# Campagnes de carling 91-92 : principaux résultats relatifs aux émissions de polluants gazeux

The carling 91-92 programme on the CFB unit main results of gaseous polluant emissions

#### Eric JOOS (\*), Pierre MASNIERE (\*\*)

#### RÉSUMÉ

Plusjeurs campagnes de mesure de polluants gazeux ont été réalisées sur la tranche 4 de la centrale de Carling (Houillères du bassin de Lorraine), équipé d'une chaudière à lit fluidisé circulant (125 MWe). Le combustible principalement utilisé est une pulpe à 33 % d'eau, composée de produits cendreux de récupération et de résidus de lavage de charbons. L'injection de calcaire dans le foyer et les températures relativement basses rencontrées dans le foyer (autour de 850 °C) conduisent à des teneurs à l'émission en oxyde de soufre et d'azote plus faibles que celles rencontrées avec les chaudières classiques à charbon pulvérisé.

Cet article concerne certains résultats acquis durant les campagnes de fin 91 et surtout de mars-avril et novembre-décembre 92. Il aborde l'évolution des teneurs en SO<sub>2</sub> en fonction du débit relatif de calcaire introduit dans le foyer (rapport molaire Ca/S) et des considérations sur la formation de CO en aval du foyer. Une attention particulière est portée à l'influence de paramètres tels que : température dans le foyer, rapport Ca/S, excès global et étagement d'air, vis-à-vis de l'évolution des teneurs en NO et N<sub>2</sub>O. Le cas spécifique des charges partielles est également abordé.

Certains résultats, attendus, ont été quantifiés sur la tranche de Carling (notamment l'influence du rapport Ca/S sur la teneur en SO<sub>2</sub>, celle de l'élévation de la température du foyer sur la diminution de la teneur en N<sub>2</sub>O, celle de l'excès d'air sur l'accroissement des teneurs en NO et N<sub>2</sub>O). Par contre, au cours de ces essais, l'effet de l'étagement d'air sur la diminution des émissions de NO n'a pas été mis en évidence.

#### ABSTRACT

Several measurement campaigns have been completed to measure gas emissions from unit number 4 at the Carling power plant in Carling (Houillères, in Lorraine in Eastern France). The unit has a 125-megawatt boller with a fluidized setting. The primary fuel is a pulp consisting of 33% water with recovered ash products and coal washing residue. The injection of limestone into the furnace and the relative low temperatures in this furnace (around 850°C) lead to lower sulfur and nitrogen oxide content in the emissions than those from conventional pulverized coal bollers.

This article examines the results gathered during the measurement campaigns in late 1991 and in particular March-April and November-December 1992. It examines the changes in  $SO_2$  levels as a function of the relative flowrate of limestone introduced into the furnace (Ca/S molar ratio), along with aspects of CO formation downstream from the furnace. Particular emphasis is placed on the influence of such parameters as the temperature in the furnace; the Ca/S ratio; and the global excess and stages of air in relation to changes in NO and  $N_2O$  levels. The specific case of partial loads is also examined.

Certain expected results were quantified on the Carling unit (in particular the impact of the Ca/S ratio on  $SO_2$ levels, as well as the impact of higher furnace temperatures on the decrease in N<sub>2</sub>O levels and the effect of excess air on the increase in NO and N<sub>2</sub>O levels.

 However, the tests did not show the effect of air staging on the decrease in NO emissions.

 (\*) Service Ensembles de Production Département Machines.
Service Applications de l'Electricité et Environnement Département Environnement.

#### 1. Introduction

La tranche 4 de la centrale Emile Huchet des Houillères du Bassin de Lorraine (HBL), située à Carling près de Metz, est équipée d'une chaudière à lit fluidisé circulant (LFC) d'une puissance de 125 MWe. Cette installation, dont le schéma de principe figure en encadré, comporte notamment des lits (fluidisés) extérieurs pour les échanges thermiques et réguler la température du foyer [1]. Le combustible principalement utilisé à Carling est une pulpe à 33 % d'eau, composée de produits cendreux de récupération et de schlamms qui sont de fins résidus de lavoirs de charbons. Des schlamms peuvent également être utilisés comme combustible d'appoint.

La technique de combustion en lit fluidisé circulant présente des avantages vis-à-vis de la combustion réalisée dans les chaudières classiques à charbon pulvérisé non équipées de moyens de réduction de pollution. Parmi ceux-ci, on peut noter une plus grande souplesse dans le choix des combustibles et la possibilité de brûler des combustibles de qualité médiocre, une bonne désulfuration réalisée in situ en injectant du calcaire dans le foyer (avec une quantité d'absorbant moindre que celle nécessitée par une désulfuration in situ dans une chaudière à charbon pulvérisé), des teneurs en NO à l'émission nettement plus faibles (mais supérieures pour N<sub>2</sub>O) du fait des températures nettement plus faibles, de l'ordre de 850 °C, rencontrées dans le foyer.

