



INSTITUT NATIONAL DE L'ENVIRONNEMENT INDUSTRIEL ET DES RISQUES

AMMONIAC

Essais de dispersion atmosphérique à grande échelle

Rapport Final

**Ministère de l'Aménagement du Territoire
et de l'Environnement**

Rémy BOUET

Unité Thématique Phénoménologie

1 9 9 9

AMMONIAC

Essais de dispersion atmosphérique à grande échelle

Rapport Final

Ministère de l'Aménagement du Territoire
et de l'Environnement

Ce document contient 99 pages (hors annexes)

	Auteur	Vérificateur	Approbateur
NOM	Rémy BOUET	Didier GASTON	Bruno FAUCHER
Qualification	Ingénieur au sein de l'unité thématique phénoménologie	Délégué scientifique à la Direction des Risques Accidentels	Directeur de la Direction des Risques Accidentels
Visa	Signé	Signé	Signé

TABLE DES MATIERES

1. INTRODUCTION	4
2. PROPRIÉTÉS DE L'AMMONIAC	5
2.1. Propriétés physiques	5
2.1.1. Généralités	5
2.1.2. Données thermodynamiques	5
2.1.3. Solubilité	6
2.1.4. Densité, masse volumique	6
2.2. Explosibilité et inflammabilité	7
2.2.1. Limites d'explosibilité	7
2.2.2. Température d'auto-inflammation	7
2.2.3. Energie minimale d'inflammation	7
2.2.4. Agents extincteurs	7
2.3. Réactions avec des contaminants	8
2.3.1. Les halogènes et interhalogènes	8
2.3.2. Les métaux lourds	8
2.3.3. Les oxydants et les peroxydes	8
2.3.4. Les acides	9
2.3.5. Autres aspects	9
2.3.6. Stabilité	9
2.4. Toxicité	10
2.4.1. Généralités	10
2.4.2. Toxicologie aiguë	11
2.4.3. Toxicologie sur les lieux de travail	12
2.4.4. Synthèse des résultats sur la toxicologie humaine	12
2.4.5. Toxicologie de la faune et la flore	15
3. DISPERSION ATMOSPHÉRIQUE	17
3.1. Contexte	17
3.2. Essais de dispersion atmosphérique	18
3.2.1. Caractéristiques des rejets accidentels d'ammoniac	18
3.2.2. Essais de A. Resplandy	20
3.2.3. Essais du Désert de Tortoise	24
3.2.4. Essais de Unie van Kunstmest Fabrieken bv, Hollande, 1972	27
3.2.5. Essais de Imperial Chemical Industries, Angleterre, 1974	27
3.2.6. Essais de Unie van Kunstmest Fabrieken bv, Hollande, 1980	28
3.2.7. Essais de Landskrona, Suède, 1982	28
3.2.8. Essais du programme FLADIS	29
3.2.9. Essais réalisés à l'Ecole des Mines d'Alès	29
3.2.10. Autres essais de dispersion atmosphérique	29
3.2.11. Synthèse	31

3.3. Modélisation de la dispersion atmosphérique de l'ammoniac	32
3.3.1. Les modèles gaussiens	32
3.3.2. Les modèles tridimensionnels	32
3.3.3. Les modèles intégraux	32
3.3.4. Problèmes subsistants et améliorations à apporter	33
3.3.5. Synthèse	35
3.4. Aspects examinés dans ce programme	36
3.4.1. Les jets impactants	36
3.4.2. Influence de la géométrie de l'orifice	37
4. DESCRIPTION DES ESSAIS À GRANDE ÉCHELLE	38
4.1. Présentation des essais réalisés	38
4.2. Description des moyens d'essais	40
4.2.1. Description du point de rejet	40
4.2.2. Mesures météorologiques	46
4.2.3. Constitution et tests de la chaîne de mesure de l'ammoniac	47
4.2.4. Instrumentation des capteurs sur le terrain d'essai	50
4.2.5. Moyens d'acquisition	53
4.2.6. Moyens vidéo	55
4.2.7. Sécurité	55
5. MESURES DES CONDITIONS DE REJET	56
5.1. Conditions d'écoulement dans la canalisation	56
5.1.1. Conditions expérimentales des rejets	56
5.1.2. Analyses des conditions d'écoulement des rejets	61
5.2. Conditions météorologiques durant les essais	67
6. MESURES ENREGISTRÉES SOUS LE VENT DES REJETS	74
6.1. Capteurs de concentrations en ammoniac	74
6.2. Analyses	81
6.2.1. Influence de l'orifice du rejet	81
6.2.2. Influence de la stabilité atmosphérique	83
6.2.3. Influence d'un obstacle placé dans le champ proche	84
6.2.4. Influence d'une rétention	88
6.2.5. Influence d'un écran d'eau réalisé à partir de queues de paon	90
6.2.6. Comparaisons expérimentations / modélisations	92
7. CONCLUSION ET PERSPECTIVES	95
8. BIBLIOGRAPHIE	96

1. INTRODUCTION

Dans le cadre de ses activités relativement au risque accidentel, l'INERIS doit notamment déterminer des périmètres de sécurité autour des installations industrielles. Suite à une perte de confinement sur une installation, les risques encourus peuvent être instantanés, tels que l'explosion de produits inflammables, ou différés tels que des rejets de produits toxiques. Ce programme de recherche s'est plus particulièrement intéressé au devenir d'un nuage toxique formé après un rejet accidentel d'ammoniac stocké liquide sous pression.

L'étude de la dispersion atmosphérique de l'ammoniac présente un intérêt majeur pour deux raisons. D'une part, l'ammoniac est une substance très répandue dont les utilisations sont nombreuses, de part ses propriétés chimiques ou physiques. D'autre part, l'ammoniac est une substance très toxique, corrosive, inflammable et explosive dans certaines conditions. Pour mémoire, la perte de confinement d'une citerne de 22 tonnes d'ammoniac le 24 mars 1992 à DAKAR a provoqué de nombreux décès (129 morts et plus de 1 100 blessés) dont certains plusieurs semaines après l'accident dus au caractère toxique de l'ammoniac.

Ce programme de recherche a été principalement financé par le Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement français. Six industriels européens ont également participé : Norsk Hydro (Norvège), Grande Paroisse (France), Veba Oel (Allemagne), SKW Piesteritz (Allemagne), CEA-CESTA (France) et Rhône Poulenc (France). A l'INERIS, ce programme a été organisé et coordonné au sein de la Direction des Risques Accidentels (DRA). Il a débuté en 1995 et s'est achevé en 1999.

Les principaux objectifs de ce programme étaient :

- d'analyser les risques présentés par des installations utilisant des quantités d'ammoniac pouvant atteindre quelques dizaines de tonnes ;
- de compléter les connaissances sur la dispersion atmosphérique de l'ammoniac en milieu libre et encombré ;
- et de comparer les résultats des essais avec des modèles de dispersion atmosphérique.

Pour cela, une campagne d'essais à grande échelle a été réalisée à partir d'un réservoir d'ammoniac liquide sous pression. Les essais se sont déroulés sur le site du CEA-CESTA sur une période s'étalant de décembre 1996 à avril 1997. Le but de cette campagne d'essais était de mesurer les concentrations d'ammoniac sous le vent des rejets afin de mieux comprendre la dispersion de l'ammoniac dans l'atmosphère dans le cas de rejets réalistes, en particulier en milieu libre et semi-encombré.

Les essais de dispersion d'ammoniac liquéfié sous pression les plus connus sont les essais du Désert de Tortoise réalisés par Goldwire et al. (1985), et les essais FLADIS réalisés par le RISØ (1993/1994). Les débits mis en oeuvre lors des essais du Désert de Tortoise et des essais FLADIS étaient respectivement de l'ordre de 100 kg/s et de 0,5 kg/s. Les essais INERIS se sont déroulés avec des débits intermédiaires de l'ordre de 2 à 4 kg/s.

Le présent rapport est organisé de la manière suivante. Après une description des principales propriétés de l'ammoniac au chapitre 2, un rappel sur la dispersion atmosphérique en général et sur la dispersion de l'ammoniac en particulier est effectué au chapitre 3. Ensuite, les essais réalisés à grande échelle dans le cadre de ce programme sont décrits dans le chapitre 4. Enfin, une synthèse de l'analyse des mesures des conditions de rejet et des mesures enregistrées sous le vent des rejets est effectuée respectivement dans les chapitres 5 et 6.

2. PROPRIETES DE L'AMMONIAC

2.1. PROPRIETES PHYSIQUES

La rédaction de ce paragraphe s'appuie notamment sur les documents Air Liquide (1980), ULMANN (1985) et SNIE (1991).

2.1.1. Généralités

L'ammoniac est identifié de la manière suivante (Cf. tableau 1) :

nom	ammoniac
numéro CAS	7664-41-7
numéro CEE	007-001-00-5
code de danger RTMD	268
numéro ONU	1005
formule chimique	NH ₃
masse molaire	17,03 g

tableau 1

Sous la pression atmosphérique et à 20°C, l'ammoniac est un gaz incolore d'odeur caractéristique piquante et irritante.

2.1.2. Données thermodynamiques

Les principales données thermodynamiques de l'ammoniac sont les suivantes :

- Point de fusion: - 77,7 °C ;
- Point d'ébullition: - 33,4°C à 1,013 bar abs ;
- Tension de vapeur variable en fonction de la température (Cf. tableau 2) ;

Température (°C)	- 77,71	- 33,4	- 18,7	0	4,7	20	25,7	30	50,1	78,9
Pression absolue (bar)	0,06077	1,013	2	4,29	5	8,56	10	11,66	20	40

tableau 2: Tension de vapeur de l'ammoniac en fonction de la température

- Température critique..... : 405,55 K ;
- Pression critique..... : 114,80 bar ;
- Chaleur de fusion à 1,013 bar..... : 332,3 kJ.kg⁻¹ ;
- Chaleur de vaporisation à -15°C..... : 1 210 kJ.kg⁻¹ (289,5 kcal.kg⁻¹) ;
- Chaleur de vaporisation à -33,4°C..... : 1 370 kJ.kg⁻¹ (328 kcal.kg⁻¹) ;
- Viscosité dynamique du liquide à - 33,5°C..... : 10,225 mPa.s .

Un litre de liquide libère 947 litres de gaz (détendu à 15°C, sous 1 bar de pression).

2.1.3. Solubilité

La solubilité de l'ammoniac dans l'eau est importante. Le tableau 3 indique la solubilité de l'ammoniac en fonction de la température (WHO, 1986).

Température (°C)	Solubilité (g/L)
0	895
20	529
40	316
60	168

tableau 3 : Solubilité de l'ammoniac en fonction de la température

Par ailleurs, la dissolution de l'ammoniac dans l'eau est fortement exothermique : 2 000 kJ par kilogramme d'ammoniac dissous dans l'eau (soit 478,5 kcal.kg⁻¹). A titre indicatif, la dissolution d'un kilogramme d'ammoniac dégage assez d'énergie pour en évaporer près d'un kilogramme et demi.

2.1.4. Densité, masse volumique

- Gaz ⇒ 0,772 kg.m⁻³ à 0 °C
..... ⇒ 0,610 kg.m⁻³ à 20 °C
soit une densité de 0,597 par rapport à l'air.
- Liquide..... ⇒ variable en fonction de la température tel que reporté dans le tableau 4 :

Température (°C)	-40	-33,4	-20	-10	0	10	15	20	30	50	100	132,4
Masse volumique de l'ammoniac liquide (kg.m ⁻³)	690	679	659	647	634	621	617	607	592	558	452	235

tableau 4 : Masse volumique de l'ammoniac en fonction de la température

2.2. EXPLOSIBILITE ET INFLAMMABILITE

Les informations reportées ci-après proviennent notamment de l'étude réalisée par l'INERIS (Abiven, 1991) à la demande du Ministère de l'Environnement.

2.2.1. Limites d'explosibilité

Dans la littérature, différentes valeurs existent relativement aux Limites Inférieures et Supérieures d'Explosibilité (LIE et LSE). La fiche référencée TOX 003-06-1998 du Service de l'Environnement Industriel du Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement fournit les valeurs suivantes : LIE 16 % et LSE 25 %. Ces valeurs sont également indiquées par l'INRS (1989) et SAX (1996). D'autres auteurs donnent des valeurs légèrement différentes : LIE 15 % et LSE 28 % d'après NFPA (1994) et Medart (1979), LIE 15,5 % et LSE 27 % d'après Weiss (1985).

2.2.2. Température d'auto-inflammation

La température d'auto-inflammation d'un mélange de gaz ou de vapeur est la température minimale à partir de laquelle le mélange est le siège d'une réaction chimique suffisamment rapide pour qu'une flamme apparaisse spontanément et se propage dans tout le mélange. La température d'auto-inflammation de l'ammoniac relevée dans la littérature est de 650°C (Chaineaux, 1991).

2.2.3. Energie minimale d'inflammation

La mise à feu d'un mélange inflammable exige l'introduction locale d'une certaine quantité de chaleur. L'évaluation de cette quantité d'énergie nécessaire pour enflammer le mélange est relativement délicate.

Buckley et Husa (1962) ont déterminé l'énergie minimale d'inflammation de l'ammoniac en utilisant un système capacitif. Ils ont obtenus ainsi une énergie minimale d'inflammation de l'ammoniac de 680 millijoules.

Kramer (1985) a obtenu une énergie minimale pour un mélange ammoniac-air de 14 millijoules. Cette valeur, très différente de celle obtenue par Buckley et Husa, montre la difficulté pour quantifier l'énergie de décharge des dispositifs expérimentaux utilisés.

Néanmoins, malgré cette plus faible valeur pour l'énergie minimale d'inflammation déterminée par Kramer, un mélange air-ammoniac possède une énergie minimale d'inflammation plus élevée (de 1 à 2 ordres de grandeur) par rapport à la plupart des mélanges air-hydrocarbures.

2.2.4. Agents extincteurs

Les agents extincteurs qui doivent être employés sont uniquement le CO₂ ou les poudres dès lors que de l'ammoniac à l'état liquide peut être présent. En effet, le contact de l'eau sur l'ammoniac liquide communique de la chaleur à ce dernier et favorise sa vaporisation.

2.3. REACTIONS AVEC DES CONTAMINANTS

L'ammoniac sert à la fabrication de beaucoup de produits nitrés. Mais, il existe des réactions dangereuses avec certains composés ou certaines familles de composés.

Le mélange d'ammoniac avec un contaminant peut conduire à la formation de produits explosifs.

L'INRS (1976) mentionne dans ses cahiers de notes documentaires (note 1024-84-76) des produits conduisant à des réactions chimiques dangereuses avec l'ammoniac, tels que l'acide nitrique, l'oxygène, le bore ou les oxydants.

2.3.1. Les halogènes et interhalogènes

Les halogènes (fluor, chlore, brome, iode) réagissent vivement sur l'ammoniac et ses solutions. Des réactions explosives peuvent également avoir lieu avec les produits suivants : acétaldéhyde, acide hypochloreux, ferricyanure de potassium. Il se produit des composés explosifs tels que les trihalogénures d'azote.

Par exemple :

- avec le **chlore**, Cl_2 , les mélanges sont explosifs s'ils sont chauffés ou si le chlore est en excès, à cause de la formation de trichlorure d'azote ;
- avec du **pentafluorure de brome**, BrF_5 , des explosions sont probables.

2.3.2. Les métaux lourds

L'ammoniac est capable de réagir avec quelques métaux lourds (l'argent, l'or, le mercure...), pour produire des matériaux qui peuvent exploser violemment quand ils sont séchés :

- avec du **chlorure d'or (III)**, AuCl_3 , sous une large variété de conditions, la présence d'ammoniac conduit à des composés explosifs ou fulminants qui explosent quand ils sont chauffés ;
- avec les **oxydes d'argents**, AgO , Ag_2O , il y a formation de composés explosifs ;
- avec du **mercure**, Hg , la réaction donne des produits qui sont fortement explosifs et qui détonent facilement. On ne doit pas utiliser d'instrument contenant du mercure si celui-ci peut entrer en contact avec de l'ammoniac (B.I.T., 1993).

2.3.3. Les oxydants et les peroxydes

L'ammoniac réagit sur de nombreux oxydes et peroxydes : le peroxyde de chlore à froid, l'anhydrique iodique à chaud, les perchlorates qui vers 250°C donnent lieu à une réaction violente. Le mélange d'un composé oxydant et d'ammoniac liquéfié peut exploser sous l'effet d'un choc.

Par exemple :

- avec le **peroxyde d'hydrogène**, H_2O_2 , de l'ammoniac dissout dans 99,6 % de peroxyde donne une solution instable qui explose violemment ;
- avec du **chlorure de nitryle**, ClNO_2 , l'interaction est très violente, même à -75°C ;

- avec le **difluorure de trioxygène**, F_2O_3 , la réaction peut causer des inflammations et des explosions, même à -183 °C . Avec de l'ammoniac solide, il réagit pour donner des inflammations ou des explosions ;
- avec de l'**oxygène**, O_2 , s'ils sont mis en contact dans un appareil réfrigérant, il peut y avoir une explosion. De plus, en présence d'ammoniac, l'oxygène peut accélérer ou provoquer de la corrosion.

2.3.4. Les acides

Avec certains acides, des réactions violentes sont observées, tel que :

- avec l'**acide hypochloreux** pur, $HClO$, l'ammoniac, sous forme gazeuse, explose à son contact et libère du chlore ;
- avec l'**acide nitrique**, HNO_3 , un jet d'ammoniac brûle dans une atmosphère d'acide nitrique.

2.3.5. Autres aspects

L'ammoniac peut aussi causer des réactions incandescentes, par exemple :

- avec le **bore**, B , chauffé dans une atmosphère d'ammoniac sec ;
- avec l'**anhydre chromique**, CrO_3 , l'ammoniac gaz décompose le trioxyde sec avec incandescence à la température ordinaire.

L'ammoniac peut également former des mélanges auto-inflammables :

- avec l'**acide nitrique**, HNO_3 , (Cf. § 2.3.4) ;
- avec le **dichlorure de chromyle**, CrO_2Cl_2 , l'ammoniac peut être enflammé par ce produit.

2.3.6. Stabilité

A température ordinaire, le gaz ammoniac est un composé stable ; sa dissociation en hydrogène et en azote ne commence que vers $450 - 500\text{ °C}$. En présence de certains métaux comme le fer, le nickel, l'osmium, le zinc, l'uranium, cette décomposition commence dès la température de 300 °C et est presque complète vers 500 à 600 °C .

2.4. TOXICITE

2.4.1. Généralités

Concernant la toxicité de l'ammoniac, il existe différentes valeurs publiées pour un même effet donné.

A cela trois raisons fondamentales :

- l'absence d'expérimentation humaine pour les concentrations élevées ;
- la disparité des individus constituant un échantillonnage humain, par rapport à un échantillonnage d'animaux de laboratoire sélectionnés pour lequel la réponse varie peu d'un animal à l'autre ;
- et la difficulté d'extrapoler à l'homme des résultats issus de l'expérimentation animale.

La toxicité de l'ammoniac gazeux est liée à sa très grande solubilité et à l'alcalinité des solutions résultantes qui en fait un agent agressif des muqueuses et des poumons.

S'il existe des valeurs fiables sur les daphnies ou les rats, la toxicité sur l'homme est plus délicate à déterminer. Notamment, l'influence de la concentration ou de la durée d'exposition est difficile à évaluer. A cet égard, une étude sur la « toxicité aiguë de l'ammoniac » a été réalisée par l'INERIS (Auburtin, 1999).

L'exposition à une atmosphère chargée d'ammoniac peut provoquer diverses atteintes corporelles détaillées ci-après :

- Atteintes oculaires : elles peuvent être provoquées par l'action des vapeurs, mais aussi par les projections de liquide. Elles se manifestent par du larmoiement, des conjonctivites pouvant s'accompagner d'atteintes à la cornée plus ou moins profondes ;
- Atteintes cutanées : sous forme de dermites de contact ;
- Atteintes respiratoires : l'inhalation de vapeurs ammoniacales provoque une irritation des voies respiratoires supérieures avec éternuement, dyspnée et toux, le stade le plus grave étant l'œdème aigu du poumon (OAP). L'OAP est un accident qui se produit après inhalation de gaz vésicants (Cl_2 , NH_3 , SO_2) par dégradation des parois des alvéoles pulmonaires qui sont alors inondées par le plasma sanguin. Fort heureusement, le seuil de détection olfactive de l'ammoniac se situe bien en dessous des concentrations considérées dangereuses ;
- Brûlures digestives : l'ingestion d'ammoniac est suivie de phénomènes douloureux très intenses avec intolérance gastrique, état de choc s'accompagnant parfois d'érythème ou de purpura. La complication à redouter est l'œdème de la glotte.

L'ammoniac sous forme liquide en contact direct avec la peau gèle les tissus et provoque des brûlures. Les solutions d'ammoniac sont fortement alcalines et par suite très irritantes pour les muqueuses, la peau et les yeux.

L'exposition prolongée et répétée à l'ammoniac entraîne une tolérance plus élevée. Les odeurs et les effets irritants sont perçus plus difficilement.

Les seuils de perception olfactive sont très variables suivant l'individu, allant de quelques ppm à plusieurs dizaines de ppm.

2.4.2. Toxicologie aiguë

Sur ce point, les résultats sont tirés d'observations effectuées lors d'accidents et non d'expérimentations rigoureuses ; toutefois, le seuil d'irritation a pu être mesuré sur des groupes de volontaires.

Les valeurs de concentration létale 50 % (CL50¹) permettent essentiellement d'évaluer les risques fatals pour l'homme, car il est impossible d'effectuer de telles expériences sur l'être humain.

Une donnée concernant la toxicité pour l'homme n'est exploitable que si elle associe :

- une concentration ;
- un temps d'exposition ;
- et une probabilité d'apparition des effets.

La fiche référencée TOX 003-06-1998 du S.E.I. (Service de l'Environnement Industriel du Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement) fournit les valeurs suivantes :

Durée	3 min	10 min	20 min	30 min	60 min	120 min
Seuil des Effets Létaux² (mg/m ³)	14 000	7 500	5 300	4 330	3 100	2 200
Seuil des Effets Irréversibles³ (mg/m ³)	696	484	393	348	283	229
Odeur (mg/m ³)	3,62 (soit ≈ 5 ppm)					

Nota. : pour l'ammoniac, 1 ppm = 0,70 mg.m⁻³ et 1 mg.m⁻³ = 1,43 ppm

tableau 5 : Valeurs de toxicité de l'ammoniac issu de la fiche TOX 003-06-1998

La détection de l'ammoniac par l'odorat humain dépend de la sensibilité des personnes, Cette limite olfactive se situe généralement à partir d'une concentration comprise entre 5 et 25 ppm.

Cette valeur est bien inférieure au seuil correspondant à des dommages irréversibles qui lui-même est notablement inférieur au seuil relatif aux effets létaux. Pour mémoire, cet aspect n'est pas vérifié pour d'autres gaz tels que, par exemple, le monoxyde de carbone qui est inodore.

¹ CL50 : valeur calculée à partir de la concentration de produit supposée provoquer la mort de 50 % de la population expérimentée pendant un temps d'exposition déterminé.

² Seuil des effets létaux : Concentration maximale de polluant dans l'air à un temps d'exposition donné en dessous de laquelle, chez la plupart des individus, on n'observe pas de risque de décès.
La notion de « la plupart des individus » exclut les sujets « hypersensibles » tels que les insuffisants respiratoires.

³ Seuil des effets irréversibles : Concentration maximale de polluant dans l'air à un temps d'exposition donné en dessous de laquelle, chez la plupart des individus, on n'observe pas un effet irréversible.
Un effet irréversible correspond à la persistance dans le temps d'une atteinte lésionnelle ou fonctionnelle directement consécutive à une exposition en situation accidentelle (exposition unique et de courte durée) ayant pour conséquences des séquelles invalidantes.

2.4.3. Toxicologie sur les lieux de travail

La concentration autorisée pour l'ammoniac en atmosphère de travail est réglementairement limitée et contrôlée dans la plupart des pays industrialisés. Les valeurs actuellement admises, qui peuvent varier d'un pays à l'autre, se situent généralement entre 25 et 50 ppm. Des valeurs plus élevées sont définies pour des expositions de courte durée ou en situation d'urgence. Les valeurs retenues en France sont données dans le tableau 6 ci-après.

Désignation	Définition	Valeur (ppm)	Observations
VLE	Valeur Limite d'Exposition sur le lieu de travail pendant 15 minutes	50	Circulaire du Ministère du Travail du 19 juillet 1982 France
VME	Valeur limite de Moyenne d'Exposition sur le lieu de travail pour un poste de 8 heures	25	Circulaire du Ministère du Travail du 19 juillet 1982 France

Nota. : pour l'ammoniac, 1 ppm = 0,70 mg.m⁻³ et 1 mg.m⁻³ = 1,43 ppm

tableau 6 : Valeurs limites sur les lieux de travail en France

2.4.4. Synthèse des résultats sur la toxicologie humaine

Les deux tableaux pages suivantes présentent différents effets observés selon la concentration et le temps d'exposition.

