ÉVALUATION DES PERFORMANCES D'UN LAVEUR À PULVÉRISATION POUR L'ÉLIMINATION DES NANOPARTICULES CONTENUES DANS LES FUMÉES D'INCINÉRATION

E. ADAH*1, A. Joubert1, M. Henry2, S. Durécu2 et L. Le Coq1

¹IMT Atlantique, GEPEA, CNRS UMR 6144, CS 20722, 44307, Nantes, France ²Séché Environnement, Centre de Recherche, 01150 Saint-Vulbas, France *Courriel de l'orateur : <u>emmanuel-agbo.adah@imt-atlantique.fr</u>

TITLE

Evaluation of the performance of a spray scrubber for the removal of nanoparticles contained in incineration fumes

RESUME

Les nanomatériaux (NM) étant de plus en plus présents dans les produits de consommation, leur devenir dans les processus de traitement des déchets tels que l'incinération est une préoccupation croissante. Cette étude vise à évaluer l'efficacité d'élimination des nanoparticules (NPs) par un laveur à pulvérisation fonctionnant dans des conditions d'une usine d'incinération de déchets. Une efficacité d'élimination de 45 à 62% pour des particules de 13 à 90 nm de diamètre aérodynamique est rapportée. Les résultats expérimentaux ont été comparés à un modèle mécanistique de collecte basé sur trois mécanismes, à savoir la diffusion Brownienne, l'impaction et l'interception, donnant des résultats prometteurs.

ABSTRACT

As nanomaterials (NMs) become increasingly present in consumer products, a growing concern exists about their fate in waste treatment processes such as incineration. This study aims to investigate the removal efficiency of nanoparticles (NPs) by a pilot-scale spray scrubber operated under conditions of a waste incineration plant. A removal efficiency of 45 - 62% for particle size 13 - 90 nm in aerodynamic diameter is reported. The results of a mechanistic collection model based on; Brownian diffusion, impaction and interception were found to be in agreement with the experimental results.

MOTS-CLÉS : Épurateur à pulvérisation, Nanoparticules, Mécanismes de collecte, Incinération / **KEYWORDS:** Spray scrubber, Nanoparticles, Collection mechanism, Incineration

1. INTRODUCTION

La croissance rapide de la fabrication et de l'utilisation de nanomatériaux (NMs) dans les produits industriels et de consommation implique qu'une quantité croissante de NMs se retrouve dans les flux de déchets en fin de vie. Il existe d'importantes lacunes dans les connaissances sur le devenir des nanomatériaux dans les processus courants de traitement des déchets tels que le compostage, l'incinération et l'enfouissement. Cette situation est préoccupante étant donné que les effets néfastes potentiels des NMs sur les humains et l'environnement sont bien documentés (Bai Aswathanarayan & Vittal, 2015). Récemment, quelques études en conditions réelles ont été réalisées sur le devenir des NMs lors de leur incinération (Baran & Quicker, 2016; Börner et al., 2016; Lang et al., 2015; Oischinger et al., 2019; Walser et al., 2012). Les principales conclusions pour les NMs étudiés sont que la majorité des nanocharges contenues dans les NMs se retrouvent dans les mâchefers, les nanocharges ne subissent pas de modifications physiques ou chimiques et enfin, l'ensemble des Technologies d'Epuration des Fumées (TEF) mises en œuvre dans une usine est efficace pour l'élimination des nanoparticules (NPs) émises. Les auteurs n'ont pas rapporté l'efficacité d'élimination des nanoparticules émises par les laveurs humides généralement présents dans les TEF de ces usines. Aucune étude portant sur l'efficacité d'élimination des NPs par les laveurs humides dans des conditions d'incinération des déchets n'a été recensée. Les laveurs sont principalement conçus pour éliminer les gaz acides présents dans les fumées d'incinération. Cependant, ils sont également capables de collecter les particules. Dans les usines d'incinération des déchets, les laveurs sont combinés à d'autres TEF tels que les cyclones, les filtres à manches et les électrofiltres pour limiter les rejets des particules dans l'atmosphère. Les laveurs à pulvérisation sont parmi les types les plus courants de laveurs par voie humide.

Pour de nombreux auteurs, les laveurs sont considérés comme inefficaces pour la collecte de particules inférieures à 5 µm. Cependant, des études menées par Kim et al. (2001) ont montré que dans des conditions de fonctionnement favorables, les laveurs conventionnels peuvent participer à l'élimination de particules inférieures à 1 µm. La collecte des particules dans les laveurs est régie par plusieurs mécanismes de dépôt dont les principaux sont l'impaction, la diffusion brownienne et l'interception.