La Direction des Etudes et Recherches (DER) d'EDF, dans le cadre de son programme de R&D sur les LFC, a entrepris avec la collaboration de HBL et de la société Stein Industrie un certain nombre de campagnes d'essais sur cette unité thermique.

Les données acquises dans les différentes configurations de fonctionnement de l'installation, en régime permanent, ont pour but de mieux comprendre les processus mis en jeu dans un LFC de taille industrielle : hydrodynamique des gaz et des solides, transferts thermiques, combustion, pollution.

Plusieurs campagnes de mesures ont été réalisées entre 1991 et 1993. Cet article présente plus spécifiquement des résultats acquis durant les campagnes de fin 1991, de mars-avril et de novembre-décembre 92 ; ils concernent les polluants gazeux majeurs que sont SO<sub>2</sub>, NO, N<sub>2</sub>O et CO et les conditions de leur formation plus ou moins importante.

Tous les résultats présentés dans cette note, à l'exception de ceux du paragraphe 7, correspondent à un fonctionnement de la centrale à une charge de l'ordre de 110-120 MWe.



Dans un lit fluidisé circulant, le combustible grossièrement broyé et l'additif de désulfuration (calcaire) sont maintenus en suspension dans le foyer par un courant d'air primaire injecté sous une grille de distribution ; les particules brûlent en suspension et les poussières totalement ou incomplètement brûlées quittent le foyer par sa partie supérieure pour être récupérées dans un cyclone de recyclage avec une fraction de l'absorbant calciné et du sulfate de calcium formé.

A la base du cyclone, une partie des solides est directement réinjectée dans le foyer, l'autre traverse un système de lits fluidisés extérieurs avant d'être réinjectée dans le foyer. Les solides sont donc recyclés en permanence (quelques dizaines de passage) permettant une excellente combustion.

L'adjonction complémentaire d'air nécessaire à la combustion (air secondaire) se fait à différents niveaux au-dessus de la grille de fluidisation.

## Dispositifs de prélèvement et d'analyse des gaz

#### 2.1. Localisation des points de mesure

Les mesures de gaz sont effectuées dans les zones suivantes :

 - à la cheminée, au niveau 30 m (niveau où, à la demande des autorités, sont contrôlées les émissions),

— en amont du filtre à manches (10 m après les réchauffeurs d'air),

 en entrée et en sortie de chacun des deux cyclones (nord et sud), plusieurs accès étant aménagés sur les 4 conduits de fumée,

- dans le foyer, au niveau 26,5 m.

La localisation de ces différents points de mesure est représentée sur les figures 1 et 2 représentant respectivement la boucle circulante (foyer, cyclones, lits extérieurs) et le circuit des gaz de combustion (chaudière de récupération, réchauffeurs d'air, dépoussiéreur, cheminée).

#### 2.2. Prélèvements et analyses des gaz

Les unités de concentration — ppm, % — correspondent à des fractions volumiques.

Toutes les concentrations mesurées à la cheminée sont exprimées à 6 % de O<sub>2</sub>.

#### Cheminée

Les gaz sont prélevés à l'aide d'une sonde de mesure, de longueur 1,2 m, comportant un filtre extérieur, chauffé, en céramique. Ils sont ensuite transférés vers un groupe froid par une ligne chauffée en téflon et, après séchage, distribués vers une batterie d'analyseurs spécifiques (tableau 1).

Des analyses ponctuelles d'hydrocarbures et d'HCl ont été également réalisées à l'émission lors de la dernière campagne (les résultats sont en cours de dépouillement) et des mesures de métaux sont programmées pour les prochains essais.



Figure 1.

Schéma simplifié de la boucle circulante (les points marqués par une signe P désignent les points de prélèvements des gaz). Schematic drawing of an atmospheric circulating fluidized bed boiler; (p) shows the sampling points.



Figure 2.

Schéma simplifié du circuit des fumées (les points marqués par une signe P désignent les points de prélèvements des gaz). Schematic gas circuit drawing: (p) shows the sampling points.

Tableau 1. Métrologie mise en œuvre à la cheminée pour la mesure des gaz. Flue gas monitoring

Constituant mesuré	Analyseur	Principe de mesure	Gamme de mesure
02	Magnos 3	Paramagnétique	0-30 %
SO2	URAS 3G	Infrarouge	0-1 000 ppm
NO	RADAS 3G	Ultraviolet	0-1 000 ppm
со	Ultramat 22P	Infrarouge	0-500 ppm
CO <sub>2</sub>	Ultramat 22P	Infrarouge	0-20 %
N2Q	URAS 3G	Infrarouge	0-200 ppm

## Avant le filtre à manches

Le système de prélèvement est identique à celui mis en œuvre à la cheminée. Les analyses en continu sont réalisées à l'aide des appareils présentés dans le tableau 2.