Principaux résultats des études expérimentales chez l'homme

Concentr. (ppm)	Temps (minutes)	Nombre de sujets	Effets	Réf.
Odeur				
	30	8	Perception (sujets sensibles) Perception nuisance	IPCS, 1986 IPCS, 1986 Verbeck, 1977
Irritation sans précision				
50	10	6	Irritation modérée	Mac Ewan, 1972
30-50	5	10	Sécheresse nasale	Report, 1973
Irritation oculaire et larmoiement				
130	5	10	Irritation oculaire (5 sujets/10)	Report, 1973
110-140	30	8	Nuisance	Verbeck, 1977
150-200	360	6	Larmoiement, inconfort transitoire	Ferguson, 1977
150-200		7	Début des effets oculaires (sans précision)	Wallace, 1978
400	< 1	7	Irritation oculaire	Wallace, 1978
600	30 sec	7	Larmoiement	Wallace, 1978
700	qq. sec.	7	Larmoiement	Wallace, 1978
1000	immédiat	7	Larmoiement, vision altérée	Wallace, 1978
Irritation des voies aériennes et troubles fonctionnels respiratoires				
130	5	10	Irritation de la gorge (8 sujets sur 10)	Report, 1973
150	8-11	16	Signes fonctionnels respiratoires (exercice)	Cole, 1977
110-140	30	8	Irritation de la gorge : nuisance	Verbeck, 1977
500	30	7	Irritation des voies respiratoires Signes fonctionnels	Silverman, 1949
700	qq. sec.	7	Toujours respirable	Wallace, 1978
1000	1-3	7	Respiration intolérable	Wallace, 1978
Concentration tolérable / intolérable				
140	30-75	8	Sortie de la chambre d'exposition Notation intolérable pour les non-experts	Verbeck, 1977
1500	instantané	7	Sortie de la chambre d'exposition	Wallace, 1978

tableau 7 : Effets de l'ammoniac sur l'homme

Ce tableau 7 est tiré de l'étude INERIS (Auburtin, 1999) sur la toxicité aiguë de l'ammoniac.

A titre d'information, le NIOSH (1987) propose une valeur IDLH (Immediately Dangerous to Life or Health) pour l'ammoniac de 500 ppm. Pour mémoire, cette valeur IDLH correspond à une concentration maximale dans l'air jusqu'à laquelle une personne exposée pendant au plus 30 minutes peut fuir sans risquer d'effets irréversibles.

Concentration en mg.m ⁻³	Effets	Temps d'exposition
3,5	Odeur perceptible par certains individus.	
18	Odeur perceptible par la plupart des individus.	Valeur limite moyenne d'exposition professionnelle en France et dans de nombreux pays.
35 - 70	Irritation perceptible par la plupart des individus, au niveau des yeux.	Tolérable jusqu'à 2 heures pour les personnes non habituées à être exposées ; les personnes habituées peuvent supporter pendant le même temps des concentrations plus élevées.
87 - 100	Irritation des yeux, des voies nasales et des muqueuses. Irritation de la gorge et des voies respiratoires.	Temps d'exposition supérieur à 1 heure.
140	Nausée et maux de tête.	
280 - 490	Irritation immédiate des yeux, du nez, de la gorge et des voies respiratoires supérieures.	Une exposition d'une ½ h à 1 h n'entraîne pas de dommages sérieux bien qu'une irritation de l'appareil respiratoire supérieur puisse persister pendant 24 h à la suite d'une exposition de 30 min. Une aggravation de problèmes respiratoires préexistants peut survenir.
700 - 1 400	Toux importante. Irritation grave des yeux, du nez et de la gorge, spasmes bronchitiques.	Des dommages aux yeux et au système respiratoire peuvent survenir s'ils ne sont pas traités rapidement. Une exposition de 30 min peut entraîner des effets très sérieux sur les personnes prédisposées aux problèmes respiratoires.
2 100 - 2 800	Toux importante. Irritation grave des yeux, du nez et de la gorge.	Peut être fatal après 30 min.
3 500 - 8 400	Spasme respiratoire. Asphyxie rapide, œdème sérieux, strangulation.	Fatal en quelques minutes.

*tableau 8 : Effets de l'ammoniac sur l'homme
en fonction de la concentration (EFMA-IFA, 1990)*

Ce tableau 8 est tiré de l'« aide-mémoire sur les risques présentés par l'ammoniac » réalisé par le SNIE (1991).

2.4.5. Toxicologie de la faune et la flore

2.4.5.1. Animaux

Le tableau 9 présente quelques effets observés sur des animaux.

Espèces	Concentration en mg.m ⁻³	Effets
Porcs	75 - 100	Toux, sécrétions nasales, orales et lacrymales.
	140	Symptômes sévères d'irritation et convulsion après 36h d'exposition avec rétablissement 7 h après la fin de l'exposition.
Lapins	280	Une exposition de 10 min entraîne la cessation irréversible de l'activité ciliaire.
	350	Mêmes effets que ci-dessus pour une exposition de 5 min.
	3 500	LC 50 - 1 h.
Chats	3 500	LC 50 - 1 h.

tableau 9 : Effets toxicologiques de l'ammoniac sur quelques animaux en fonction de la concentration (EFMA-IFA, 1990)

2.4.5.2. Vie aquatique

L'ammoniac libre (non ionisé) dans les eaux de surface est toxique pour les poissons. Cependant, les ions ammonium ne le sont pas. Ainsi, en cas de contamination de l'eau par l'ammoniac, les sels d'ammonium qui peuvent se former ne présentent pas de risque toxique. La valeur du pH de l'eau est importante car l'ammoniac libre se forme pour des pH supérieurs à 7,5-8,0.

Pour la truite, des troubles apparaissent dès 0,3 mg.l⁻¹. Les percidés (ou les castotomidés) et les salmonidés sont les variétés les plus sensibles pour les espèces en eau douce. Pour l'eau de mer, les crevettes apparaissent comme l'espèce invertébrée la plus sensible. Selon le type de poissons, le risque de mortalité apparaît entre 1,2 et 5 mg.l⁻¹ (ces valeurs se réfèrent à l'ammoniac non ionisé).

Pour l'ammoniac ionisé (ammoniaque en solution), des concentrations létales (CL50) pour quelques espèces sont reportées dans le tableau suivant :

Espèces	Seuil	Durée de l'exposition	Concentration
daphnies	CL50	24 h	27 mg.l ⁻¹
poissons	CL50	24 h	182 mg.l ⁻¹ ;
algues	CL50	5 jours	185 mg.l ⁻¹ .

tableau 10 : concentrations létales (CL50) pour quelques espèces

2.4.5.3. La flore

L'ammoniac est considéré comme biodégradable et non accumulable. Il nécessite cependant un suivi sous forme de bilan annuel des rejets dans l'eau, l'air et le sol pour une utilisation annuelle supérieure à 10 tonnes.

L'ammoniac peut être toxique pour certaines plantes car il ne peut pas être excrété. Il est assimilé par combinaison avec des chaînes carbonées, et ainsi l'excès d'ammoniac peut passer dans le métabolisme du sucre.

D'autres plantes disposent de fonctions permettant l'assimilation de l'ammoniac, les habilitant ainsi à le tolérer ou à l'utiliser préférentiellement.

3. DISPERSION ATMOSPHERIQUE

3.1. CONTEXTE

La connaissance des mécanismes de dispersion atmosphérique de l'ammoniac s'applique dans les trois cas de figure suivants :

- Le caractère prévisionnel d'une étude de dispersion atmosphérique permet d'envisager les risques potentiels d'une installation industrielle, notamment dans le cadre des études de danger ou des études d'impact ;
- Lors d'une situation accidentelle, la modélisation de la dispersion atmosphérique permet d'évaluer les mesures à prendre en temps réel ;
- Suite à un accident, l'analyse des conditions de dispersion dans l'atmosphère peut permettre de mieux comprendre les origines de ces accidents, et dans certains cas, de valider des modèles de dispersion atmosphérique qui servent aux études susmentionnées.

Pour étudier la dispersion atmosphérique, des approches différentes existent :

- réalisation d'essais en grandeur réelle ;
- simulation sur maquette (hydraulique ou aéraulique) ;
- utilisation de codes de calcul mathématiques.

Cette dernière manière d'appréhender les phénomènes de transport et de diffusion des gaz dans l'atmosphère présente des avantages sur les techniques évoquées précédemment tels que le non recours à de lourdes procédures expérimentales, la rapidité de l'étude, et la possibilité d'envisager un grand nombre de cas.

Cependant, afin de pouvoir accéder à la simulation, il est nécessaire de bien connaître les phénomènes qui régissent la dispersion atmosphérique. A cet égard, des essais à grande échelle s'imposent.

L'étude de la dispersion atmosphérique de l'ammoniac présente un intérêt majeur pour deux raisons. D'une part, l'ammoniac est une substance très toxique, corrosive, inflammable et explosive dans certaines conditions. D'autre part, l'ammoniac est une substance très répandue dont les utilisations sont nombreuses, de part ses propriétés chimiques ou physiques.

Concernant ses propriétés chimiques, la principale utilisation de l'ammoniac est la fabrication d'engrais. L'ammoniac représente la plus grande source concentrée en azote pour l'agriculture, qui consomme environ 85 à 90 % de la production. L'industrie utilise l'ammoniac comme matière première pour la fabrication d'explosifs, de fibres et de plastiques. Il est aussi utilisé dans la fabrication du papier, du caoutchouc, dans les raffineries, l'industrie du cuir, l'industrie pharmaceutique.

En ce qui concerne l'utilisation liée aux propriétés physiques, l'ammoniac est utilisé comme agent réfrigérant dans les systèmes de compression et d'absorption. Certaines caractéristiques de l'ammoniac, comme sa chaleur latente élevée, sa basse densité de vapeur et sa stabilité chimique, favorisent son utilisation dans de grandes installations industrielles.

Ces deux particularités de l'ammoniac, sa nocivité et sa grande utilisation, impliquent qu'au titre de la sécurité des personnes l'on cherche à mieux connaître son comportement en cas de perte de confinement, notamment en cas de rejets accidentels à l'atmosphère.

Dans cette optique, ce chapitre propose donc :

- de faire le point sur les essais de dispersion atmosphérique qui ont pu être réalisés avec l'ammoniac ;
- de présenter l'état de l'art et les lacunes de la modélisation de la dispersion atmosphérique de l'ammoniac, car la modélisation de la dispersion atmosphérique constitue une étape clé lors de l'étude d'un rejet de produits toxiques ;
- et de justifier les axes d'étude développés dans le cadre de ce programme de recherche.

3.2. ESSAIS DE DISPERSION ATMOSPHERIQUE

Après une description des principales caractéristiques des rejets d'ammoniac, ce paragraphe présente d'abord des essais de dispersion atmosphérique d'ammoniac, et ensuite présente succinctement des essais de dispersion réalisés avec des gaz lourds.

3.2.1. Caractéristiques des rejets accidentels d'ammoniac

La dispersion atmosphérique d'un gaz est influencée par les conditions du rejet, par les conditions météorologiques et également par la nature du gaz rejeté.

Les rejets accidentels d'ammoniac peuvent être de différents types :

- jet d'ammoniac gazeux à partir d'un récipient sous pression (rejet à partir de la phase gazeuse) ;
- jet d'ammoniac diphasique à partir d'un récipient sous pression (rejet à partir de la phase liquide) ;
- évaporation d'une flaque d'ammoniac liquide dont la température est inférieure ou égale à sa température d'ébullition⁴ ;
- fuite d'ammoniac liquide à partir d'un réservoir cryogénique (ammoniac liquide de température inférieure à la température d'ébullition et à pression atmosphérique).

L'ammoniac présente des caractéristiques spécifiques de dispersion et selon le type de rejet, la dispersion de l'ammoniac rejeté sera différente. Le type de rejet qui a été plus particulièrement étudié dans le cadre de ce programme, est le rejet d'ammoniac diphasique à partir de la phase liquide d'un réservoir sous pression.

⁴ Pour mémoire, la température d'ébullition de l'ammoniac sous la pression normale est de -33,4°C.

L'ensemble des études réalisées sur les rejets diphasiques décompose le jet en trois grandes zones comme le présente la *figure 1* suivante :

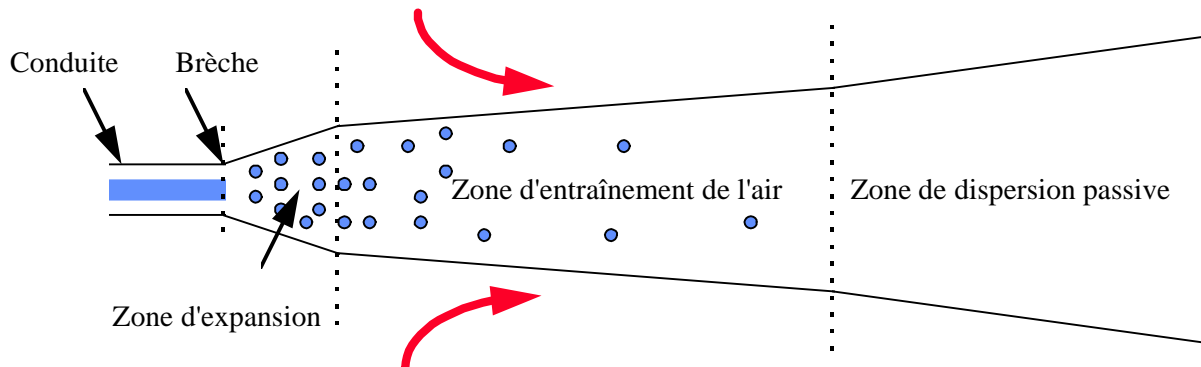


figure 1 : jet diphasique

Ces trois grandes zones sont respectivement :

- **la zone d'expansion** : C'est dans cette zone, de longueur très faible, entre 0.5 et 4 fois le diamètre de la brèche (IANELLO, 1989), que se produit la détente du fluide de la pression à la brèche à la pression atmosphérique. Du fait de cette brusque dépressurisation, la phase liquide du rejet se trouve dans un état surchauffé et il se produit presque instantanément une vaporisation d'une fraction de cette phase liquide. Ce phénomène est appelé le "*flash thermodynamique*". La phase gazeuse créée par ce phénomène de flash aura, à cause de sa plus faible densité, une vitesse plus élevée que celle du liquide. Cette différence de vitesse entre les deux phases provoque l'entraînement de la phase liquide et sa fragmentation en fines gouttelettes. Ces gouttelettes sont entraînées par la phase gazeuse à grande vitesse et constituent ce que l'on appelle « *l'aérosol* ».

Ainsi, à la fin de cette zone, le jet est constitué d'une phase gazeuse et d'une phase liquide sous forme d'aérosol et il est communément admis que l'ensemble du jet (phases liquide et gazeuse) se trouve à la température d'ébullition du matériau rejeté.

- **la zone d'entraînement** : Dans cette zone, le jet turbulent provoque l'entraînement de l'air ambiant au sein du jet. L'énergie apportée par cet air plus chaud que le jet sert dans un premier temps à vaporiser les gouttelettes de liquide présentes dans le jet. Cette vaporisation provoque le refroidissement du jet qui se comporte alors comme un jet de gaz lourd dans l'atmosphère.

Une fois la phase liquide entièrement vaporisée, cette énergie sert à réchauffer le jet alors devenu entièrement gazeux.

- **la zone de dispersion passive** : Avec l'entraînement de l'air, la vitesse du jet va progressivement décroître jusqu'à atteindre la vitesse du vent. A partir de ce moment, on parlera de dispersion passive du jet dans l'atmosphère.

La présence d'obstacles joue un rôle également sur la dispersion atmosphérique de gaz lourds, et en particulier de l'ammoniac liquéfié.

Si l'obstacle est suffisamment proche du rejet, il va modifier la phase initiale de la dispersion et par suite, il va influencer la dispersion dans l'atmosphère. Par exemple, un rejet diphasique sous forme de jet qui rencontre un obstacle tel qu'un mur ou le sol peut conduire à la formation d'une flaque. Dans ce cas, la dispersion de l'ammoniac issue de la flaque est différente de celle qui aurait suivi le jet libre.

En revanche, si l'obstacle est loin du point d'émission, et si le nuage formé par l'ammoniac a une taille comparable à l'obstacle, ce dernier modifie seulement l'écoulement des masses gazeuses, il ne va pas modifier l'état physique du rejet. Dans ce cas, l'incidence sur la dispersion sera moindre que dans le cas précédent, et d'autant plus faible que le nuage sera dilué et grand devant l'obstacle.

3.2.2. Essais de A. Resplandy

Les informations contenues dans ce paragraphe ont été tirées des synthèses de A. Resplandy (1967, 1968, 1969).

3.2.2.1. Contexte

Afin de déterminer des mesures à préconiser pour la sécurité du voisinage des stockages d'ammoniac liquéfié, A. Resplandy, Commissaire-Inspecteur des Etablissements Classés et Rapporteur au Comité Consultatif des Etablissements Classés, a mené deux séries d'expériences de dispersion de l'ammoniac liquide. Elles se sont déroulées d'une part, au camp militaire de Boissise-la-Bertrand en juin 1967, et d'autre part, au camp militaire de Mourmelon en mars 1968.

Les expériences avaient pour objectif de :

- préciser dans quelles conditions l'ammoniac diffuse dans l'atmosphère à partir d'un déversement en phase liquide afin de déterminer le rayon des zones d'isolement à prescrire autour des stockages sous pression ;
- examiner dans quelle mesure le reconditionnement d'ammoniac liquide peut être envisagé ;
- éprouver l'efficacité des moyens d'intervention dont disposent les formations de la Protection Civile appelées à intervenir en cas de fuite accidentelle d'ammoniac liquide.

3.2.2.2. Conditions des essais

A - Essais de Boissise-la-Bertrand, Juin 1967

Les réservoirs d'ammoniac liquide étaient composés :

- d'une citerne semi-remorque contenant 15 tonnes d'ammoniac sous une pression de 7 bar, dotée d'une canalisation de 2 pouces débitant environ 20 000 kg/h (5,5 kg/s) en phase liquide et d'un conduit de 1 pouce débitant 100 kg d'ammoniac liquide en 70 secondes environ (1,4 kg/s) ;
- d'un ravitailleur tracté comportant deux réservoirs d'ammoniac sous 7 bar de capacité unitaire égale à 2 000 kg, chaque réservoir étant équipé pour débiter en phase liquide par une canalisation de 1/4 pouce ou en phase gazeuse par une canalisation de 3/4 de pouce.

Les essais ont eu lieu le 28 juin 1967 entre 6 h et 11 h. La température au sol s'est élevée graduellement de 13°C à 17°C. L'humidité relative s'est maintenue au voisinage de 85 %. La vitesse du vent a varié de 0 à 3 m/s.

Deux types d'appareils de mesure ont été employés :

- 17 détecteurs manuels Dräger :

Les appareils Dräger sont essentiellement constitués par une pompe à soufflet qui permet de faire passer un volume donné de gaz à travers un tube étalonné rempli de réactif coloré. Trois types de tubes étalonnés ont été utilisés :

- type 0,5/a : sensibilité de 5 à 70 ppm (mesures inexploitable) ;
- type 25/a : sensibilité de 50 à 700 ppm ;
- type 0,5%/a : sensibilité de 0,5 à 10 % (mesures inexploitable).

Notons que ces appareils de mesure ne fournissaient que des valeurs moyennes établies sur des durées variables (le nombre de coup de pompe n'étant pas constant d'après Resplandy), et ne permettaient qu'une seule mesure par essai.

- Analyseur continu par conductibilité thermique Caldos 2 Hartmann et Braun :

Cet appareil muni d'un conduit-sonde de 4-6 mm de diamètre et de 60 m de long a fonctionné couplé avec un enregistreur potentiométrique Philips sur les trois gammes de sensibilité suivantes : 0 à 2%, 0 à 4%, 0 à 10 %.

Trois types de rejets ont été mis en œuvre afin d'étudier :

- la diffusion dans l'atmosphère de l'ammoniac provenant d'une fuite en phase liquide :
 - *sans interposition d'écran*, en utilisant un conduit de 2 pouces terminé par un coude à 90° pour rejeter verticalement vers le haut, et en effectuant 9 rejets d'une minute environ, soit une quantité rejetée d'environ 330 kg d'ammoniac liquide ;
 - *avec interposition d'écran*, en utilisant un conduit de 1 pouce terminé par un coude à 90° adapté sur un récipient cylindrique afin de pouvoir diriger le jet vers le haut, comme précédemment, ou vers le fond du récipient, situé à 15 cm de l'extrémité du conduit, et en effectuant 2 essais d'une minute environ (l'un avec un jet dirigé vers le haut, l'autre, avec un jet dirigé vers le bas) ;

- des possibilités de reconditionnement de l'ammoniac liquide récupérable après un accident de stockage ;
- des moyens d'intervention dans le cas d'une fuite d'ammoniac en phase liquide (aérosol) par l'action de l'eau et de la chaleur.

B - Essais de Mourmelon, Mars 1968

L'approvisionnement en ammoniac provenait d'un réservoir semi-remorque identique aux essais précédents de 15 000 kg pouvant débiter en phase liquide par une canalisation de 50 mm de diamètre, et en phase gazeuse par une canalisation de 30 mm de diamètre.

Les essais se sont déroulés le 28 mars 1968 entre 8 h et 12 h 30. La température au sol s'est élevée graduellement de 8°C à 18°C. L'humidité relative a varié de 95 % à 80 %. La vitesse du vent était comprise entre 0 et 3 m/s.

Trois analyseurs enregistreurs ont été utilisés :

- analyseur continu par conductibilité thermique *Caldos 2 Hartmann et Braun* identique à celui utilisé précédemment ;
- analyseur conductimétrique Kuhlmann muni d'une sonde de 50 m fonctionnant sur la gamme 0 à 0,5 % ;
- analyseur par spectrométrie IR de type «ONERA SO» muni d'une sonde de 50 m et fonctionnant sur la gamme 0 à 0,1 %.

Trois types de rejets ont été étudiés :

- la diffusion dans l'atmosphère de l'ammoniac provenant d'une fuite en phase liquide :
 - lors d'une émission en atmosphère stable avec une éjection verticale ;
 - en faisant varier l'orientation du conduit d'éjection ;
 - en suivant l'évolution de l'aérosol en débit stabilisé ;
 - en observant la contamination de l'atmosphère d'un local d'habitation (caravane) balayé par le nuage d'ammoniac.
- la simulation de fuites en phase gazeuse dans un stockage sous pression :
 - en faisant varier la direction de l'éjection ;
 - en interposant un écran lors d'une éjection verticale.
- la manipulation de l'ammoniac liquide à l'air libre :
 - en étudiant l'efficacité de cuvettes de rétention en terre et en ciment ;
 - en observant l'action de l'eau sur l'ammoniac liquide.

3.2.2.3. Résultats

Dans ces publications, A. Resplandy (1967, 1968, 1969) donnent les principaux résultats suivants.

Les fuites en phase liquide provoquent la formation d'un aérosol qui, avant de se dissiper, peut parcourir poussé par le vent, plusieurs centaines de mètres au niveau du sol. En effet, la chaleur latente de vaporisation particulièrement élevée de l'ammoniac ne permet qu'une évaporation très lente des micro-gouttes.

L'aérosol d'ammoniac est entraîné par le vent, même lorsque ce dernier a une vitesse extrêmement faible, en balayant une aire relativement étroite et sans qu'il y ait de diffusion en amont du point d'émission. Se propageant plaquées au sol, les gouttelettes d'ammoniac peuvent être déviées de la trajectoire que leur communique le vent par des obstacles importants.

La dissipation d'un aérosol d'ammoniac est totale quelques minutes après l'arrêt de l'émission qui en est la cause et il ne subsiste sur la zone balayée aucune concentration dangereuse pour les humains.

Pour une même masse d'ammoniac liquide éjectée dans l'atmosphère à partir d'un stockage sous pression, la formation d'aérosol est d'autant moins importante que la température de ce liquide est proche de son point d'ébullition à la pression atmosphérique.

A l'air libre, on ne peut s'opposer efficacement à la progression des gouttelettes d'ammoniac avec une pulvérisation d'eau, même très importante.

La diffusion relativement rapide de l'ammoniac gazeux dans l'atmosphère permet d'envisager, en cas de besoin, la stabilisation par décompression du contenu des réservoirs non réfrigérés, puis la manipulation à l'air libre de l'ammoniac liquide ainsi stabilisé.

Enfin, il a été montré combien il peut être dangereux d'intervenir avec de l'eau sur une nappe d'ammoniac liquide. En effet, cette action se traduit par une importante émission de gaz et d'aérosol.

Dans une émission en phase liquide effectuée à partir d'un stockage d'ammoniac sous pression, en agissant sur le mode d'éjection (interposition d'un écran, contrôle de direction) il existe des possibilités limitées de réduire la formation d'un aérosol et de diminuer la distance atteinte par le front de cet aérosol.

La pollution au niveau du sol peut être limitée en rejetant verticalement dans l'atmosphère l'ammoniac gazeux d'un réservoir sous pression.

Un dispositif judicieusement dimensionné permet d'équilibrer à l'air libre le liquide d'un réservoir sous pression en éliminant la phase vapeur dans l'atmosphère.

De l'ammoniac en phase liquide équilibré à la pression atmosphérique peut être efficacement recueilli et conservé à l'air libre dans une cuvette de rétention ; toutefois, la mise en température des parois de cuvelage s'accompagne d'une émission de gaz et d'aérosol.

Les essais de dispersion atmosphérique réalisés par A. Resplandy furent parmi les premiers. Ils ont plutôt conduit à des observations qualitatives, qu'à des données quantitatives réellement exploitables. En effet, peu de paramètres furent mesurés et enregistrés. En particulier, il n'y a pas eu de caractérisation précise de l'atmosphère, ni de mesures précises de la concentration en ammoniac sous le vent de l'émission.

Ces essais ont surtout permis de donner des idées sur le comportement de l'ammoniac en cas de rejet accidentel et de dégager les perspectives à étudier. Ainsi, A. Resplandy propose trois thèmes d'étude pour compléter l'étude qui fut réalisée :

- préciser l'influence du débit de fuite sur les caractéristiques de l'aérosol formé ;
- observer de plus près l'influence des conditions météorologiques sur les caractéristiques de l'aérosol ;
- déterminer les conditions optimales pour amener à la pression atmosphérique des réservoirs sous pression.

3.2.3. Essais du Désert de Tortoise

Les rejets effectués lors des essais du Désert de Tortoise furent très différents de ceux mis en œuvre par Resplandy.

