants (bilan solvants). Méthode par utilisation de traceurs. Estimation des fuites par la mesure des concentrations en produits à proximité immédiate des points de fuites (Protocole américain dit EPA 21). Mesures indirectes par l'utilisation d'un rayonnement électromagnétique (LIDAR ou DOAS). La simulation physique (aérodynamique ou hydraulique) et la simulation numérique (modèle de dispersion atmosphérique).

ABSTRACT

Facing the growing relative importance of diffuse and fugitive emissions of atmospheric pollutants, it is now urgent to propose more precise definitions and to develop monitoring and surveillance. The document proposes definitions for the following words : canalized emission, diffuse emission with a geographic or geometric notion and fugitive emission with an idea of escaping from somewhere. The main measuring methods are reminded. By analogy with canalized emission measurement (Quasi-stack sampling technique, Roof monitor sampling technique, Upwind/downwind sampling technique). Method by using input/output balance (mainly solvent balance). Use of tracers. Estimation of leaks by measuring concentrations very near by leakage points (US protocole called EPA 21). Undirect measurements by using electromagnetic radiations (LIDAR or DOAS). Physical simulation (in air or water simulation channel), and numerical simulation (atmospheric dispersion models).

Définitions

La notion d'émission canalisée est facile à appréhender ; il s'agit des émissions qui sont rejetées dans l'atmosphère à l'aide d'une conduite rigide telle qu'une cheminée ou tout autre moyen. Ce conduit peut être aussi bien vertical qu'horizontal ou avoir n'importe quelle inclinaison.

La notion d'émission dite traditionnellement « diffuse et/ou fugitive » est beaucoup plus complexe. Il y a quelques années, les Américains définissaient ces émissions par une négation, à savoir toutes émissions qui ne sont pas canalisées. Depuis, comme il a fallu essayer de quantifier ces émissions, une classification de ces

émissions dites « diffuses et/ou fugitives » a pu être établie progressivement. Il n'existe pas encore de définition assez généralement reconnue. Les définitions proposées ci-après le sont aux risques et périls du CITEPA et n'engagent que celui-ci. Ces définitions résultent d'une assez longue expérience dans le domaine et prennent en compte un certain nombre de propositions partielles assez communément admises à l'étranger.

a) Émissions canalisées

Émissions canalisées : rejet dans l'atmosphère à l'aide de toute sorte de conduite, canalisation ou tuyauterie (quelle que soit la forme de la section de cette conduite). Par conduite, canalisation ou tuyauterie on entend que le diamètre équivalent est raisonnablement inférieur à la longueur de cette conduite. (Si le diamètre équivalent est du même ordre de grandeur ou supérieur à la

* Centre Interprofessionnel Technique d'Études de la Pollution Atmosphérique, 10, rue du Faubourg Poissonnière, 75010 Paris, Tél. : 01 44 83 68 83, Fax : 01 40 22 04 83, E-mail : citepa@compuserve.com

longueur, on parlera d'ouverture, ce qui est le cas de fenêtres, de robertsons, de lanterneaux, d'extracteurs avec ou sans ventilateur... ; dans ce cas, les émissions ne peuvent plus être considérées comme canalisées ; ce sont plutôt des émissions fugitives). En principe ces émissions canalisées ne posent pas de problèmes de mesure insurmontables.

b) Émissions fugitives

Émissions fugitives : **étymologiquement parlant, fugitif qualifie « un objet ou une personne qui a réussi à échapper à une tentative de captation ou de capture »**. Ici il s'agit de rejets de polluants dans l'atmosphère libre après que ceux-ci aient échappé à une tentative de captation à l'aide d'une hotte, d'un joint, ou de tout autre moyen qui aurait dû assurer la capture et la rétention de ces polluants. On parle d'émissions fugitives plus particulièrement pour les composés organiques volatils (COV) mais il existe également des exemples d'émissions d'autres polluants (poussières, odeurs...). En examinant des méthodes de mesure qui ont été mises au point et qui sont utilisées depuis quelques années, on peut distinguer trois sortes d'émissions fugitives :

- **les fuites proprement dites issues d'équipements divers** : fuites au niveau des tuyauteries (joints aux brides), des machines tournantes (pompes, compresseurs...) des vannes ou des soupapes servant des gaz ou des fluides plus ou moins volatils. Ces fuites ne sont pas uniquement le fait des COV ; dans de très vieilles installations et dans des pays en voie de développement, des émissions fugitives de poussières peuvent intervenir dans les canalisations qui transportent des effluents gazeux empoussiérés ;
- **les fuites par les stockages de produits gazeux, liquides ou solides** ;
- **les fuites par certaines parties des procédés** telles que des ouvertures de citernes pendant des opérations de chargement ou de déchargement, des stockages de produits pulvérulents en plein air, des bassins de décantation eau-pétrole, des événements, des portes de four de cokerie, des cellules d'électrolyse pour la production du chlore (émissions de mercure), des procédés très variés impliquant l'utilisation de solvants...

c) Émissions diffuses

Les émissions diffuses font appel à des considérations complètement différentes qui n'ont rien à voir avec le caractère canalisé ou fugitif de ces émissions.

Le mot diffus implique une notion géographique ou géométrique, puisqu'il signifie « provient de différentes parties ». Ce mot implique ainsi une notion d'échelle géographique ou géométrique.

Ainsi les émissions de poussières soulevées par le vent sur des stockages en plein air sont dites fugitives et diffuses à la fois ; en effet leur stockage est une façon de les maintenir en place donc de les tenir captives, malheureusement, grâce au vent ces poussières ont réussi à s'échapper ; par ailleurs, ces émissions ne sont pas canalisées et elles se font à différents endroits des tas, elles sont donc aussi diffuses.

L'ensemble des émissions par les pots d'échappement de tous les véhicules automobiles dans une zone urbaine constitue aussi une source d'émissions diffuses parce que ces émissions proviennent de différentes parties de la ville et bien que chacune des émissions soit canalisée.

À l'échelle d'un observateur travaillant sur le terrain, les émissions de COV à la surface d'un bassin API en raffinerie sont à la fois fugitives et diffuses ; fugitives parce que les COV ont échappé à une tentative de rétention et diffuses parce que les émissions proviennent de façon plus ou moins aléatoire de différentes parties du bassin.

Un dépoussiéreur à manches en pression (en anglais : baghouse) est une source diffuse parce que les poussières fines résiduelles qui n'ont pas été retenues par le média filtrant sont émises en des points différents de l'appareil.

On voit donc que le qualificatif « diffus » peut sans inconvénient venir compléter les qualificatifs « canalisé » ou « fugitif » mais en aucune façon les remplacer.

d) Autres qualificatifs et exemples d'émissions diffuses

Des émissions peuvent aussi être qualifiées de **ponctuelles** ou bien de **surfaciées**, ou bien encore de **linéaires**. Ces trois notions viennent s'ajouter aux qualificatifs précédents et impliquent évidemment des notions géométriques et d'échelle.

Ainsi un bassin API en raffinerie est une émission surfacique à l'échelle d'un observateur sur le terrain ; elle est aussi ponctuelle à l'échelle d'un cosmonaute qui survolerait la planète.

Le baghouse précédent est non seulement une source diffuse mais aussi une source surfacique lorsqu'on l'observe de très près ; lorsqu'on l'observe de très loin c'est une source ponctuelle.

Le débouché d'un aérofrigérant d'une puissante centrale thermique est généralement considéré comme une émission sensiblement ponctuelle pour des observateurs au sol ; le même débouché est une émission surfacique à l'échelle d'une coccinelle qui s'aventurerait dans les parages.

Une autoroute est une source d'émission linéaire, ce qui n'empêche pas que chaque pot

d'échappement soit une source canalisée et ponctuelle.