## Foyer - Entrées et sorties des 2 cyclones

Les problèmes d'échantillonnage rencontrés à ces niveaux en raison de conditions opératoires sévères — températures de l'ordre de 850-900 °C, concentrations en particules élevées de 100 à 200 mb dans le foyer et à l'entrée des cyclones nous ont amenés à réaliser nos propres systèmes de prélèvement.

La mise en œuvre d'une sonde refroidie à l'eau, permettant notamment une exploration transversale, a été écartée en raison de son coût et de son encombrement.

Notre choix s'est porté sur des sondes en acier réfractaire, équipées d'un système adéquat de dépoussiérage, qui permettent des prélèvements in situ, à 0,2 m et 1,2 m de la paroi.

Les gaz sont ensuite transférés vers les groupes froids à l'aide de lignes chauffées en téflon. Au refoulement de la pompe, ils sont acheminés, à température ambiante vers une armoire d'analyse. Un répartiteur permet une scrutation manuelle ou automatique des 3 niveaux : foyer, entrées et sorties cyclones.

La métrologie utilisée est présentée dans le tableau 3.

## 2.3. Calibrage des analyseurs

Au niveau cheminée, le calibrage des analyseurs de SO<sub>2</sub>, NO, CO, CO<sub>2</sub> est effectuée à l'aide d'un mélange gazeux de composition :

 $SO_2 = 103 \pm 5$  ppm, NO = 140  $\pm 5$  ppm, CO = 100  $\pm$  5 ppm, CO<sub>2</sub> = 10,0  $\pm$  0,2 %, N<sub>2</sub> = QS.

Le mélange utilisé pour l'analyseur de N2O est constitué de N<sub>2</sub>o = 178,3  $\pm$  1,8 ppm, CO<sub>2</sub> =  $12,00 \pm 0,03$  %, N<sub>2</sub> = QS.

Tableau 2.
Métrologie mise en œuvre avant le dépoussiéreur pour la mesure des gaz.
Flue gas monitoring set up above the bag filter.

Constituant mesuré	Analyseur	Principe de mesure	Gamme de mesure	
O2	Magnos 4	Paramagnétique	0-25 %	
SO <sub>2</sub>	Ultramat 22P	Infrarouge	0-2 500 mg/Nm <sup>3</sup>	
NO	Ultramat 22P	Infrarouge	0-1 500 mg/Nm <sup>3</sup>	
со	Ultramat 22P	Infrarouge	0-500 ppm	
CO <sub>2</sub>	Ultramat 22p	Infrarouge	0-20 %	

#### Tableau 3.

Métrologie mise en œuvre au foyer ainsi qu'en entrée et sortie des cyclones.

Monitoring set up in the furnace and in the cyclone inlet/outlet.

Constituant mesuré	Analyseur	Principe de mesure	Gamme de mesure
O2	Magnos 4	Paramagnétique	0-25 %
SO <sub>2</sub>	URAS 3G	Infrarouge	0-1 000 ppm
NO	RADAS 3G	Ultraviolet	0-1 000 ppm
со	URAS 3G	Infrarouge	0-1 000 ppm
CO <sub>2</sub>	URAS 3G	Infrarouge	0-1 000 ppm

Aux niveaux foyer, entrées et sorties cyclone, et avant dépoussiéreur, le gaz d'étalonnage est un mélange :

 $SO_2 = 520 \pm 25$  ppm, NO = 102 ± 5 ppm; CO = 98 ± 5 ppm, CO<sub>2</sub> = 14,9 ± 0,2 %, N<sub>2</sub> = QS.

Les analyseurs d'O<sub>2</sub> sont calibrés avec l'air ambiant, les zéros étant réalisés à l'aide d'azote très pur N50.

#### 2.4. Prélèvements de solides

Des prélèvements des différents solides, entrant ou sortant du process (combustibles, calcaire, cendres), sont effectués régulièrement durant les périodes d'essai afin de constituer, après homogénéisation, des échantillons représentatifs. Ceux-ci sont envoyés au laboratoire de Marienau (Houillères du Bassin de Lorraine) afin d'être soumis à un certain nombre d'analyses physico-chimiques ainsi qu'à une détermination de leur spectre granulométrique.