La présente étude examine l'efficacité d'élimination de nanoparticules par un laveur à l'échelle pilote. Ce dernier a été conçu en similitudes d'échelles avec un laveur à pulvérisation pleine échelle d'une usine d'incinération de déchets dangereux, en termes de géométrie, d'hydrodynamisme et de temps de séjour, et fonctionnant à des températures et une humidité des gaz d'entrée et de sortie représentatives. Les résultats expérimentaux ont été confronté à un modèle de collecte de particules basé sur les mécanismes d'impaction, de diffusion brownienne et d'interception et adapté aux conditions de fonctionnement du pilote de lavage.

2. MATÉRIELS ET MÉTHODES

Le dispositif expérimental, décrit dans Adah et al., (2021), consiste principalement en une tour de pulvérisation à l'échelle pilote (Figure 1) d'une hauteur de 1,9 m et d'un diamètre de 0,3 m. Le laveur a été conçu pour être en similitude d'échelle avec le premier laveur de la chaine de l'usine d'incinération de déchets de Trédi Salaise qui en comporte trois, en termes de : rapport débits liquide/gaz, temps de séjour du gaz, régime d'écoulement du gaz (turbulent), diamètre des gouttelettes, humidité et températures du gaz à l'entrée et à la sortie (i.e. 1%HR – 200°C à l'entrée ; saturé en humidité – 70°C en sortie). Les buses de pulvérisation sont positionnées à l'intérieur de la tour sur quatre étages. Les buses sont à orifice unique de 0,45 mm de diamètre et peuvent générer des gouttelettes dont le diamètre médian en volume et le diamètre de Sauter sont respectivement de 75 µm et 63 µm pour une alimentation en eau de 10 bars.

Le pilote est alimenté par un ventilateur centrifuge positionné en aval de la colonne, et fonctionnant à 34 Nm³.hr⁻¹. En amont de la colonne, le flux d'air est conditionné dans une longueur droite en deux étapes: 1) chauffage à 70°C puis humidification par injection de vapeur d'environ 9 kg.h⁻¹, 2) chauffage jusqu'à 200°C et injection de nanoparticules de carbone générées par un générateur d'étincelles DNP 2000 (Palas). De l'eau à 60°C est utilisée comme liquide de pulvérisation afin d'atteindre la température cible de 70°C à la sortie du gaz. L'eau de purge résultante est recyclée après avoir été filtrée. En sortie de colonne, le gaz est condensé et l'eau récupérée est recyclée dans le réservoir d'eau tandis que le flux d'air sec est filtré par un filtre H14 avant le rejet final dans l'atmosphère.

Le comptage des particules est effectué en amont et en aval de la colonne à l'aide d'un SMPS (Grimm), i.e. un analyseur de mobilité différentielle (DMA) couplé à un compteur de particules à condensateur (CPC). Pour éviter toute condensation, les lignes d'échantillonnage amont et aval sont chauffées à 150°C. Une dilution en deux étapes (facteur de dilution ×100) est réalisée pour abaisser la concentration en particules, la température et l'humidité du gaz avant le comptage avec le SMPS : le premier diluteur est chauffé à 150°C tandis que le second diluteur fonctionne à température ambiante.



Figure 1. Schéma de l'installation

3. MODÉLISATION DES MÉCANISMES DE COLLECTE DES PARTICULES

Dans un laveur, la collecte des particules par les gouttelettes est régie par plusieurs mécanismes, tels que l'impaction, l'interception, la diffusion, l'attraction électrostatique, la force centrifuge, la condensation, la thermophorèse, les forces phorétiques et la sédimentation gravitationnelle. Néanmoins, les principaux sont l'impaction, la diffusion et l'interception (Lim et al., 2006). L'impaction se produit lorsque les particules ayant des forces d'inertie suffisantes conservent leur trajectoire jusqu'à ce qu'elles impactent les gouttelettes. Le nombre de Stokes (Stk) est le paramètre adimensionnel qui représente ce mécanisme.