Par exemple, la quantité d'ammoniac rejetée en moyenne lors des essais réalisés par Resplandy en 1967 et 1968 était de l'ordre de 300 à 500 kg avec un maximum de 1 000 kg pour des durées comprises entre 1 et 6 minutes, alors que lors des essais du désert de Tortoise, les quantités rejetées étaient comprises entre 10 000 à 41 000 kg.

3.2.3.1. Contexte

Une série de 4 essais de dispersion de l'ammoniac a été réalisée durant l'été 1983 par le Lawrence Livermore National Laboratory, aux Etats-Unis. Ces essais sont souvent appelés dans la littérature les essais du Désert de Tortoise. Ils ont permis d'étudier la dispersion dans l'atmosphère de rejets d'ammoniac liquide sous pression.

3.2.3.2. Conditions des essais

Deux camions-citernes de 41,5 m³ de capacité furent utilisés pour les essais. Des remorques de tubes d'azote étaient reliées aux deux camions-citernes afin de maintenir la pression à l'intérieur des citernes.

Le premier essai a été effectué avec un orifice de rejet de 3,19 pouces (81 mm) et les trois autres ont été effectués avec un orifice de 3,72 pouces (94,5 mm) de diamètre. Le rejet était horizontal, dans la direction du vent et à une hauteur de 0,79 mètre au-dessus du sol.

Le tableau 11 ci-dessous présente les principales caractéristiques de ces rejets :

Essai	Date	Volume du rejet en m ³	Masse rejetée en kg	Durée du rejet en s	Débit en kg/s	Vitesse du vent en m/s	Direction du vent	Classe de stabilité
1	24/08/83	14,9	10 200	126	81	7,4	224°	D
2	29/08/83	43,8	29 900	255	117	5,7	226°	D
3	01/09/83	32,4	22 100	166	133	7,4	219°	D
4	06/09/83	60,3	41 100	381	109	4,5	220°	E

tableau 11 :
Caractéristiques des rejets réalisés pendant les essais du désert de Tortoise

Deux dispositifs principaux furent utilisés pour mesurer les données météorologiques et les concentrations pour l'étude de la dispersion.

En ce qui concerne l'étude de la dispersion, les concentrations en vapeur furent mesurées par :

- 20 capteurs de gaz NDIR de MSA disposés à 100 m de la source et tels que le gaz plus l'aérosol traversaient un appareil chauffant destiné à vaporiser l'aérosol afin de déterminer la quantité de NH₃ totale ;
- 31 capteurs de gaz IR de LLNL disposés à 100 m et 800 m de la source et conçus au départ pour des essais de dispersion de gaz naturel liquide (LNG) et non optimisés pour la détection de l'ammoniac, mais ils permirent de détecter des concentrations supérieures à 1 % ;
- 24 capteurs IST situés à 0, 800, 1 450, 2 800 et/ou 5 500 m de la source.

Le système d'acquisition et de stockage des données utilisait les ondes radio UHF pour la transmission des données. Toutes les stations d'acquisition de données et tous les capteurs étaient portables, sur batterie, et hermétiques aux gaz.

3.2.3.3. Résultats

Les deux premiers essais ont eu lieu sur un site saturé en eau à cause de fortes pluies. Le site était presque totalement sec pour le troisième essai, et complètement sec pour le quatrième, de sorte que les conditions météorologiques furent au total plus variées que prévues.

L'essai n°4, le plus important de par la quantité rejetée, s'est déroulé dans les conditions atmosphériques les plus stables. Il a permis de montrer que le jet était visible jusqu'à une distance supérieure à 100 m de la source. Les dimensions de ce nuage plus lourd que l'air sont d'environ 70 m de large et de moins de 6 m de haut. La concentration maximale en gaz observée à 100 m a été de 6,5 % d'après Goldwire (1986) et de 10 % d'après Koopman et al (1986). Le nuage s'étalait sur 400 m de large au moment où il atteignait les 800 m, sa hauteur était toujours de 6 m. Les effets de gaz lourd et de jet dominant la dispersion.

Le tableau 12 ci-après fixe quelques ordres de grandeur issus des résultats expérimentaux. Il présente les concentrations maximales relevées en fonction de la distance sous le vent depuis le lieu d'émission.

Distance	100 m	800 m	1 450 m	2 800 m	5 500 m
Concentration maximale relevée	6 à 10 %	1,4 à 1,6 %	> 0,5 %	0,5 %	100 à 200 ppm

tableau 12 : Concentrations maximales observées en fonction de la distance sous le vent depuis le lieu d'éjection d'après Koopman et al. (1986) et Goldwire (1985, 1986).

Goldwire et al. (1986) ont mis en évidence le besoin de modèles simples «améliorés» pour prévoir les conséquences de rejets accidentels. Par ailleurs, Hanna et al. (1993), utilisent également des résultats de Goldwire (1985) pour la comparaison entre les résultats des modèles et les résultats expérimentaux. Le tableau suivant présente les concentrations observées sur l'axe du panache.

Essais Désert de Tortoise	1	2	3	4
Débits (kg/s)	81	117	133	109
Concentration à 100 m (ppm)	49 943	83 203	76 881	57 300
Concentration à 800 m (ppm)	8 843	10 804	7 087	16 678

tableau 13: Concentrations observées sur l'axe du panache pendant les essais du Désert de Tortoise d'après Hanna et al. (1993).

Ces résultats sont à rapprocher des informations contenues dans le tableau 12.

Relativement à ces résultats, plusieurs remarques sont à noter :

- La concentration la plus élevée à 100 m est obtenue pour l'essai 2 malgré un débit plus important pour l'essai 3. La vitesse du vent de l'essai 2 était plus faible (5,7 m/s) que pour l'essai 3 (7,4 m/s), et la température extérieure était de 3°C inférieure pour l'essai 2 par rapport à l'essai 3 ;
- A 800 m, la concentration la plus élevée est obtenue pour l'essai 4 dont le débit était le plus faible parmi les rejets effectués avec l'orifice 3,72 pouces (essais 2, 3, 4). En revanche la concentration à 100 m était la plus faible. Ce résultat s'explique en partie par des conditions météorologiques plus stables, classe de stabilité E au lieu de classe D pour les essais 2 et 3 ;
- Parmi l'ensemble des essais, les conditions météorologiques les plus instables étaient relevées lors de l'essai 3 (Goldwire, 1985). Dans ces conditions, malgré un débit au niveau du rejet plus important, la concentration observée sur l'axe du panache à 800 m s'avère la plus faible.

Ces quelques remarques montrent bien que les conditions météorologiques jouent un rôle très important pour la dispersion atmosphérique dans le champ plutôt lointain, c'est-à-dire au-delà de 100 mètres. Il ne suffit pas de caractériser le terme source finement pour modéliser la dispersion atmosphérique de l'ammoniac, il faut également disposer des conditions météorologiques.

Nota : Les 4 paragraphes qui suivent sont essentiellement inspirés du document réalisé par Wheatley (avril 1987).

3.2.4. Essais de Unie van Kunstmest Fabrieken bv, Hollande, 1972

Les essais de Unie van Kunstmest Fabrieken bv, Hollande, 1972 ont été réalisés par J. W. Frenken et ont été rapportés par Blanken (1980).

Les conditions des essais étaient les suivantes :

- un récipient contenant de l'ammoniac sous 3,5 bar / 0°C ;
- une buse de rejet de 8 mm de diamètre ;
- une température ambiante de -10°C ;
- et une vitesse de vent de l'ordre de 2 à 3 m/s.

L'objectif de ces essais était de mesurer la quantité d'ammoniac collectée sur le sol dans le cas de deux rejets d'une minute relarguant chacun 38,4 kg (0,64 kg/s) dans les configurations suivantes :

- un rejet horizontal perpendiculaire au vent, situé à 1 800 mm du sol. Ce rejet a permis de recueillir 5,5 kg d'ammoniac liquide sur le sol, soit 14,3 % de l'ammoniac rejeté ;
- un rejet vertical dirigé vers le sol, à 2 000 mm de celui-ci, qui a permis de recueillir 27,3 kg d'ammoniac liquide sur le sol, soit 71,1 % de l'ammoniac rejeté.

Le mode de mesure de la quantité d'ammoniac recueilli n'est pas indiqué. Aucune mesure de concentration dans l'air n'a été faite.

3.2.5. Essais de Imperial Chemical Industries, Angleterre, 1974

Les essais de Imperial Chemical Industries, Angleterre, 1974 ont été rapportés par Reed (1974).

L'objectif des essais était la caractérisation de l'efficacité des cuvettes de rétention de stockages sous pression.

Deux séries d'essais ont été menées :

- une série qui avait pour but de simuler la rupture catastrophique d'un container en ôtant brusquement un couvercle. Les résultats de ces essais ne sont pas décrits par Wheatley (avril 1987) ;
- une autre série de rejets par un orifice de 1 mm de diamètre relié par un tuyau à un réservoir contenant de l'ammoniac sous 6,5 bar/16°C, situé à 1 m du sol sous divers angles. Quand l'orifice était horizontal ou dirigé faiblement vers le haut, un nuage d'aérosol s'est formé et aucune formation de liquide n'a été observée au sol. Quand il était pointé faiblement vers le bas, une petite fraction d'ammoniac liquide a été recueillie. La quantité n'est pas chiffré dans le rapport de Wheatley (avril 1987).

Aucune autre observation n'a été effectuée, et aucune mesure de concentration dans l'air n'a été faite.

3.2.6. Essais de Unie van Kunstmest Fabrieken bv, Hollande, 1980

Les essais de Unie van Kunstmest Fabrieken bv, Hollande, 1980, rapportés par Blanken (1980), ont mis en œuvre de l'ammoniac stocké sous 13,4 bar à 38°C, et rejeté par un tuyau capillaire de 100 mm de longueur et 2 mm de diamètre dans de l'air humide.

L'objectif des essais était l'étude de la taille des gouttelettes dans le jet. Seuls des résultats qualitatifs ont été obtenus.

Dans une atmosphère d'ammoniac, le jet était transparent et le liquide se séparait du jet et formait une flaque sur le sol.

Dans l'air humide, le jet était opaque et l'ammoniac liquide n'a pas été recueilli. Il a été supposé que l'aérosol d'ammoniac initialement formé s'est vaporisé rapidement lorsqu'il s'est dilué avec l'air. Et il a été conclu que l'opacité était causée par la condensation de l'eau, qui forme un aérosol d'ammoniac aqueux.

Aucune mesure de concentration n'a été effectuée.

3.2.7. Essais de Landskrona, Suède, 1982

Les essais de Landskrona, Suède, 1982 ont été menés par le Swedish National Defence Research Institute et ont été rapportés par Nyrén et al (1983).

Les conditions des essais étaient les suivantes :

- un récipient commercial contenant 1 400 kg d'ammoniac sous 6 bar et 9°C ;
- une température ambiante de 8°C et une humidité relative de 42% ;
- et une vitesse de vent de 13 m/s.

L'objectif des essais était de mesurer le débit d'un rejet d'ammoniac diphasique et de le comparer à un modèle théorique.

Les rejets ont été effectués à partir d'un tuyau de diamètre intérieur variant de 32 à 40 mm. Six essais ont été réalisés avec un tuyau de 2 m de longueur et cinq avec un tuyau de 3,5 m. Dans chacun des cas, le tuyau était situé à 2 m au dessus du sol. Chaque rejet a duré de 60 à 90 s.

Pour tous les essais, excepté quatre d'entre-eux, la pression du réservoir a beaucoup varié. Pour les quatre restants, la pression de sortie était de 2,2 bar et le débit massique de 2,2 kg/s. Le jet a touché le sol à un point situé entre 6 et 10 m du point de rejet. Aucune flaque n'a été observée.

Aucune mesure de concentration n'a été effectuée.

3.2.8. Essais du programme FLADIS

Des rejets d'ammoniac ont été réalisés dans le cadre d'un programme d'essais européen nommé FLADIS (Research on the dispersion of two-phase flashing releases). Ce programme a été réalisé sous l'égide de la DG XII à Bruxelles.

Trois campagnes de mesures ont été réalisées en avril et août 1993 et en août 1994. Au total, 27 rejets horizontaux d'ammoniac liquéfié sous pression ont été réalisés.

Les débits des rejets ont varié de 0,25 à 0,55 kg/s à travers des orifices de 4,0 et 6,3 mm de diamètre. L'essai le plus long a duré 40 min.

Un des objectifs du programme FLADIS était d'étudier finement le jet d'aérosol dans le champ proche, la phase de dispersion en gaz lourd, et la transition à la dispersion passive. Pour cela, des capteurs ont été disposés en arc de cercle centrés sur le point de rejet à 20 m, 70 m et 240 m.

Des mesures de la composition de l'aérosol au sein du jet diphasique ont été effectuées lors des essais. De ces mesures, il a été observé que l'aérosol qui était constitué d'ammoniac presque pur proche du point de rejet était, en l'espace de quelques mètres, constitué d'eau presque pure.

Par ailleurs, il n'a jamais été observé d'élévation du nuage d'ammoniac lors des rejets.

3.2.9. Essais réalisés à l'Ecole des Mines d'Alès

L'Ecole des Mines d'Alès a réalisé plusieurs campagnes d'essais de dispersion d'ammoniac depuis 1996. Les essais sont réalisés à partir d'une ou deux bouteilles d'ammoniac de 44 kg placés la tête en bas de manière à effectuer des rejets en phase liquide (Bara, Dussere, 1996). L'objectif de ces essais est d'étudier l'efficacité des queues de paon utilisées par les pompiers.

En aval des queues de paon situées à environ 1 mètre des bouteilles, une réduction des concentrations en ammoniac a été constatée sur l'axe du rejet, d'un facteur supérieur à 10 à 13 m des bouteilles et d'un facteur d'au moins 3 à 20 mètres. En revanche, aucune réduction significative n'a été observée au-delà de 50 mètres.

3.2.10. Autres essais de dispersion atmosphérique

Dans le cadre de ce programme, des essais de dispersion de produits dans l'atmosphère avec des gaz différents de l'ammoniac ont été considérés.

Comme indiqué précédemment, l'ammoniac rejeté à l'atmosphère conduit généralement à la formation d'un nuage froid, plus lourd que l'air. La dispersion se déroule donc comme celle d'un gaz lourd jusqu'à ce que le niveau de dilution soit suffisant pour que la dispersion de l'ammoniac soit présidée par les seules caractéristiques de l'écoulement atmosphérique (dispersion passive).

C'est pourquoi, les essais de dispersion atmosphérique réalisés sur des gaz lourds ont un certain intérêt pour l'étude de la dispersion atmosphérique de l'ammoniac. Cette affirmation est vraie en particulier pour tous les aspects qui concernent la phase initiale du rejet.

Le tableau 14 en page suivante récapitule de manière synthétique les principaux essais de dispersion qui ont concerné des gaz lourds.

Nota : Les essais du Désert de Tortoise sont repris dans ce tableau à titre de comparaison.

	Burro	Coyote	Desert Tortoise	Goldfish	Handford	Maplin Sands	Prairie Grass	Thorney Island (instantané)	Thorney Island (continu)
Substance	LNG	LNG	Ammoniac	Fluorure d'hydrogène	Krypton 85	LNG et LPG	Dioxyde de soufre	Fréon et azote	Fréon et azote
Type de rejet	Liquide à ébullition	Liquide à ébullition	Rejets diphasiques	Rejets diphasiques	Gazeux	Liquide à ébullition	Jet gazeux	Gazeux	Gazeux
Nombre d'essais	8	3	4	3	5	4 et 8	44	9	2
Quantités en kg	10 700 à 17 300	6 500 à 12 700	10 000 à 36 800	3 500 à 3 800	11 à 24 Curies	LNG : 2 000 à 6 600 LPG : 1 000 à 3 800	23 à 63	3 150 à 8 700	4800
Durée en s	79 à 190	65 à 98	126 à 381	125 à 360	598 à 1 191	60 à 360	600	instantané	460
Type de surface	Rejet sur des petites étendues d'eau	Rejet sur des petites étendues d'eau	Sable humide	Lit de lac asséché	Désert avec des buissons	Rejet sur des étendues d'eau peu profondes	Herbe	Herbe	Herbe
Classes de stabilité	C-E	C-D	D-E	D	C-E	D	A-F	D-F	E-F
Distance max. d'observation	140 - 800	300 - 400	800	3 000	800	400 - 650	800	500 - 580	472

tableau 14 : Tableau récapitulatif des principaux essais de dispersion qui ont concerné des gaz lourds

Nota : Thorney Island, 19 essais lors de la phase I; 9 essais lors de la phase II et 3 essais pour les rejets continus

L'étude des essais mentionnés dans le tableau 14 suggère les remarques suivantes.

- Seuls les essais du Désert de Tortoise et de Goldfish ont mis en jeu des rejets diphasiques ;
- Les essais de rejet de liquide sur de l'eau (Burro, Coyote et Maplin Sands) ne permettent pas de tirer des conclusions pour l'ammoniac qui a un comportement très différent avec l'eau ;
- Seuls parmi ces essais, ceux de Thorney Island ont mis en œuvre des obstacles.

Les enseignements tirés de ces essais, en terme de dispersion, concernent les aspects généraux. Ce n'est pas dans le cadre de ces essais que peuvent être prises en compte les spécificités de l'ammoniac comme par exemple la formation du jet, la génération de l'aérosol, les réactions avec l'humidité de l'air, etc.

3.2.11. Synthèse

Les essais de dispersion atmosphérique déjà réalisés, ont permis de mettre en évidence :

- l'influence des conditions météorologiques ;
- le comportement de l'ammoniac qui se disperse comme un gaz lourd lorsqu'il est rejeté depuis un réservoir sous pression (pas de dispersion en hauteur) ;
- un rejet impactant le sol a permis de recueillir 70 % de l'ammoniac rejeté (essais de Unie van Kunstmest Fabrieken bv, Hollande, 1972).

Cependant, il manque notamment des données sur :

- la caractérisation du terme source du rejet et la formation du jet diphasique dans le cas de rejets sous pression et notamment la génération et l'évolution de l'aérosol ;
- des essais de rejet impactant une surface avec des débits plus importants. Les essais comme ceux de Unie van Kunstmest Fabrieken bv, Hollande, 1972, n'ont pas permis d'étudier la dispersion de l'ammoniac. Ces essais ont juste permis d'étudier le phénomène de manière qualitative.

3.3. MODELISATION DE LA DISPERSION ATMOSPHERIQUE DE L'AMMONIAC

Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, la modélisation doit tenir compte notamment :

- des effets de gravité dus à la température du nuage ;
- de la présence d'aérosol ;
- des réactions avec l'humidité de l'air.

Différents types de modèles de dispersion existent : les modèles gaussiens, les modèles intégraux et les modèles tridimensionnels. Ces modèles sont largement décrits dans la littérature, par exemple : UIC (1995) ou RIOU (1989).

3.3.1. Les modèles gaussiens

Les modèles purement gaussiens sont, dans la plupart des cas, inadaptés à la modélisation fine de rejets d'ammoniac liquide sous pression. En effet, l'ammoniac ne se comporte pas comme un gaz passif dans les phases initiales de rejet.

3.3.2. Les modèles tridimensionnels

Les modèles tridimensionnels permettent de résoudre directement le système d'équations physiques qui gouverne la dispersion atmosphérique. Ainsi, de nombreuses situations plus ou moins complexes peuvent être simulées. En revanche, cela impose une prise en compte précise de l'ensemble des phénomènes tels que, par exemple, la turbulence atmosphérique, la topographie du terrain ou les obstacles.

Ces modèles sont plus complexes à mettre en œuvre et nécessitent du personnel qualifié pour les utiliser. Parmi les limitations de ces modèles, on peut citer par exemple le choix des modèles de turbulence, le raffinement du maillage, ou les critères de convergence. De ce fait, des modèles numériques plus simples sont plus souvent employés.

3.3.3. Les modèles intégraux

A mi-chemin entre les modèles gaussiens et les modèles tridimensionnels, les modèles intégraux donnent des résultats intéressants avec des temps de mise en œuvre inférieurs aux modèles tridimensionnels. Ils permettent de prendre en compte les particularités du gaz et du rejet dans la phase initiale, jusqu'à ce que la dispersion devienne passive.

Cependant, de tels logiciels ne prennent pas en compte les obstacles tels que des bâtiments, la topographie et la végétation. Seul un paramètre de rugosité permet de moduler les résultats en fonction de la configuration moyenne du terrain.

3.3.4. Problèmes subsistants et améliorations à apporter

Lantzy (1992) indique qu'il ne faut pas perdre de vue que le but de la modélisation de rejets atmosphériques est de prédire avec le plus de précision possible les conséquences d'un rejet de substance dangereuse. Pour arriver à ce but, la caractérisation du terme source est déterminante, parce que les meilleurs modèles de dispersion donneront toujours des résultats erronés si le terme source est incorrect.

Certains points présentés dans cet article peuvent être repris pour l'étude de la dispersion de l'ammoniac, et plus particulièrement pour l'étude du terme source lors de rejets d'ammoniac. Ces points concernent les écoulements diphasiques, la formation et l'évolution de l'aérosol, la formation et l'évaporation de flaques.

3.3.4.1. Les écoulements diphasiques

Concernant les écoulements diphasiques, d'après Lantzy (1992), les travaux à venir devraient être axés sur :

- une meilleure compréhension des effets de non-équilibre pour les rejets via des petits tuyaux (longueur inférieure à 100 mm). C'est le domaine de l'interpolation entre les écoulements en réel non-équilibre et les écoulements homogènes ;
- une détermination plus précise du coefficient de décharge. Cette valeur est généralement comprise entre 0.6 et 1.0 et a de ce fait une influence importante sur le débit calculé ;
- l'établissement d'une base de données expérimentales pour les ruptures de canalisations dont le rapport L/D est grand. A l'heure actuelle, le travail effectué dans ce domaine s'est limité à des simulations sur ordinateur. Des données sont nécessaires pour vérifier et étendre les théories existantes ;
- le développement de modèles d'entraînement et de mélange pour les ruptures catastrophiques. Par exemple, il n'existe pas de théorie entièrement satisfaisante pour estimer correctement la taille des gouttes et la vitesse du rejet. Des données à grande échelle sont nécessaires pour compléter les données à petite échelle disponibles aujourd'hui.

3.3.4.2. La formation et l'évolution de l'aérosol

Pour modéliser correctement les rejets à partir de stockages sous pression, les modèles doivent prendre en compte l'aérosol et l'évolution des gouttelettes le long du jet. Cependant, pour cela, il est nécessaire de pouvoir estimer de façon précise la taille initiale des gouttes ainsi que leur distribution. La plupart des recherches à développer concerne donc :

- l'évaporation des gouttelettes. Il est nécessaire de prévoir correctement quelle quantité de la substance sera transportée ;
- la coalescence des gouttelettes ;
- les effets de la viscosité sur le cisaillement. Il n'y a pas de données disponibles à ce jour ;
- la non uniformité des orifices des rejets.

3.3.4.3. La formation et l'évaporation de flaques

La formation et l'évaporation de flaques est un sujet qui mérite d'être examiné afin de comprendre et de modéliser les phénomènes qui peuvent être rencontrés lors d'accidents. En particulier, les points suivants doivent être étudiés :

- le gel de l'humidité du sol. Ce phénomène affecte la conduction thermique vers la flaque. Il n'est pas très bien compris à ce jour ;
- l'infiltration des substances dans le sol. Pour une substance cryogénique (comme l'ammoniac), ce phénomène accroît la surface de contact ce qui favorise le transfert de chaleur, et de ce fait le taux d'évaporation. Pour une substance non cryogénique, ce phénomène conduit à une surface de flaque moindre, et à moins d'évaporation. Comme pour le point précédent, ce phénomène n'est pas bien connu ;
- l'effet du substrat sur la taille de la flaque. Il n'existe pas de bonnes théories pour relier directement la rugosité du substrat et la taille de la flaque pour une surface non lisse et non régulière (c'est-à-dire dans la majorité des cas réels) ;
- l'évaporation par vent faible. Des données seraient nécessaires pour développer des modèles adaptés à ces conditions.

Par ailleurs, concernant l'évaluation des modèles de terme source, Lantzy (1992) rappelle que, couramment, l'évaluation n'est pas faite sur le modèle de terme source lui-même, mais sur la combinaison du modèle du terme source et du modèle de dispersion.

Lantzy indique en outre que la plupart des données disponibles concernent des distances au-delà de 300 m. Il y a un besoin d'essais bien dimensionnés et bien instrumentés à proximité du point de rejet afin de recueillir des données de qualité pour l'évaluation des modèles de terme source.

En conclusion, Lantzy exprime qu'il y a un besoin de données expérimentales satisfaisantes pour l'évaluation et le développement de tous les aspects de la modélisation du terme source.

3.3.5. Synthèse

En résumé, un certain nombre de problèmes techniques doit être encore abordé de manière précise dans différents domaines relatifs à l'étude de la dispersion atmosphérique des polluants.

En ce qui concerne la compréhension et la modélisation du terme source, il faudrait examiner en détail :

- le rejet biphasique ;
- le pré-mélange dans la phase de jet ;
- la formation et le comportement d'aérosol en dispersion.

En ce qui concerne les particularités de l'ammoniac :

- la prise en compte de la gravité ;
- les réactions avec l'humidité de l'air.

En ce qui concerne les conditions extrinsèques au rejet :

- la définition des conditions météorologiques (profil du vent, gradient de température, hygrométrie...) ;
- la topographie et l'orographie ;
- l'influence de la rugosité.

En ce qui concerne les problèmes directement liés à la modélisation :

- les conditions aux limites avec le choix des équations de fermeture pour les modèles tridimensionnels ;
- l'influence et l'importance des différents calages empiriques pour les modèles simplifiés ainsi que l'adéquation de ces calages par rapport à la réalité ;
- l'influence de l'utilisateur du logiciel sur les résultats d'une modélisation.