Les émissions de N_2O par des terrains agricoles dans certaines circonstances sont des émissions surfaciques et diffuses ; il en est de même pour les émissions de méthane à la surface d'une décharge d'ordures ménagères.

On n'utilise que très peu la notion d'émission **volumique**. Un arbre est, par exemple, une source volumique de terpènes ; les terpènes sont émis par les feuilles à l'intérieur de la partie feuillée de l'arbre. Ces terpènes passent au travers d'une surface théorique qui entoure l'arbre ; ces émissions constituent alors une émission surfacique.

On dit également qu'une émission est **discontinue ou continue** dans l'espace. Bien que cette notion ne soit pas très souvent utilisée, elle est cependant utile pour la modélisation. La continuité ou la discontinuité s'entend alors au sens mathématique du terme.

On dit également qu'une émission est **continue ou discontinue (intermittente)** dans le temps. Cette notion est beaucoup plus intéressante que la précédente car elle est directement liée à l'impact que cette source peut engendrer au niveau de l'exposition des populations. On utilise également des qualificatifs tels que **sporadique, variable, périodique, épisodique, fugace...** Le qualificatif fugitif est quelquefois utilisé au lieu de fugace, mais il s'agit du sens figuré du mot. Les émissions de fumées noires par une torche de raffinerie peuvent être qualifiées de ponctuelles à l'échelle de l'observateur sur le terrain et aussi de fugaces.

Finalement on se retrouve à la tête d'une panoplie de qualificatifs qui ne s'excluent pas mais qui peuvent au contraire être utilisés simultanément.

Ainsi des émissions non canalisées peuvent être :

- **ponctuelles ou surfaciques ou linéaires (forme de la source) ;**
- **continues ou discontinues dans l'espace (variation dans l'espace) ;**
- **continues ou intermittentes, ou variables, ou épisodiques, ou fugaces, ou erratiques, ou périodiques dans le temps (variation dans le temps) ;**
- **canalisées ou fugitives (structure de l'émission) ;**
- **diffuse (distribution géographique des émissions).**

À ces qualificatifs il faut ajouter la notion d'échelle qui peut modifier le qualificatif lié à une émission.

→ *On voit donc que la définition d'émissions dites « diffuses et/ou fugitives » est extrêmement complexe et qu'il n'est pas étonnant qu'aucune définition satisfaisante n'ait été proposée jusqu'à présent.*

→ *On ne peut donc que recommander, lorsque l'on présente et que l'on compare des informations relatives à des émissions fugitives, de faire une liste aussi exhaustive que possible des types de sources que l'on considère pour être sûr d'être bien entendu.*

Principes de quantification des émissions diffuses et fugitives

La quantification des émissions fugitives est toujours une opération complexe et coûteuse ; la précision des résultats est toujours très inférieure à celle des résultats de mesure des émissions canalisées.

Les émissions dites diffuses ou fugitives prennent de plus en plus d'importance relative au fur et à mesure que les émissions canalisées sont réduites. Actuellement et à titre d'exemple, il est possible de citer quelques ordres de grandeur d'émissions diffuses et fugitives :

- dans le secteur de la chimie, de la pétrochimie et du raffinage du pétrole, les émissions non canalisées sont du même ordre de grandeur que les émissions canalisées ;
- les émissions fugitives de gaz naturel dans la distribution de ce gaz dans les réseaux urbains plus ou moins vétustes sont de l'ordre de 1 à 2 % du flux de gaz naturel distribué ;
- lors du remplissage des réservoirs d'essence des véhicules automobiles, les émissions françaises de COV sont de l'ordre de 5 % de l'ensemble des émissions de COV par le trafic routier et 38 % des émissions de COV par la chaîne raffinage, stockage et distribution des produits pétroliers.

Mesure par analogie avec les méthodes de mesures des émissions canalisées

Comme dans les méthodes de mesure des émissions (solides, gazeuses ou vésiculaires) par des conduites, émissions canalisées, il faut définir une surface au travers de laquelle on mesurera un flux de matière. Cette surface que nous appellerons « surface de référence » (Figure 1), n'a pas toujours d'existence physique comme c'est le cas dans une conduite où il s'agit simplement alors d'une section droite. Cette surface idéale permet de définir un flux. Par exemple, les surfaces de références suivantes sont souvent rencontrées :

- un lanterneau ou un « robertson », (lanterneau développé par un fabricant anglo-saxon) ;
- une surface coupant le panache de polluant sous le vent d'une source ;
- la surface d'un liquide ;
- etc.

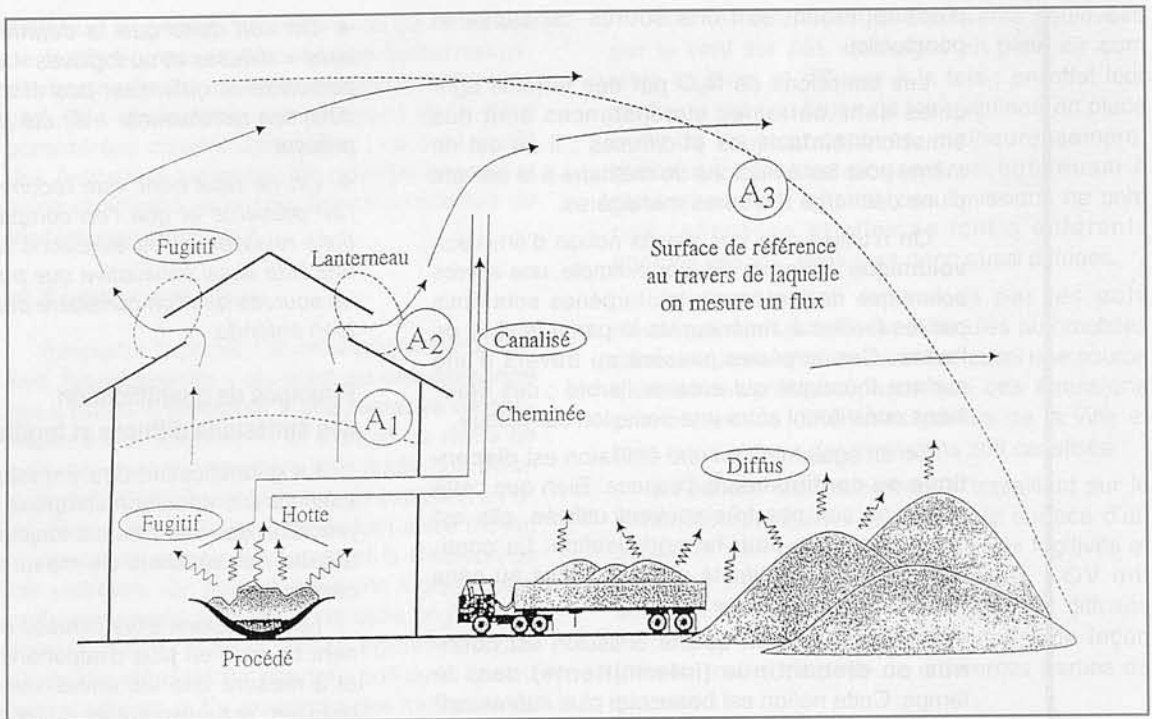


Figure 1. Émissions canalisées, diffuses et fugitives.
Canalized, diffuse and fugitive emissions.

Concepts théoriques de base

La masse de polluant qui traverse cette surface de référence A est exprimée par la relation générale suivante :

$$M = \int_T \int_A C \cdot \vec{U} \cdot \vec{k} \, ds \, dt$$

avec :

- C la concentration instantanée en chaque point de la surface A ;
- \vec{U} le vecteur vitesse instantanée du gaz porteur en chaque point de la surface ;
- \vec{k} le vecteur unitaire perpendiculaire à la surface A en chaque point ;
- T la durée d'échantillonnage ;
- ds l'élément de surface ;
- dt l'élément de temps.