Lim et al. (2006) ont proposé les corrélations suivantes pour prédire l'efficacité d'élimination des particules par le mécanisme d'impaction :

$$\eta_{imp} = 0.6. \text{Stk} \qquad \text{for Stk} \le 1.0 \tag{1a}$$

$$\eta_{\rm imp} = 0.11 \,.\,{\rm Stk} + 0.49$$
 for $1.0 < {\rm Stk} \le 3.0$ (1b)

Pour les particules plus fines, la diffusion brownienne est le principal mécanisme de collecte et résulte du mouvement irrégulier causé par les collisions aléatoires des particules avec les molécules de gaz conduisant à la capture des particules par les gouttelettes. Le nombre de Peclet (*Pe*) est le paramètre qui représente le mécanisme de diffusion. Une expression pour définir l'efficacité de collecte de particules due à la diffusion brownienne a été proposée par Jung & Lee (1998) :

$$\eta_{diff} = 0.7 \left\{ \frac{4}{\sqrt{3}} \left(\frac{1-\alpha}{J+\sigma K} \right)^{1/2} P e^{-1/2} + 2 \left(\frac{\sqrt{3\pi}}{4Pe} \right)^{2/3} \left[\frac{(1-\alpha)(3\sigma+4)}{J+\alpha K} \right]^{1/3} \right\}$$
(2)

Où α est la compacité, σ le rapport des viscosités liquide/gaz, J et K des facteurs hydrodynamiques. Le mécanisme d'interception se produit lorsqu'une particule dans la ligne de courant gazeux est à proximité d'une gouttelette (un rayon de particule) et est collectée par le biais de la tension de surface de la gouttelette. Ce mécanisme est régit par le nombre d'interception *R*. Jung & Lee (1998) ont développé le modèle suivant pour définir l'efficacité de collecte par le mécanisme d'interception :

$$\eta_{int} = \frac{(1-\alpha)}{(J+\sigma K)} \left[\left(\frac{R}{1+R} \right) + \frac{1}{2} \left(\frac{R}{1+R} \right)^2 (3\sigma + 4) \right]$$
(3)

L'efficacité de collecte d'une seule gouttelette η_{SD} est donnée comme suit :

$$\eta_{SD} = 1 - (1 - \eta_{imp})(1 - \eta_{diff})(1 - \eta_{int})$$
(4)

L'efficacité globale de collecte des particules est donné par (Raj Mohan et al., 2008) :

$$\eta_{\text{Overall}} = 1 - e^{\left[\frac{-3Q_{L}h}{2}\frac{V_{L}}{Q_{G}D(V_{L}-V_{G})}\eta_{SD}\right]}$$
(5)

Où Q_L est le débit de liquide (m³.s⁻¹), Q_G est le débit de gaz (m³.s⁻¹), V_t la vitesse terminale de sédimentation des gouttelettes (m.s⁻¹), V_G la vitesse du gaz dans la tour (m.s⁻¹), h la hauteur de la tour (m), D le diamètre des gouttelettes.

Paramètre	Valeur	Unité
Hauteur de la tour, h	1.9	m
Diamètre de la tour, D _S	0.3	m
Diamètre des gouttelettes, D	50 - 100	μm
Température du gaz dans la tour, T	343	К
Vitesse des gouttelettes, U _D	13.889	m.s ⁻¹
Débit de liquide, Q _L	5.5 x 10 ⁻⁵	m ³ .s ⁻¹
Débit de gaz, Q _G	0.0134	m ³ .s ⁻¹
Vitesse du gaz, U _G	0.190	m.s ⁻¹
Masse volumique effective des particules, ρ_e	1279	kg.m⁻³
Masse volumique de l'air, ρ_{air}	0.909	kg.m ⁻³
Viscosité dynamique du gaz, μ	1.83 × 10 ⁻⁵	Pa.s
Libre parcours moyen des molécules de gaz, λ	6.73 x 10 ⁻⁸	m
Compacité, <i>α</i>	4 x 10 ⁻³	-
Vitesse terminale de sédimentation des gouttelettes, Vt	1.56	m.s ⁻¹

Tableau 1. Paramètres utilisés pour les calculs du modèle

4. RESULTATS ET DISCUSSIONS

Le Tableau 1 présente les paramètres utilisés pour les calculs du modèle. Dans la Figure 2, les résultats d'efficacité expérimentale de collecte des NPs en fonction de leur diamètre aérodynamique (après conversion à partir des diamètres de mobilité électrique) sont confrontés avec ceux du modèle pour différentes tailles de gouttelettes. Pour les résultats expérimentaux, une courbe en forme de V est observée avec une efficacité de collecte minimale de 45% pour la région proche de dp = 35 nm. Dans cette région, c'est-à-dire dans la zone dite de Greenfield (Greenfield, 1957), l'efficacité de collecte des gouttelettes est minimale en raison des faibles efficacités par impaction et diffusion. Lorsque dp augmente de 35 nm à 90 nm (nombre de Stokes de 1×10⁻³ à 7×10⁻³), l'efficacité de collecte des NPs s'améliore progressivement pour atteindre une valeur de 62% à dp = 90 nm. Cela s'explique par le fait que les particules les plus grosses sont collectées par le mécanisme d'impaction. De même, une augmentation de l'efficacité de collecte est observée lorsque le dp diminue de 35 nm à 12 nm, la collecte des particules par diffusion brownienne devenant dominante. Les résultats du modèle sont en accord avec les résultats expérimentaux pour une taille de gouttelettes de 60 μ m correspondant au

diamètre de Sauter théorique des gouttelettes pulvérisées. De plus, les résultats issus du modèle ont mis en évidence que pour les conditions opératoires et géométriques testées, le mécanisme d'interception est négligeable devant l'impaction dans la gamme de taille de particules testée.