3.4. ASPECTS EXAMINES DANS CE PROGRAMME

Ce programme de recherche consiste notamment à compléter les connaissances sur la dispersion atmosphérique de l'ammoniac en milieu libre et en milieu encombré, et à effectuer des comparaisons entre des résultats obtenus au moyen de modèles numériques et des mesures réalisés au cours d'essais. Dans ce but, un programme d'essais à grande échelle a été entrepris.

Il vise à apporter des éléments de réponses aux problèmes soulevés dans le chapitre précédent, et plus particulièrement sur les deux points présentés ci-après.

3.4.1. Les jets impactants

Dans le cadre de l'étude d'un rejet d'ammoniac, il est délicat de caractériser correctement le terme source, en particulier la quantité qui s'écoule et qui constitue une flaque liquide, appelée « rain-out » dans la littérature scientifique en langue anglaise.

Pour essayer d'appréhender les phénomènes à grande échelle, l'INERIS a mis en œuvre des rejets d'ammoniac dans des configurations qui diffèrent uniquement par la présence d'obstacles dans le champ très proche :

- jet diphasique en champ libre ;
- jet diphasique impactant un mur situé à moins de 3 mètres ;
- jet diphasique impactant le sol.

La différence entre ces types de rejet devra permettre d'estimer le débit de formation de la flaque. Cette éventuelle formation de flaque lors d'un jet impactant permettra d'avoir une approche plus réaliste dans le cadre des études de sécurité.

Des essais réalisés sur les jets gazeux impactant une surface ont montré que, dans les conditions des essais, le volume pour lequel la concentration est supérieure à une concentration donnée était beaucoup plus élevé que dans le cas d'un jet libre, jusqu'à 10 fois supérieur lors d'essais avec du méthane (Chaineaux, 1995). En effet, lorsque le jet impacte un obstacle, l'entraînement d'air est a priori réduit car le nuage a tendance à se « diluer » avec un air déjà chargé en gaz.

Si ce résultat se confirme, il faudra prendre en compte cet aspect pour la sécurité dans le champ proche.

En revanche, un jet impactant peut conduire à la formation d'une flaque au sol, et donc réduire le débit gazeux qui passe à l'atmosphère. Les distances correspondant à une concentration donnée peuvent alors être inférieures à celles qui seraient obtenues dans le cas d'un rejet en champ libre.

Les études de sécurité d'installations caractérisées par une configuration semblable à ces essais seront plus réalistes lorsque ces phénomènes seront pris en considération.

3.4.2. Influence de la géométrie de l'orifice

Dans le cadre des études de sécurité, les rejets sont généralement considérés comme circulaires (issus de la rupture guillotine d'une canalisation).

Dans ce programme, des rejets diphasiques via des orifices différents, mais dont la surface de la section ouverte est identique, ont été mis en œuvre, afin de comparer les résultats obtenus en terme de concentration sous le vent de l'émission.

L'orifice de référence est un orifice circulaire (buse). Ensuite, un orifice formé par une bride dont le joint a été au préalable enlevé et remplacé par des cales de même épaisseur a été réalisé tel qu'indiqué sur la figure 2 ci-après.

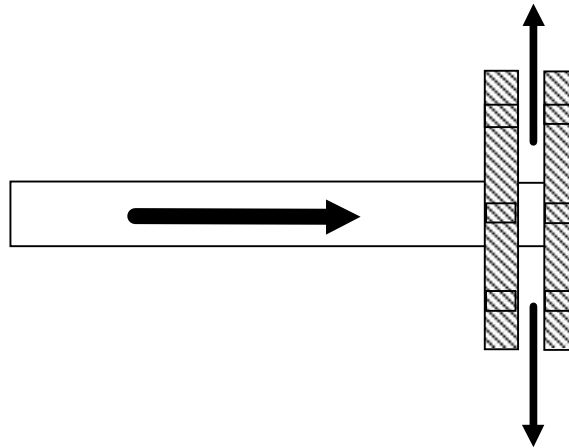


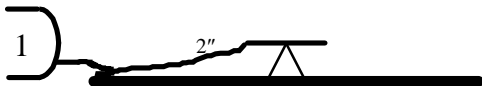
figure 2 : Schéma du dispositif permettant de simuler une fuite sur une bride.

4. DESCRIPTION DES ESSAIS A GRANDE ECHELLE

Dans ce programme de recherche quinze essais de dispersion d'ammoniac à grande échelle ont été réalisés. Afin de se placer dans des configurations proches de situations industrielles, les essais ont été définis avec les 6 industriels qui ont participé à ce programme.

4.1. PRESENTATION DES ESSAIS REALISES

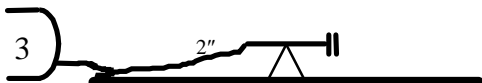
Les quinze configurations de rejet qui ont été réalisées lors de cette campagne d'essais sont décrites sommairement ci-après à côté de chacun des schémas de principe. Ces essais sont numérotés de 1 à 8b dans l'ordre chronologique de leur réalisation. Pour chacune de ces configurations, le diamètre de la canalisation est de 2 pouces (50,8 mm). Sauf indication spécifique (cas des essais 2, 3, 4p, et 2b), l'orifice circulaire est aussi de diamètre 2 pouces.



Rejet horizontal à 1 mètre de hauteur en phase gazeuse. Seul essai réalisé en phase gaz. Les essais suivants concernent tous des rejets d'ammoniac initialement en phase liquide.



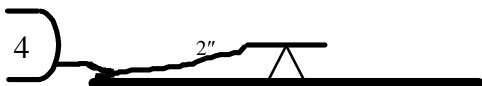
Rejet horizontal à 1 mètre de hauteur en phase liquide à travers un orifice de 20 mm.



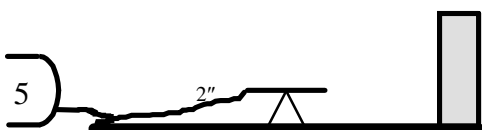
Rejet à travers une bride de 2 pouces à une hauteur de 1 mètre. La distance entre les deux éléments de la bride est de 1,6 mm de sorte que la surface de rejet est égale à 18 mm.



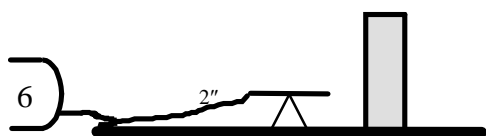
Rejet horizontal à 1 mètre de hauteur à travers un orifice de 30 mm.



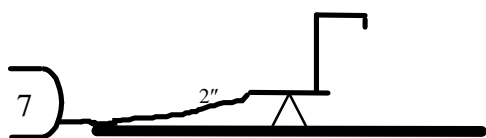
Rejet horizontal à 1 mètre de hauteur.



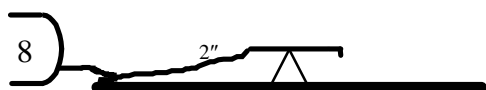
Rejet horizontal à 1 mètre de hauteur impactant un mur de surface 3 m x 3 m. Ce mur est situé à 3 m de l'extrémité du dispositif de rejet.



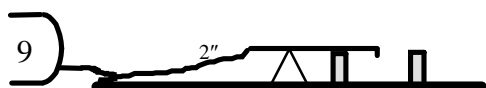
Rejet horizontal à 1 mètre de hauteur impactant un mur de surface 3m x 3m. Ce mur est situé à 1 m de l'extrémité du dispositif de rejet.



Rejet vertical impactant le sol à partir d'une hauteur de 3 m.



Rejet vertical impactant le sol à partir d'une hauteur de 1 m.



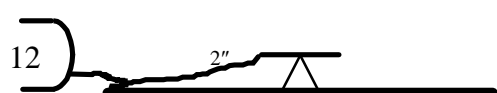
Rejet vertical impactant le sol à partir d'une hauteur de 1 m dans une cuvette de rétention de 2 m x 2 m de surface et de 1m de hauteur (4 m^3).



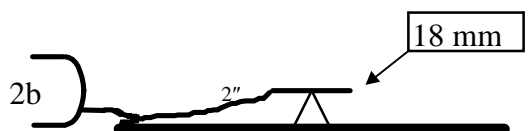
Rejet identique au rejet n°4. Un rideau d'eau situé à 25 m du point de rejet a été déclenché en cours d'essai.



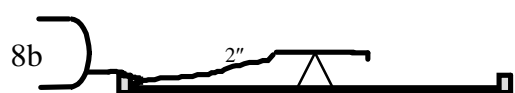
Rejet identique au rejet n°4. Un rideau d'eau situé à 60 m du point de rejet a été déclenché en cours d'essai.



Rejet identique au n°4. La température de l'ammoniac liquide à l'intérieur du réservoir a été abaissée à -12°C avant l'essai.



Rejet identique au n°2 avec un orifice de diamètre 18 mm.



Rejet vertical impactant le sol à partir d'une hauteur de 1 m dans une cuvette de rétention de 10m x 10m de surface et de 5 cm de hauteur (5 m^3).

4.2. DESCRIPTION DES MOYENS D'ESSAIS

Pour réaliser ces essais de dispersion d'ammoniac à grande échelle, le Terrain d'Expérimentation Extérieur (TEE) du CEA-CESTA (Centre d'Etudes Scientifiques et Techniques d'Aquitaine) a été retenu. Il se situe à une soixantaine de kilomètres au Sud de Bordeaux. Le site a une superficie de 950 hectares. Il est entièrement clôturé et son accès est contrôlé en permanence. L'étude de sécurité qui a été réalisée a montré que les essais envisagés pouvaient être effectués dans de bonnes conditions de sécurité du fait notamment de l'espace disponible.

Le terrain d'essais du TEE est totalement plat et dépourvu de tout obstacle. Ce terrain, d'environ deux kilomètres de rayon, dispose en son centre d'une dalle carrée en béton de 10 mètres de côté et d'environ 15 cm d'épaisseur. C'est à partir de cette dalle que les rejets ont été réalisés.

4.2.1. Description du point de rejet

A proximité immédiate de la dalle de rejet, trois réservoirs d'ammoniac, de 12 m³ chacun, ont été installés. L'ammoniac liquéfié y était stocké sous sa pression de vapeur saturante. Les réservoirs avaient les dimensions suivantes :

- longueur totale : 4 810 mm
- longueur virole : 3 700 mm
- diamètre intérieur : 1 874 mm
- hauteur maximum de liquide : 1 500 mm

Lors des essais, un seul de ces réservoirs était relié au dispositif de rejet situé au centre de la dalle. Celui-ci était équipé de 5 thermocouples et d'un capteur de pression, afin de suivre l'évolution des conditions de pression et de température à l'intérieur du réservoir au cours de chaque essai.

Les 5 thermocouples étaient installés sur une verticale depuis le fond du réservoir aux hauteurs suivantes :

- 50 mm
- 400 mm
- 750 mm
- 1 100 mm
- 1 450 mm

Le capteur de pression était situé en partie haute du réservoir, dans la phase gazeuse. Ce capteur est repéré P3 sur la figure 3 page suivante.

Le réservoir était également relié à un cadre d'azote permettant soit de le pressuriser, soit de maintenir la pression constante au cours d'un essai, ou encore de purger, après un essai, la canalisation qui le reliait au dispositif de rejet.

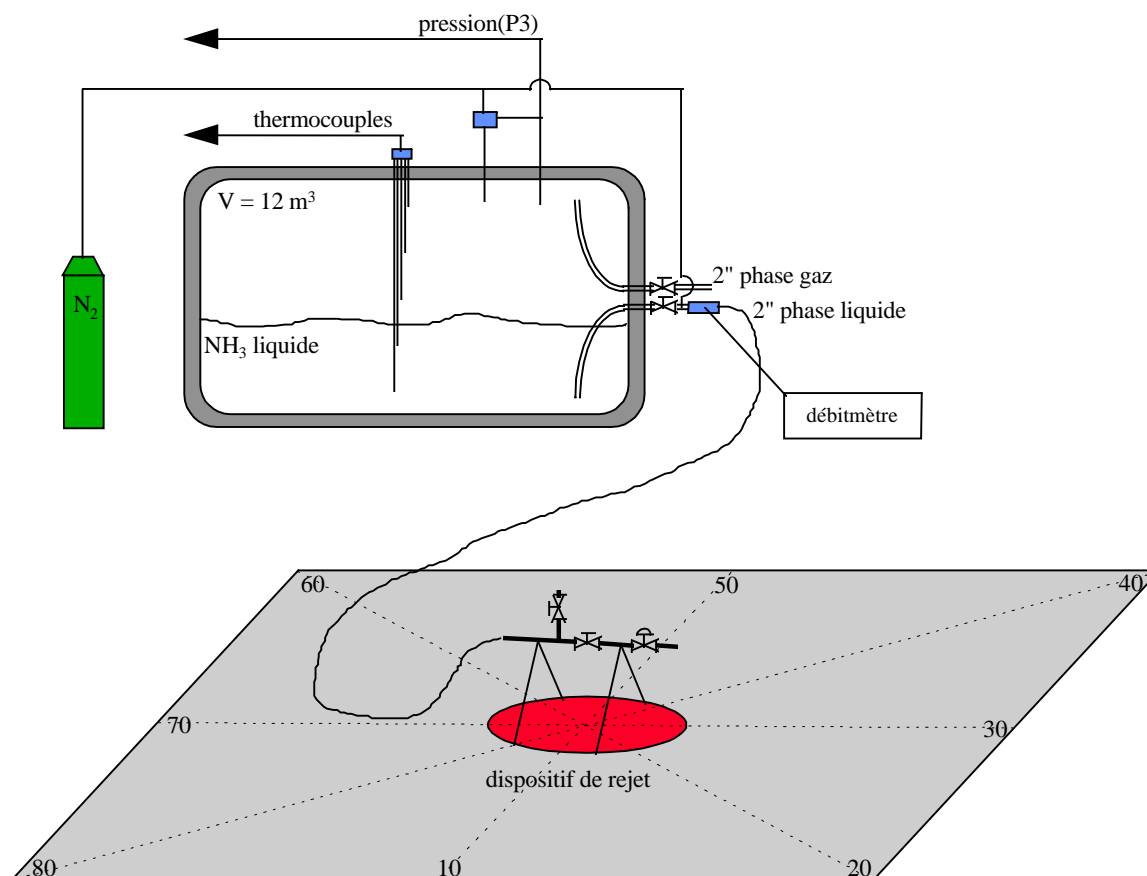


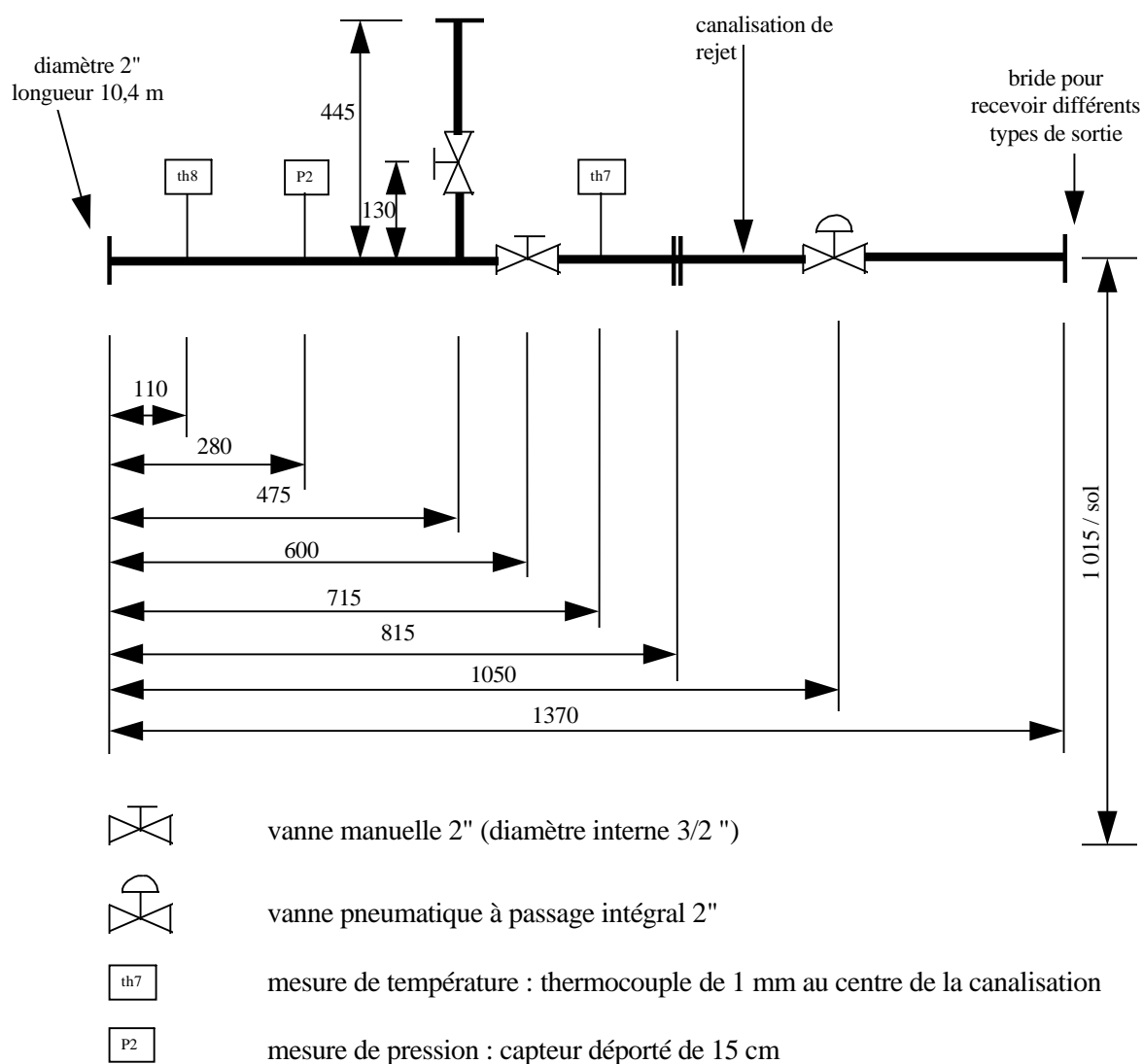
figure 3 : schéma du point de rejet

Pour effectuer les quinze rejets définis dans le cadre de ce programme, les deux vannes manuelles de diamètre 2 pouces installées sur le réservoir ont été utilisées : une était reliée à la phase gaz et l'autre à la phase liquide. Ces deux vannes identiques ne sont pas à passage intégral, et leur diamètre de passage est de 3/2 pouces.

Après la vanne 2 pouces connectée à la phase liquide, un débitmètre d'une longueur de 300 mm et d'un diamètre intérieur de 41 mm a été installé. Prévu pour fonctionner en phase liquide, il n'a pas donné de résultats exploitables lors des essais car l'ammoniac était diphasique dès la vanne située juste en amont pour presque tous les essais.

La liaison entre la débitmètre et le dispositif de rejet était assurée par une canalisation de 50 mm de diamètre et de 10,4 m de longueur.

Enfin, le dispositif de rejet était composé d'une canalisation de 2 pouces instrumentée par des vannes, des thermocouples et des capteurs de pression (cf. figure 4 page suivante).



Nota : toutes les distances sont données en mm.

figure 4 : description du dispositif de rejet

L'axe du dispositif de rejet se situait à 1 015 mm au-dessus du sol.

L'extrémité du dispositif de rejet a été équipée de différents types de sortie (cf. figure 5) en fonction de la configuration expérimentale souhaitée.

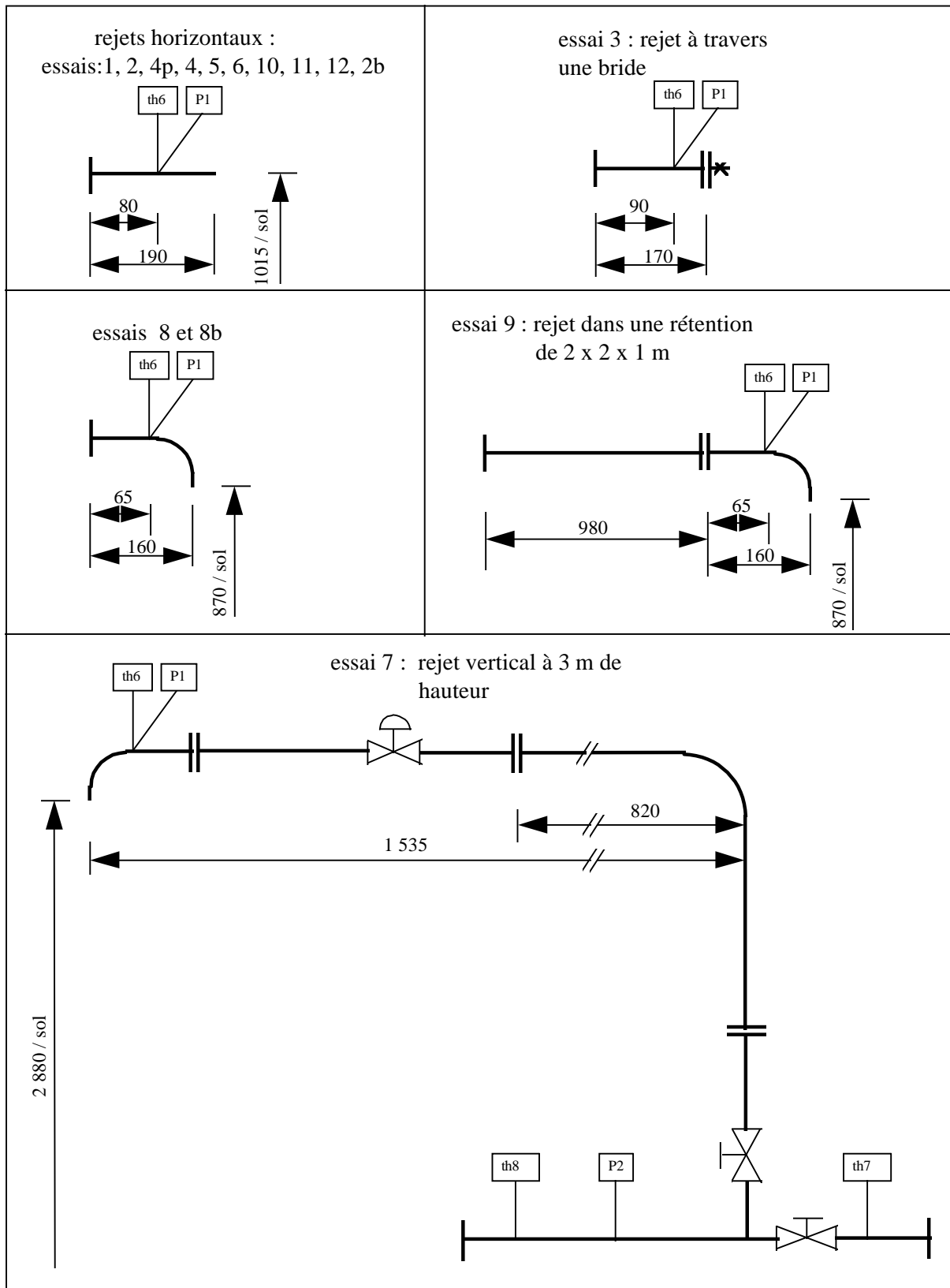


figure 5 : différents types de sortie pour chaque configuration



Pour les essais dont le jet était orienté vers le sol, la dalle de béton était instrumentée en surface de thermocouples. Lors des jets contre le mur, ce dernier était également instrumenté avec des thermocouples. L'instrumentation réalisée et le repérage de ces thermocouples sont décrits en annexe 1.

Concernant les essais 2, 4p et 2b, l'extrémité du dispositif de rejet était équipée d'un bouchon de 50 mm percé du diamètre correspondant à l'essai, soit respectivement pour ces trois essais 20 mm, 30 mm et 18 mm.

Pour l'essai 3 avec la bride, le joint a été enlevé. L'épaisseur entre les 2 éléments de la bride était de 1,6 mm. Cela correspond à une surface de fuite de 255 mm². Le diamètre équivalent en surface est donc 18 mm.

Lors des essais 10 et 11, des écrans d'eau ont été réalisés avec des « queues de paon ». Les caractéristiques de ces queues de paon étaient les suivantes :

- diamètre d'alimentation : 70 mm ;
- pression d'alimentation : 8 bar ;
- débit en eau : 1 200 L/min ;
- portée x : 32 m ;
- portée y : 10 m.

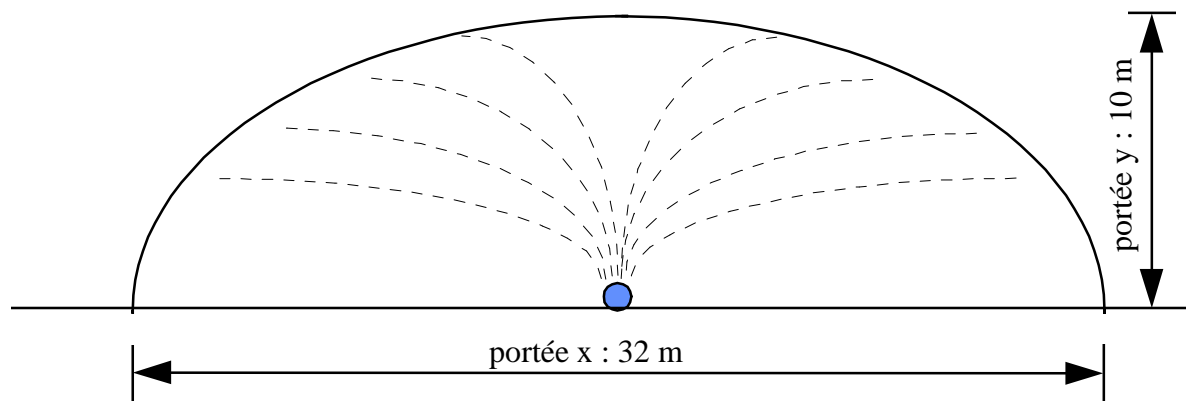


figure 6 : portées des queues de paon employées lors de essais 10 et 11.

