

Bilan intégré des émissions et installations fixes de combustion de métaux lourds en Alsace et dans le Bade-Wurtemberg

An Integrated Heavy Metal Emission Inventory in Alsace and Baden-Wurtemberg

Christine VEAUX (*), Thierry ZUNDEL (*), Otto RENTZ (*)

RÉSUMÉ

Les émissions des métaux lourds As, Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Se, V et Zn issues des installations de combustion fixes dans le Bade-Wurtemberg et en Alsace sont déterminées pour les milieux air, eau et sols. Le bilan intégré des flux régionaux de métaux lourds repose sur le développement d'une méthodologie prenant en compte les caractéristiques techniques de l'installation. L'analyse de la structure du parc d'installations en fonction de la composition du combustible et des caractéristiques de la chaudière et de la chaîne de traitement des fumées permet de définir des *installations représentatives*. Pour chaque installation représentative, on détermine les *facteurs de répartition* qui décrivent la distribution des flux de métaux lourds entre les cendres sous chaudière, les résidus d'épuration des fumées et les effluents gazeux et qui, associés à la *concentration* de métal lourd dans le combustible utilisé et aux données d'*activités* du parc des installations de combustion (consommation annuelle de combustible), permettent de déterminer les émissions totales de métaux lourds dans la région considérée. Les résultats sont disponibles pour les secteurs « centrales thermiques publiques », « industrie » et « résidentiel/tertiaire » pour chaque élément, milieu et technologie de combustion pour l'année 1992.

ABSTRACT

The emissions of the heavy metals As, Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Se, V, and Zn into the air, water, and by-products, caused by stationary combustion plants in Baden-Wurtemberg (Germany) and Alsace (France) are assessed. The main emphasis of the study is on the development of an adequate, process specific tool allowing to determine multi-media heavy metal emissions by bottom ash or slag, filter ash, by-products of the flue gas desulphurisation device (FGD by-products), and flue gas from the use of fossil fuels in Baden-Wurtemberg and Alsace. The heavy metal mass streams are analysed systematically with regard to fuel composition, boiler type, operation mode and flue gas treatment devices to define representative plants with regard to the partitioning of heavy metal streams. For these representative plants, partition factors, which characterise the distribution of heavy metals between flue gas and by-products, are determined. The emission factors are derived from the partition factors and the heavy metal concentrations in the fuels used. Then, the emission factors are associated with data on emission sources referring to the configuration of combustion installations and activity data (annual consumption of fuel) to assess the heavy metal emissions in the study region. Heavy metal emissions through bottom ash, filter ash, FGD by-products and flue gas as well as heavy metal deposition in plants are assessed for the sectors « public power plants », « industrial combustion » and « domestic heating » for the base year 1992. The results are available for Baden-Wurtemberg and Alsace for each heavy metal, sector, emission pathway, and combustion technique.

1. Position du problème et objectifs

Les métaux lourds se caractérisent par leur persistance, leur toxicité et leur pouvoir d'accumulation dans le milieu naturel. C'est pourquoi leurs émissions dans l'air, l'eau et le sol peuvent entraîner à long terme un danger pour l'environnement.

De plus, ils peuvent être transportés dans l'atmosphère sur de longues distances et se déposer dans des régions éloignées du lieu d'émission telles que l'Arctique [1].

La production d'énergie à partir des combustibles fossiles représente une source importante d'émissions de métaux lourds, non seulement par les rejets dans l'atmosphère, mais aussi par les différents effluents des installations de combustion tels que les cendres sous chaudière, les cendres filtrées et les résidus issus de la désulfuration des gaz de combustion. La répartition des flux de mé-

(*) Institut Franco-Allemand de Recherche sur l'Environnement (DFIU/IFARE), Hertzstr. 16, 76187 Karlsruhe, Allemagne.

taux lourds entre les différents effluents dépend des caractéristiques de l'installation et du combustible, et requiert une approche spécifique pour chaque type d'installation. Les facteurs d'émission disponibles dans la littérature ne concernent généralement que les émissions atmosphériques et ne sont que faiblement documentés. Leurs limites de validité en fonction du type d'installation ne sont souvent pas précisées.

L'étude présentée a pour objet la réalisation d'un bilan intégré des émissions des métaux lourds¹ As, Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Se, V et Zn à travers les fumées et les résidus issus des installations de combustion fixes du Bade-Wurtemberg et de l'Alsace. Le bilan est établi à partir d'une modélisation de la distribution des métaux lourds entre les fumées et les résidus solides et liquides prenant en compte les caractéristiques techniques de la chaudière et de la chaîne de traitement des fumées ainsi que les caractéristiques du combustible. Les émissions sont déterminées pour l'année 1992.

Cet article présente la méthodologie développée pour réaliser le bilan intégré des émissions, avec en particulier l'analyse de la structure des sources et la détermination, pour les installations représentatives, de facteurs d'émission pour les métaux lourds et les effluents considérés. Les résultats du bilan intégré pour le Bade-Wurtemberg et l'Alsace sont analysés par secteur et par type d'effluent.

2. Détermination des émissions de métaux lourds

2.1. Méthodologie générale

La détermination des flux régionaux de métaux lourds repose sur une approche par facteurs d'émission, résumée par l'Equation (1) :

$$E_{ijk} = FE_{ijk} \cdot A_i \quad (1)$$

Avec :

E_{ijk}	[g/a]	Emission du métal lourd j par l'installation i à travers l'effluent k
FE_{ijk}	[g/Mg]	Facteur d'émission de l'installation i pour le métal lourd j et l'effluent k
A_i	[Mg/a]	Activité de l'installation i (consommation annuelle de combustible)
i, j, k	[-]	Indices de l'installation, du métal lourd et de l'effluent

L'analyse de la structure du parc d'installations en fonction de la composition du combustible et des caractéristiques de la chaudière et de la chaîne de traitement des fumées permet de définir des *installations représentatives*. Pour chaque installa-

tion représentative sont déterminés des facteurs d'émission spécifiques au métal lourd et à l'effluent considérés. Dans l'Equation (2), les facteurs de répartition FR_{ijk} caractérisent la distribution des flux de métaux lourds entre les fumées et les résidus de combustion et de traitement des fumées :

$$FE_{ijk} = C_{ij \text{ Combust.}} \cdot FR_{ijk} \quad (2)$$

Avec :

$C_{ij \text{ Combust.}}$	[g/Mg]	Concentration du métal lourd j dans le combustible brûlé par l'installation i
FR_{ijk}	[-]	Facteur de répartition pour le métal lourd j et l'effluent k dans l'installation représentative i

Les émissions totales de la région pour chaque métal lourd j et effluent k s'obtiennent par sommation sur toutes les installations représentatives i de la région :

$$E_{jk} = \sum_{i=1}^I \left[\left(\sum_{n=1}^N A_{in} \right) \cdot C_{ij \text{ Combust.}} \cdot FR_{ijk} \right] \quad (3)$$

Avec :

A_{in}	[Mg/a]	Activité de l'installation n modélisée par l'installation représentative i
I	[-]	Nombre d'installations représentatives dans la région
i	[-]	Indice de l'installation représentative
N	[-]	Nombre d'installations modélisées par l'installation représentative i
n	[-]	Indice de l'installation modélisée par l'installation représentative i

Les activités A_{in} et les facteurs de répartition FR_{ijk} sont déterminés dans la suite.

2.2. Analyse de la structure des sources d'émission et détermination des activités

Les principaux combustibles utilisés dans le Bade-Wurtemberg et en Alsace sont le charbon, en particulier la houille, ainsi que les fiouls lourd et domestique. Le gaz naturel et le bois ne sont pas considérés en raison de leurs teneurs généralement faibles en métaux lourds. Pendant l'année 1992, 6,1 millions de tonnes de fioul domestique, 5,6 millions de tonnes de charbon et 1,0 million de tonnes de fioul lourd ont été consommés par les installations de combustion de la région considérée (Tableau I). En Alsace, les installations de combustion consomment 2 % du charbon, 10 % du fioul domestique et 16 % du fioul lourd utilisés dans la région. La contribution des différents secteurs aux consommations de combustibles ainsi que les technologies de combustion et de traitement des fumées mises en œuvre varient de façon importante entre le Bade-Wurtemberg et l'Alsace.