Parmi ces nombreuses analyses, le taux de cendres du combustible (pulpe ou schlamms) et du calcaire, la teneur en calcium de ces cendres, la teneur en soufre du combustible, son humidité, sont systématiquement déterminés de manière à pouvoir calculer le rapport molaire Ca/S.

De même, les teneurs en chlore et en azote du combustible sont analysées.

## 2.5. Acquisition et traitement des résultats

Les données provenant des analyseurs de gaz sont dirigées sur le système d'acquisition et de traitement PATERN développé par la DER (un point toutes les 20 secondes) qui collecte également les informations provenant des nombreux capteurs de température, de pression et de débits, disposés dans la totalité du process.

Les données, stockées à Carling sur disques durs, sont ensuite traitées dans les locaux de la DER et, pour les différentes périodes durant lesquelles le fonctionnement de l'installation apparaît comme suffisamment stable et représentatif d'un régime permanent (généralement des périodes de une à deux heures), une valeur moyenne des différents paramètres est calculée.

## 3. Combustion et formation de CO et NO

#### 3.1. Combustion dans le foyer et les cyclones

Le tableau 4 rassemble des valeurs moyennes de concentration de O<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub> et NO, mesurées sur plusieurs minutes, en novembre 91, dans le foyer à une hauteur de 26,5 m, ainsi qu'à l'entrée et à la sortie du cyclone nord.

Aucune injection d'air extérieur n'est effectuée. Le combustible correspondant est composé majoritairement de pulpe.

1994

z)

s in

ou-

Au

s, à

/se.

ou

sor-

s le

aly-

aide

:0 =

) est

5/11/91	Dans le foyer à 26,5 m	Entrée cyclone (Nord) (sortie du foyer)	Sortie cyclone	Avant le filtre à manches
O <sub>2</sub> (%)	8,3	4,8	3,1	3,5
CO <sub>2</sub> (%)	11,3	14,2	15,7 13,1*	14*
CO (ppm)	360	128	37 30*	200*
NO (ppm)	147	129	109	56*

Tableau 4.
Evolution des concentrations de O <sub>2</sub> , CO <sub>2</sub> , CO et NO entre le foyer et le filtre à manches.
Changes of Q <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> CO and NO concentrations between the turnace and the bag littlet.

Ces concentrations sont exprimées à 6 % de O2.

Pour les deux périodes de temps considérées (tableau 5), on peut constater qu'entre le niveau du foyer considéré et l'entrée du cyclone, la concentration en oxygène décroît nettement (~ 40 %) de même que celle de CO (d'un facteur 3 environ) tandis que celle de CO2 augmente de 25 à 30 %.

Ces variations indiquent que la combustion continue dans la partie haute du foyer ainsi que le confirme la température en amont du cyclone droit, supérieure de 30 à 40 °C à celle mesurée dans le foyer (environ 840 °C) à une hauteur de 21 m.

La combustion se poursuit également dans le cyclone ainsi que le montre, dans le tableau 4, l'évolution des concentrations de O2 (- 35 % environ entre l'entrée et la sortie du cyclone), de CO (- 70 %) et de CO2 (+ 10 %), les températures d'entrée et de sortie étant peu différentes et de l'ordre de 870 à 880 °C.

Notons qu'en sortie de cyclone, la concentration en CO est environ 10 fois plus faible que celle mesurée dans le foyer à 26,5 m.

En ce qui concerne la concentration de NO, elle diminue nettement durant la combustion, depuis la zone du foyer où elle est mesurée jusqu'à la sortie du cyclone.

Il est intéressant de souligner que les variations de concentration mentionnées précédemment et observées près des parois à 0,2 m, sont confirmées lorsque les mesures sont effectuées à 1,2 m de celles-ci avec, semble-t-il, des différences plus importantes traduisant une combustion plus intense.

Le tableau 5 présente quelques variations transversales des concentrations de O2, CO, CO2 et NO observées en novembre 91, pour des conditions hydrodynamiques relativement stables.

## 3.2. Combustion dans la chaudière de récupération - Formation de CO

La concentration en CO dans les flux gazeux augmente fortement, d'un facteur 10, entre la sortie des cyclones et le dépoussiéreur. L'accumulation des particules en partie haute de la chaudière de récupération, et leur combustion médiocre due à une faible concentration résiduelle en oxygène, expliquent ce spectaculaire accroissement du CO dans les fumées de combustion.

Parallèlement, la concentration de NO ne semble pas affectée par cette post-combustion.

Afin de réduire les émissions de CO à la cheminée, la chaudière de récupération est équipée de plusieurs ramoneurs. Lorsque l'ensemble de ceuxci est en action, une variation cyclique de la con-

Tableau 5.