Si on divise la surface A en n éléments Δs et la durée d'échantillonnage T en p éléments Δt :

$$M = \sum_n \sum_p (C_p \cdot \vec{U}_p \cdot \vec{k}_p) \Delta s_p \Delta t_n$$

Dans chaque élément de surface Δs on mesure la concentration en polluant et la vitesse du gaz porteur.

Lorsque l'on divise la surface A en éléments Δs , on place généralement le capteur au centre de chaque surface élémentaire Δs et on fait l'hypothèse que le résultat de la mesure faite au centre de Δs est valable pour tous les points de cette surface élémentaire.

Pour que ces mesures soient significatives, il faut, bien entendu, que la dimension caractéristique des capteurs de mesure soit du même ordre de grandeur que les dimensions des éléments de surface Δs , ce qui est évidemment loin d'être toujours le cas.

Présentation des diverses techniques de mesure

Traditionnellement, aux États-Unis, ces techniques de mesure se distinguent par le type de méthode d'échantillonnage retenu. Ces méthodes sont classées en trois catégories :

- « Quasi-Stack Sampling Technique » (QSST) (en français : « hotte/cheminée mobile »)
- « Roof Monitor Sampling Technique » (RMST) (en français : « mesure en toiture »)
- « Upwind/Downwind Sampling Technique » (UDST) (en français : « au vent/sous le vent »).

En réalité, la classification proposée n'est pas aussi simple qu'il n'y paraît.

- a. « Quasi-Stack Sampling Technique » (Hotte/Cheminée mobile) (Figure 2)

Cette méthode consiste à coiffer la source à l'aide d'une hotte et d'une cheminée mobile afin d'aspirer la totalité des polluants. Les émissions fugitives deviennent ainsi prisonnières, canalisées, et on est ramené au problème classique de la mesure dans une conduite avec une section de mesure et des longueurs droites amont et aval idéales conformes

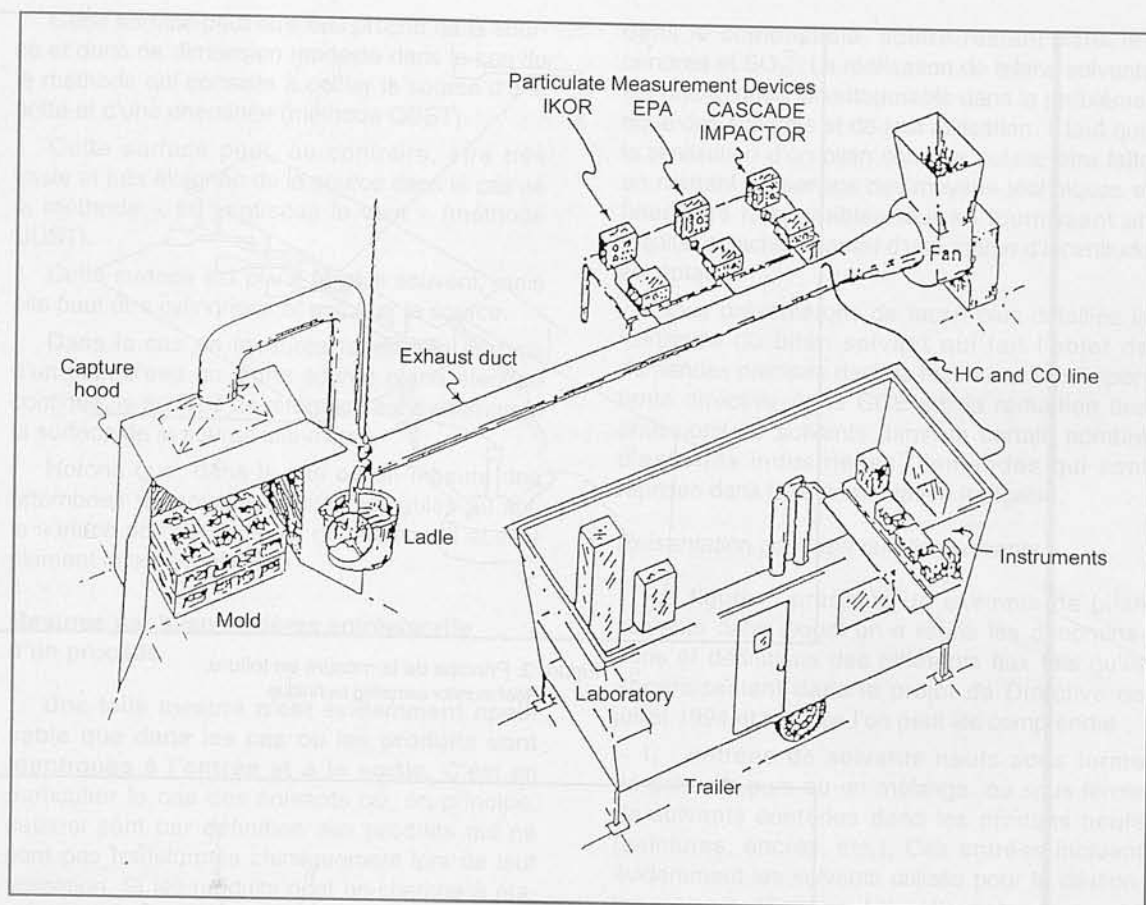


Figure 2. Principe de la méthode hotte/cheminée mobile dans une installation de moulage (mold) d'objets en fonte. *Quasi-stack method.*

aux normes AFNOR NF X 44051 et 052 ou à la standardisation ISO.

Cette méthode ne peut être utilisée que dans les cas où la source peut être physiquement isolée sans pour autant gêner les opérations de production.

b. « Roof Monitor Sampling Technique » (Mesure en toiture) (Figure 3)

Cette méthode est utilisée dans le cas où les transferts de matières polluantes avec l'extérieur se font par un petit nombre d'ouvertures. On peut alors dire que la structure qui abrite la source (et qui peut être la toiture) joue le rôle d'une immense hotte emprisonnant les émissions avant leur rejet vers l'extérieur. Les mesures se font dans les ouvertures qui peuvent être : des portes, des fenêtres, des lanterneaux, des « robertsons »... On ne dispose jamais des conditions idéales d'application des normes AFNOR NF X 44 051 et 052 ou des normes ISO.

La principale difficulté dans ce genre de mesure est de déterminer le nombre et l'emplacement des points de mesure des vitesses et des concentrations.

c. « Upwind/Downwind Sampling Technique » (au vent/sous le vent) (Figure 4)

Cette méthode est utilisée dans le cas où les sources ne peuvent être confinées ni par une hotte ni par une toiture. La pollution se transporte dans l'atmosphère sous la forme d'un panache qui, souvent, rase le sol. Des mesures de concentrations de polluant et de vitesse de l'air sont faites au vent de la source et sous le vent, sur une surface de référence perpendiculaire au vent. Cette méthode paraît être la moins précise, mais elle est la plus universelle. L'influence des paramètres météorologiques est essentielle mais l'utilisation simultanée de traceurs ou de la modélisation inverse devrait apporter des simplifications notables (voir Mesure de flux par utilisation de traceurs et Mesures des émissions fugitives par les fuites des équipements, p. 75 et p. 77).

Choix de la surface de référence

Le choix de la surface de référence A dépend de la technique utilisée et des moyens mis en œuvre. Bien souvent cette surface n'est pas définie explicitement ; elle est simplement définie implicitement par la localisation des capteurs de mesure.