Pour ces deux essais, deux queues de paon étaient installées tel que décrit sur la figure 7 ci-après.

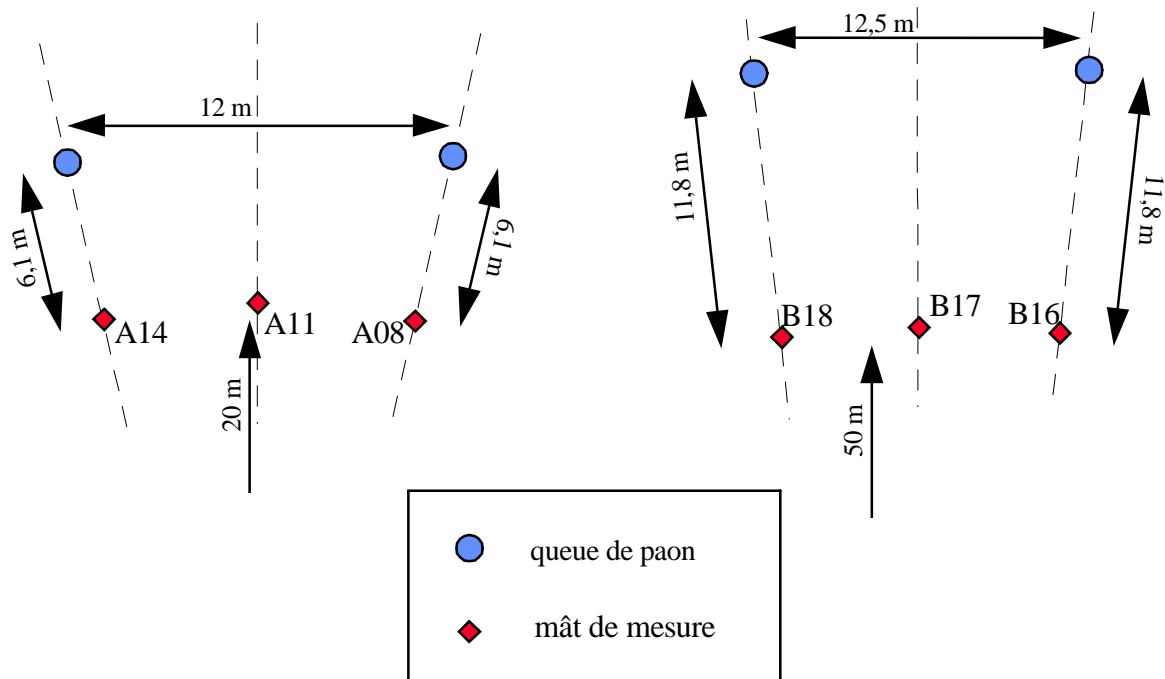


figure 7

Essai 10 : Implantation des deux queues de paon à 25 m du point de rejet.

Essai 11 : Implantation des deux queues de paon à 60 m du point de rejet.

Les positions des mâts de mesure sont précisées en détail plus loin dans ce rapport.

4.2.2. Mesures météorologiques

Pour la mesure des conditions atmosphériques, un mât météorologique de 10 mètres de hauteur était installé à 350 mètres du point de rejet dans la direction notée 3 (repère M sur la figure 11). Celui-ci était composé de trois anémomètres à coupelles, situés à 1,5 , 4 et 7 mètres de hauteur, d'une girouette située à 7 mètres et d'un anémomètre ultrasonique situé à 10 mètres.

Une station météorologique était également installée à côté du poste de commande où des mesures de température, d'humidité relative et de flux solaire ont été effectuées. Ces mesures ont été réalisées à 1,5 mètres de hauteur. La fréquence d'acquisition de ces paramètres était de 1 Hz, excepté pour l'anémomètre ultrasonique dont la fréquence était de 10 Hz.

Le type de matériel qui a été utilisé est décrit ci-après :

- 1 girouette PULSONIC 429 ;
- 3 anémomètres à coupelles PULSONIC 438 ;
- 1 pyranomètre PULSONIC CM6B (mesure du flux solaire) ;
- 1 sonde de température PULSONIC ;
- 1 hygromètre PULSONIC ;
- 1 anémomètre ultrasonique METEK – USA-1.

Un schéma de l'installation est donné sur la figure 8 ci-après.

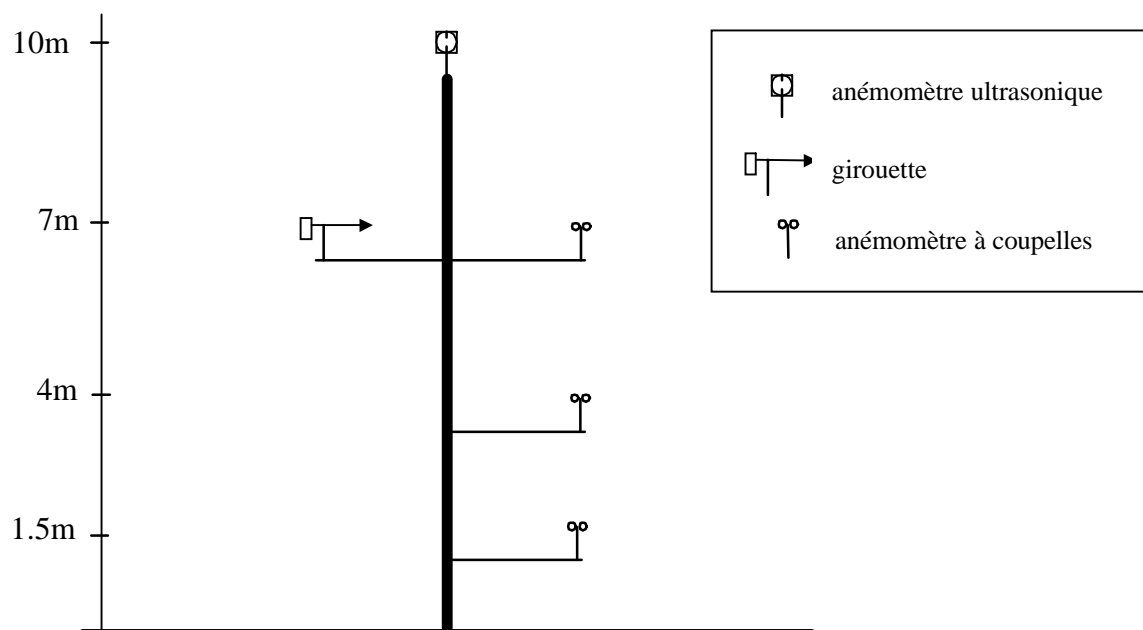


figure 8 : Mât météorologique

L'anémomètre ultrasonique était installé avec l'axe x orienté vers le nord et l'axe y orienté vers l'est.

La girouette était orientée dans la direction opposée à l'anémomètre ultrasonique.

4.2.3. Constitution et tests de la chaîne de mesure de l'ammoniac

Pour réaliser les essais en grand, l'INERIS a retenu la mise en œuvre d'une chaîne de mesure autonome à la fois pour minimiser le câblage, mais également pour être facilement déplacée en fonction des conditions météorologiques (surtout des variations de la direction du vent). De ce fait, l'alimentation électrique des capteurs a été assurée par des batteries et des piles. Pour chaque série de mesures, le stockage des données était effectué sur « EEPROM⁵ ».

Ainsi, la chaîne de mesure de l'ammoniac était constituée d'un boîtier électronique sur lequel il était possible de connecter jusqu'à 4 capteurs de technologies différentes. Au total, 70 boîtiers électroniques identiques ont été réalisés pour ce programme.

Un boîtier électronique comporte trois éléments disposés sur une plaque d'assemblage à l'intérieur d'un coffret étanche :

- Une carte électronique d'acquisition de signaux, dont les fonctions sont d'amplifier le signal, d'effectuer le traitement numérique, de réaliser l'affichage de différents paramètres, de programmer la configuration, et de réaliser l'enregistrement des données.
Le composant principal de la carte est un microcontrôleur spécialement adapté à l'instrumentation.
- Un dispositif enregistreur sur « eeprom » destiné à l'acquisition primaire des données issues des capteurs sous forme de signal numérique (8192 données).
- Une alimentation électrique (piles) pour alimenter les circuits électroniques.

La carte électronique dispose d'une horloge interne qui met en route et arrête le système à des heures programmées. Pendant cette période, l'« eeprom » enregistre les mesures des capteurs à une cadence prédéterminée. Pour les essais, une fréquence de 0,25 Hz a été retenue, soit une mesure toutes les 4 secondes, ce qui permettait, compte tenu des capacités de l'« eeprom », d'enregistrer pendant 8 heures. A la fin de chaque journée d'essais, les données recueillies et stockées dans les « eeprom » étaient recopiées sur le disque dur d'un micro-ordinateur au moyen d'une interface spécifique.

Pour effectuer le choix des capteurs à installer sur les 70 boîtiers électroniques, les rejets envisagés dans le paragraphe 4.1 ont été modélisés à l'aide de logiciels de dispersion atmosphérique. Quelques enseignements généraux ont été tirés de ces simulations :

- A priori, il n'est pas nécessaire de placer des capteurs capables de mesurer des concentrations supérieures à 1 % d'ammoniac gazeux au-delà de 300 mètres du point de rejet sur l'axe du panache ;
- en revanche, jusqu'à 200 mètres du point de rejet, les capteurs situés sur l'axe du panache devraient tous être soumis à des concentrations supérieures à 1 % ;
- enfin, au-delà de 750 mètres, les concentrations calculées sont inférieures à 0,1 %, soit 1 000 ppm.

Ces résultats ont été considérés comme des ordres de grandeur et ont été ajustés en fonction de l'avancement du programme.

⁵ EEPROM : Electrically Erasable Programmable Read Only Memory

Ainsi, le choix des capteurs s'est effectué en fonction de la concentration à mesurer qui est liée à la distance au point de rejet sous le vent de l'émission et à la distance à l'axe du panache.

Plusieurs techniques de mesure de la concentration d'ammoniac étaient envisageables, telles que :

- des cellules électrochimiques ;
- des semi-conducteurs ;
- des capteurs catalytiques dont les pellistors ;
- une mesure indirecte de l'ammoniac par la mesure de l'oxygène de l'air, basée sur les propriétés paramagnétiques de l'oxygène ;
- la mesure dans l'infrarouge (IR) ;
- la chromatographie.

Chacune de ces techniques s'applique à un domaine de concentration spécifique comme l'indique la figure 9 ci-dessous. Les domaines de concentration sont des ordres de grandeur qui peuvent être étendus en fonction des caractéristiques des capteurs.

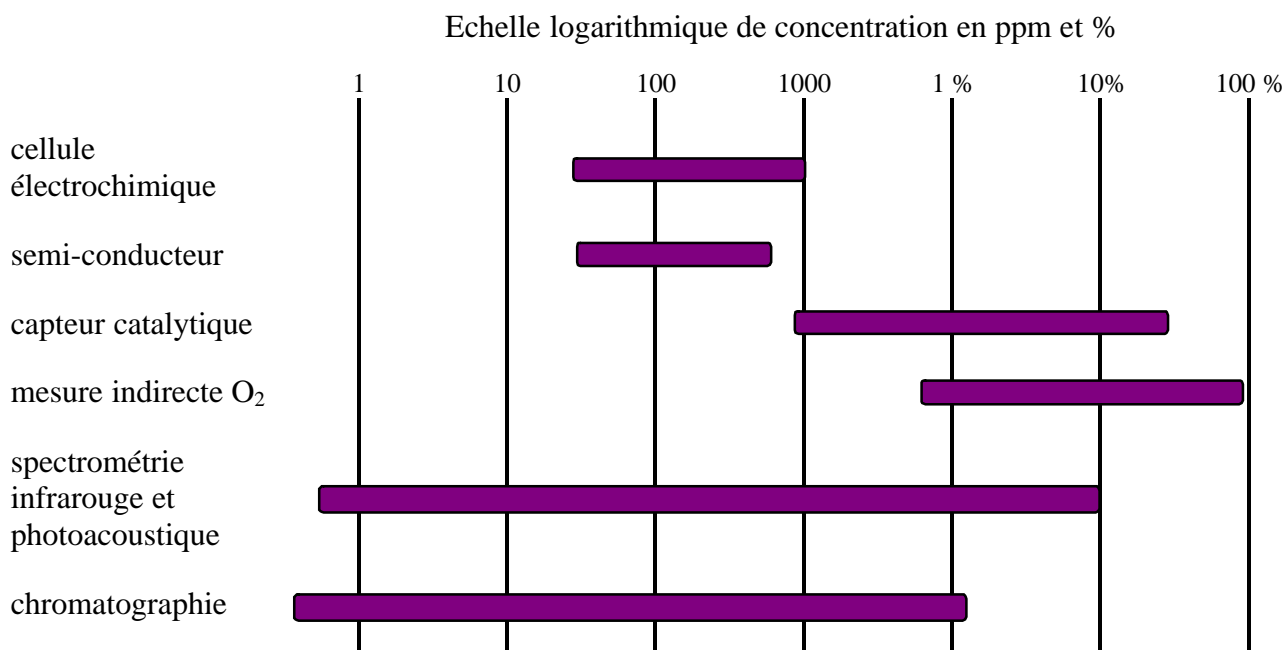


figure 9 : Représentation des domaines de concentration spécifiques des capteurs

L'annexe 2 décrit le principe de fonctionnement des trois premières techniques citées ci-dessus et qui sont les plus répandues pour la mesure de gaz combustibles.

Finalement, les capteurs qui ont été connectés sur les boîtiers électroniques lors de la campagne d'essais sont :

- des capteurs catalytiques de type pellistor, spécifiques à l'ammoniac (EEV VQ 41) permettant de mesurer des concentrations d'ammoniac comprises entre 0,1% et 15% (entre 1 000 ppm et 150 000 ppm). Ces capteurs, au nombre de 60, étaient placés dans le champ proche (jusqu'à 200 mètres du point de rejet) ;
- des cellules électrochimiques (SENSORIC NH3 3E 1000) mesurant des concentrations d'ammoniac comprises entre 10 et 1000 ppm. Ces capteurs, au nombre de 50, ont été disposés dans le champ lointain (de 200 mètres à 1 700 mètres du point de rejet) ;
- 60 thermocouples (type K, diamètre 1 mm, classe 1, gaine inox, longueur 5 m), permettant de mesurer les fluctuations de température. Ces thermocouples ont été installés à côté de chaque capteur catalytique jusqu'à la distance de 100 mètres depuis le point de rejet, et ce notamment afin d'apprécier les variations de température dans le jet.

Les pellistors EEV VQ41 et les cellules électrochimiques SENSORIC NH3 3E 1000, ont d'abord fait l'objet d'une série de tests en laboratoire à l'INERIS afin de vérifier leurs caractéristiques. Ensuite, le comportement de ces capteurs a été testé à l'INERIS dans une galerie de 50 mètres de longueur et de 10 m² de section. Des rejets au travers d'orifices de 0,5 mm à 8 mm de diamètre ont été réalisés pour ces tests et ont permis de valider la chaîne de mesure (Bouet, 1996).

Pour faciliter le traitement des données, le microcontrôleur a été programmé pour fournir les données directement dans l'unité (ppm vol.) et dans l'échelle correspondant au capteur. Le stockage des données dans les « EEPROM » a été réalisé de la manière suivante :

- cellule électrochimique : par pas de 10 ppm jusqu'à 2 000 ppm ;
- pellistor : par pas de 250 ppm de la valeur « EEPROM » 0 jusqu'à 130, puis par pas de 560 ppm de la valeur « EEPROM » 131 jusqu'à 255 ;
- thermocouple : par pas de 0,3125°C, de -40°C à +40°C.

Enfin, un programme permettant d'effectuer la lecture et la sauvegarde des informations enregistrées par les « EEPROM » a été développé à partir du logiciel Labview. Un utilitaire de traitement de ces données a également été développé à partir de ce logiciel.



4.2.4. Instrumentation des capteurs sur le terrain d'essai

Afin de faciliter l'installation des boîtiers électroniques avant un rejet, le terrain d'essai a été préalablement équipé de plus de 150 mâts de 3 mètres de hauteur. Ces mâts offraient la possibilité de fixer les capteurs à 4 hauteurs différentes, à savoir 0,1, 1, 2 et 3 mètres. Ils ont été disposés sur 7 arcs de cercle de 180° d'amplitude centrés sur la dalle de rejet et dont les rayons étaient de 20, 50, 100, 200, 500, 800 et 1 700 mètres. Sur les deux premiers arcs de cercles situés à 20 et 50 mètres, 41 mâts ont été installés tous les 4,5°, et sur tous les autres arcs de cercles, 21 mâts ont été installés tous les 9°.

Afin de faciliter l'exploitation ultérieure des essais, les mâts installés sur le terrain d'essai ont été repérés par une **lettre** et un **nombre**.

La **lettre** correspond au rayon de l'arc de cercle, c'est à dire la distance depuis le point de rejet (cf. tableau 15).

distance depuis le point de rejet (m)	20	50	100	200	500	800	1 700	4	350	650
lettre	A	B	C	D	E	F	G	S	M	T

tableau 15

Correspondance entre la distance depuis le point de rejet et la lettre associée.

Les trois dernières distances de 4, 350 et 650 mètres repérées dans le tableau précédent correspondent respectivement aux capteurs installés sur la dalle de rejet, au mât météorologique et à un mât de 19 mètres de hauteur. Sur ce dernier, à partir de l'essai 8, deux cellules électrochimiques ont été installées à 6 et 10 mètres de hauteur.

Le **nombre** correspond à une direction depuis le point de rejet. Nous avons défini 80 directions, soit un angle de 4,5° entre chacune d'elles. Dans la configuration qui a été retenue, le nord correspond à la direction 50 (Cf. figure 10). L'implantation des mâts a été réalisée dans les directions comprises entre 1 à 41.

La numérotation des angles à partir de la dalle de rejet est reportée sur la figure 10 ci-après.

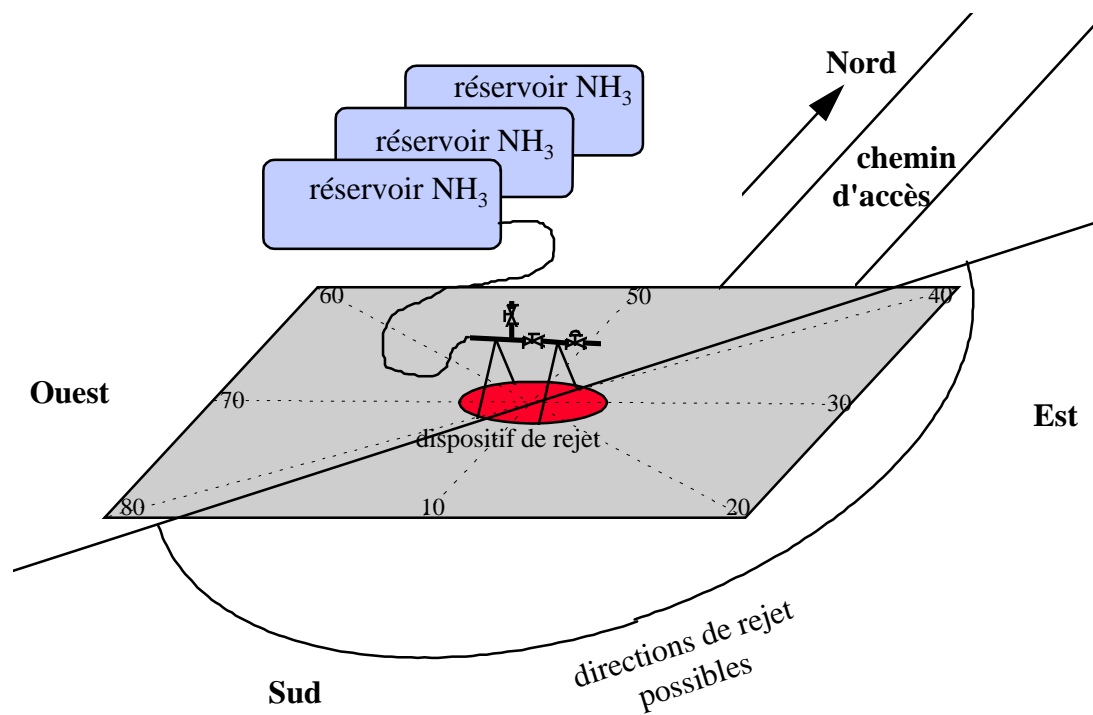


figure 10
Repérage des angles sur la dalle de rejet

La numérotation des angles sur le terrain d'essai ainsi que la position des mâts sont reportées sur la figure 11 ci après.

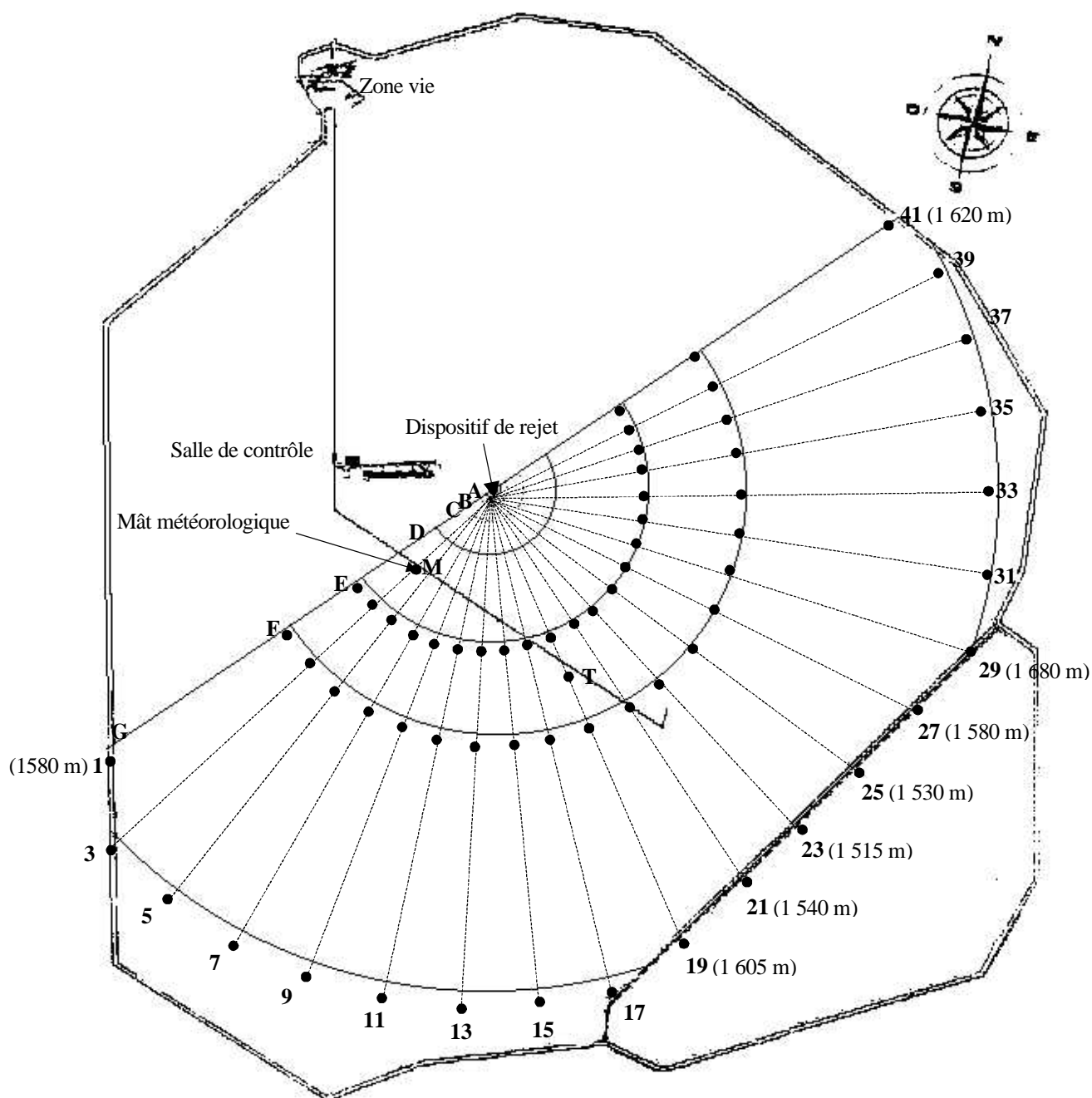


figure 11 : position des mâts de mesure

Compte-tenu de la direction la plus fréquente du vent, identifiée à partir d'une analyse des données météorologiques locales, et de la configuration du terrain d'essai, le champ de mesure à privilégier se trouve entre les valeurs d'angles numérotées 1 et 41.

Par ailleurs, il est à noter que l'arc de cercle à 1 700 mètres est limité par les dimensions du terrain d'essai pour les directions 1, 19, 21, 23, 25, 27, 29 et 41. Pour ces directions, la distance exacte des mâts de mesure est indiquée entre parenthèse.

Lors de chaque essai, les capteurs étaient installés sur les mâts de mesure dans leur position finale sous le vent du rejet environ 1 heure avant le début de l'essai. Ainsi, les capteurs étaient tous répartis de chaque côté de l'axe du rejet sur un secteur angulaire de $\pm 35^\circ$ de part et d'autre de cet axe.

Pour les rejets impactant et le rejet à travers la bride, l'angle de répartition des capteurs était supérieur pour les arcs de cercle situés à 20, 50 et 100 mètres (jusqu'à 80° de chaque côté de l'axe du rejet). Dans ces configurations, des capteurs ont également été rajoutés sur la dalle de béton sur un rayon de 4 mètres.