Concentrations de O2, CO, CO2 et NO mesurées le 7/11/91 au niveau du foyer (26,5 m) et à l'entrée du cyclone Nord, les prélèvements étant effectués à 0,2 m et à 1,2 m de la paroi.

O2, CO2, CO, NO concentrations measured in the furnace (level 26,5m) and in the North cyclone inlet on 7/11/91.

Samples were taken at 0.2 and 1.2 m from the casing.

		Foyer 26,5 m		Entrée cyclone		
10 10	istion data (a fa	0,2 m de la paroi	1,2 m de la paroi	0,2 m de la paroi	1,2 m de la paroi	
		15 h 09 - 15 h 24	16 h 02 - 16 h 39	17 h 03 - 17 h 24	18 h 07 - 18 h 34	
	O2 %	6,6	8,6	4,3	3,2	
and a	CO2 %	12,2	10,8	14,1	14,9	
	CO ppm	471	391	472	141	
	NO ppm	81	90	65	56	

centration de CO à la cheminée peut être observée. A la fin d'une séquence de ramonage pour un combustible constitué majoritairement de pulpe, la concentration émise de CO passe d'environ 300 ppm (à 6 % de  $O_2$ ) à une centaine de ppm.

Lors des essais de novembre-décembre 1992, le combustible étant alors constitué de schlamms, l'un des ramoneurs supérieurs était momentanément indisponible. De longues périodes de stabilisation relative de la concentration en CO à la cheminée ont été alors enregistrées, les valeurs mesurées allant de 230 à 330 ppm (à 6 % de O<sub>2</sub>), en fonction des conditions d'essai (tableau 6). Notons que les plus faibles et plus fortes valeurs pour la concentration de CO à la cheminée correspondent respectivement aux concentrations les plus faibles et les plus fortes de CO en sortie de cyclone.

## 4. Emissions de SO<sub>2</sub>

## 4.1. Influence du filtre à manches sur les émissions de SO<sub>2</sub>

Selon certains experts, la désulfuration se produisant dans le foyer (capture du SO<sub>2</sub> par la chaux résultant de la calcination du calcaire injecté dans le foyer) se poursuivrait dans le dépoussiéreur, lorsque celui-ci est un filtre à manches.

La comparaison des concentrations mesurées de  $SO_2$  avant le dépoussiéreur et à la cheminée a été effectuée pour plusieurs essais de la campagne de mars-avril 92 (combustible à 85 % de pulpe) avec des rapports molaires Ca/S inférieurs à 2. Elle n'a pas montré de différences significatives, compte tenu de la précision relative des mesures qui peut être estimée à 10 % (cf. tableau 7).

Tableau 6

Concentrations de CO et NO, à la sortie du cyclone et à la cheminée, mesurées lors de différents essais durant la campagne de novembre-décembre 92.

CO and NO cyclone outlet and stack concentrations during the november-december 92 campaign.

men en e	Sortie Cyc (0,2 m de	clone Nord e la paroi)	and me the se	Cheminée		
Périodes étudiées ↓	No (ppm) (6 % O <sub>2</sub> )	CO (ppm) (6 % O <sub>2</sub> )	No (ppm) (6 % O <sub>2</sub> )	CO (ppm) (6 % O <sub>2</sub> )	O <sub>2</sub> (%)	
(26/11/92) 9 h 45 - 11 h 45	100	< 10	94	230	8,1	
(1/12/92) 11 h 30 - 16 h	52	22	53	270	8,6	
(2/12/92) 10 h - 18 h	- 50	30	45	260-310	8,6	
(8/12/92) 11 h 30 - 18 h 30	74	24	66	280-320	7,6	
(9/12/92) 9 h 35 - 17 h 35	52	42	58	280-330	7,7	
(10/12/92) 10 h 30 - 15 h 30	62	37	56	300-330	7,3	

200 150 (SOZ] (ppm) 100 50 0 1 2 3

Figure 3. Concentrations émises de SO<sub>2</sub> en fonction du rapport Ca/S (combustible à 85 % de pulpe) SO<sub>2</sub> emission as a function of Ca/S ratio (fuel with 85% pulp).

JUILLET-SEPTEMBRE 1994

Rapport molaire Ca/S

al contractor	8 h 50 - 9 h 20		9 h 45 -	9 h 45 - 10 h 30		11 h - 11 h 40	
	AD*	C*	AD	С	AD	С	
O <sub>2</sub> (%)	5,0	- 6,1	4,3	5,5	4,6	5,8	
CO <sub>2</sub> 5%)	14,2	14,0	14,1	14,0	14,1	14,0	
SO <sub>2</sub> (ppm)	100	117	112	114	76	78	
NO (ppm)	69	69	64	60	79	70	

Tableau 7. Concentrations de CO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, NO et de O<sub>2</sub>, avant le dépoussiéreur et à la cheminée, pour 3 périodes stables enregistrées en avril 92.