1. Les métalloïdes As et Se sont regroupés avec les autres métaux lourds.

Tableau I.
Consommation de charbon et de fioul dans les installations de combustion du Bade-Wurtemberg et de l'Alsace (1992)
(en 1 000 Mg)

Coal and fuel oil consumption in combustion installations in Baden-Wurtemberg and Alsace (1992) (in 1000 Mg)

	Houille	Coke de Houille	Briquettes de Houille	Briquettes de Lignite	Fioul Lourde	Fioul Domestique
Bade-Wurtemberg	5 291	30	33	145	871	5 476
Alsace	95	2	— ¹⁾	12	165	640
TOTAL	5 386	32	33	157	1 036	6 116

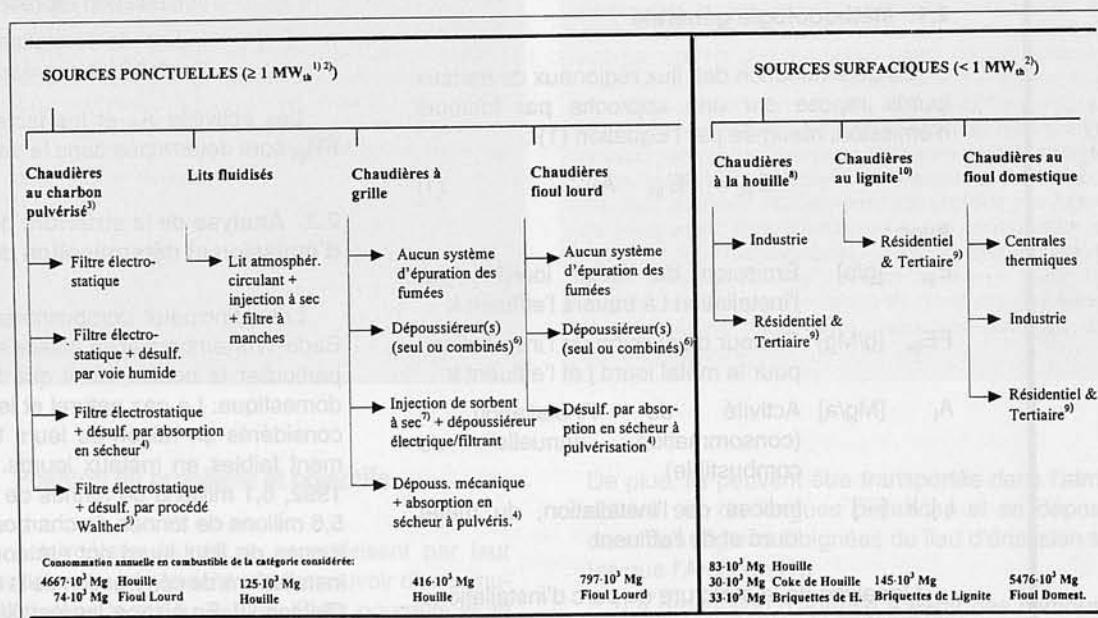
¹⁾ La consommation en briquettes de houille est contenue dans la consommation de houille.

L'analyse de la structure du parc d'installations a pour objectif la détermination des consommations de combustibles et des caractéristiques techniques des installations représentatives. Elle repose tout d'abord sur la différenciation entre les sources ponctuelles et surfaciques. Dans le Bade-Wurtemberg, les sources ponctuelles correspondent aux installations dont la puissance thermique excède 1 MW, pour lesquelles des déclarations d'émission bi-annuelles doivent être établies conformément à la législation environnementale allemande (11. BImSchV). En Alsace, les sources ponctuelles sont les installations soumises à la taxe parafiscale dont la puissance thermique excède 20 MW. Les sources ponctuelles sont classées selon le type de combustible, la technologie de combustion et le système d'épuration des fu-

mées. La classification des sources surfaciques est établie en fonction du combustible utilisé et du secteur économique. Les figures 1 et 2 présentent la structure des sources dans le Bade-Wurtemberg et en Alsace. On aboutit ainsi à la définition de 26 installations représentatives, qui se distinguent par une répartition spécifique des métaux lourds entre les différents effluents. On trouvera une description détaillée des installations représentatives dans le rapport [2].

2.3. Détermination des facteurs de répartition des installations au charbon pulvérisé

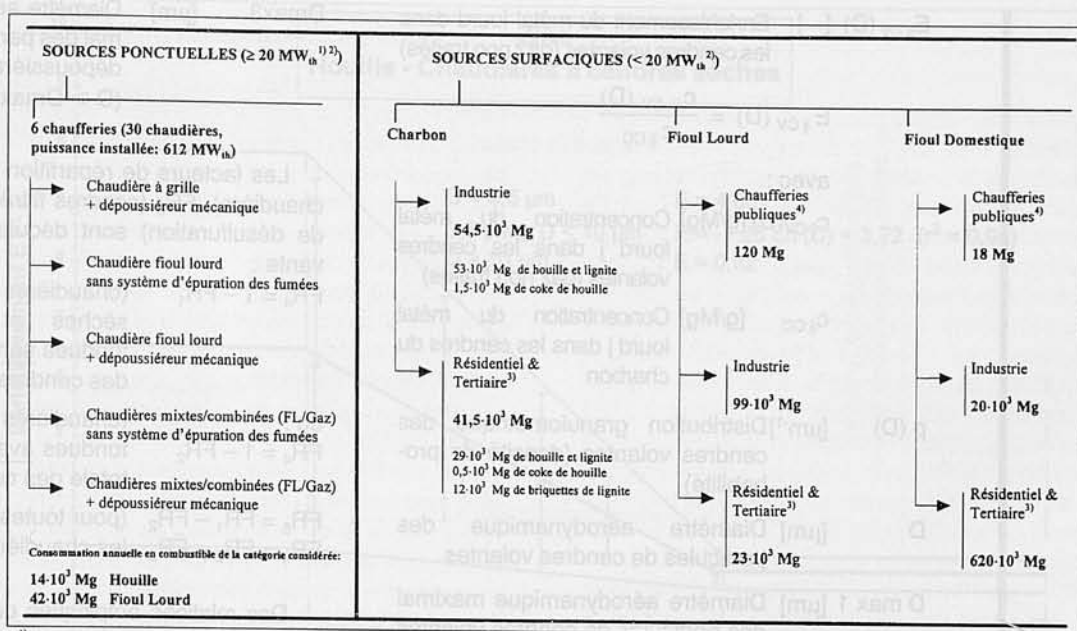
Pour les installations au charbon pulvérisé (installations représentatives N° 1 à 6) qui constituent



¹⁾ Somme des puissances de toutes les chaudières comprises dans l'installation
²⁾ Cette limite ne concerne pas les chaudières au fioul domestique
³⁾ Chaudières à cendres sèches et fondues
⁴⁾ Comprend le dépoussiéreur (électrique ou filtrant)
⁵⁾ Lavage à l'ammoniac

⁶⁾ Dépoussiéreur mécanique, électrique ou filtrant
⁷⁾ Injection de CaCO_3 , Ca(OH)_2 ou NaHCO_3
⁸⁾ Houille, coke de houille et briquettes de houille
⁹⁾ Installations de combustion du secteur résidentiel/tertiaire (dont établissements publics et milit.)
¹⁰⁾ Briquettes de lignite

Figure 1.
Structure des sources d'émission dans le Bade-Wurtemberg (1992)
Structure of the emission sources in Baden-Wurtemberg (1992)



¹⁾ Somme des puissances de toutes les chaudières comprises dans l'installation
²⁾ Cette limite ne concerne pas les chaudières au fioul domestique

³⁾ Le secteur Rés. & Tert. comprend les chaufferies publiques de puissance $< 3,5 \text{ MW}_h$
⁴⁾ Chaufferies publiques de puissance $\geq 3,5 \text{ MW}_h$ (puissance installée: 251 MW_h)

Figure 2.
 Structure des sources d'émission en Alsace (1992)
 Structure of the emission sources in Alsace (1992)

la source la plus importante en terme de consommation de combustible (83 % du charbon consommé dans la région), un modèle détaillé permettant d'obtenir les facteurs de répartition des métaux lourds As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, V et Zn liés aux particules² a été développé. Les effluents considérés et les facteurs de répartition correspondants sont indiqués sur la figure 3. Dans ce modèle, qui

prend en compte l'enrichissement $E_{ij \text{ cv}}(D)$ des métaux lourds en fonction du diamètre des particules (cendres volantes), le facteur de répartition FR_1 est donné par l'Equation (4) :

$$FR_1 = FE_{cv/cc} \int_0^{D_{max1}} E_{ij \text{ cv}}(D) p(D) dD \quad (4)$$

Avec :

$FE_{cv/cc}$ [-] Facteur d'émission des cendres volantes (gaz non traités) rapporté aux cendres dans le charbon

2. Le mercure et le sélénium qui ne se recondensent que très partiellement sur les particules, sont émis principalement sous forme vapeur ou gazeuse. Ces deux métaux sont traités à part.