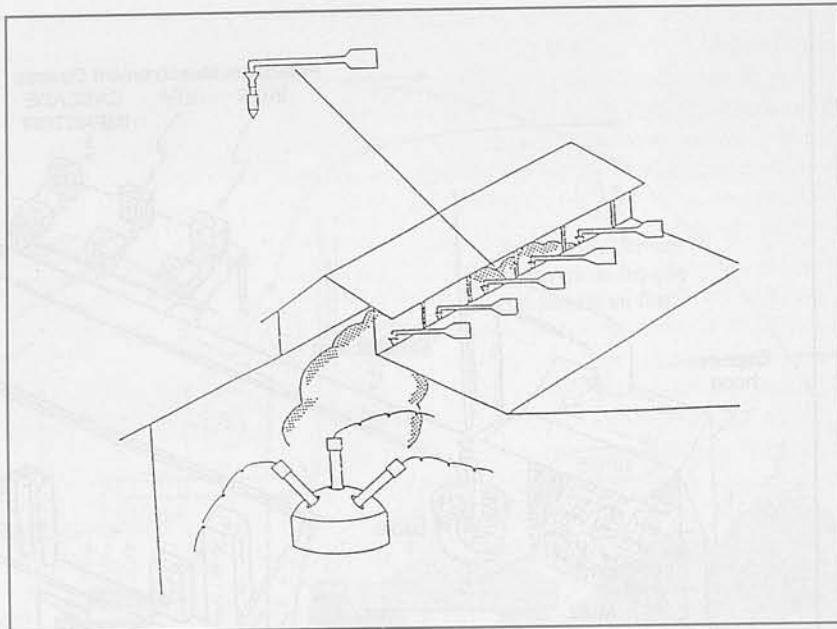


Figure 3. Principe de la mesure en toiture.
Roof monitor sampling technique.

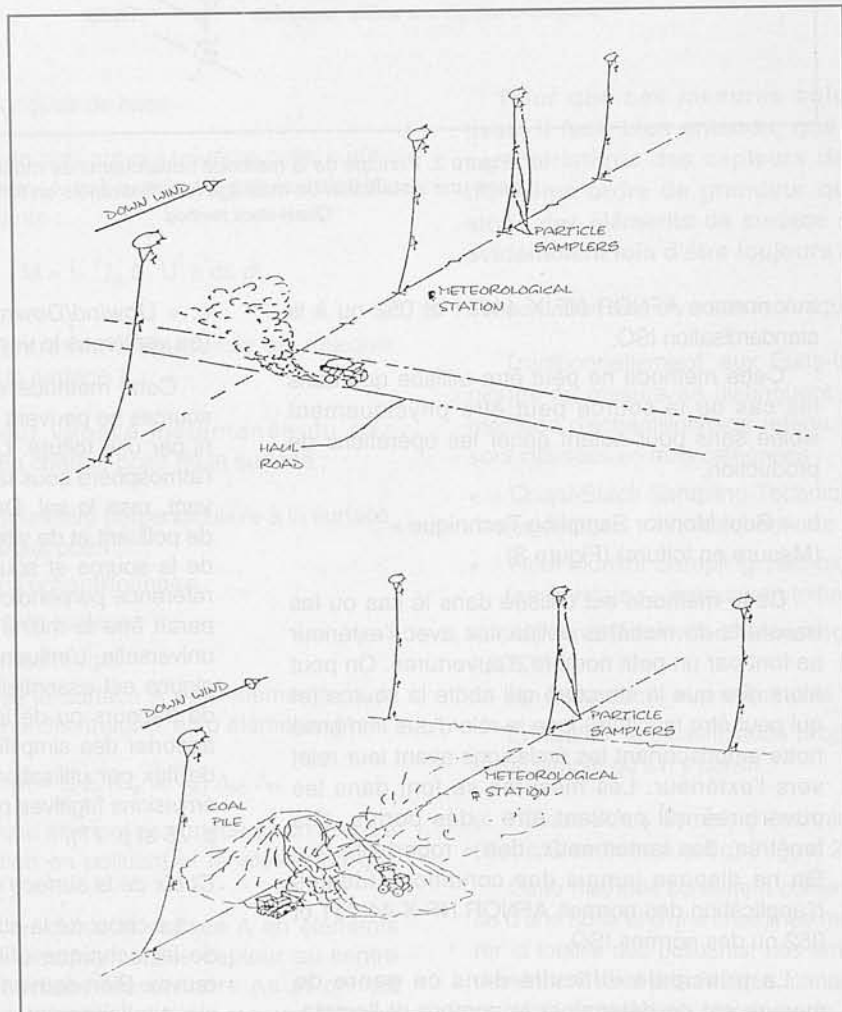


Figure 4. Principe de la mesure au vent/sous le vent.
Up wind/Down wind sampling technique.

Cette surface peut être très proche de la source et donc de dimension modeste dans le cas de la méthode qui consiste à coiffer la source d'une hotte et d'une cheminée (méthode QSST).

Cette surface peut, au contraire, être très vaste et très éloignée de la source dans le cas de la méthode « au vent/sous le vent » (méthode UDST).

Cette surface est plane le plus souvent, mais elle peut être cylindrique et entourer la source.

Dans le cas de mesures faites à la surface d'un plan d'eau ou d'une source plane étendue continue, la surface de référence est évidemment la surface de la source elle-même.

Notons que, dans le cas où on mesure des retombées de poussières sédimentables au sol, la surface de référence est généralement et simplement le sol lui-même.

Mesures par bilan matières entrée/sortie d'un procédé

Une telle mesure n'est évidemment applicable que dans les cas où les produits sont identiques à l'entrée et à la sortie. C'est en particulier le cas des solvants où, en principe, ceux-ci sont par définition des produits qui ne sont pas transformés chimiquement lors de leur utilisation. Si les produits dont on cherche à établir le bilan entrée/sortie sont transformés (par exemple par combustion ou par incinération) lors de leur passage dans le procédé, il serait nécessaire de dresser le bilan non pas sur le produit lui-même mais sur un élément qui servirait alors de traceur. C'est le cas dans certains bilans solvants où une partie de celui-ci est incinéré ; on travaille si cela est possible en bilan carbone (après avoir retiré le carbone impliqué par la combustion du combustible).

La notion de bilan solvants n'est pas du tout nouvelle ; mais la modicité du prix des solvants et la prise de conscience relativement récente de la nécessité de réduire les émissions de COV pour réduire la pollution photochimique, n'ont pas encore favorisé la réalisation de travaux sur le sujet.

Il est important de rappeler que si les flux entrants et sortants sont très voisins (fabrication de peinture à base de solvants), la réalisation d'un bilan solvant est illusoire, car l'erreur sur la différence de deux valeurs voisines peut être énorme.

Il n'est pas fréquent dans le domaine de la pollution atmosphérique, de trouver des cas théoriquement favorables à la réalisation de bilans matières ; le bilan mercure dans l'électrolyse permettant de produire du chlore est un autre exemple bien connu ; les émissions de SO_2 dans beaucoup d'installations de combustion sont connues à l'aide d'un simple bilan soufre (soufre

dans le combustible, soufre restant dans les cendres et SO_2). La réalisation de bilans solvants est une donnée incontournable dans la problématique des solvants et de leur utilisation. Il faut que la réalisation d'un bilan solvants puisse être faite en mettant en service des moyens techniques et financiers raisonnables tout en fournissant un résultat entaché lui aussi d'une marge d'incertitude acceptable.

Nous présenterons de façon plus détaillée la méthode du bilan solvant qui fait l'objet de demandes précises dans la récente et très importante directive de la CCE sur la réduction des émissions de solvants dans un certain nombre d'activités industrielles, demandes qui sont reprises dans la réglementation française.