\* AD : amont du dépoussiéreur.

C : cheminée.

## 4.2. Influence du rapport molaire Ca/S

Les combustibles utilisés à Carling présentent une teneur relativement faible en soufre. En moyenne, la concentration en S du combustible est de 0,60 % pour la pulpe et de 0,75 % pour les schlamms.

Ceci explique que des émissions très satisfaisantes de SO<sub>2</sub> peuvent être obtenues (< 100 ppm ou 285 mg/Nm<sup>3</sup> à 6 % de  $0_2$ ), avec des rapports molaires Ca/S proches de 2,5, ainsi que le montre la figure 3 qui regroupe des données de la campagne de mars-avril 92.

Ces bons résultats d'émissions proviennent également du fait que le calcaire généralement utilisé à Carling présente une granulométrie très fine ( $d_{50}$  compris entre 30 et 60 µm).

Les différences de concentration, pour un même rapport Ca/S, proviennent généralement d'écarts de température de part et d'autre de la valeur optimale pour la réaction de désulfuration (850 °C), mais aussi parfois de variations dans la granulométrie du calcaire injecté.

Les variations importantes de concentration — 150 à 50 ppm — pour des rapports Ca/S allant de 1,5 à 2,5 montrent l'importance d'un écoulement de calcaire régulier (ce qui est difficilement réalisable lorsque la granulométrie est trop fine) et d'une mesure de débit fiable.

## 5. Emissions de NO

#### 5.1. Influence de la température dans la partie inférieure foyer

Dans la partie inférieure du foyer sont injectés le combustible, le calcaire, les airs primaire et secondaire ainsi que les solides recyclés provenant soit directement des cyclones soit des lits extérieurs. C'est la zone de formation initiale des polluants, les réactions chimiques de conversion de ces gaz se poursuivant ensuite dans le process.

Aucune corrélation significative n'a pu être mise en évidence entre la concentration de NO mesurée à la cheminée et la température dans cette partie du foyer.

Il est vrai que la plage de température considérée sur la tranche de Carling est étroite (830-870 °C), ceci résultant de l'utilisation de lits extérieurs qui permettent de réguler et d'optimiser cette température.

Une augmentation significative de la concentration de NO, avec un accroissement notable de la température dans le foyer (> 100 °C) a certes été observée sur des LFC industriels [2], mais ces installations ne comportent pas de lits extérieurs ce qui explique que d'importantes variations de température puissent s'y produire.

#### 5.2. Influence de l'excès d'air

Une augmentation significative de la concentration émise de NO avec un accroissement de l'excès d'air (mesuré ici à la sortie de la chaudière de récupération) a été observée, ce qui corrobore les indications données par la littérature [2]-[4].

La figure 4, correspondant à un combustible composé à 85 % de pulpe, montre que la concentration de NO peut pratiquement tripler (de 30 à 90 ppm) lorsque l'excès d'air passe de 7 à 30 %.

Une courbe similaire a été observée avec un combustible constitué uniquement de schlamms avec toutefois des concentrations de NO plus élevées : 70 à 110 ppm pour un excès d'air allant de 15 à 30 %.

Ceci provient probablement de la différence de contenu en azote des combustibles, la valeur moyenne obtenue sur les échantillons analysés étant de 0,65 % pour la pulpe et de 0,80 % pour les schlamms.



Concentration émise de NO en fonction de l'excès d'air à la sortie de la chaudière (combustible à 85 % de pulpe). NO outlet emission as a function of excess air (fuel with 85% pulp).

#### 5.3. Influence de l'étagement d'air

Les configurations de fonctionnement de la centrale LFC, jusqu'à présent étudiées n'ont pas fait apparaître un impact significatif de l'étagement d'air sur la concentration émise de NO.

La figure 5 illustre cette constatation pour des rapports de débits air secondaire/air primaire (AS/AP) allant de 1,15 à 2,35. Pour des commodités de représentation graphique, les rapports de débit (AS/AP) sont exprimés par la formule (AS/AP-1) × 10.

Pour une même concentration en  $O_2$  à la sortie de la chaudière (correspondant à un excès d'air



Concentration de NO émise pour différentes valeurs de concentrations en O<sub>2</sub> à la sortie de la chaudière et pour différents rapports de débits d'air secondaire/air primaire (85 % de pulpe). AS/AP.