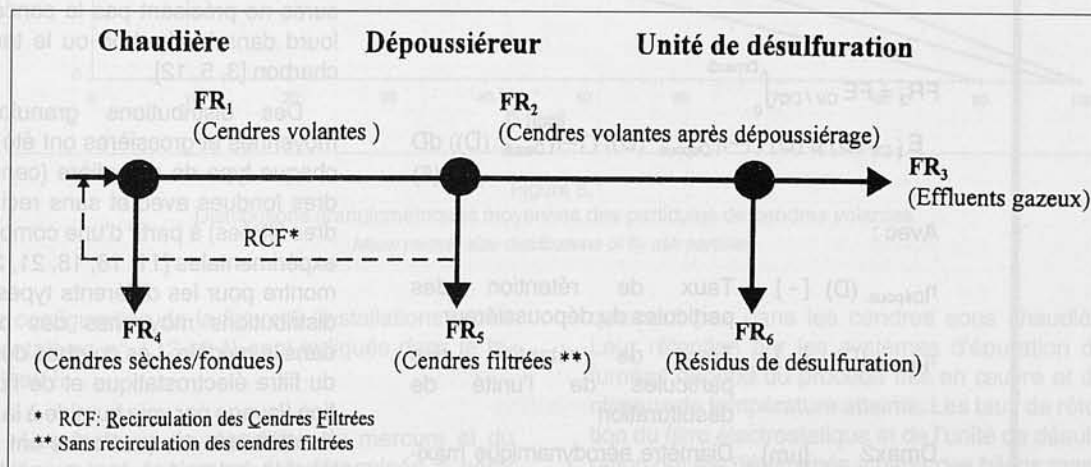


Figure 3.
 Configuration d'installation et dénomination des effluents et des facteurs de répartition correspondants
 Installation configuration and nomenclature of the discharge streams and the corresponding partition factors

$E_{ij\text{cv}}(D)$ [-] Enrichissement du métal lourd dans les cendres volantes (gaz non traités)

$$E_{ij\text{cv}}(D) = \frac{c_{ij\text{cv}}(D)}{c_{ij\text{cc}}}$$

avec :

$c_{ij\text{cv}}(D)$ [g/Mg] Concentration du métal lourd j dans les cendres volantes (gaz non traités)

$c_{ij\text{cc}}$ [g/Mg] Concentration du métal lourd j dans les cendres du charbon

$p(D)$ [μm^{-1}] Distribution granulométrique des cendres volantes (densité de probabilité)

D [μm] Diamètre aérodynamique des particules de cendres volantes

$D_{\text{max}1}$ [μm] Diamètre aérodynamique maximal des particules de cendres volantes dans les gaz non traités

i [-] Technologie de combustion ($i = 1$: chaudière à cendres sèches ; $i = 2$: chaudière à cendres fondues sans recirculation des cendres filtrées ; $i = 3$: chaudière à cendres fondues avec recirculation totale des cendres filtrées)

j [-] Indice du métal lourd

Les facteurs de répartition FR_2 et FR_3 sont déterminés en tenant compte des taux de rétention $\eta_{\text{Dépous.}}(D)$ et $\eta_{\text{Desulf.}}(D)$ des systèmes d'épuration des fumées en fonction du diamètre des particules :

$$FR_2 = FE_{\text{CV/CC}} \int_0^{D_{\text{max}2}} E_{ij\text{cv}}(D) p(D) (1 - \eta_{\text{Dépous.}}(D)) dD \quad (5)$$

$$FR_3 = FE_{\text{CV/CC}} \int_0^{D_{\text{max}3}} E_{ij\text{cv}}(D) p(D) (1 - \eta_{\text{Dépous.}}(D)) (1 - \eta_{\text{Desulf.}}(D)) dD \quad (6)$$

Avec :

$\eta_{\text{Dépous.}}(D)$ [-] Taux de rétention des particules du dépoussiéreur

$\eta_{\text{Desulf.}}(D)$ [-] Taux de rétention des particules de l'unité de désulfuration

$D_{\text{max}2}$ [μm] Diamètre aérodynamique maximal des particules dans les gaz dépoussiérés ($D \geq D_{\text{max}2} \Rightarrow \eta_E = 1$)

$D_{\text{max}3}$ [μm] Diamètre aérodynamique maximal des particules dans les gaz dépoussiérés et désulfurés ($D \geq D_{\text{max}3} \Rightarrow \eta_{\text{Desulf.}} = 1$)

Les facteurs de répartition FR_4 (cendres sous chaudière), FR_5 (cendres filtrées) et FR_6 (résidus de désulfuration) sont déduits de la façon suivante :

$FR_4 = 1 - FR_1$ (chaudières à cendres sèches et à cendres fondues sans recirculation des cendres filtrées)

ou : $FR_4 = 1 - FR_2$ (chaudières à cendres fondues avec recirculation totale des cendres filtrées)

$FR_5 = FR_1 - FR_2$ (pour toutes les chaudières) (9)

$FR_6 = FR_2 - FR_3$ (10)

Des relations empiriques décrivant l'enrichissement $E_{ij\text{cv}}(D)$ des métaux lourds As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, V et Zn en fonction du diamètre aérodynamique des particules ont été déterminées à partir d'une analyse statistique des données expérimentales publiées dans la littérature [3-18]. Les valeurs expérimentales des concentrations en métaux lourds des poussières déterminées en fonction du diamètre D des particules ont été ajustées au moyen d'une analyse de régression dans le domaine [0,5 ; 10 μm]. Les meilleurs ajustements des données expérimentales ont été obtenus avec une régression logarithmique ($E_{ij\text{cv}} = E_{ij\text{cv}}(\ln D)$, figure 4).

Les campagnes de mesure ont montré que l'enrichissement était constant pour les particules de diamètre inférieur à 1 μm et les particules de diamètre supérieur à 10 μm [17, 19, 20]. Conformément à ces observations, l'enrichissement dans le domaine 0 - 0,5 μm et dans le domaine supérieur à 10 μm a été supposé constant (Figure 4). Les barres d'erreur reflètent la dispersion des points expérimentaux issus de campagnes de mesures ne précisant pas la concentration de métal lourd dans le charbon ou le taux de cendres du charbon [3, 5, 12].

Des distributions granulométriques fines, moyennes et grossières ont été déterminées pour chaque type de chaudière (cendres sèches, cendres fondues avec et sans recirculation des cendres filtrées) à partir d'une compilation de données expérimentales [11, 16, 18, 21, 25, 30]. La figure 5 montre pour les différents types de chaudière les distributions moyennes des particules utilisées dans le modèle. Les courbes des taux de rétention du filtre électrostatique et de l'unité de désulfuration (lavage par voie humide à la chaux) en fonction du diamètre des particules ont été déterminées à partir des données expérimentales [18, 26-30]. Les courbes des taux maximum et minimum de rétention sont représentées sur la figure 6. A titre d'exemple, les facteurs de répartition obtenus pour