4.2.5. Moyens d'acquisition

Les données recueillies lors de ces essais ont été enregistrées ou traitées au moyen de trois moyens d'acquisition distincts pour les points suivants :

- les boîtiers électroniques (chaîne de mesure décrite au paragraphe 4.2.3) qui ont permis l'acquisition, d'une part des valeurs de concentration en ammoniac à l'aide des capteurs catalytiques et des cellules électrochimiques qui y étaient connectés, et d'autre part des valeurs de température mesurées via les thermocouples qui y étaient également connectés ;
- le système d'acquisition LabView pour les capteurs météorologiques et pour les capteurs de pression situés sur le point de rejet ;
- système d'acquisition pour les thermocouples situés sur le point de rejet, à savoir les thermocouples disposés dans la citerne, sur le dispositif de rejet et sur le sol ou les blocs de béton (acquisition par scrutation).

Le système d'acquisition des données issues des capteurs météorologiques et des capteurs de pression était installé dans le poste de commande, afin de contrôler les paramètres au cours de l'essai, en même temps que l'acquisition en était faite, et notamment :

- * la pression dans la citerne ;
- * la pression au milieu du dispositif de rejet ;
- * la pression à l'orifice du rejet ;
- * la vitesse du vent ;
- * et la direction du vent ;

La localisation et la fréquence d'acquisition relatives à chacun de ces capteurs sont reportées dans le tableau 16 ci-après.

capteurs	distance depuis le point de rejet (m)	θ (°) - n° dir	z (m)	fréquence d'acquisition (Hz)
anémomètre à coupelles	350	211.5 - 3	7	1
anémomètre à coupelles	350	211.5 - 3	4	1
anémomètre à coupelles	350	211.5 - 3	1.5	1
anémomètre ultrasonique	350	211.5 - 3	10	10
girouette	350	211.5 - 3	7	1
T réservoir (50 mm)	dispositif de rejet		0.05	0.2
T réservoir(400 mm)	dispositif de rejet		0.4	0.2
T réservoir(750 mm)	dispositif de rejet		0.75	0.2
T réservoir(1 100 mm)	dispositif de rejet		1.1	0.2
T réservoir(1 450 mm)	dispositif de rejet		1.45	0.2
T canalisation (th8)	dispositif de rejet		1	0.2
T canalisation(th7)	dispositif de rejet		1	0.2
T orifice (th6)	dispositif de rejet		1	0.2
thermocouples 11 à 30	Sol et obstacle			0.2
flux solaire	450	270 - 70	1.5	1
humidité relative	450	270 - 70	1.5	1
sonde de temperature	450	270 - 70	1.5	1
capteurs ammoniac	Sous le vent des rejets			0.25
pression réservoir (P3)	dispositif de rejet		1.9	1
pression canalisation (P2)	dispositif de rejet		1	1
pression orifice (P1)	dispositif de rejet		1	1

tableau 16 : position et fréquence d'acquisition des capteurs

4.2.6. Moyens vidéo

Pour le suivi des essais depuis le poste de commande, cinq caméras du CEA-CESTA ont été disposées sur le terrain d'essai :

- une caméra de surveillance à 30 mètres de hauteur située entre le point de rejet et le poste de commande ;
- une caméra située à 10 mètres derrière le point de rejet, à 10 mètres de hauteur ;
- une caméra située à 40 mètres derrière le point de rejet, à 26 mètres de hauteur ;
- une caméra située à 1000 mètres du point de rejet dans la direction 33, à 1 mètre de hauteur ;
- une caméra mobile à 1,5 mètres de hauteur, placée perpendiculairement à la direction du rejet.

4.2.7. Sécurité

Pour la réalisation de ces essais, le site a été divisé en quatre zones :

- la « zone de pointe », où s'effectuait les rejets ;
- la « zone de soutien », qui se trouvait dans un rayon de 200 mètres autour du point de rejet ;
- la « salle de commande », située à 450 mètres au vent du point de rejet ;
- et la « zone vie », située à l'entrée du site à environ 1 400 mètres du point de rejet.

Chaque personne présente sur le site était équipée d'un masque filtrant. Dans la « salle de commande », les personnes présentes portaient une tenue « tyvec ». Six personnes équipées d'une tenue spéciale et d'un appareil respiratoire individuel se tenaient prêtes à intervenir en « zone de soutien ». Deux de ces personnes étaient équipées en plus d'un scaphandre afin d'intervenir sur la « zone de pointe », et notamment, si cela avait été nécessaire, dans le nuage froid d'ammoniac. Cela ne s'est jamais produit.

Aucune personne n'assistait au rejet d'ammoniac à l'extérieur de la « salle de commande », hormis les six personnes qui se trouvaient en « zone de soutien ».

Les différentes équipes qui intervenaient sur le site communiquaient avec des moyens radio.

Un système de douche était installé à l'entrée de la « zone de pointe ».

Un service médical était disponible à tout moment à côté de la « salle de commande ».

5. MESURES DES CONDITIONS DE REJET

Afin de comprendre la dispersion atmosphérique d'un rejet d'ammoniac liquéfié sous pression, il est important, d'une part, de déterminer les conditions d'écoulement de l'ammoniac dans la canalisation, et d'autre part, de bien évaluer les conditions météorologiques au moment du rejet.

5.1. CONDITIONS D'ÉCOULEMENT DANS LA CANALISATION

Dans un premier temps, nous présentons les conditions expérimentales dans lesquelles se sont déroulées les rejets réalisés dans le cadre de ce programme. Ensuite, une analyse de ces conditions de rejet est effectuée.

5.1.1. Conditions expérimentales des rejets

Les conditions expérimentales dans lesquelles se déroulent des essais sont souvent appelées « terme source » du rejet. Le terme source précise notamment les valeurs à la brèche du débit, de la température, de la pression, de la vitesse, et de la qualité⁶. Dans ce programme, les valeurs mesurées du terme source sont essentiellement des valeurs de température et de pression, ainsi que la quantité d'ammoniac rejetée.

Lors de chaque essai, les conditions de pression et de température étaient mesurées et enregistrées en continu toutes les secondes, à la fois dans le réservoir et à différents endroits de la canalisation (Cf. chapitre 4).

A titre d'illustration, les deux graphes de la figure 12 suivante indiquent :

- l'évolution typique des conditions de pression dans le réservoir et dans la canalisation au cours d'un rejet ;
- l'évolution des températures situées à différentes hauteurs dans le réservoir et situées dans la canalisation.

Ces deux graphes présentent les conditions mesurées et enregistrées lors de l'essai 4.

⁶ qualité du rejet : un écoulement diphasique mono-constituant est essentiellement caractérisé par sa qualité, c'est-à-dire la fraction massique de sa phase vapeur

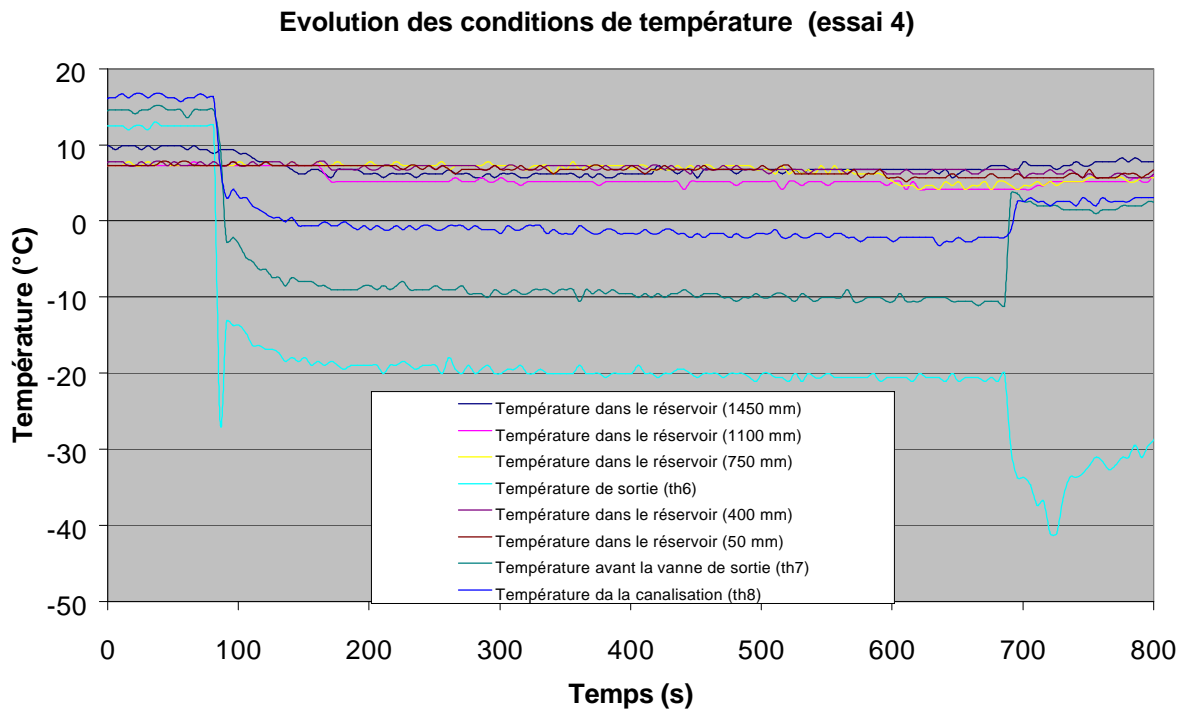
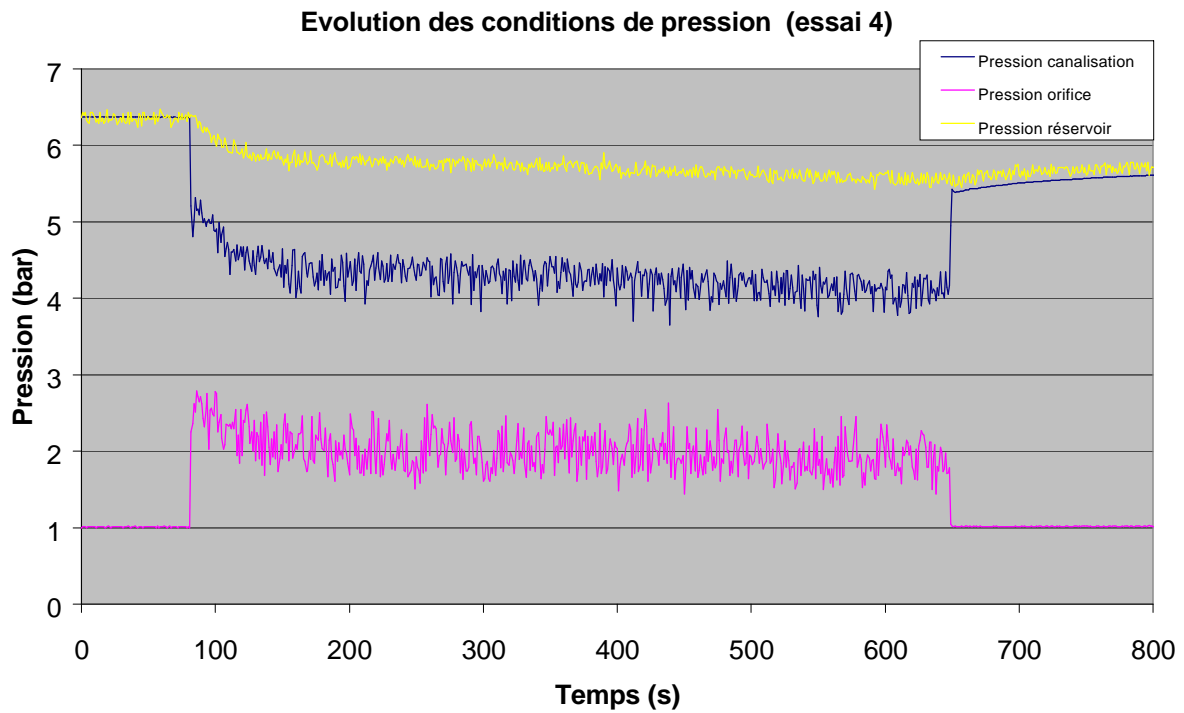


figure 12 :
Evolution des conditions de pression et de température
dans le réservoir et dans la canalisation de rejet

Pour l'essai 1, le rejet gazeux a été réalisé en partant de la pression de vapeur à l'intérieur du réservoir. Ensuite, le réservoir s'est dépressurisé, et l'essai a été arrêté alors que la pression avait atteint environ 1,8 bar absolu.

Concernant l'essai 2, une surpression de 1 bar a été préalablement effectuée avec de l'azote à l'intérieur du réservoir. Ensuite, le système de régulation à l'azote a maintenu cette pression constante pendant toute la durée de l'essai.

Lors de l'essai 3, à travers la bride, aucune surpression d'azote n'a été réalisée au préalable. En revanche, la pression existant au départ dans la cuve a été maintenue pendant toute la durée de l'essai par injection d'azote.

Pour tous les essais suivants, il n'a plus été réalisé de surpression d'azote avant essai, et la pression n'a pas été maintenue constante pendant la durée de l'essai. Ainsi, pour chaque essai, il a été observé une chute de pression dans le réservoir plus ou moins importante selon les conditions de rejet.

Pour chaque essai, le comportement des capteurs de pression et de température était sensiblement identique. D'une manière générale, concernant les valeurs mesurées lors des essais, on peut noter que :

- au sein du réservoir instrumenté, la valeur de la température dans le ciel gazeux était identique à la température de l'ammoniac liquide dès la seconde partie de la nuit. En revanche, après le lever du soleil, des différences de température entre les deux phases pouvaient être observées. Ainsi, selon la température extérieure, le rayonnement solaire et le taux de remplissage du réservoir, la température de la phase gaz augmentait parfois plus rapidement que celle de la phase liquide. Des différences maximums de 10°C entre les deux phases ont été mesurées dans le cadre de ce programme ;
- avant un rejet, la valeur de la pression dans le réservoir correspondait rarement à la pression de vapeur saturante de la température de l'ammoniac liquide. Elle était généralement comprise entre la pression de vapeur saturante correspondant à la température du ciel gazeux du réservoir et la pression de vapeur saturante correspondant à la température de l'ammoniac liquide selon le moment de la journée, la température ambiante, les conditions d'ensoleillement et le taux de remplissage du réservoir. Dans certaines configurations, la différence entre la pression dans le réservoir et la pression de vapeur saturante correspondant à la température de l'ammoniac liquide était de l'ordre du bar ;
- lors d'un rejet dont la température de la phase gazeuse était initialement supérieure à la température de la phase liquide, il était classiquement observé une diminution de la température de la phase gaz vers la température de la phase liquide. Selon les conditions initiales et ambiantes, la température pouvait baisser rapidement après le début de l'essai, et devenait ensuite égale à la température de l'ammoniac en phase liquide au cours de l'essai ;
- la pression au sein du réservoir, évoluant dans des conditions proches de la courbe de vapeur saturante de la phase gaz, pouvait donc, de la même manière que les valeurs de température, évoluer rapidement durant la première minute selon le moment de la journée et les conditions d'ensoleillement ;

- une fois la première minute de rejet passée, les conditions de pression et de température à l'intérieur du réservoir évoluaient de manière constante et plus lente pour le reste de la durée du rejet : abaissement de 200 à 400 mbar pour une pression de l'ordre de 6 bar absolu, et diminution de la température de 0,5 à 2°C ;
- lors de l'écoulement de l'ammoniac dans la canalisation, une chute de pression et donc de température a été observée entre le réservoir et l'orifice. Typiquement, pour une valeur de température d'environ 10°C dans le réservoir, la température à l'orifice était d'environ -15°C ;
- contrairement aux conditions dans le réservoir lors d'un essai, les conditions de pression et de température à la brèche évoluaient de manière plus importantes : en moyenne, abaissement de la pression entre 0,5 et 1 bar pour une pression à l'orifice initiale inférieure à 3 bar absolu, et baisse de la température à l'orifice entre 5 et 10°C ;
- les mesures de pression et de température, effectuées en un même endroit de la canalisation de rejet, montraient que la pression était voisine de la pression de vapeur saturante correspondant à la température mesurée à cet endroit ;
- après la fin du rejet, les vannes étant fermées, les valeurs de température et de pression évoluaient plus ou moins rapidement vers leurs conditions avant essai, exceptés la pression et la température au niveau de l'orifice. En effet, l'orifice se trouvant à la pression atmosphérique, l'ammoniac liquide qui restait au niveau de l'orifice continuait à se vaporiser en abaissant encore sa température.

Lors de la réalisation des essais, aucune mesure de débit en continu correcte n'a été faite. Seule la valeur du débit de rejet moyen a pu être estimée à partir de la quantité d'ammoniac rejetée et du temps de rejet.

Les caractéristiques générales de l'ensemble des rejets réalisés sont décrites dans le tableau suivant.

Essais n°	Caractéristiques des rejets		
	Durée (sec)	Quantité rejetée (kg)	Débit moyen (kg/s)
1	460	300	0,65
2	440	1 980	4,5
3	540	1 400	2,6
4 préél.	660	2 380	3,6
4	600	2 520	4,2
5	600	2 520	4,2
6	600	2 520	4,2
7	670	2 560	3,8
8	875	3 420	3,9
9	605	2 370	3,9
10	690	2 150	3,1
11	600	1 800	3
12	660	2 000	3
2b	720	1 400	1,95
8b	780	2 120	2,7

tableau 17
Caractéristiques générales des conditions de rejets

5.1.2. Analyses des conditions d'écoulement des rejets

Lorsque l'ammoniac est stocké liquide sous sa pression de vapeur saturante, son utilisation conduit généralement à un écoulement liquide sous pression dans une canalisation. Lors d'une rupture sur cette canalisation, les conditions d'écoulement sont modifiées, l'ammoniac passant de conditions de pression et de température d'utilisation à des conditions correspondant à la pression atmosphérique et à une température inférieure à celle avant rupture.

Ce sont les nouvelles conditions à l'endroit de la brèche qu'il faut déterminer afin d'estimer les caractéristiques du rejet, notamment le débit massique, la vitesse de rejet, la qualité du rejet, la pression et la température. Ces grandeurs vont constituer ce que l'on appelle le « terme source » du rejet. La difficulté pour établir le débit massique du rejet à la brèche réside notamment dans l'évaluation du régime d'écoulement dans la canalisation. Lorsque l'ammoniac liquide rencontre une onde de dépression, celui-ci se vaporise. On dit que l'ammoniac subit un flash thermodynamique à l'origine d'un mélange de liquide et de vapeur qui agit sur l'écoulement.

On distingue essentiellement trois régimes d'écoulement différents à savoir :

- le régime à bulle : la phase liquide est continue et contient des bulles de gaz ; le liquide est alors majoritaire ;
- le régime annulaire et semi-annulaire : la vitesse du gaz est supérieure à celle du liquide qui est plaqué contre les parois de la canalisation ;
- l'écoulement dispersé : la vitesse d'écoulement du gaz est importante, le liquide est dispersé dans la phase gaz ; le liquide est alors la phase minoritaire dans le mélange.

Afin de déterminer le terme source au niveau du point de rejet, il est nécessaire de bien comprendre et de déterminer les caractéristiques de l'écoulement dans la canalisation.

Il existe de nombreux modèles permettant de décrire le rejet dans le cas d'une éjection par une conduite. Ces modèles, cités par exemple par Langard, (1995), Bigot (1996), U.I.C. (1987), peuvent être classés en trois catégories par ordre de complexité croissante:

- les modèles homogènes à l'équilibre (HEM : Homogenous Equilibrium Model) ;
- les modèles avec écart de vitesse (entre la phase gazeuse et la phase liquide) ;
- les modèles hors équilibre.

Dans les modèles homogènes à l'équilibre, les phases gaz et liquide sont supposées :

- avoir la même vitesse ;
- être réparties de façon homogène ;
- être à la température de saturation.

Ces hypothèses impliquent que :

- l'écoulement diphasique est considéré comme un fluide homogène de propriétés moyennes comprises entre celles du gaz et du liquide ;
- l'écoulement est à l'équilibre thermodynamique (aucun échange de chaleur ou de masse ne s'effectue entre les phases).

De plus, l'écoulement est supposé stationnaire et unidimensionnel.

Il existe deux grandes catégories de modèles à l'équilibre:

- *les modèles à détente isentropique* : dans ce cas, l'entropie du fluide subissant la détente reste constante alors que son enthalpie diminue. La perte d'enthalpie est alors supposée équilibrée par le gain en énergie cinétique de l'écoulement.
- *les modèles à détente isenthalpique* : dans ce cas, l'enthalpie du fluide reste constante tandis que son entropie diminue. Cette perte est équilibrée par l'énergie de friction mise en jeu par l'écoulement.

Van den Akker et al (1983) ont montré que ces deux hypothèses sont aussi irréalistes l'une que l'autre mais que l'erreur engendrée dans l'hypothèse "enthalpie constante" est moindre.

Ces modèles ont pour but essentiel de déterminer le débit à la brèche. Dans le cadre de ce programme, les essais réalisés permettent de connaître la température et la pression à la brèche ainsi que le débit moyen sur la durée de l'essai. Un modèle HEM permet de déterminer, en plus de ces grandeurs, la qualité de l'écoulement à la brèche. Ce paramètre n'a pas été mesuré directement lors des essais. Un modèle complet, proposé par Wheatley (avril 1987) et appartenant à la catégorie des modèles HEM, est présenté ci-après et ses résultats sont comparés aux résultats expérimentaux obtenus lors des essais.

Modélisation du débit à la brèche : approche de Wheatley (avril 1987)

Cette modélisation a pour but de déterminer, à partir des conditions de réservoir (P_{int} , T_{int}) :

- les conditions de pression-température à la brèche ;
- le débit masse du rejet ;
- la qualité à la brèche.

Les hypothèses de base de ce modèle sont que :

- la détente du fluide est considérée isentropique et stationnaire
- le fluide diphasique est considéré homogène et à l'équilibre liquide-vapeur

Ainsi, le modèle proposé repose sur les équations suivantes :

- équation de l'entropie : $C_{p_{liq}} \cdot \ln(T_{int}) = C_{p_{liq}} \cdot \ln(T_b) + \frac{x \cdot L_v(T_b)}{T_b}$ (1)

- équation d'Euler : $\frac{U_b^2}{2} = \alpha_p^2 \left(\int_{P_b}^{P_{int}} v \cdot dP + g \cdot h_{int} \right)$ (2)

- équation de la pression interne en fonction de la température et de la hauteur de liquide :

$$P_{int} = P_{sat}(T) + \rho_{liq} \cdot g \cdot h_{int} = \exp\left(B_0 - \frac{A_0}{T}\right) + \rho_{liq} \cdot g \cdot h_{int} \quad (3)$$

- Equation du volume spécifique : $v = (1 - x) \cdot v_{liq} + x \cdot v_{gaz}$ (4)

- Equation de Clausius-Clapeyron : $L_v(T) = T(v_{gaz} - v_{liq}) \frac{dP_{sat}}{dT}$ (5)

Après intégration, l'équation d'Euler s'écrit :

$$\frac{U_b^2}{2} = \alpha_p^2 \left(\frac{P_{int} - P_b}{\rho_{liq}} + C_{p_{liq}}(T_{int} - T_b) - C_{p_{liq}} \cdot T_b \cdot \ln\left(\frac{T_{int}}{T_b}\right) + g \cdot h_{int} \right) \quad (6)$$

Cette expression permet de déterminer la vitesse du fluide à la brèche en fonction de la différence de pression entre le réservoir et la sortie. Le fluide étant supposé à saturation, les températures sont connues dès lors que les pressions le sont.

Le coefficient α_p est un facteur correctif empirique qui permet de tenir compte des effets de la friction ; il est en général pris égal à 0,6 dans le cas d'une brèche en paroi et égal à 0,8 ou 0,9 dans le cas d'une rupture de canalisation.

Le problème revient alors à déterminer la pression du fluide à la brèche. L'existence d'un gradient de pression entre le réservoir et la brèche provoque une accélération importante du fluide c'est à dire qu'il y a transformation d'énergie potentielle en énergie cinétique. La vitesse du fluide à la sortie sera limitée par la vitesse de propagation des ondes de pression dans le fluide c'est à dire la vitesse du son.

Il est admis que si le gradient de pression est suffisamment important, le fluide atteindra la vitesse du son en sortie (May, 1996). Si tel est le cas, on dira que l'écoulement est critique.

Un écoulement critique (ou sonique, ou bloqué) en monophasique se caractérise par le fait qu'une diminution de pression en aval, en dessous d'un certain seuil, n'a aucune influence sur l'écoulement. Ce seuil de pression est appelé « *pression critique* ». Elle est atteinte dans une section bien définie de la conduite, généralement à la sortie. Dans cette section, la vitesse de l'écoulement est égale à la vitesse du son dans le fluide si bien que les perturbations générées en aval ne sont pas ressenties par l'écoulement en amont.

L'expérience fait apparaître un phénomène analogue pour les écoulements diphasiques. En revanche, il est moins facile de déterminer avec précision la valeur de la vitesse de propagation des ondes de pression dans un fluide diphasique dans la mesure où ces ondes ne se déplacent pas avec la même célérité dans chacune des deux phases. Les expériences menées pour l'étude des écoulements diphasiques ont néanmoins mis en évidence que la célérité du son d'un écoulement diphasique est nettement plus faible que la célérité du son d'un écoulement monophasique (Delhaye, 1981). Il en résulte que l'écoulement critique est plus facilement atteint dans le cas d'un écoulement diphasique (May, 1996).

La modélisation du débit à la brèche par la méthode proposé par Wheatley (avril 1987) suppose que l'écoulement diphasique est critique ce qui revient à considérer que la vitesse du fluide à la sortie, U_b , est égale à la vitesse du son dans le fluide diphasique de qualité x_b .