NO outlet emission for different  $O_2$  concentrations and for different ratios of secondary/primary air flows (fuel with 85% pulp)

identique), on peut voir sur cet histogramme qu'une diminution de AS/AP — obtenu par une baisse du débit d'air secondaire conjointement avec une augmentation du débit d'air primaire —, ne s'accompagne pas d'un accroissement de la concentration émise de NO.

#### 5.4. Influence du débit de calcaire

Les campagnes jusqu'à présent réalisées ont porté sur des variations de débits et excès d'air, le débit de calcaire étant, en général, réglé pour que l'émission de SO<sub>2</sub> se situe en dessous de la limite réglementaire.

Néanmoins, des essais avec des débits de calcaire supérieurs ont montré que si les concentrations émises de NO augmentent alors, une telle augmentation n'est significative (20-30 %) que si l'on maintient des rapports molaires Ca/S supérieurs à 3,5-4 pendant plusieurs heures.

## 6. Emission de N<sub>2</sub>O

#### 6.1. Influence de la température

La figure 6 montre la nette dépendance de la concentration émise de N<sub>2</sub>O vis-à-vis de la température dans la partie inférieure du foyer.

La décroissance de la concentration lorsque la température augmente est en accord avec la littérature [4-5]. Les concentrations mesurées, pour un combustible constitué de schlamms, sont cependant notablement plus faibles que celles obtenues par d'autres équipes sur des foyers plus petits.

Il faut toutefois noter que la concentration est plus que triplée sur un intervalle de température de 35 °C ; il est donc essentiel que la température du foyer soit régulée à 850-870 °C.



Figure 6.

Concentration émise de N<sub>2</sub>O en fonction de la température dans la partie inférieure du foyer (combustible à 100 % de schlamms).  $N_2O$  omission as a function of the temperature in the bottom of the furnace (fuel with 85% pulp).

## 6.2. Influence de l'excès d'air

La figure 7, correspondant à des schlamms, indique que la concentration émise de N2O dépend également de l'excès d'air (mesuré ici à la sortie de la chaudière de récupération), sa valeur étant multipliée par 3 pour un excès d'air passant de 15 à 40 %. Un excès d'air de 15-20 % constitue un compromis acceptable entre une combustion suffisamment efficace, avec un minimum de résidus carbonés dans les cendres s'échappant du cyclone, et des émissions satisfaisantes en N2O et NO.



Concentration émise de N2O en fonction de l'excès d'air en sortie de la chaudière de récupération (combustible à 100 % de schlamms) N<sub>2</sub>O outlet emission as a function of the excess air (fuel with 100% schlamms)

Précisons qu'il n'existe pas de corrélation évidente entre l'excès d'air et la température inférieure du foyer. En fait, pour un excès d'air donné, la température dans la partie inférieure du foyer semble dépendre assez fortement du rapport des débits d'air secondaire et primaire (AS/AP). Il est prévu d'approfondir ce point durant les prochains essais.

### Emissions d'oxydes d'azote à charge partielle

Durant la campagne de novembre-décembre 1992, plusieurs essais ont été réalisés à charge partielle, environ 65 MWe.

Malgré une baisse importante du débit d'air secondaire (avec des rapports AS/AP compris entre 0,8 et 1), l'excès d'air est resté supérieur à 25 %. Ceci a entraîné des émissions élevées de NO et surtout de N<sub>2</sub>O ainsi que montrent respectivement les figures 8 et 9.

En outre, la température moyenne dans la partie inférieure du foyer a généralement été inférieure à 810 °C ce qui explique également le niveau des émissions de N<sub>2</sub>O (fig. 10). Là encore, aucune corrélation nette n'apparaît entre l'excès d'air à la sortie de la chaudière de récupération et la température dans la partie inférieure du foyer.

Lors de prochains essais, il sera donc très important d'étudier la possibilité :  d'une part de parvenir à des excès d'airs inférieurs à 20 % tout en maintenant une fluidisation et une combustion satisfaisantes,

 — d'autre part de réguler conjointement la température du foyer à l'aide des lits extérieurs en respectant les caractéristiques de la vapeur produite.

## Conclusion

Les premières campagnes expérimentales conduites par EDF sur la tranche LFC de la Centrale Emile Huchet de Carling ont d'ores et déjà permis d'obtenir des données précieuses relatives aux polluants gazeux résultant de la combustion de pulpe ou de schlamms.

Les concentrations gazeuses et les températures mesurées dans le process jusqu'à la cheminée ont permis de mieux comprendre la formation du CO et d'établir des corrélations qui démontrent l'importance de bien maîtriser, lors de l'exploitation de ce type de centrale, des paramètres de fonctionnement tels que le débit de calcaire, la température dans la partie inférieure du foyer et l'excès d'air, afin de minimiser les rejets de SO<sub>2</sub>, NO et N<sub>2</sub>O.