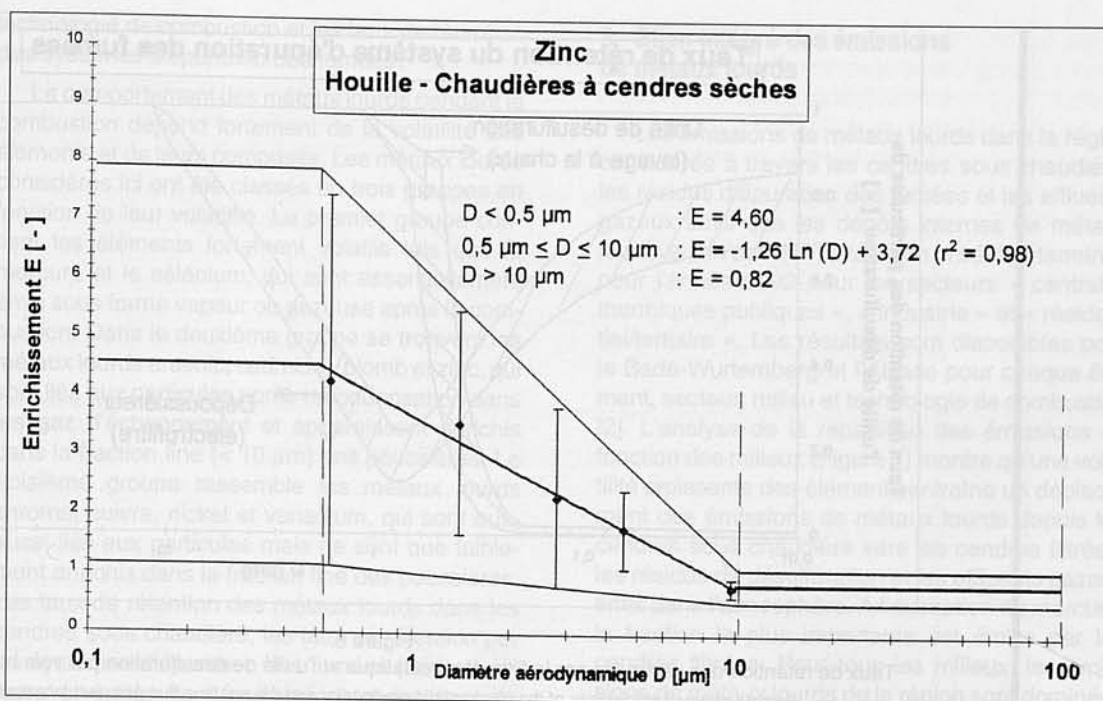


Figure 4.
Profil d'enrichissement du zinc (houille, chaudières à cendres sèches)
Enrichment profile of zinc (hardcoal, dry bottom boilers)

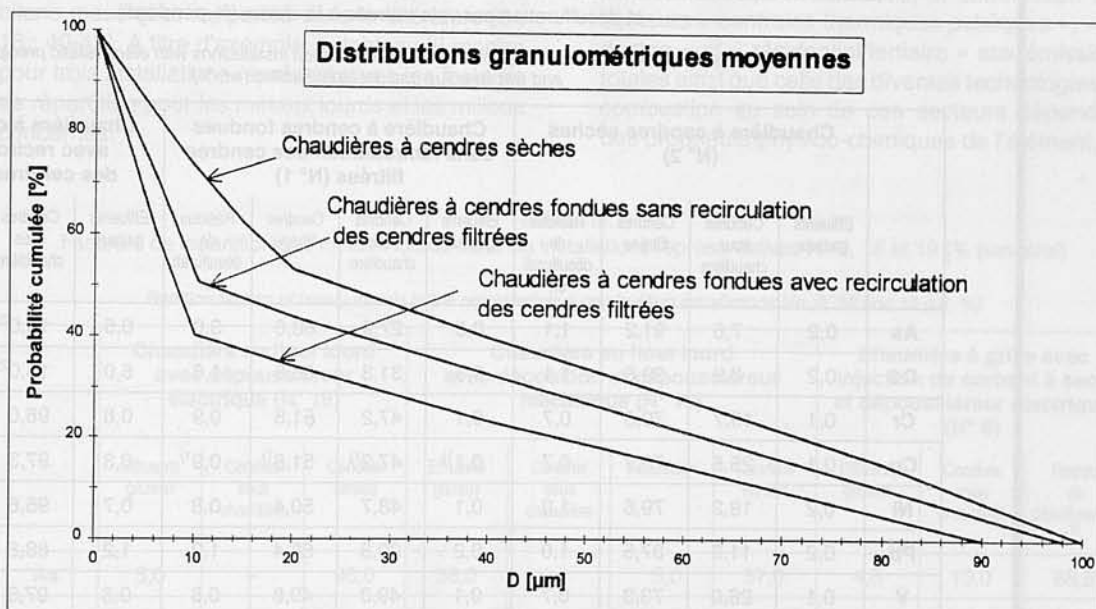


Figure 5.
Distributions granulométriques moyennes des particules de cendres volantes
Mean particle size distributions of fly ash particles

la configuration de la figure 3 (installations représentatives n° 1, 2 et 4) sont indiqués dans le tableau II.

Les facteurs de répartition du mercure et du sélénium ont également été déterminés à partir des données expérimentales. D'après [31-33], le mercure et le sélénium sont complètement volatilisés durant la combustion et ne se retrouvent prati-

quement pas dans les cendres sous chaudière. Leur rétention par les systèmes d'épuration des fumées dépend du procédé mis en œuvre et des niveaux de température atteints. Les taux de rétention du filtre électrostatique et de l'unité de désulfuration ont été déterminés à partir des bilans massiques réalisés dans les installations [31-35] ainsi que d'autres études de synthèse [36-39]. Les résultats sont donnés dans [2].

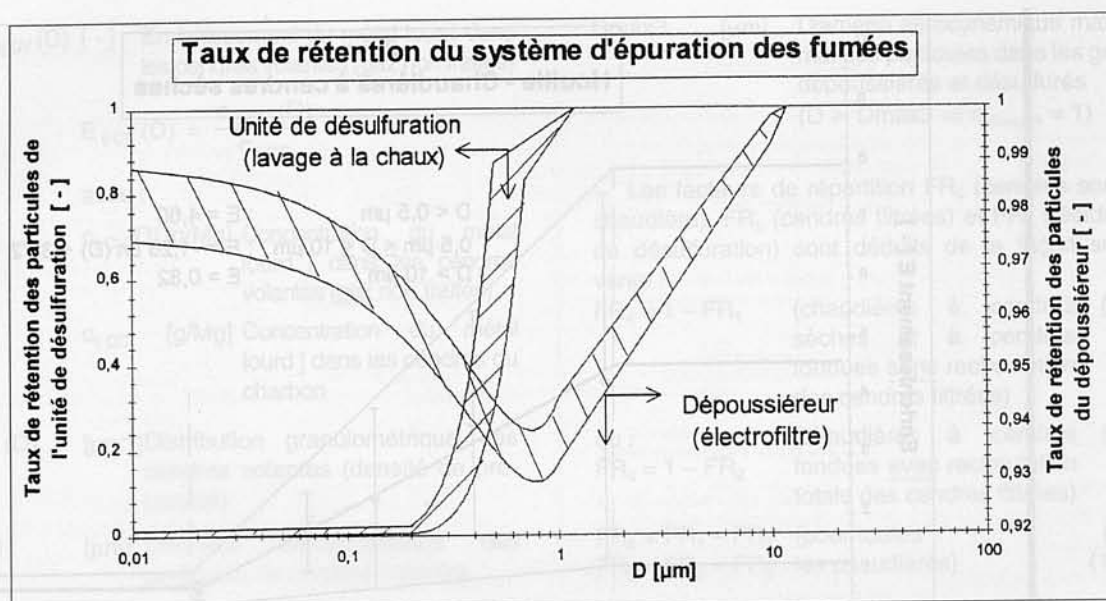


Figure 6.
Taux de rétention des particules par le filtre électrostatique et l'unité de désulfuration par voie humide à la chaux
Particle removal efficiencies of the electrostatic precipitator and the wet lime flue gas desulphurisation unit

Tableau II.
Facteurs de répartition des métaux lourds dans les installations au charbon pulvérisé avec filtre électrostatique et désulfuration par voie humide à la chaux (% pondéral)
Partition factors of heavy metals in pulverised coal combustion installations with electrostatic precipitator and wet lime flue gas desulphurisation (wt.-%)