Présentation générale du bilan solvants

La figure 5 présente un exemple de bilan solvants dans lequel on a repris les dénominations et définitions des différents flux tels qu'ils apparaissaient dans le projet de Directive de juillet 1994 et tels que l'on peut les comprendre :

- I_1 : entrées de solvants neufs sous forme de solvants purs ou en mélange, ou sous forme de solvants contenus dans les produits neufs (peintures, encres, etc.). Ces entrées incluent évidemment les solvants utilisés pour la dilution, les solvants utilisés pour le nettoyage...
- I_2 : entrée de solvants provenant d'une régénération extérieure à l'installation, que cette régénération soit faite dans la même usine ou qu'elle soit faite à l'extérieur de l'usine (la régénération interne ou plus simplement le recyclage de solvants à l'intérieur de l'installation ou du procédé, par exemple la condensation par réfrigération sur les parois d'une cuve de dégraissage ou la distillation/condensation dans une machine de nettoyage à sec, n'a pas lieu d'entrer dans cette définition).
- I_3 : variation des stocks d'une année sur l'autre.
- O_1 : rejet à l'extérieur de l'installation de façon canalisée, par exemple par une cheminée.
- O_2 : rejets de solvants dans les eaux, que les solvants soient dissous (alcools) ou bien qu'ils soient non miscibles (solvants chlorés). Du fait de la tension de vapeur de ces solvants, une fraction plus ou moins importante peut se retrouver volatilisée dans l'atmosphère sous forme d'émissions que l'on peut qualifier de fugitives au cours du transfert des eaux depuis la sortie de l'installation jusqu'à la station de traitement des eaux ; il y a volatilisation d'une partie plus ou moins importante de ces solvants au moment du traitement des eaux. Ce flux O_2 doit donc se définir comme étant celui à la sortie de l'installation.
- O_3 : rejets sous forme de solvants présents dans les produits manufacturés. Il s'agit de rési-

du où les solvants sont présents mais non utiles dans le cours de l'utilisation ultérieure des produits manufacturés (traitement du bois dans lequel ce flux de solvants résiduels peut être très variable et très important ; papier imprimé contenant encore des encres non totalement sèches, etc.). Il s'agit également de présence voulue de solvants lorsqu'il y a production de produits manufacturés à base de solvants (peintures, encres, colles, etc.).

- O_4 : rejets fugitifs, appelés ainsi parce qu'ils ont échappé à une ou à des tentatives pour les capter, les collecter et les canaliser.
- O_5 : flux de solvants issu du procédé sous forme canalisée qui est totalement détruit ou transformé ou déplacé dans une installation ad hoc. Le flux de solvant non détruit ou non transformé ou non déplacé est O_1 qui se retrouve dans l'atmosphère. Le solvant déplacé peut être éventuellement recyclé dans l'installation ; c'est

un cas particulier de recyclage interne et dans ce cas $O_5 = 0$.

- O_6 : flux de solvants contenus dans les déchets, que ces solvants constituent une phase liquide ou bien qu'ils soient inclus dans une phase solide ou pâteuse (application de peinture, dégraissage métallique, nettoyage à sec, etc.).
- O_7 : flux de solvants vendus à l'extérieur de l'installation ou cédés à une autre installation voisine. Il s'agit quelquefois de solvants en surplus, en excès ou non utilisables à ne pas confondre avec O_3 .
- O_8 : flux de solvants envoyés en régénération externe.

Les émissions fugitives O_4 sont alors données par la relation :

$$O_4 = (I_1 + I_2 + I_3) - (O_1 + O_2 + O_3 + O_5 + O_6 + O_7 + O_8)$$

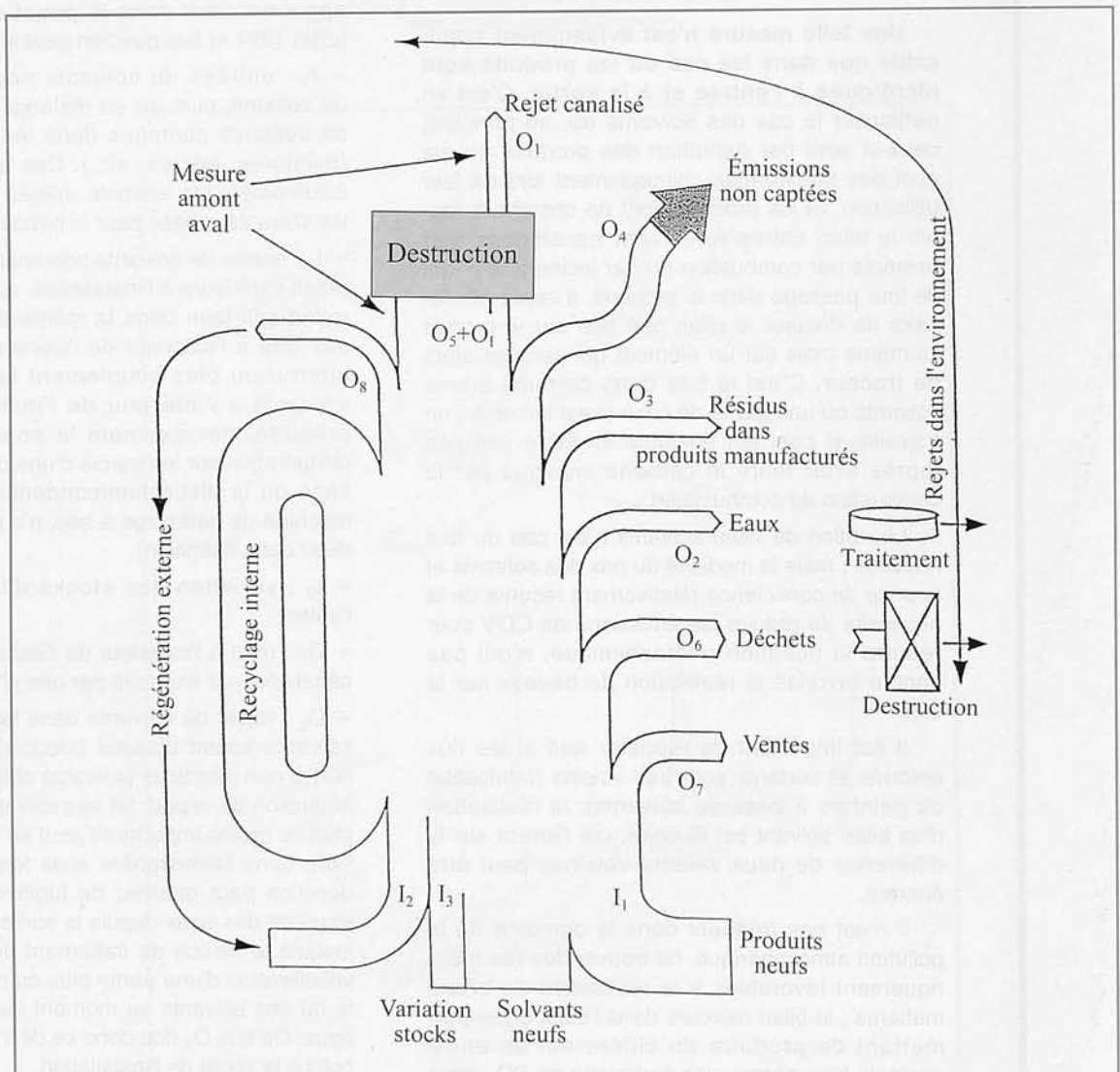


Figure 5. Schéma général d'un bilan solvants.
General scheme of a solvent balance.