Du fait de l'hypothèse d'isotropie de l'écoulement, la vitesse du son peut être obtenue à partir de la relation :

$$U_{\text{son}} = \sqrt{\left. \frac{\partial P}{\partial \rho} \right|_{S=\text{cte}}} \quad (7)$$

Dans le cas d'un fluide diphasique, l'intégration à entropie constante est relativement complexe. Il a été montré que l'expression de la vitesse du son est finalement :

$$U_{\text{son}} = \frac{P_b \cdot A_0}{\rho_b \cdot T_b \sqrt{C_{p\text{liq}} \cdot T_b \left(1 + \left(\frac{A_0}{T_b} - 1 \right) \cdot \text{Ln} \left(\frac{T_{\text{int}}}{T_b} \right) \right)}} \quad (8)$$

La masse volumique du fluide à la brèche, ρ_b , est obtenue à partir de l'équation suivante :

$$\frac{1}{\rho_b} = \frac{1}{\rho_{liq}} + \frac{\text{Ln}\left(\frac{T_{int}}{T_b}\right) C_{p_{liq}} T_b^2}{A_0 P_b} \quad (9)$$

On recherche alors, par un processus itératif la pression P_b telle que $U_b = U_{son}$ (équations 6 et 8). Une fois cette pression obtenue, la température du rejet est connue (car saturation) et la qualité à la brèche est déterminée à partir de l'équation 4 :

$$x_b = \frac{\frac{1}{\rho_b} + \frac{1}{\rho_{liq}}}{\frac{1}{\rho_{gaz}} + \frac{1}{\rho_{liq}}} \quad (10)$$

La détermination du débit masse, G_b se fait ensuite par la relation classique :

$$G_b = \rho_b \cdot A_b \cdot U_b \quad (11)$$

où A_b est la surface de la brèche

La valeur de la pression de rejet trouvée en testant l'égalité entre la vitesse de rejet et la vitesse du son va déterminer la nature du rejet. En effet, si cette valeur est supérieure à la pression atmosphérique, l'écoulement sera critique et le jet s'accélérera encore après la brèche du fait de sa détente jusqu'à la pression atmosphérique.

En revanche, si la pression obtenue est inférieure à la pression atmosphérique, cela n'a pas de sens physique. Dans ce cas, l'écoulement ne sera pas critique (le fluide à la brèche n'atteint pas la vitesse du son) et l'on considérera que la pression à la brèche est égale à la pression atmosphérique.

Les modèles hors équilibre

Des modèles plus proches de la réalité existent que l'on appelle "modèles hors équilibre". Ils permettent de prendre en compte les écarts thermodynamiques qui existent avec l'équilibre liquide-vapeur.

Ils font de plus intervenir le fait que les deux phases soient séparées. Celles-ci sont considérées de façon distincte, à savoir qu'elles peuvent avoir des vitesses différentes et que les changements de phases peuvent être limités par les transferts de chaleur ou accélérés par la présence de singularités.

Nous pouvons citer le modèle "gelé" qui fait l'hypothèse simple qu'il n'y ait aucun changement de phase. L'écoulement est alors modélisé par l'équation de Bernoulli.

Le modèle à phases séparées proprement dit effectue un bilan matière, énergie et quantité de mouvement sur chacune des deux phases et se donne une loi de vaporisation compte tenu du régime d'écoulement. Ce modèle se repose sur les corrélations empiriques qui qualifient les régimes d'écoulement.

Il existe aussi des modèles encore plus complets comme le modèle de Yan (1991) qui va jusqu'à modéliser la nucléation. Il permet notamment d'estimer la fréquence d'apparition des bulles, l'évolution de leur taille.

Afin de comparer les valeurs expérimentales aux valeurs théoriques, deux modèles (Fauske et Wheatley) ont été mis en oeuvre à partir des conditions de réservoir des essais effectués par l'INERIS et décrits dans le chapitre 4 précédent. D'une manière générale, les résultats obtenus par ces modèles diffèrent sensiblement des valeurs relevées lors des essais, les valeurs obtenues au moyen des modèles étant généralement supérieures aux valeurs expérimentales.

Ces résultats viennent confirmer le fait que la modélisation du débit dans le cas d'un écoulement diphasique est très complexe et que des modèles simplifiés ne peuvent prendre en considération l'ensemble des phénomènes se produisant lors de l'écoulement. Par ailleurs, dans le cadre de ces essais, dont l'objectif n'était pas d'étudier de manière très approfondie le débit à la brèche mais simplement de le connaître, le dispositif de rejet mis en oeuvre était constitué de pertes de charge importantes sur une canalisation de plus de 12 mètres de longueur.

Nous avons vérifié expérimentalement que le fluide à l'orifice se trouvait bien dans les conditions de saturation c'est à dire que les couples (T_b, P_b) mesurés expérimentalement correspondent aux couples $(T_b, P_{sat}(T_b))$, hypothèse de base des modèles HEM.

En conclusion, ces modèles sont adaptés pour des fuites de réservoir ou des rejets après une courte canalisation. Ils ne prennent pas en compte les pertes de charge et donc la vaporisation de l'ammoniac au cours de son transport vers l'extérieur. Si on considère une brèche au ras de la paroi du réservoir, l'ammoniac se vaporise instantanément dans l'atmosphère sans passer par les trois régimes d'écoulement (régime à bulle, régime annulaire et écoulement dispersé).

Dans les essais réalisés, la canalisation est suffisamment grande pour que l'écoulement passe par ces trois régimes d'écoulement. Dans la littérature, il est admis que l'écoulement dispersé s'établit lorsque la condition $L > 2D$ est remplie (L longueur de canalisation, D diamètre de canalisation), ce qui est le cas. Ainsi, le comportement dynamique de l'ammoniac est influencé par ces trois régimes, et les phénomènes sont complexes à modéliser.

5.2. CONDITIONS METEOROLOGIQUES DURANT LES ESSAIS

Les conditions météorologiques sont décrites par de nombreux paramètres, dont les principaux sont ceux liés, d'une part, à la vitesse du vent, et d'autre part, à la turbulence atmosphérique.

Pour chaque essai, les conditions atmosphériques ont été enregistrées à l'aide des moyens décrits dans le chapitre 4 précédent. Durant la période d'enregistrement, certaines grandeurs mesurées variaient peu et lentement. Cela était notamment le cas pour la température ambiante, l'humidité relative et le flux solaire. Pour mémoire, ces grandeurs ont été mesurées sur la station météorologique située à côté du poste de commande.

En revanche, d'autres grandeurs, telles que la vitesse et la direction du vent mesurées sur le mât météorologique repéré M sur la figure 11, pouvaient être très variables lors de la période d'enregistrement.

Afin de donner un ordre de grandeur des conditions météorologiques durant les essais, nous présentons dans le tableau suivant les valeurs moyennes associées à chacun des rejets.

Essais n°	Conditions atmosphériques moyennes				
	Température sous abri	Humidité relative	Flux solaire (kW/m ²)	Vitesse du vent à 7 m de hauteur	Direction du vent à 7 m de hauteur
1	14°C	76 %	0,2	5 m/s	260°
2	8,5°C	84 %	0,1	3 m/s	305°
3	5°C	90 %	0,04	2,5 m/s	5°
4p	10°C	61 %	0,5	3 m/s	10°
4	12,5°C	82 %	0,25	3 m/s	290°
5	20°C	50 %	0,65	3,5 m/s	310°
6	12°C	75 %	0,5	5 m/s	285°
7	13°C	60 %	0,7	6 m/s	310°
8	20°C	37 %	0,7	5 m/s	275°
9	14°C	50 %	1,0	3 m/s	355°
10	24°C	20 %	1,0	3 m/s	10 °
11	24°C	24 %	0,7	5 m/s	310°
12	15°C	33%	0,6	6 m/s	310°
2b	18°C	31 %	0,7	4 m/s	315°
8b	18°C	31 %	0,6	5 m/s	310°

tableau 18 : conditions atmosphériques moyennes durant chaque rejet

Par ailleurs, pour évaluer la dispersion dans l'atmosphère de l'ammoniac, il est important de bien caractériser la turbulence de l'atmosphère.

La turbulence atmosphérique est due à la fois à des turbulences d'origine mécanique, engendrées par la rugosité du sol, et à des turbulences d'origine thermique liées à la stratification verticale de la température de l'atmosphère. Elle peut être évaluée par l'enregistrement en un point des fluctuations de la vitesse et de la direction du vent.

Deux types de turbulences d'origine mécanique peuvent encore être distingués : la turbulence à petite échelle et la turbulence à grande échelle.

La turbulence à petite échelle, engendrée par le frottement du vent sur le sol, est influencée par la rugosité. Elle s'exerce à l'intérieur d'une couche de quelques centaines de mètres de hauteur. Ce type de turbulence intervient de façon prépondérante dans le phénomène de dispersion.

La turbulence à grande échelle est liée à des phénomènes météorologiques lointains. Elle intervient au niveau du transport des particules ou de leur diffusion, lorsque le domaine d'étude s'étend sur plusieurs dizaines de kilomètres, ce qui n'est pas le cas dans ce programme.

Concernant les turbulences d'origine thermique, une caractéristique importante est la stabilité atmosphérique. Elle est liée au gradient vertical de densité de l'air, lui-même lié au gradient vertical de température. La variation adiabatique de température verticale est comprise entre $-0,6^{\circ}\text{C}/100\text{ m}$ et $-1^{\circ}\text{C}/100\text{ m}$ en fonction du taux d'humidité de l'air. De façon simplifiée, lorsque le gradient vertical de température est inférieur à celui d'une atmosphère adiabatique, l'atmosphère est dite instable. Si le gradient correspond à l'adiabatique, l'atmosphère est dite neutre. Enfin, si le gradient thermique est positif (donc supérieur à celui de l'adiabatique), l'atmosphère est dite stable, autrement dit peu favorable à une diffusion verticale efficace d'un polluant.

A cet égard, Pasquill propose une classification comportant 6 classes de stabilité atmosphérique, notées de A à F, et couvrant les cas des atmosphères très instables à instables (classes A et B), jusqu'aux cas des atmosphères stables à très stables (classes E et F), en passant par les cas neutres (classes C et D).

Lorsqu'une atmosphère est instable (classes A et B de Pasquill), la dispersion atmosphérique est favorisée ce qui conduit à la formation d'un panache très ouvert (Cf. figure 13).

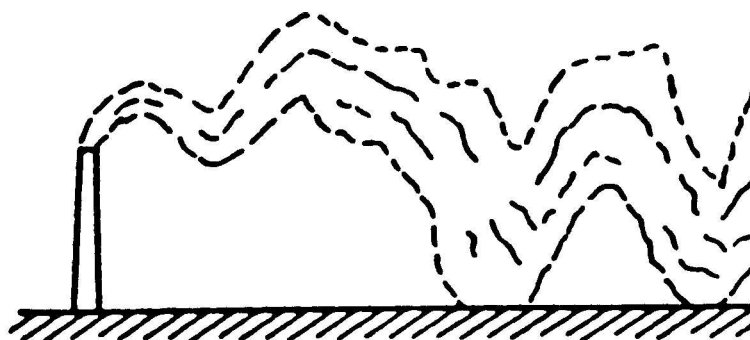


figure 13 : Dispersion dans une atmosphère instable

A l'opposé, lorsqu'une atmosphère est stable, son aptitude à diffuser verticalement un polluant est faible ce qui se traduit par la formation d'un panache très peu ouvert (Cf. figure 14).

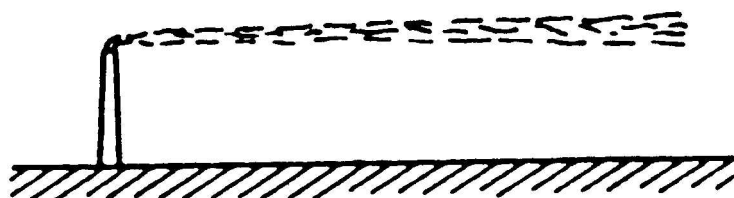


figure 14 : Dispersion dans une atmosphère stable

D'un point de vue expérimental, il existe différentes méthodes pour déterminer la stabilité de l'atmosphère, telles que, par exemple, la détermination :

- de l'écart type de la direction du vent (σ_θ) ;
- du gradient vertical de température (ΔT) ;
- du nombre de Richardson (Ri) ;
- de la longueur de Monin-Obukhov ;
- ou encore, des méthodes basées sur des critères tels que la vitesse moyenne du vent à une hauteur fixée, l'altitude du soleil, la couverture nuageuse, ...

A partir des différentes grandeurs mesurées lors de la campagne d'essais, nous avons mis en oeuvre deux de ces méthodes : la détermination de l'écart type de la direction du vent (σ_θ) et la méthode basée sur la détermination de la longueur de Monin-Obukhov. Après une description rapide de ces méthodes, nous présentons les résultats obtenus pour l'ensemble des essais.

Ecart type de la direction du vent (σ_θ)

Les écarts types de la direction du vent représentent essentiellement la stabilité horizontale de l'atmosphère (la turbulence verticale de l'atmosphère étant quant à elle estimée à partir du gradient vertical de température).

Pour chaque essai, l'écart type de la direction du vent (σ_θ) a été calculé sur une durée comprenant environ 5 minutes avant l'essai, la durée de l'essai et environ 15 minutes après l'essai, soit une durée de l'ordre de la demi-heure.

Détermination de la longueur de Monin-Obhuckov

Pour chacun des essais, nous avons également déterminé la longueur de Monin-Obukhov qui est une longueur caractéristique de la turbulence atmosphérique. Cette longueur, notée L , est définie comme suit :

$$L = -\rho C_p u^* / k(g/T_0)H$$

où ρ est la masse volumique du fluide, C_p est sa capacité calorifique, u^* est la vitesse de frottement, k est la constante de von Karman, g est la constante de gravité, T_0 est la température au sol et H est le flux de chaleur vertical.

Les valeurs de u^* et de H ont été déterminées à l'aide des valeurs mesurées par l'anémomètre ultrasonique dont la fréquence d'acquisition était de 10Hz.

Golder (1972) a établi une relation entre les classes de stabilité de Pasquill, la rugosité moyenne du terrain z_0 , et la longueur L (Cf. figure 15 ci-dessous).

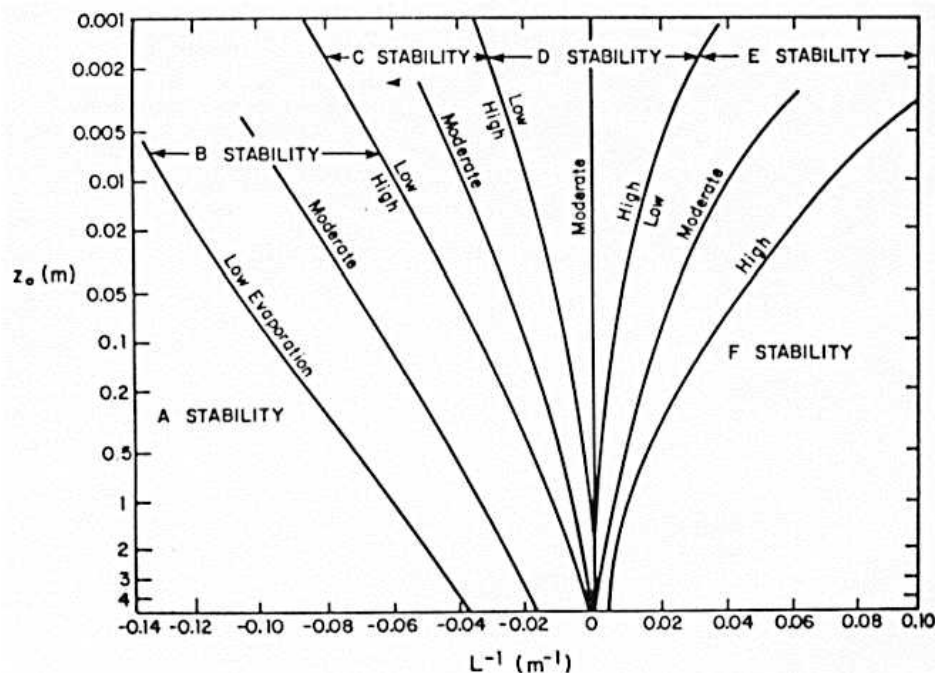


figure 15 : Relation entre la longueur de Monin-Obukhov L et la rugosité z_0 pour différentes classes de stabilité de Pasquill.

A partir des valeurs enregistrées lors des essais, les valeurs de σ_θ et de L ont été calculées. Puis, pour chaque essai, une estimation des classes de stabilité de Pasquill a été réalisée en retenant chacune de ces deux méthodes. Les résultats obtenus ont été reportés dans le tableau suivant. De plus, pour chacun des essais, une estimation de la longueur visible du panache est indiquée.

Essais n°	Classes de stabilité atmosphérique estimées		estimation de la longueur visible du panache (m)
	par la détermination des écarts types de la direction du vent (σ_θ)	par la détermination de la longueur de Monin-Obukhov (L)	
1	D	-	≈ 5 m
2	D	C/D	≈ 500 m
3	C	D	≈ 350 m
4 prel.	C	-	≈ 400 m
4	C	D	≈ 500 m
5	A	B	≈ 30 m
6	D	D	≈ 60 m
7	C	C/D	≈ 60 m
8	D	C	≈ 25 m
9	A	B/C	≈ 120 m puis ≈ 30m
10	A	A/B	≈ 70 m
11	C	C	≈ 70 m
12	D	C/D	≈ 70 m
2b	A	A/B	≈ 60 m
8b	C	B/C	≈ 15 m

- : non déterminée

tableau 19 : Classes de stabilité atmosphériques estimées lors des essais

La mise en oeuvre de ces méthodes, pour des conditions atmosphériques données, peut conduire à des classes de stabilité différentes. Durant les essais, il n'a cependant pas été noté de différences importantes.

Par ailleurs, concernant les conditions atmosphériques générales durant la réalisation des essais, les points suivants ont pu être notés :

- A partir de l'essai n° 4, il n'y a plus eu de pluie sur le terrain d'essais. C'est ainsi que des taux d'humidité relative assez faibles durant la journée (jusqu'à 20% pour l'essai n°10) ont été observés ;
- La partie visible du panache varie beaucoup. Comme nous l'avons mentionné précédemment, cela est principalement dû au taux d'humidité relative de l'atmosphère. En effet, le nuage d'ammoniac est relativement froid (environ -40°C sur l'axe du rejet à 20 mètres du point de rejet) du fait de la présence de gouttelettes d'ammoniac qui vont prendre la chaleur, notamment à l'air ambiant, pour se vaporiser. Les basses températures atteintes font que la vapeur d'eau présente sur la trajectoire du panache se condense et forme un nuage visible jusqu'à ce que le panache soit réchauffé par dilution avec l'air ambiant.
Pour des conditions de rejet presque identiques (essais 4 et 11), la partie visible du panache est ainsi passée d'environ 500 mètres à environ 70 mètres pour un taux d'humidité relative qui est passé de 82 à 24 % ;
- Le flux solaire a beaucoup varié entre les essais, avec des valeurs très faibles au début de la campagne ($0,04 \text{ kW/m}^2$) et élevé pendant le mois d'avril (1 kW/m^2) ;
- Pour l'ensemble des essais, la vitesse moyenne du vent a oscillé entre 2 et 6 m/s. La direction moyenne du vent de chaque essai était très variable. Ces directions moyennes du vent lors de chaque essai sont indiquées sur la figure page suivante.



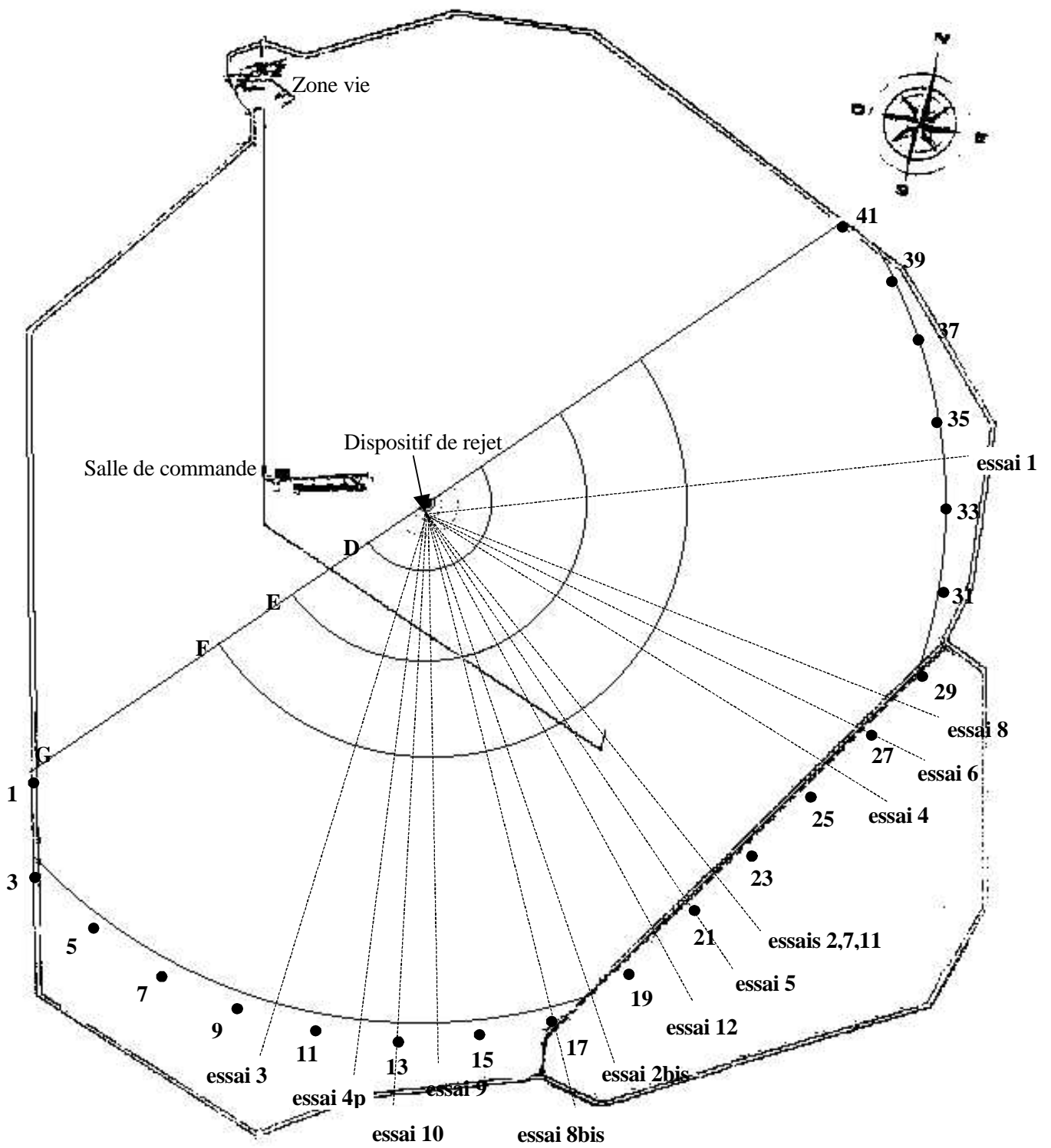


figure 16 : directions moyennes du vent lors des essais

6. MESURES ENREGISTREES SOUS LE VENT DES REJETS

Les valeurs enregistrées par les capteurs de concentration en ammoniac sous le vent des rejets sont présentées dans le sous-chapitre suivant.

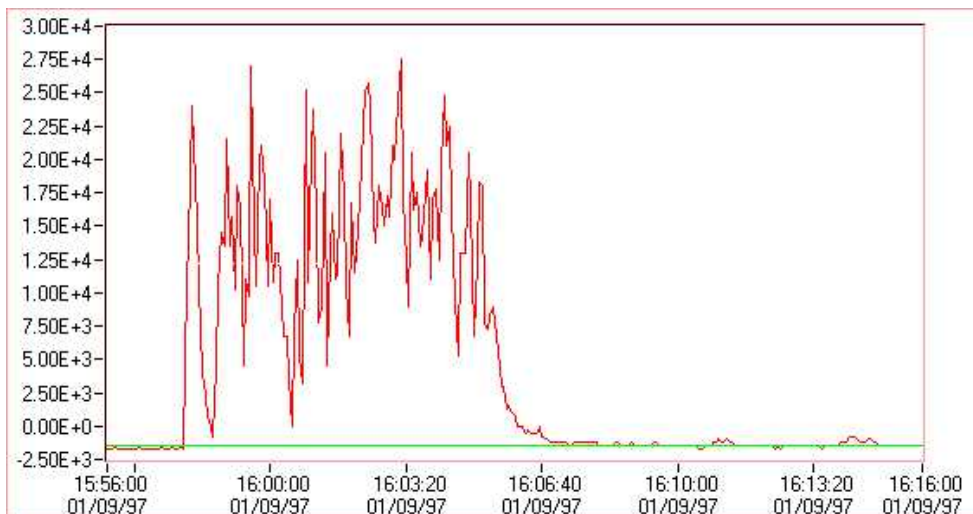
Ensuite, une analyse de ces valeurs est effectuée au sous-chapitre 6.2.

6.1. CAPTEURS DE CONCENTRATIONS EN AMMONIAC

Pour mémoire, les moyens de mesures de concentrations en ammoniac mis en oeuvre lors de la campagne d'essais sont décrits dans le chapitre 4. La mesure de ces concentrations s'est essentiellement effectuée sous le vent des rejets sur 7 arcs de cercle.

Les réponses des capteurs de concentration étaient très différentes selon leurs positions par rapport à l'axe du panache et par rapport à l'éloignement au point de rejet.

A titre d'exemple, nous reportons sur les deux figures ci-après, deux signaux représentant les concentrations d'ammoniac (en ppm) enregistrées lors de l'essai n°2 sous le vent du rejet, par un pellistor situé à 100 mètres du point de rejet (figure 16) et par une cellule électrochimique située à 800 mètres (figure 17). Pour mémoire, la durée du rejet était de 440 secondes.