	Chaudière à cendres sèches (N° 2)				Chaudière à cendres fondues sans recirculation des cendres filtrées (N° 1)				Chaudière à cendres fondues avec recirculation totale des cendres filtrées (N° 4)			
	Effluents gazeux	Cendres sous chaudière	Cendres filtrées	Résidus de désulfuration	Effluents gazeux	Cendres sous chaudière	Cendres filtrées	Résidus de désulfuration	Effluents gazeux	Cendres sous chaudière	Cendres filtrées	Résidus de désulfuration
As	0,2	7,6	91,2	1,1	0,5	27,9	68,6	3,0	6,5	10,0 ²⁾	—	83,5
Cd	0,2	8,9	89,8	1,1	0,3	31,3	66,8	1,6	6,0	15,0 ²⁾	—	79,0
Cr	0,1	19,7	79,5	0,7	0,1	47,2	51,8	0,9	0,6	96,0	—	3,5
Cu	0,1	25,5	73,7	0,7	0,1 ¹⁾	47,2 ¹⁾	51,8 ¹⁾	0,9 ¹⁾	0,3	97,3	—	2,4
Ni	0,2	19,2	79,6	1,0	0,1	48,7	50,4	0,8	0,7	95,6	—	3,8
Pb	0,2	11,3	87,5	1,0	0,2	30,3	68,4	1,2	1,2	88,8	—	10,0
V	0,1	26,0	73,3	0,7	0,1	49,3	49,8	0,8	0,3	97,8	—	1,9
Zn	0,2	10,6	88,0	1,2	0,3	32,0	66,0	1,6	1,4	89,3	—	9,3

¹⁾ Comme aucune mesure de l'enrichissement du cuivre dans les chaudières à cendres fondues sans recirculation des cendres filtrées n'est disponible, les facteurs de répartition ont été supposés égaux à ceux du chrome, dont le comportement est voisin de celui du cuivre.

²⁾ La détermination des taux de rétention dans les cendres fondues a été réalisée à partir des données de la littérature.

2.4. Détermination des facteurs de répartition des autres installations représentatives

Pour les autres installations représentatives, telles que les chaudières à grille, les lits fluidisés et les chaudières au fioul lourd et domestique, les facteurs de répartition ont été déterminés sur la

base d'une classification prenant en compte l'analyse des propriétés physico-chimiques des métaux lourds (volatilité, affinité organique, enrichissement en fonction de la taille des particules) et des particules émises (composition, distribution granulométrique, pouvoir d'adhésion, résistance électrique spécifique), les caractéristiques du combustible, la

technologie de combustion et les taux de rétention des systèmes d'épuration des fumées.

Le comportement des métaux lourds pendant la combustion dépend fortement de la volatilité des éléments et de leurs composés. Les métaux lourds considérés ici ont été classés en trois groupes en fonction de leur volatilité. Le premier groupe contient les éléments fortement volatils tels que le mercure et le sélénium, qui sont essentiellement émis sous forme vapeur ou gazeuse après la combustion. Dans le deuxième groupe se trouvent les métaux lourds arsenic, cadmium, plomb et zinc, qui sont liés aux particules après recondensation dans les gaz d'échappement et apparaissent enrichis dans la fraction fine ($< 10 \mu\text{m}$) des poussières. Le troisième groupe rassemble les métaux lourds chrome, cuivre, nickel et vanadium, qui sont eux-aussi liés aux particules mais ne sont que faiblement enrichis dans la fraction fine des poussières. Les taux de rétention des métaux lourds dans les cendres sous chaudière, les taux de rétention par les systèmes d'épuration des fumées (dépoussiéreurs et unités de désulfuration) et les taux de rétention par déposition interne (sur les parois de la chaudière ou de l'échangeur de chaleur, les canalisations et la cheminée) ont été déterminés pour chaque groupe de métaux lourds à partir des bilans massiques rapportés dans la littérature [3 ; 18 ; 40-42]. A titre d'exemple, le tableau III montre pour trois installations représentatives les facteurs de répartition pour les métaux lourds et les milieux concernés.

3. Bilan intégré des émissions de métaux lourds

Les émissions de métaux lourds dans la région considérée à travers les cendres sous chaudière, les résidus d'épuration des fumées et les effluents gazeux ainsi que les dépôts internes de métaux lourds au niveau de l'installation ont été déterminés pour l'année 1992 pour les secteurs « centrales thermiques publiques », « industrie » et « résidentiel/tertiaire ». Les résultats sont disponibles pour le Bade-Wurtemberg et l'Alsace pour chaque élément, secteur, milieu et technologie de combustion [2]. L'analyse de la répartition des émissions en fonction des milieux (Figure 7) montre qu'une volatilité croissante des éléments entraîne un déplacement des émissions de métaux lourds depuis les cendres sous chaudière vers les cendres filtrées, les résidus de désulfuration et les effluents gazeux émis dans l'atmosphère. A l'exception du mercure, la fraction la plus importante est émise par les cendres filtrées. Pour tous les milieux, les émissions de métaux lourds de la région sont dominées par celles du Bade-Wurtemberg, résultant essentiellement des fortes consommations en combustibles.

Pour chaque métal lourd, la contribution des secteurs « centrales thermiques publiques », « industrie » et « résidentiel/tertiaire » aux émissions totales ainsi que celle des diverses technologies de combustion au sein de ces secteurs dépendent des propriétés physico-chimiques de l'élément, de

Tableau III.
Facteurs de répartition des métaux lourds dans les installations représentatives N° 8, 18 et 19 (% pondéral)

Partition factors of heavy metals in the representative combustion installations No. 8, 18 and 19 (wt.-%)

	Chaudière au fioul lourd avec dépoussiéreur électrique (N° 18)			Chaudière au fioul lourd avec déposition et dépoussiéreur mécanique (N° 19)				Chaudière à grille avec injection de sorbent à sec ¹⁾ et dépoussiéreur électrique (N° 8)		
	Effluents gazeux	Cendres sous chaudière	Cendres filtrées	Effluents gazeux	Cendres sous chaudière	Déposition	Cendres filtrées	Effluents gazeux	Cendres sous chaudière	Résidu de désulfuration ²⁾
As	5,0	—	95,0	38,0	—	5,0	57,0	4,5	10,0	85,5
Cd	5,0	—	95,0	38,0	—	5,0	57,0	4,3	15,0	80,8
Cr	1,0	—	99,0	27,0	—	10,0	63,0	0,5	50,0	49,5
Cu	1,0	—	99,0	27,0	—	10,0	63,0	0,6	40,0	59,4
Hg	60,0	—	40,0	80,0	—	0,0	20,0	58,8	2,0	39,2
Ni	1,0	—	99,0	27,0	—	10,0	63,0	0,6	40,0	59,4
Pb	5,0	—	95,0	38,0	—	5,0	57,0	4,3	15,0	80,8
Se	50,0	—	50,0	70,0	—	0,0	30,0	38,4	4,0	57,6
V	1,0	—	99,0	27,0	—	10,0	63,0	0,6	40,0	59,4
Zn	5,0	—	95,0	38,0	—	5,0	57,0	4,3	15,0	80,8

¹⁾ Injection de sorbent à base de calcium à sec au-dessus de la flamme.

la structure du parc d'installations de la région et de la concentration en métal lourd dans les combustibles. C'est pourquoi les profils d'émissions diffèrent sensiblement entre le Bade-Wurtemberg et l'Alsace et entre les métaux lourds.

Emissions de métaux lourds par les effluents gazeux

La contribution de l'Alsace aux émissions atmosphériques totales de la région atteint, malgré la plus faible consommation en combustibles, 22 % pour les éléments As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, V et Zn

(± 3 % selon le métal lourd) (Figure 7). Ceci est dû à l'importance des chaudières non équipées d'installations de traitement des fumées en Alsace. Les émissions de Hg et de Se proviennent respectivement à 93 % et 97 % du Bade-Wurtemberg.