Mesure des divers flux de composés organiques volatils dans un bilan solvants

Dans le cadre d'un bilan solvants, la mesure des concentrations et des flux de solvants et de COV concerne :

- les rejets dans les effluents gazeux canalisés ($O_1 + O_5$) ;
- les rejets dans les déchets (O_6) ;
- les rejets dans les eaux (O_2).

On est en droit de supposer que les concentrations en solvants dans

- les produits neufs I_1 , I_2 et I_3 ;
- les produits manufacturés O_3 ;
- les solvants vendus O_7 ;
- les solvants régénérés à l'extérieur O_8

sont connues et qu'il n'y a pas lieu de prévoir de mesures particulières sauf exception.

On ne fera que rappeler les précautions à prendre lors de la mesure de flux de composés organiques volatils. En effet, les mesures globales telles que la détection par ionisation de flamme (FID), la détection par photo-ionisation (PID) ou l'absorption infrarouge (IRA) ne donnent que des indices. Ces indices ne peuvent être traduits en terme de masse de COV que si les détecteurs ont été préalablement étalonnés avec soin (en mg de CH_4 équivalent/ Nm^3 , par exemple). Dans certains cas, si l'on veut séparer les flux de différents COV, il est nécessaire d'opérer auparavant une séparation par chromatographie en phase gazeuse.

Variabilité des flux dans le temps et précision

Un bilan solvants est établi sur une certaine durée, le plus souvent l'année. Les entrées et sorties doivent donc être estimées de façon statistiquement significative sur toute cette durée.

Tous les flux sont sujets à des variations tout au long de l'année. C'est plus particulièrement le cas des flux O_1 , O_2 , O_3 , O_5 , O_6 , qui ne peuvent en principe être connus que par des mesures.

Ces mesures peuvent être soit permanentes et continues, soit périodiques. Dans ce dernier cas, un échantillon sera prélevé de temps en temps et une mesure sera effectuée. Le problème est de déterminer la fréquence de ces prélèvements en fonction de la variabilité des flux pour aboutir à une connaissance du flux annuel entaché d'une marge d'incertitude raisonnablement faible.

Cela conduit souvent à la nécessité de mettre en place un appareil de mesure continue surtout sur O_1 et O_5 (rejets dans l'atmosphère).

Les ordres de grandeur des marges d'incertitude des différents flux se résument de la façon suivante en excluant les incertitudes liées à l'échantillonnage dans le temps.

On constate que, même en prenant des marges d'incertitude raisonnables pour chacune des parties du bilan, les émissions fugitives O_4 sont connues à ± 15 à 60 % selon les configurations. On remarque en particulier l'importance, dans l'incertitude globale, de la connaissance de O_1 et de O_5 .

Mesure de flux par utilisation de traceurs

Lorsque l'on a à faire à des écoulements de fluides de structures variables et complexes, ce qui est toujours le cas des émissions diffuses et fugitives, l'utilisation de traceurs (SF_6 , hélium, traceur radioactif...) est souvent très fructueuse.

Deux objectifs peuvent être poursuivis :

- mesurer les débits de façon simple ;
 - s'affranchir des effets de la diffusion turbulente.
- a) Mesurer des débits dans des conduites.

En un ou plusieurs points judicieusement choisis en amont de la section de mesure on injecte un débit connu de traceur (D_1 en g/h). Ce traceur chemine et diffuse dans l'air comme le polluant à étudier. Dans la section de mesure, on

	Bilan solvants	Bilan équivalent CH_4
$\Sigma I \equiv I_1 + I_2 + I_3$	$\pm 1 \%$	$\pm 10 \%$
$O_1 + O_5$ air	$\pm 15 - 25 \%$	$\pm 15 \%$
O_2 eaux	$\pm 15 - 25 \%$	$\pm 15 \%$
O_3 produits	$\pm 1 - 25 \%$	$\pm 10 - 15 \%$
O_6 déchets	$\pm 5 - 25 \%$	$\pm 10 - 15 \%$
O_7 vendus	$\pm 1 \%$	$\pm 10 \%$
O_8 régénération	$\pm 10 \%$	$\pm 10 \%$
Ces marges d'incertitude ne prennent pas en compte l'incertitude liée à l'échantillonnage dans le temps.		

mesure une concentration C_t du traceur exprimée en g/m^3 .

Deux cas peuvent se présenter :

- ou bien le traceur, grâce à une diffusion turbulente suffisante, est **uniformément réparti** dans le flux gazeux ; dans ce cas la concentration C_t est approximativement uniforme dans la section de mesure et le rapport D_t/C_t représente le débit gazeux total en m^3/h qui traverse la section de mesure,
- ou bien le traceur **n'a pas pu se répartir uniformément** et la détermination du débit est dans ce cas impossible si on ne connaît pas à la fois la concentration du traceur et la vitesse des gaz en chaque point de la surface de référence. Ce cas là est donc rarement intéressant.

Cet impératif de répartition uniforme limite considérablement l'utilisation des traceurs à quelques cas simples où les dimensions de la surface de référence sont petites comparées à la longueur du chemin entre la source de traceur et cette surface.

Cette méthode est donc tout à fait appropriée dans le cas de la technique « hotte/cheminée mobile » ; à la rigueur, elle pourrait être utilisée dans un petit lanterneau surmontant une vaste halle.

b) S'affranchir des effets de la diffusion turbulente (Figure 6).

Le principe repose sur l'hypothèse que le traceur et le polluant diffusent de la même façon dans l'atmosphère.