Figure 2. Comparaison des efficacités spectrales de collecte des particules par le laveur issues des résultats expérimentaux et du modèle pour différentes tailles de gouttelettes

5. CONCLUSION

Les laveurs à pulvérisation peuvent participer efficacement à la limitation du rejet de nanoparticules, en particulier dans le cadre de l'incinération des déchets, puisqu'une efficacité de collecte de 45% à 62% est rapportée pour des particules de 13 à 90 nm de diamètre aérodynamique. Les résultats du modèle sont en bon accord avec les résultats expérimentaux.

6. REFERENCES

- Adah, E., Joubert, A., Boudhan, R., Henry, M., Durécu, S., & Le Coq, L. (2021). Spray Scrubber for Nanoparticle Removal from Incineration Fumes from the Incineration of Waste Containing Nanomaterials: Theoretical and Experimental Investigations. *Aerosol Science and Technology*, 1–23. https://doi.org/10.1080/02786826.2021.1974332
- Bai Aswathanarayan, J., & Vittal, R. (2015). Environmental Risk, Human Health, and Toxic Effects of Nanoparticles. *Nanomaterials for Environmental Protection*, 523–535. https://doi.org/10.1002/9781118845530.ch31
- Baran, P., & Quicker, P. (2016). Fate and behavior of nanoparticles in waste incineration. Osterreichische Wasser- Und Abfallwirtschaft, 69(1–2), 51–65. https://doi.org/10.1007/s00506-016-0362-z
- Börner, R., Meiller, M., Oischinger, J., & Daschner, R. (2016). Untersuchung möglicher Umweltauswirkungen bei der Entsorgung nanomaterialhaltiger Abfälle in Abfallbe-handlungsanlagen.
- Greenfield, S. (1957). Rain scavenging of radioactive particulate matter from the atmosphere. *Journal of Meteorology*, *14*(2), 115–125.
- Jung, C. H., & Lee, K. W. (1998). Filtration of Fine Particles by Multiple Liquid Droplet and Gas Bubble Systems. *Aerosol Science and Technology*, 29(5), 389–401. https://doi.org/10.1080/02786829808965578
- Kim, H. T., Jung, C. H., Oh, S. N., & Lee, K. W. (2001). Particle removal efficiency of gravitational wet scrubber considering diffusion, interception, and impaction. *Environmental Engineering Science*, 18(2), 125–136. https://doi.org/10.1089/10928750151132357
- Lang, I.-M., Hauser, M., Baumann, W., Mätzing, H., Paur, H.-R., & Seifert, H. (2015). Untersuchungen zur Freisetzung von synthetischen Nanopartikeln bei der Abfallverbrennung. In *vivis.de*. https://www.vivis.de/wp-content/uploads/EaA12/2015_EaA_347_371_Lang.pdf
- Lim, K. S., Lee, S. H., & Park, H. S. (2006). Prediction for particle removal efficiency of a reverse jet scrubber. *Journal of Aerosol Science*, 37(12), 1826–1839. https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2006.06.010
- Oischinger, J., Meiller, M., Daschner, R., Hornung, A., & Warnecke, R. (2019). Fate of nano titanium dioxide during combustion of engineered nanomaterial-containing waste in a municipal solid waste incineration plant. *Waste Management & Research*, 37(10), 1033–1042. https://doi.org/10.1177/0734242X19862603
- Raj Mohan, B., Jain, R. K., & Meikap, B. C. (2008). Comprehensive analysis for prediction of dust removal efficiency using twin-fluid atomization in a spray scrubber. *Separation and Purification Technology*, 63(2), 269–277. https://doi.org/10.1016/j.seppur.2008.05.006
- Walser, T., Limbach, L. K., Brogioli, R., Erismann, E., Flamigni, L., Hattendorf, B., Juchli, M., Krumeich, F., Ludwig, C., Prikopsky, K., Rossier, M., Saner, D., Sigg, A., Hellweg, S., Günther, D., & Stark, W. J. (2012). Persistence of engineered nanoparticles in a municipal solid-waste incineration plant. *Nature Nanotechnology*, 7(8), 520–524. https://doi.org/10.1038/nnano.2012.64