Dans le Bade-Wurtemberg, le secteur « centrales thermiques publiques » est à l'origine de 70 % des émissions atmosphériques de Hg et Se, malgré les taux élevés de rétention atteints par les systèmes d'épuration des fumées. Dans ce secteur, 94 % des émissions atmosphériques de Hg et

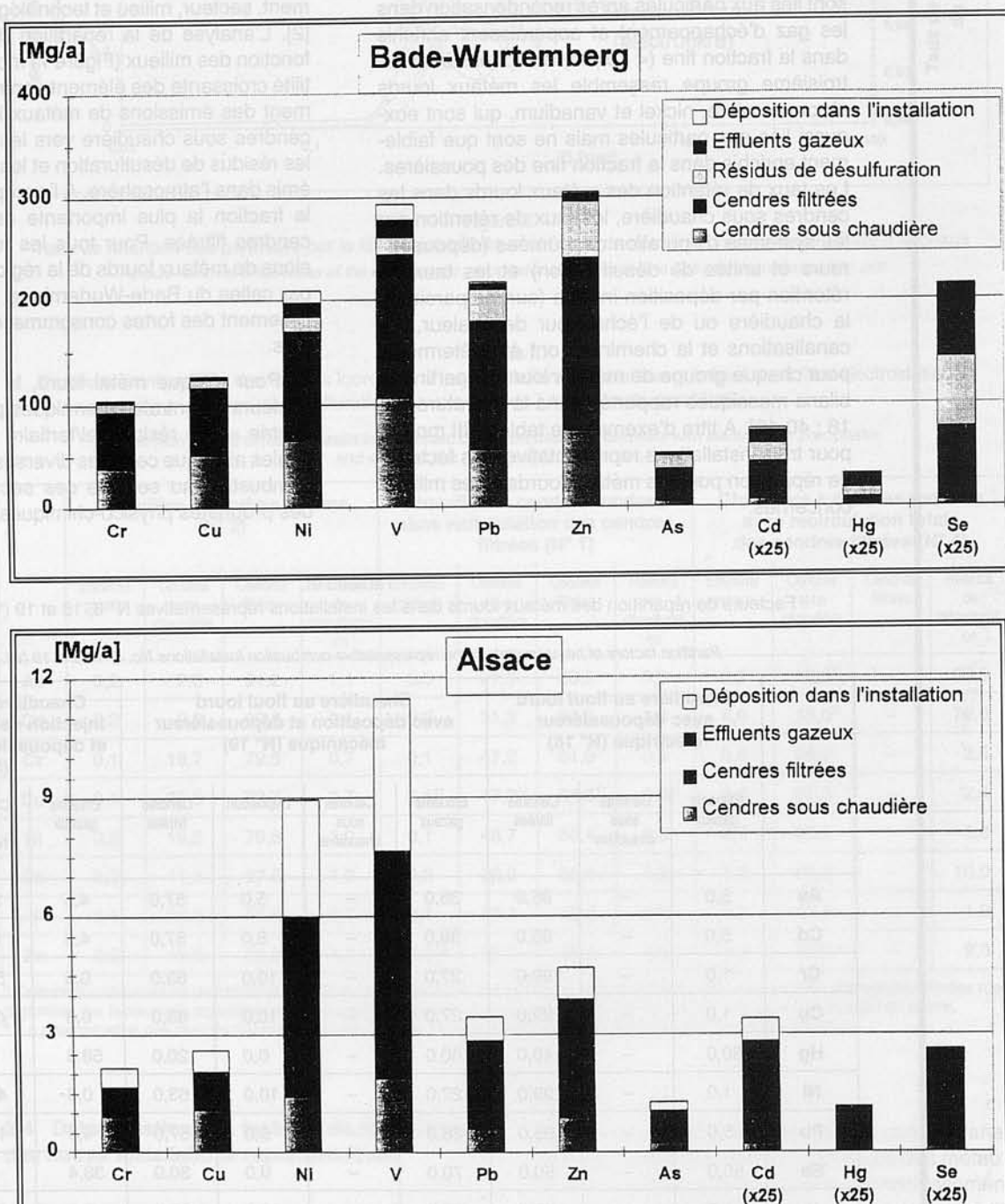


Figure 7.
Flux de métaux lourds dans le Bade-Wurtemberg et en Alsace (1992)
Heavy metal flows in Baden-Wurtemberg and in Alsace (1992)

Se sont dus aux chaudières au charbon pulvérisé (Figure 8). En Alsace, la part des centrales thermiques publiques (chaudières à grille et chaudières au fioul lourd) aux émissions atmosphériques varie entre 9 % (As, Cd) et 15 % (Ni, V) selon le métal lourd (Figure 8).

Dans le Bade-Wurtemberg tout comme en Alsace, le secteur « industrie » constitue la source d'émissions atmosphériques la plus importante pour tous les métaux lourds, à l'exception du mercure et du sélénium dans le Bade-Wurtemberg. La

contribution de ce secteur aux émissions atmosphériques atteint 44 % (± 13 % selon le métal lourd, exceptés Hg et Se) dans le Bade-Wurtemberg, et 54 % (± 8 % selon le métal lourd) en Alsace (Figure 8). Les chaudières au charbon présentent les plus fortes émissions d'As, Cr, Cu, Hg, Pb, Se et Zn, celles au fioul lourd les plus fortes émissions de Cd, Ni et V.

Le secteur « résidentiel/tertiaire » constitue, malgré la faible consommation en charbon et fioul lourd et l'utilisation prépondérante de fioul domes-

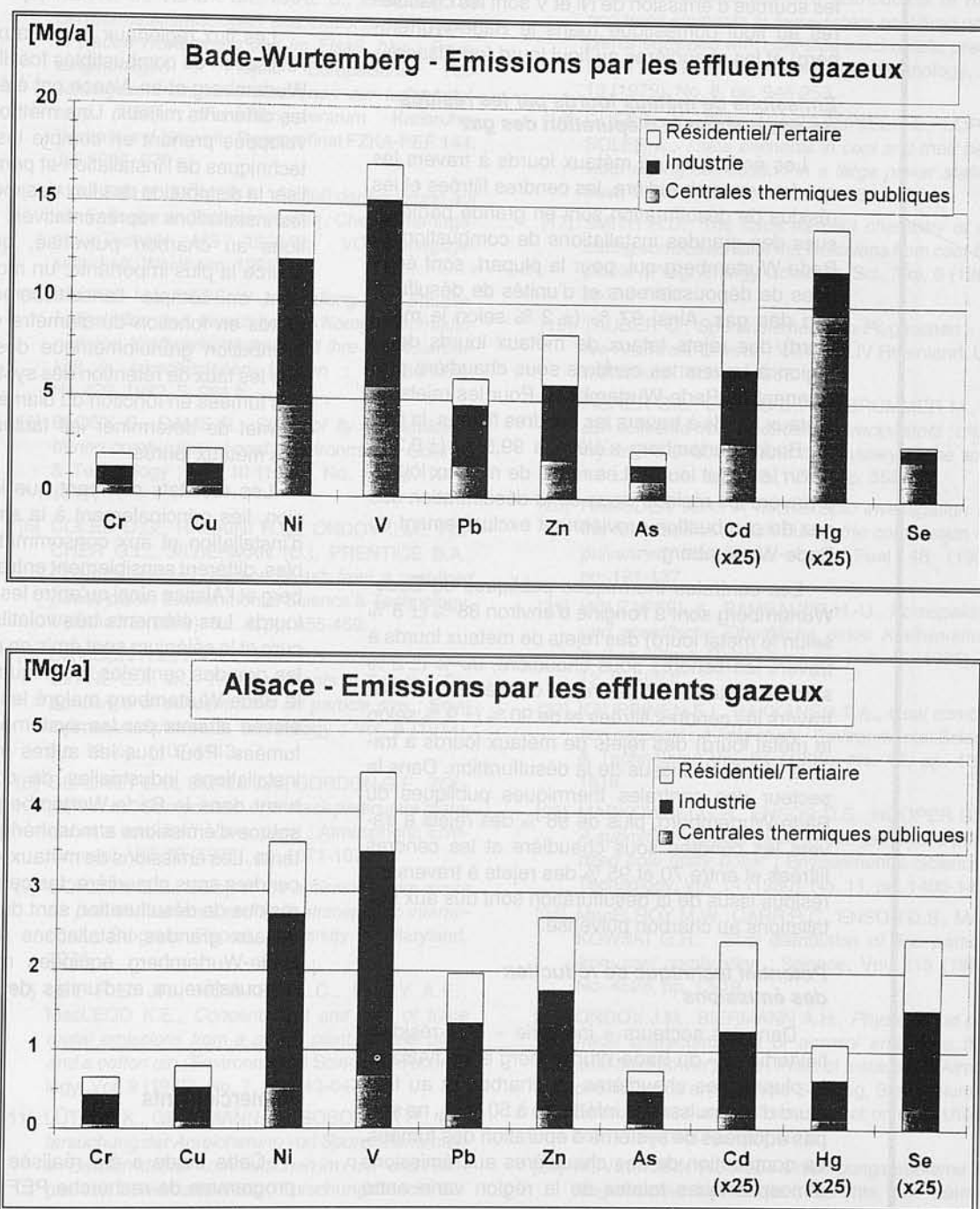


Figure 8.