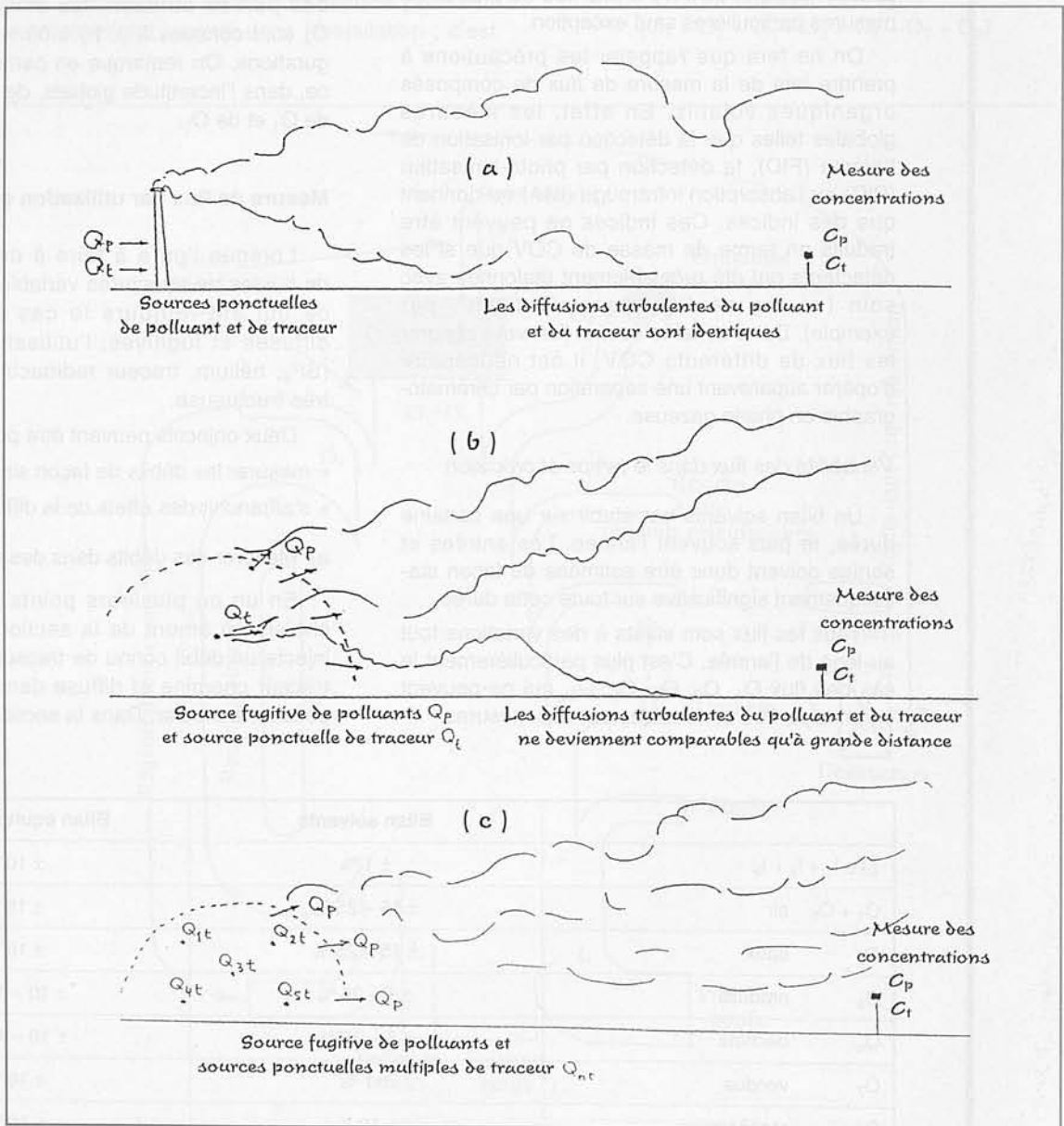


Figure 6. Méthode par traceur. Tracer technique.

Si le traceur est émis au même endroit que la source, le rapport des flux F sous le vent sera égal au rapport des débits d'émission Q :

$$\frac{Q_p}{Q_t} = \frac{F_p}{F_t}$$

et, en supposant que les distributions des concentrations du polluant et du traceur sont les mêmes :

$$\frac{C_p(xyz)}{C_t(xyz)} = \frac{Q_p}{Q_t}$$

Pour que cette dernière hypothèse soit vérifiée, un certain nombre de précautions doivent être prises quant à l'emplacement de l'émission de traceur (Figure 6) :

a) si la source de polluant est ponctuelle, il suffit de placer l'émission de traceur au même endroit que la source ponctuelle (cas a de la figure 6) ;

b) si la source de polluant est diffuse, cela signifie qu'elle n'est pas parfaitement localisée dans l'espace ; il faudrait en principe que la source de traceur soit en tout point semblable à la source de polluant, or ceci est matériellement impossible. Afin d'approcher au mieux la réalité de l'identité des diffusions turbulentes du polluant et du traceur il faut donc :

- soit utiliser une seule source ponctuelle de traceur placée en un point dont les caractéristiques devraient être analogues à celles d'un barycentre de l'émission diffuse (si tant est que ce **barycentre** a une signification physique) et faire des mesures de concentration **le plus loin possible** sous le vent des sources (cas b de la figure 6),

- soit utiliser des **sources de traceur ponctuelles multiples** réparties au mieux dans l'émission diffuse et fugitive ; dans ce cas le mélange du traceur et du polluant étant dès l'émission plus intime, la mesure des concentrations peut se faire sous le vent plus près des sources (cas c de la figure 6).

Mesures des émissions fugitives par les fuites des équipements

Face aux émissions fugitives de COV par les fuites qui se produisent dans un certain nombre d'équipements principalement dans les industries pétrolières, pétrochimiques et chimiques, les États-Unis ont mis au point (et améliorent constamment depuis une vingtaine d'années) une méthode de mesure très spécifique. Cette méthode consiste à détecter et à mesurer, à l'aide d'un appareil portable, une concentration en COV à proximité (de l'ordre du centimètre) des parties potentiellement fuyardes des équipements tels que : brides, presse-étoupes de pompe, vannes... Une telle méthode est extrêmement coûteuse et contraignante. Il n'est pas rare que ces équipements potentiellement fuyards soient au nombre de plusieurs milliers,

voire plusieurs dizaines de milliers dans ces types d'industries, alors que le nombre d'équipements réellement fuyards est de l'ordre de la centaine.

Le protocole américain offre quatre approches différentes. Pour chacune de ces approches, le protocole différencie clairement l'industrie chimique (SOCMI) et l'industrie pétrolière :

- **le facteur d'émission moyen** demande de connaître : le nombre de chaque type d'équipement, la phase du produit, la concentration en composés organiques totaux, la durée pendant laquelle l'équipement est en service. (Ce facteur d'émission ne doit pas être confondu avec le facteur d'émission global applicable à l'ensemble d'une raffinerie qui est actuellement utilisé en France pour l'estimation de la taxe sur les émissions de COV).

Ces facteurs d'émission existent pour les installations chimiques (SOCMI), les raffineries, les dépôts pétroliers et les sites de production oil/gaz ;

- **la méthode par scrutation par gamme de concentration** (screening range).

Les concentrations en COV mesurées sont classées en deux groupes (< 10 000 ppmv et > 10 000 ppmv). Des facteurs d'émissions sont proposés pour chaque type d'équipement et pour chaque classe de concentration ;

- **la méthode par corrélation** avec utilisation d'une formule reliant la concentration (ppmv) en COV à proximité de la partie potentiellement fuyarde et le flux de COV (en kg/h). Les formules de corrélation sont disponibles comme précédemment ; les formules pour les raffineries sont également applicables aux dépôts pétroliers et aux sites de production oil/gaz ;

- **la méthode par corrélation spécifique d'une unité** nécessite de faire des mesures par ensachage (bagging) sur un échantillon représentatif (15 à 25) d'équipements d'un type donné sur une unité, ce qui demande de procéder auparavant à une scrutation statistiquement représentative.

La figure 7 présente un exemple de relation entre la concentration mesurée (en ppmv) et le flux (en kg/h) dans le cas de raccords.

L'application de cette méthode permet de montrer que, dans le cas d'installations pétrolières, pétrochimiques et chimiques, 80 % des émissions fugitives sont dues à quelques pourcent d'équipements ; des travaux américains ont également montré qu'il était nécessaire d'examiner en moyenne environ 800 équipements avant d'en trouver un dont la fuite soit considérée comme intéressante et significative. Cette méthode est donc absurde au point de vue scientifique et technique, mais jusqu'à présent on n'en avait pas de meilleure. Des travaux de recherche et de développement sont actuellement en cours pour pouvoir détecter par imagerie vidéo dans l'infrarouge la présence d'un équipement fuyard et