Les prochaines campagnes permettront d'étudier plus particulièrement l'importance de l'étagement d'air pour la réduction des émissions d'oxydes d'azote ainsi que les moyens de les réduire pour des fonctionnements à charge partielle.



Concentration émise de NO en fonction de l'excès d'air en sortie de la chaudière de récupération, pour une charge d'environ 65 MWe (100 % de schlamms).

NO outlet emission as a function of the excess air at 65 MWe (100% schlamms)



90

80

(N2O) (ppm) 6.0 50 40

70

30

35 40 45 25 30 Excès d'air (%)

Figure 9. Concentration émise de N<sub>2</sub>O en fonction de l'excès d'air en sortie de la chaudière de récupération, pour une charge d'environ 65 MWe (100 % de schlamms).

 $\rm N_{2}O$  outlet omission as a function of the excess air at 65 MWe (100% schlamma).



Figure 10. Concentration émise de N<sub>2</sub>O en fonction de la température inférieure dans le foyer, pour une charge d'environ 65 MWe (100 % de schlamms).

N<sub>2</sub>O outlet emission as a function of the lower temperature in the furnace at 65 MWe (100% schlamms).

## Références bibliographiques

- LUCAT P., HIRSCHELFER H., ROLLIN J. P. « utility-type Stein Industrie CFB Boiler », in Proceeding Conference on Fluidized Bed Combustion, London, décembre 1991.
- [2] BASAK A. K., SITKIEWITZ S. D., FRIEDMAN M.A. « Emission Performance Summary from the NUCLA Circulating Fluidized Bed Boiler Demonstration Project », in Proceedings Congrès « Fluidized Bed Combustion », ASME, 211, 1991.
- [3] DE SOETE G. G. « Mécanismes de formation et de destruction des oxydes d'azote dans la combustion, *Revue Générale De Thermique*, 330-331, 353, 1989.
- [4] HJALMARSON A. K. « NOx Control Technologies for Coal Combustion », Rapport IEACR/24, 1990
- [5] LECKNER B., KARLSSON M., MJÖRNELL M., HAGMAN U. « Emissions from a 165 MWth Circulating Fluidized Bed Boiler, *Journal Of The Institute Of Energy*, 65, 122, 1992.

## NOUVELLE CROISSANCE DU GROUPE ENVIRONNEMENT SA

ATMOS Equipement, société de développement réalisant et commercialisant, sous licence C.N.R.S., des systèmes ultramodernes de surveillance par télédétection des polluants atmosphériques et stratosphériques, vient d'intégrer le Groupe Environnement SA.

Installée dans l'usine de production et les laboratoires de recherche du Groupe Environnement SA à Poissy, cette nouvelle filiale bénéficiera de la capacité industrielle du Groupe, notamment un nouveau centre de recherche en construction, ainsi que du réseau de commercialisation international solidement implanté dans plus de 40 pays.

Cette acquisition permet au Groupe Environnement SA déjà bien spécialisé au travers de ses filiales, dans le contrôle et la mesure de l'air ambiant, des émissions de cheminées et de la qualité des eaux, de présenter ainsi un complément aux analyseurs conventionnels existants, deux nouveaux systèmes de télédétection utilisant la technique DOAS (Spectrométrie par Absorption Optique Différentielle) - technologie dévelopée par M. J.P. Pommereau, Mme F. Goutail et l'équipe du CNRS :

- « SAOZ » (Système d'Analyse par Observation Zénithale) : ce spectromètre à réseau de diodes dans l'ultraviolet et le visible permet de mesurer depuis le sol la teneur de l'ozone et du dioxyde d'azote stratosphériques.

Appareil compact et mobile, référencé par la NASA, le SAOZ est déjà utilisé par de nombreuses équipes scientifiques de l'Arctique à l'Antarctique dans le cadre de l'étude et du suivi de la destruction de l'ozone stratosphérique (« trou d'ozone »).

– « SANOA » (Système d'Analyse par Observation Active) : l'appareil permet de mesurer simultanément de nombreux polluants sur une distance de plusieurs centaines de mètres, en zone urbaine, dans les grandes artères, pour étudier une pollution globale ou due au trafic, d'encadrer des zones indusrielles, de surveiller des aéroports pour déterminer les impacts d'émissions polluantes.

Un nouveau challenge pour le Groupe Environnement SA, dirigé par François GOUR-DON, qui après avoir obtenu l'Oscar de l'Exportation en 1993 et venant de créer « ENVIRONNEMENT U.S.A » en Californie, se positionne en leader mondial dans le domaine très précis et très en pointe de « l'Instrumentation de l'Environnement ».

Poissy, le 8.7.94

- 43 -