Flux de métaux lourds par les effluents gazeux dans le Bade-Wurtemberg et en Alsace par secteur (1992)

Heavy metal flows through exhaust gases in Baden-Wurtemberg and in Alsace by sector (1992)

tique, une source d'émissions atmosphériques de métaux lourds non négligeable. Dans le Bade-Wurtemberg, la part de ce secteur varie entre 7 % (Se) et 50 % (Cd) selon les métaux, la valeur moyenne atteignant environ 25 %. En Alsace, la part du secteur « résidentiel/tertiaire » varie entre 22 % (V) et 48 % (Cd) et atteint en moyenne 35 % (Figure 8). Comme dans le secteur « industrie », les chaudières au charbon présentent les plus importantes émissions d'As, Cr, Cu, Hg, Pb, Se et Zn. Les émissions de Cd proviennent majoritairement des chaudières au fioul domestique. Les principales sources d'émission de Ni et V sont les chaudières au fioul domestique (dans le Bade-Wurtemberg) et les chaudières au fioul lourd (en Alsace).

Emissions de métaux lourds par les résidus de combustion et d'épuration des gaz

Les émissions de métaux lourds à travers les cendres sous chaudière, les cendres filtrées et les résidus de désulfuration sont en grande partie issues des grandes installations de combustion du Bade-Wurtemberg qui, pour la plupart, sont équipées de dépoussiéreurs et d'unités de désulfuration des gaz. Ainsi 97 % (± 2 % selon le métal lourd) des rejets totaux de métaux lourds de la région à travers les cendres sous chaudière proviennent du Bade-Wurtemberg. Pour les rejets de métaux lourds à travers les cendres filtrées, la part du Bade-Wurtemberg s'élève à 99,5 % ($\pm 0,3$ % selon le métal lourd). Les rejets de métaux lourds à travers les résidus issus de la désulfuration des gaz de combustion proviennent exclusivement du Bade-Wurtemberg.

Les centrales thermiques publiques du Bade-Wurtemberg sont à l'origine d'environ 88 % (± 8 % selon le métal lourd) des rejets de métaux lourds à travers les cendres sous chaudière, 90 % (± 2 % selon le métal lourd) des rejets de métaux lourds à travers les cendres filtrées et de 90 % (± 9 % selon le métal lourd) des rejets de métaux lourds à travers les résidus issus de la désulfuration. Dans le secteur des centrales thermiques publiques du Bade-Wurtemberg, plus de 98 % des rejets à travers les cendres sous chaudière et les cendres filtrées et entre 70 et 95 % des rejets à travers les résidus issus de la désulfuration sont dus aux installations au charbon pulvérisé.

Potentiel technique de réduction des émissions

Dans les secteurs « industrie » et « résidentiel/tertiaire » du Bade-Wurtemberg et de l'Alsace, la plupart des chaudières au charbon et au fioul lourd d'une puissance inférieure à 50 MW_{th} ne sont pas équipées de système d'épuration des fumées. La contribution de ces chaudières aux émissions atmosphériques totales de la région varie entre 12 % (Se) et 84 % (V) selon les métaux lourds, et dépasse 50 % en moyenne pour tous les métaux. Ainsi un potentiel important de réduction des émissions par substitution des combustibles charbon et

fioul lourd ou par la mise en place de dépoussiéreurs mécaniques existe pour ces installations. A titre d'exemple, la substitution du combustible fioul domestique au charbon et au fioul lourd dans toutes les chaudières non équipées de traitement des fumées permettrait de réduire les émissions atmosphériques jusqu'à 80 % pour Ni et V dans le Bade-Wurtemberg et pour As, Cr, Cu, Ni, Pb, V et Zn en Alsace (potentiel technique).

4. Conclusion

Les flux régionaux de métaux lourds issus de l'utilisation de combustibles fossiles dans le Bade-Wurtemberg et en Alsace ont été déterminés pour les différents milieux. Une méthodologie a été développée prenant en compte les caractéristiques techniques de l'installation et permettant de modéliser la distribution des flux des métaux lourds dans les installations représentatives. Pour les installations au charbon pulvérisé, qui constituent la source la plus importante, un modèle détaillé prenant en compte l'enrichissement des métaux lourds en fonction du diamètre des particules, la distribution granulométrique des particules ainsi que les taux de rétention des systèmes d'épuration des fumées en fonction du diamètre des particules permet de déterminer les facteurs de répartition des métaux lourds.

Les résultats montrent que les profils d'émission, liés principalement à la structure des parcs d'installation et aux consommations de combustibles, diffèrent sensiblement entre le Bade-Wurtemberg et l'Alsace ainsi qu'entre les différents métaux lourds. Les éléments très volatils tels que le mercure et le sélénium sont émis en majeure partie par les grandes centrales thermiques présentes dans le Bade-Wurtemberg malgré les taux de rétention élevés atteints par les systèmes d'épuration des fumées. Pour tous les autres métaux lourds, les installations industrielles de combustion constituent dans le Bade-Wurtemberg et en Alsace la source d'émissions atmosphériques la plus importante. Les émissions de métaux lourds à travers les cendres sous chaudière, les cendres filtrées et les résidus de désulfuration sont dues en grande partie aux grandes installations de combustion du Bade-Wurtemberg équipées majoritairement de dépoussiéreurs et d'unités de désulfuration des gaz.

Remerciements

Cette étude a été réalisée dans le cadre du programme de recherche PEF (Projekt Europäisches Forschungszentrum für Maßnahmen zur Luftreinhaltung) du Forschungszentrum Karlsruhe, Technik und Umwelt, avec un financement du Ministère de l'Environnement du Bade-Wurtemberg.

Mots-clés

Métaux lourds ; Installations de combustion ; Bilan intégré ; Modélisation des émissions ; Alsace et Bade-Wurtemberg.