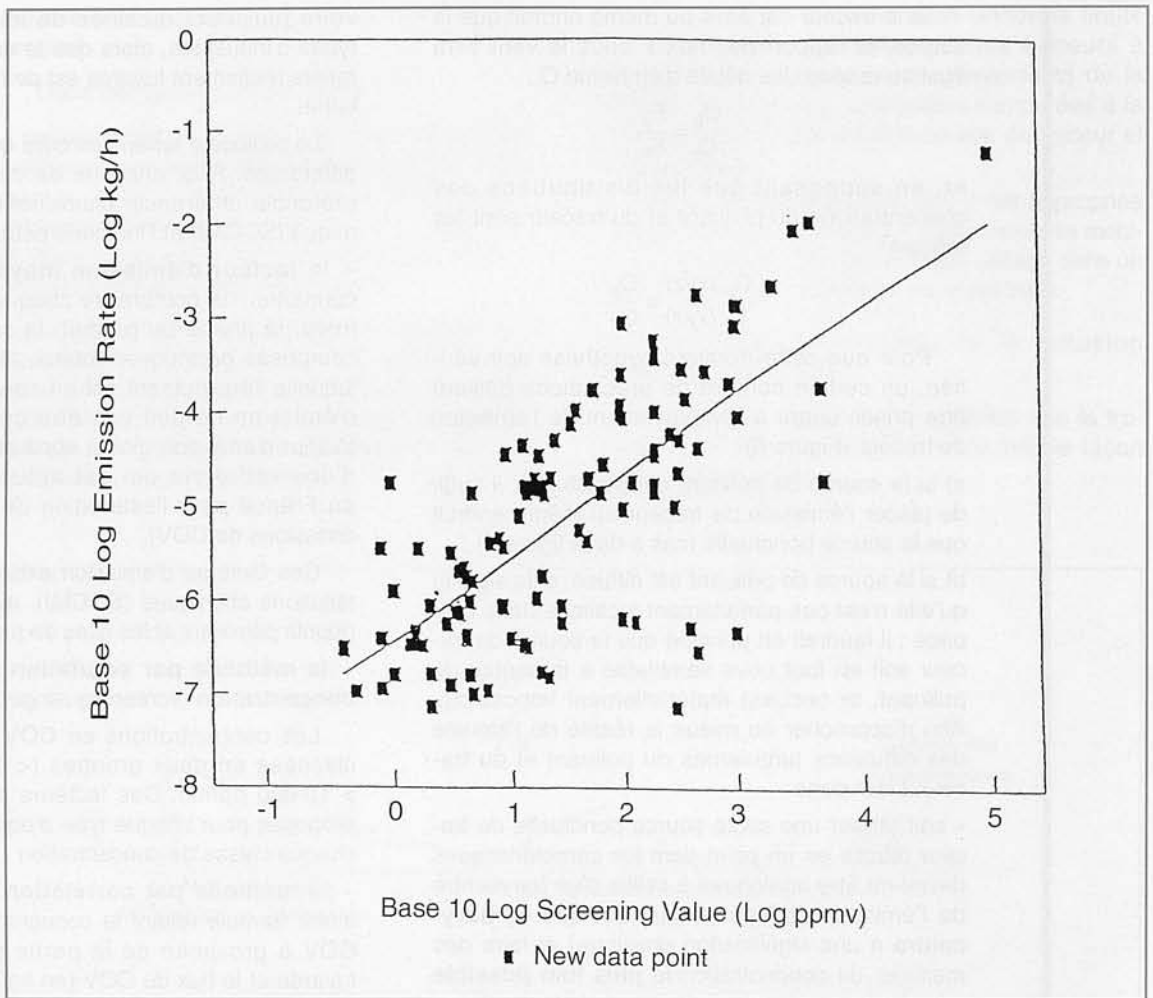


Figure 7. Corrélation concentration/flux de COV pour des brides dans l'industrie chimique.
Correlation between concentration and fugitive flux for flanges in chemical industry.

pouvoir ainsi contrôler et réparer sans hésitation cet équipement en évitant des travaux de recherche fastidieux.

Mesures indirectes par l'utilisation d'un rayonnement électromagnétique

Dans les cas des émissions diffuses et fugitives, les polluants étant par définition rejetés de façon plus ou moins quelconque dans l'atmosphère, il est tentant d'essayer de les détecter et d'en quantifier la concentration à l'aide d'un rayonnement électromagnétique qui sera soit diffusé par ces polluants, soit absorbé, soit les deux. Le rayonnement électromagnétique le plus simple d'emploi est un rayonnement lumineux dont le cheminement dans l'atmosphère est effectivement perturbé par la présence de certaines molécules ou par des particules solides ou liquides.

Ce principe a donné naissance à un grand nombre de techniques dont certaines sont opérationnelles et d'autres encore en développement.

Les techniques sont :

- **soit actives** par l'utilisation d'une impulsion de lumière très brève (de l'ordre de la microseconde - LIDAR) ; cette impulsion de lumière est diffusée par les molécules et les poussières présentes dans l'atmosphère mais également partiellement absorbée par ces mêmes molécules et poussières. L'analyse en fonction du temps de « l'écho » observé à l'aide d'un dispositif optique permet de mesurer les concentrations en polluants et aussi de repérer leur positionnement dans l'espace. La connaissance du profil de vent jusqu'à une altitude où la concentration en polluants est négligeable permet de déterminer un flux d'émission. Ce flux est relatif aux seules émissions fugitives si l'on est en mesure de distinguer la contribution des émissions canalisées. Cette méthode extrêmement attrayante n'est encore réellement que semi-opérationnelle et d'application limitée à un nombre réduit de polluants ;
- **soit passives** par la mesure de l'absorption d'un rayonnement lumineux sur un trajet optique

fixe par les polluants gazeux, particulaires ou vésiculaires. Par exemple, la technique DOAS (Spectrométrie d'Absorption Optique Différentielle) peut être utilisée.

Dans un cas comme dans l'autre, l'installation responsable d'émissions diffuses et fugitives est « ceinturée » par des faisceaux optiques qui permettent de détecter et de quantifier des concentrations en polluants. Les flux sont obtenus en ajoutant une mesure du vent. Ces méthodes donnent un résultat global et ne permettent pas toujours de savoir quel élément de l'installation est responsable des émissions diffuses et fugitives.

Études en similitude

Il existe deux types de simulation :

- la simulation physique (aérodynamique ou hydraulique) ;
- la simulation numérique.

Les **similitudes aérodynamiques ou hydrauliques** sont couramment utilisées pour essayer de mieux connaître la diffusion des polluants depuis une source ou un ensemble de sources :

- à l'intérieur des ateliers et des halles (sidérurgiques en particulier) ;
- à l'extérieur des bâtiments (étude de l'influence de la hauteur des rejets et des bâtiments voisins) ;
- sur un site présentant des émissions multiples.

Dans tous les cas, l'objectif est soit le dimensionnement adéquat des moyens de captation ou de rejet (hottes, lanterneaux, cheminées), soit la prévision des concentrations dans l'air ambiant.

Ces techniques sont bien connues et, si les conditions de similitude sont bien respectées, les résultats sont souvent satisfaisants.

La **simulation numérique** à l'aide d'un modèle de dispersion n'est réalisable que dans le cas d'un terrain plat ou peu accidenté ; elle permet, si l'on connaît les caractéristiques de stabilité et de

diffusion turbulente de l'atmosphère, d'utiliser un modèle de diffusion et de calculer un ordre de grandeur des émissions diffuses et fugitives après avoir mesuré les concentrations en polluants dans la surface de référence (voir Mesure par analogie avec les méthodes de mesures des émissions canalisées, p. 69). C'est ce qu'on appelle la **modélisation inverse**.

Cette méthode commence à être utilisée, bien qu'elle soit fortement tributaire de paramètres atmosphériques souvent mal connus ou insuffisamment connus au moment des mesures.

Conclusion

Malgré le fait que les émissions diffuses et fugitives soient difficiles à définir précisément et difficiles à quantifier, des techniques de mesure ont pu être mises au point et sont de plus en plus utilisées. Cependant, ces techniques sont considérablement plus complexes que pour la mesure des émissions ponctuelles ; les coûts de mise en œuvre sont également beaucoup plus élevés. Il est probable que le développement de nouvelles techniques faisant appel à des systèmes optiques ou à la modélisation rendront plus aisées, plus systématiques et moins coûteuses la connaissance et la surveillance des émissions diffuses et fugitives.

Références

- Métrologie des émissions erratiques (dites diffuses et fugitives). Monographie du CITEPA Juin 1984.
- Étude de faisabilité des bilans solvants (Solvent Management Plan). Étude du CITEPA pour le ministère de l'Environnement, Février 1995.
- Protocol for Equipment Leak Emission Estimates EPA - 453/R-95-017, November 1995.