Bibliographie

- [1] Commission d'Oslo et de Paris, *Contrôle et surveillance continus et évaluation* ; ISBN 0-94695526-3 ; 1992.
- [2] RENTZ O., VEAUX Ch., KARL U., *Ermittlung der Schwermetallemissionen aus stationären Anlagen in Baden-Wurtemberg und im Elsaß, hier : Feuerungsanlagen ; Projekt Europäisches Forschungszentrum für Maßnahmen zur Luftreinhaltung (PEF) ; Forschungszentrum Karlsruhe, Technik und Umwelt ; Rapport final FZKA-PEF 144, Juli 1996, 270 p.*
- [3] AHLHEIM M., RÖMER R., *Einfluß der Feuerung auf die Emission an Schwermetallen* ; Chemische-Ingenieur-Technik MS 1330/85, VCH-Verlagsgesellschaft, Weinheim, 1985.
- [4] BALTES M., RIEPE W., *Verteilung von Staubinhaltsstoffen auf verschiedene Korngrößenfraktionen von Kraftwerksstäuben und ihre Mobilisierbarkeit in verschiedenen Medien ; VDI-Berichte, Nr. 429, 1982, S. 261 ff.*
- [5] BLOCK C., DAMS R., *Study of fly ash emission during combustion of coal* ; Environmental Science & Technology ; Vol. 10 (1976), No. 10, pp. 1011-1017.
- [6] COLES D.G., RAGAINI R.C., ONDOV J.M., FISCHER G.L., SILBERMAN (D.), PRENTICE B.A., *Chemical studies of stack fly ash from a coal-fired power plant* ; Environmental Science & Technology, Volume 13 (1979), No. 4, pp. 455-459.
- [7] DAVISON R.L., NATUSCH D.F.S., WALLACE J.R., EVANS C.A. Jr., *Trace elements in fly ash - Dependence of concentration on particle size* ; Environmental Science & Technology ; Vol. 8 (1974), No. 13, pp. 1107-1113.
- [8] GLADNEY E.S., SMALL J.A., GORDON G.E., ZOLLER W.H., *Composition of in stack particulate material at a coal-fired power plant* ; Atmospheric Environment, Vol. 10 (1976), pp. 1071-1077.
- [9] GORDON G.E., *Study of the emissions from major air pollution sources and their atmospheric interactions* ; Progress Report, University of Maryland, 1974.
- [10] LEE R.E. JR., HOWARD L.C., RILEY A.E., MacLEOD K.E., *Concentration and size of trace metal emissions from a power plant, a steel plant and a cotton gin* ; Environmental Science & Technology, Vol. 9 (1975), No. 7, pp. 643-647.
- [11] LÜTZKE K., GROßMANN W., SOBOTKA H., *Untersuchung der Anreicherung von Spurenelementen im Bereich kleiner Kornfraktionen im Roh- und Reingas von Kohlekraftwerken* ; Forschungsbericht 83-104 03 182, im Auftrag des Umweltbundesamtes, Februar 1987.
- [12] MARKOWSKI G.R., *Trace element concentration as a function of particle size in fly ash from a pulverized coal utility boiler* ; Environmental Science & Technology, Vol. 19 (1985), No. 9, pp. 796-804.
- [13] NORTON G.A., DEKALB E.L., MALABY K.L., *Elemental composition of suspended particulate matter from the combustion of coal and coal/refuse mixtures* ; Environmental Science & Technology, Vol. 20 (1986), No. 6, pp. 604-609.
- [14] ONDOV J.M., RAGAINI R.C., BIERMANN A.H., *Elemental particle-size from coal-fired power plants : Use of an internal cascade impactor* ; Atmospheric Environment, Vol. 12 (1978), pp. 1175-1185.
- [15] ONDOV J.M., RAGAINI R.C., BIERMANN A.H., *Emissions and particle-size distributions of minor and trace elements at two western coal-fired power plants equipped with coal-side electrostatic precipitators* ; Environmental Science & Technology, Vol. 13 (1979), No. 8, pp. 946-953.
- [16] QUEROL X., FERNÁNDEZ-TURIEL J.L., LÓPEZ-SOLER A., *Trace elements in coal and their behaviour during combustion in a large power station* ; Fuel, Vol. 74 (1995), No. 3, pp. 331-343.
- [17] SMITH R.D., *The trace element chemistry of coal during combustion and the emissions from coal-fired plants* ; Prog. Energy Combust. Sci., Vol. 6 (1980), pp. 53-119.
- [18] TAUBER C., *Spurenelemente in Flugaschen - Kohle-Kraftwerk-Umwelt* ; Verlag TÜV Rheinland, Umweltschutz-Technik, 1988.
- [19] FISHER G.L., CHANG D.P.Y., BRUMMER M., *Fly ash collected from electrostatic precipitators : microcrystalline structures and the mystery of the spheres* ; Science, Vol. 192 (1976), pp. 553-555.
- [20] RAMSDEN A.R., *A microscopic investigation into the formation of fly-ash during the combustion of a pulverized bituminous coal* ; Fuel 48 (1969), pp. 121-137.
- [21] HOLZAPFEL A., BAMBAUER H.-U., *Kornspektrum und spezifische Oberfläche eines Kraftwerkflugasches* ; Staub-Reinhaltung der Luft, 45 (1985), Nr. 12, S. 552 ff.
- [22] KAUPPINEN E.I., PAKKANEN T.A., *Coal combustion aerosols : A field study* ; Environmental Science & Technology, Vol. 24 (1990), No. 12, pp. 1811-1818.
- [23] MARKOWSKI G.R., ENSOR D.S., HOOPER R.G., *A submicron aerosol mode in flue gas from a pulverized coal utility boiler* ; Environmental Science & Technology, Vol. 14 (1980), No. 11, pp. 1400-1402.
- [24] MacELROY M.W., CARR R.C., ENSOR D.S., MARKOWSKI G.R., *Size distribution of fine particles from coal combustion* ; Science, Vol. 215 (1982), No. 4528, pp. 13-19.
- [25] ONDOV J.M., BIERMANN A.H., *Physical and chemical characterization of aerosol emissions from coal-fired power plants* ; Proc. of Institute for Atmospheric Optics and Remote Sensing, Symposium on Environmental and Climatic Impact on Coal Utilisation, Williamsburg, April 1979.
- [26] HÖVELMANN A., *Neue Entsorgungsprobleme kohlegefeuerter Kraftwerke* ; Berichte der Kernforschungs-anlage Jülich, Nr. 2172, 1987.
- [27] MESEROLE F.B., CHOW W., *Controlling trace species in the utility industry* ; Paper presented at the EPRI Conference : Managing Hazardous Air Pollu-

tants : State of the Art, Washington DC, 4-6 Nov. 1991.

- [28] SHIH C.C., ORSINI L.L., YU C., *Emissions assessment of conventional stationary combustion systems*, Vol. 3, External Combustion Sources for Electricity Generation, EPA-600/157-81-003a, April 1981.
- [29] SMITH I.M., *Trace elements from coal combustion : emissions* ; IEA Coal Research, IEACR/01, London, June 1987.
- [30] SPORENBERG F., *Ermittlung von Emissionsfaktoren für die Elemente Blei, Cadmium, Quecksilber und Zink sowie Beurteilung der Feinstaubabscheidung bei Steinkohlegefeuerten Kraftwerken* ; VDI Fortschritt-Berichte Nr. 35, Reihe 15 : Umwelttechnik, VDI-Verlag GmbH, 1985.
- [31] FAHLKE J., *Spurenelementbilanzierungen bei Steinkohlefeuerungen am Beispiel einer Trocken- und einer Schmelzfeuerungsanlage unter Berücksichtigung der Rauchgasreinigungsanlagen* ; VDI Fortschritt-Berichte Nr. 120, Reihe 15 : Umwelttechnik, 1994.
- [32] GUTBERLET H., NEUHAUS S., HEINE E., TEMBRINK J., WILMEN N., *Messung der Schwermetallabscheidung einer Rauchgasentschwefelungsanlage nach dem Kalkwaschverfahren* ; VGB Technisch-wissenschaftliche Berichte « Wärmekraftwerke » VGB-TW-303, im Auftrag der Kommission der Europäischen Gemeinschaften, 1984.
- [33] MEIJ R., *Tracking trace elements at a coal-fired power plant equipped with a wet flue-gas desulphurisation facility* ; Kema Scientific & Technical Reports, Vol. 7, No. 5, October 1989.
- [34] McEVOY L.R., PARKER K.R., *The collection of fine particulate and the incidence of heavy metals in power plants E.S.P's* ; Coal Technology Europe :

European Coal Utilisation Conference, Amsterdam, 11-13 October 1983, pp. 121-136.

- [35] FAHLKE J., BURSİK A., *Impact of the State-of-the-Art of Flue Gas Cleaning on Mercury Species Emissions from Coal-Fired Steam Generator* ; Water, Air, and Soil Pollution 80 ; pp. 209-215 ; 1995.
- [36] ANDREASEN J., *Trockenreinigung von Abgasen durch Sprühabsorption* ; Vortrag in : Arbeitstagung über Rauchgasreinigung, September 1981, Interlaken, Schweiz.
- [37] CLARKE L.B., SLOSS L.L., *Trace elements - Emissions from coal combustion and gasification* ; IEA Coal Research, IEACR/49, London, Juli 1992.
- [38] NEME C., *Electric utilities and long-range transport of mercury and other toxic air pollutants* ; Center for Clean Air Policy, Washington DC, 125 pp., November 1991.
- [39] TILLMAN D.A., *Trace metals in combustion systems* ; Academic Press, Inc., 1994, ISBN 0-12-691265-3.
- [40] BAUMGÄRTER K.-J., *Partikelemissionen aus Leichtölfeuerungen-Charakterisierung und Verminderung* ; VDI Fortschritt-Berichte Nr. 105, Reihe 15 : Umwelttechnik, 1993.
- [41] Deutsche Gesellschaft für Mineralölwissenschaft und Kohlechemie (DGMK), *Bestimmungsmethoden von Metallen in Erdöl und dessen Produkten*, Forschungsbericht 418-1, Hamburg, Januar 1990.
- [42] Coal Research Establishment (CRE), *Trace element emissions from fluidised bed combustion units* ; Final Report, Technical Coal Research, EUR 11160 EN, Commission of the European Communities, Luxembourg, Office for Official Publications of the European Communities, 1987.