*figure 16 : Evolution en fonction du temps
de la concentration en ammoniac (en ppm) à 100 m du point de rejet
observé lors de l'essai 2.*

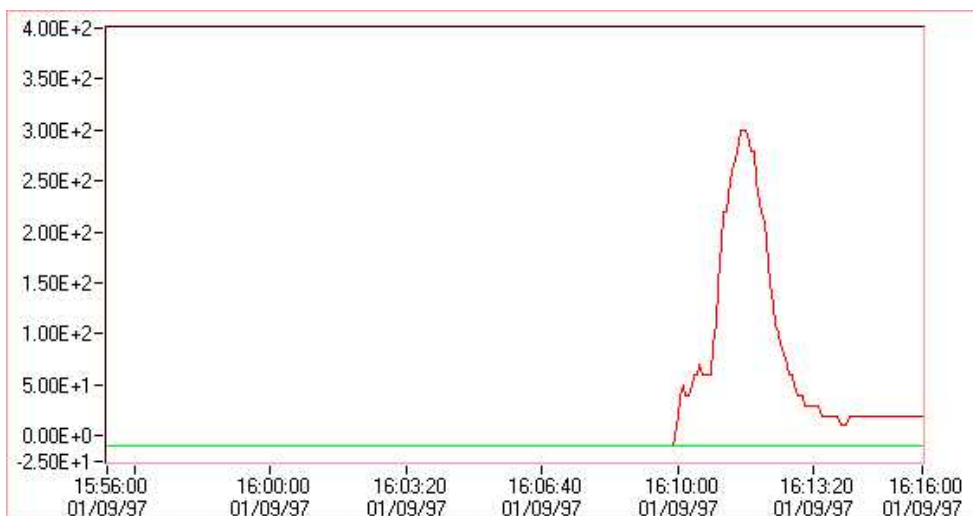


figure 17 : Evolution en fonction du temps de la concentration en ammoniac (en ppm) à 800 m du point de rejet observé lors de l'essai 2.

Selon les phénomènes à étudier, il existe différentes possibilités d'effectuer l'analyse des fluctuations de concentration qui ont été enregistrées lors des essais. Dans le présent document, les valeurs de concentrations qui seront présentées sont les valeurs moyennes des concentrations mesurées sur l'axe du panache.

Pour obtenir ces valeurs, nous avons relevé, à chaque pas de temps (de 4 s), la valeur de concentration maximale sur chacun des 6 arcs de cercle situés à 20, 50, 100, 200, 500 et 800 mètres du point de rejet. Ensuite, nous avons effectué sur chaque arc de cercle une moyenne de l'ensemble des valeurs maximales relevées au cours du temps en excluant la première et la dernière minute d'exposition de chaque capteur. Le début d'exposition des capteurs a été déterminé en considérant un temps d'advection du nuage. Ce temps a été pris égal au rapport de la distance entre l'arc de cercle considéré et le point de rejet par la vitesse moyenne du vent pendant le rejet.

Le tableau suivant présente pour chacun des essais réalisés les valeurs de concentration moyennes ainsi déterminées sur l'axe du panache.

concentrations moyennes en ppm mesurées à 1 m de hauteur sur l'axe du rejet						
essai n°	20m	50m	100m	200m	500m	800m
1	15 000	4 500	1 500	400	40	10
2	55 000	31 000	20 000	9 000	900	300
2b	33 000	18 000	6 600	1 600	60	20
3	33 000	20 000	8 000	2 700	250	100
4	65 000	27 000	16 000	10 000	1 200	500
5	28 000	14 000	6 500	1 500	140	30
6	28 000	13 000	7 300	2 500	450	150
7	25 000	11 000	5 300	1 000	160	60
8	26 000	12 000	-	-	-	-
8b	20 000	8 500	4 000	800	70	30
9	20 000	5 000	2 000	450	30	5
10	65 000	29 000	18 000	4 000	80	20
11	65 000	27 000	15 000	3 500	300	80
12	60 000	20 000	7 000	1 500	120	-

- : valeur de concentration sur l'axe du panache non mesurée

*tableau 20 : Concentrations moyennes en ammoniac
sur l'axe du panache à 1 m de hauteur*

L'essai 4p décrit dans le chapitre 4 était un essai intermédiaire pour valider la réalisation des essais suivants. Les valeurs de concentration mesurées lors de cet essai ne permettent pas de déterminer les valeurs moyennes sous le vent du rejet. Cet essai n'est donc pas mentionné dans le tableau ci-dessus.

Les valeurs de concentration d'ammoniac reportées dans le tableau 20 précédent ont été arrondies compte tenu de la précision des capteurs. L'évolution des concentrations d'ammoniac sur l'axe du panache en fonction de la distance au point de rejet a été tracée pour chaque essai. Ces évolutions sont reportées sur la figure 18 page suivante.

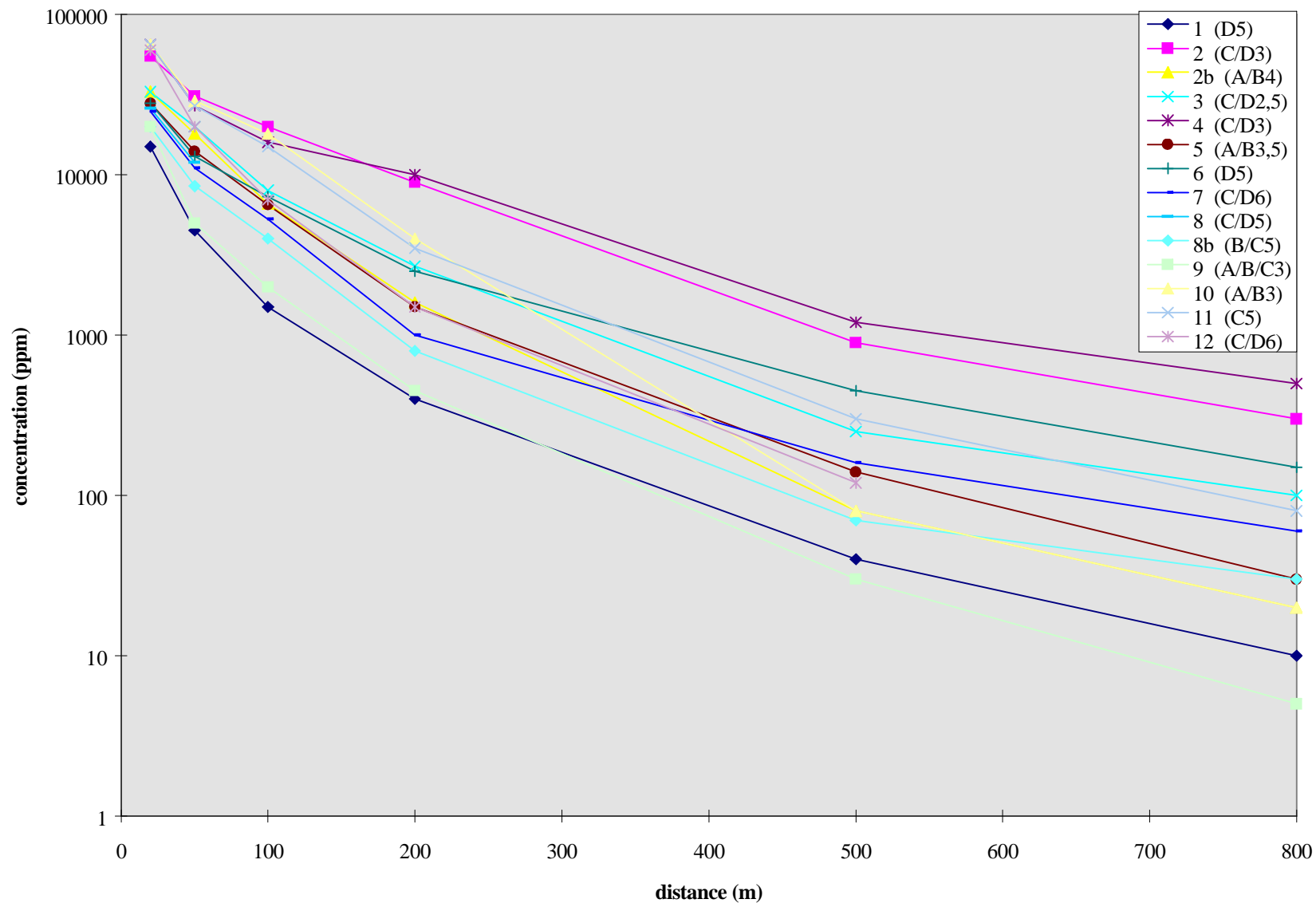


figure 18 : Evolution des concentrations en ammoniac sur l'axe du panache en fonction de la distance au point de rejet

D'une manière générale, à l'issue des essais on peut noter plusieurs remarques :

- Les rejets d'ammoniac liquéfié se comportent comme des rejets de gaz lourds tel qu'illustré sur la figure 19 ci-après. Sur cette figure, nous avons reporté les réponses de 4 capteurs situés sur un même mât à 50 mètres du point de rejet et sur l'axe de la trajectoire du panache lors de l'essai 10.

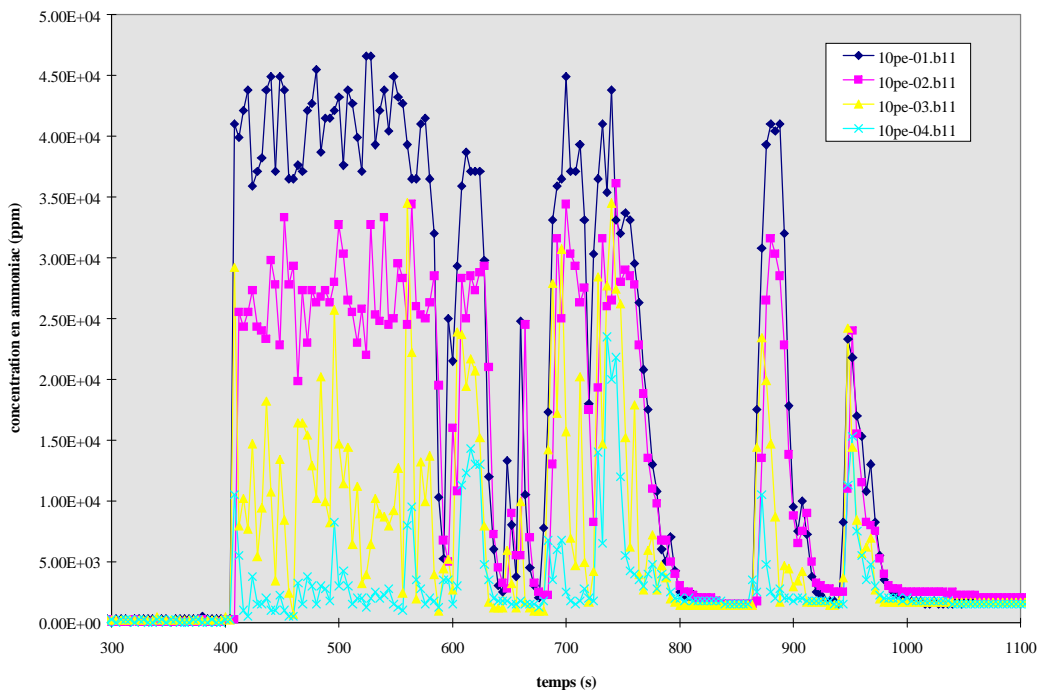


figure 19 : Evolution des valeurs de concentrations en ammoniac pour des capteurs situés sur un même mât à 50 mètres du point de rejet.

Sur ce mât, les hauteurs des capteurs, repérées de 01 à 04 dans la légende associée à ces courbes, sont respectivement de 0,1 m, 1 m, 2 m et 3 m au-dessus du sol.

Le gradient vertical de concentration en ammoniac est important à 50 mètres du point de rejet. En effet, au niveau du sol, la concentration est supérieure à 40 000 ppm (4%) et est plus de 10 fois inférieure à 3 mètres de hauteur pour cet essai.

Par ailleurs, les conditions météorologiques étant instables le jour de cet essai, on peut constater par moment de grandes fluctuations des valeurs de concentration en ammoniac.

Le gradient vertical de concentration en ammoniac est encore prononcé à 100 mètres du point de rejet, tel qu'illustré sur la figure 20 suivante pour deux capteurs situés à 1 et 3 mètres de hauteur.

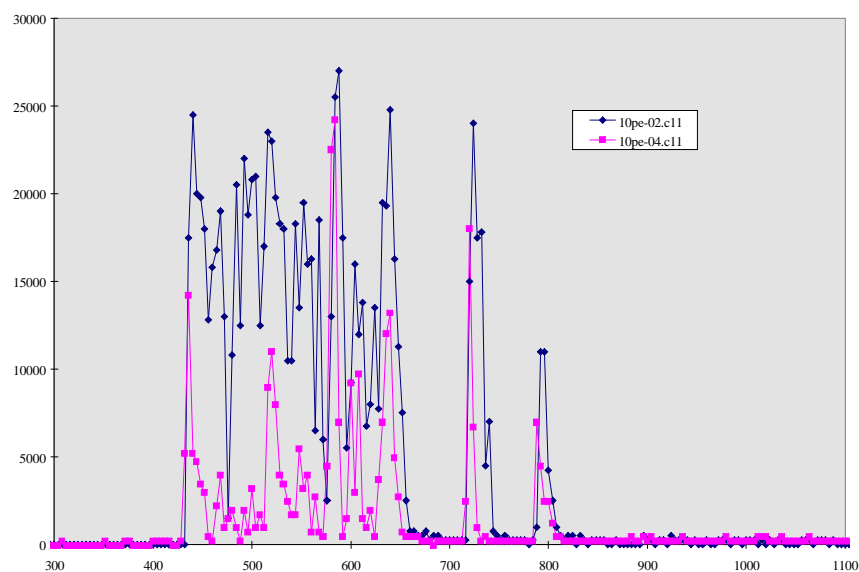


figure 20 : Evolution des valeurs de concentrations en ammoniac pour des capteurs situés sur un même mât à 100 mètres du point de rejet

D'une manière générale, un gradient vertical de concentration au sein du nuage a toujours été observé à 200 mètres du point de rejet.

Ceci étant, à partir de 500 mètres, les valeurs de concentration mesurées à 1 et 3 mètres de hauteur au-dessus du sol étaient quasiment identiques tel qu'illustré sur la figure 21 ci-après.

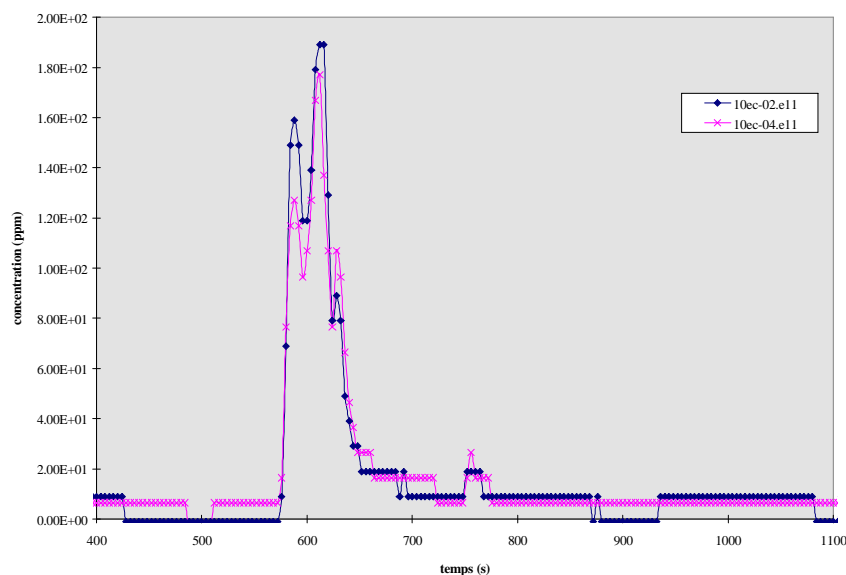


figure 21 : Evolution des valeurs de concentrations en ammoniac pour des capteurs situés sur un même mât à 500 mètres du point de rejet

- Lors du rejet d'ammoniac en phase gazeuse, il a également été observé un comportement de type gaz lourd sur les capteurs situés à 20 mètres du point de rejet (Cf. figure 22). Cependant, à 50 mètres du point de rejet cet effet n'est presque plus sensible.

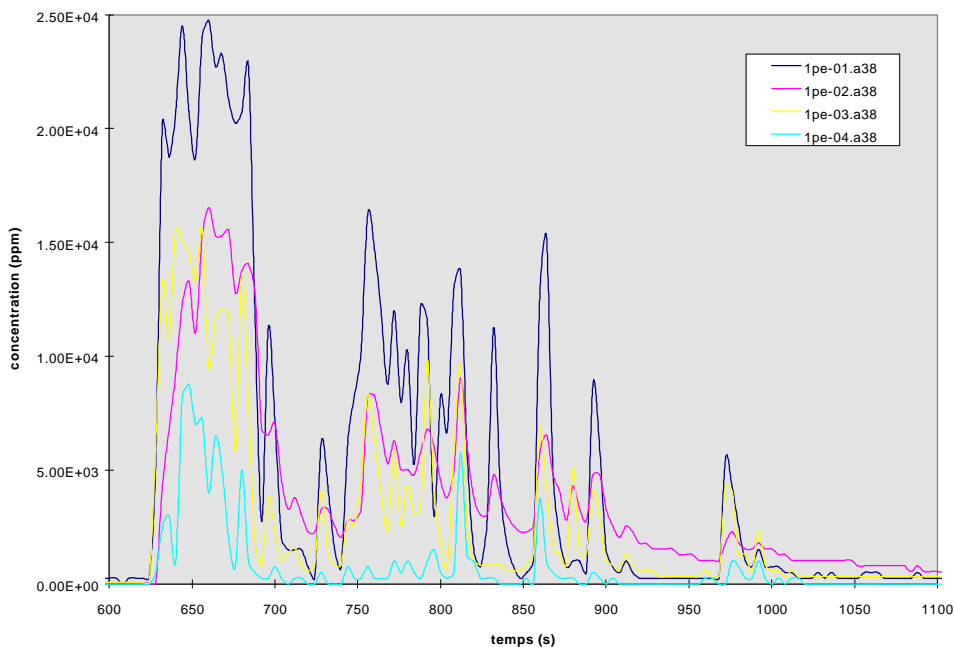


figure 22 : Evolution des capteurs de concentration en ammoniac situés à 20 mètres du point de rejet

De plus, lors de l'ensemble des essais, il n'a jamais été observé d'élévation du nuage d'ammoniac formé.

6.2. ANALYSES

Dans ce paragraphe, nous allons étudier l'influence de quelques paramètres sur la dispersion atmosphérique de l'ammoniac. Ces paramètres sont :

- le type d'orifice ;
- la stabilité atmosphérique ;
- la présence d'obstacle ;
- la présence d'une rétention ;
- et la mise en œuvre de queues de paon.

Enfin, dans une dernière partie, les résultats expérimentaux mesurés lors cette campagne d'essais sont comparés à des résultats de calculs obtenus au moyen d'un logiciel intégral de dispersion atmosphérique.

6.2.1. Influence de l'orifice du rejet

Lors de la réalisation des essais, 4 types d'orifice ont été mis en oeuvre sur le dispositif de rejet, à savoir :

- | | |
|---|--|
| A) un orifice de 18 mm de diamètre | Essai 2b |
| B) un orifice de 20 mm de diamètre | Essai 2 |
| C) une bride de 2 pouces (50,8 mm) | Essai 3 |
| D) et un orifice de 50,8 mm de diamètre | Essais 1, 4, 10, 11, 12 (5 rejets en champ libre)
Essais 5, 6, 7, 8, 8b, 9 (6 rejets impactant) |

Par la suite, ces 4 types d'orifice seront notés de A à D.

Afin d'évaluer l'influence du type d'orifice sur la dispersion atmosphérique, une largeur du panache d'ammoniac a été estimée pour les 8 rejets en champ libre au niveau de l'arc de cercle situé à 20 mètres du point de rejet. Pour estimer cette largeur, nous avons déterminé pour chaque essai la zone où la concentration en ammoniac était supérieure ou égale à la moitié de la concentration maximale relevée à 20 mètres. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau ci-après.

type d'orifice	essai	largeur du panache où $C > C_{max}/2$	secteur angulaire associé
A	2b (ϕ 18 mm)	9 m	25°
B	2 (ϕ 20 mm)	9 m	25°
C	3 (bride)	49 m	140°
D	1	4 m	11°
	4	5 m	15°
	10	6 m	18°
	11	5 m	16°
	12	7 m	20°

tableau 21 : largeur du panache pour les rejets en champ libre

De ce tableau, il ressort plusieurs remarques :

- Le rejet à travers la bride (orifice C) produit, dans le champ proche, le nuage le plus large de tous les essais en champ libre. Cela est principalement dû au fait que la bride oriente la projection de l'ammoniac suivant des directions perpendiculaires à l'axe du rejet. Le panache qui en résulte est un panache très étendu en largeur qui progresse axialement sous l'effet du vent. Ainsi, malgré un débit de 33 % supérieur à l'essai 2b, les valeurs de concentration en ammoniac mesurées lors de l'essai 3 avec la bride sont du même ordre de grandeur que lors de l'essai 2b sur les 50 premiers mètres ;
- Les essais dont l'extrémité est libre (orifice D de 50,8 mm de diamètre) conduisent à des jets dits « jets bâtons ». Dans ces conditions, la largeur du panache est plus étroite que dans les autres conditions ;
- Enfin, les rejets où il a été ajouté une restriction de diamètre à l'extrémité (orifices A et B), conduisent à des largeurs de panache supérieures. Cela est peut être dû au fait que pour ces essais, la restriction de diamètre à l'orifice conduit à une pression dans la canalisation au niveau de la brèche (> 5 bar) qui est supérieure à la pression à la brèche pour les essais sans restriction de diamètre (entre 1,5 et 3 bar). Il s'ensuit que le flash thermodynamique qui se produit à la sortie dans l'atmosphère est plus important, et donc l'expansion volumétrique résultante conduit à une dimension du panache plus importante.

En résumé, les orifices influent sur la physionomie du nuage (largeur, hauteur), et par conséquent ensuite sur les concentrations moyennes. Ceci est clairement visible et mesurable durant les 50 premiers mètres. Plus loin, cette influence s'efface devant celle de la stabilité atmosphérique, comme cela est montré par la suite dans ce rapport.

6.2.2. Influence de la stabilité atmosphérique

L'influence sur la dispersion atmosphérique des conditions de rejet dans le champ proche peut être importante sur quelques dizaines de mètres après le point de rejet. Plus loin, c'est la stabilité atmosphérique qui devient prépondérante car on se trouve alors en phase de dispersion passive.

Ainsi, des différences de concentration importantes peuvent être observées en champ lointain pour des rejets de débits identiques mais avec des conditions de stabilité atmosphériques différentes. A titre d'exemple, les essais 5 et 6 ont été réalisés avec des conditions de rejet similaires et avec des conditions atmosphériques différentes, respectivement de type (A/B; 3,5 m/s) pour l'essai 5 et de type (D; 5 m/s) pour l'essai 6.

Par ailleurs, les essais 10 et 11 ont été réalisés le même jour, le premier en début d'après-midi et le second en fin d'après-midi, avec des conditions de rejet identiques et des conditions atmosphériques différentes, respectivement de type (A/B; 3 m/s) pour l'essai 10 et de type (C; 5 m/s) pour l'essai 11.

Les évolutions des concentrations des essais 5 et 6 d'une part, et des essais 10 et 11 d'autre part, sont décrites sur le graphe de la figure 23 ci-après.

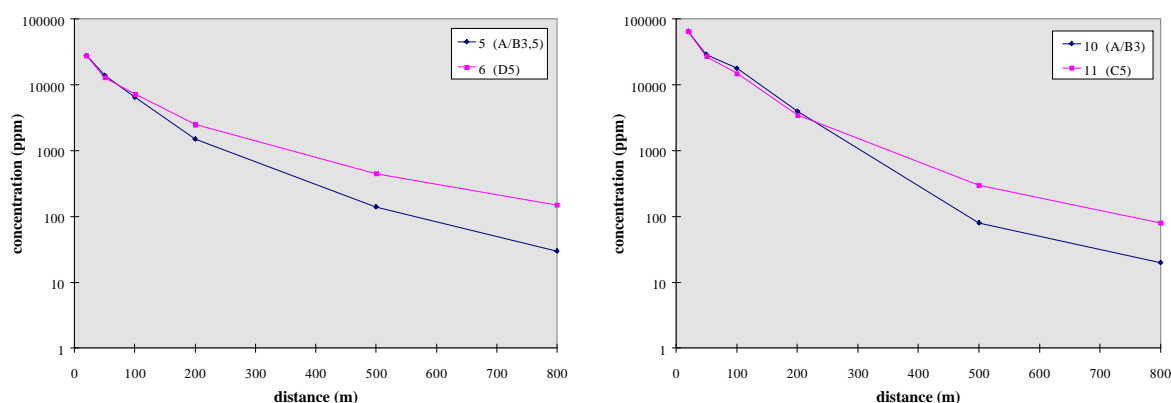


figure 23 : Evolution des concentrations sur l'axe du rejet en fonction de la distance pour des conditions météorologiques différentes.

Sur ces graphes, on peut observer une différence de concentration d'un facteur 4 à 5 à 800 mètres du point de rejet alors que les concentrations sont quasiment égales dans les 100 premiers mètres.

D'autre part, des essais avec des conditions atmosphériques de même type ont été réalisés lors de la campagne d'essais. Lorsque l'on compare ces essais entre eux, on observe une dilution du panache qui est similaire entre les essais. A titre d'exemple, nous avons reproduit sur la figure suivante deux graphes présentant les conditions de dispersion des essais 2 et 4, dont les conditions de rejet étaient voisines (débit voisin, sections différentes) et des essais 8b et 11, dont les conditions de rejet étaient différentes.

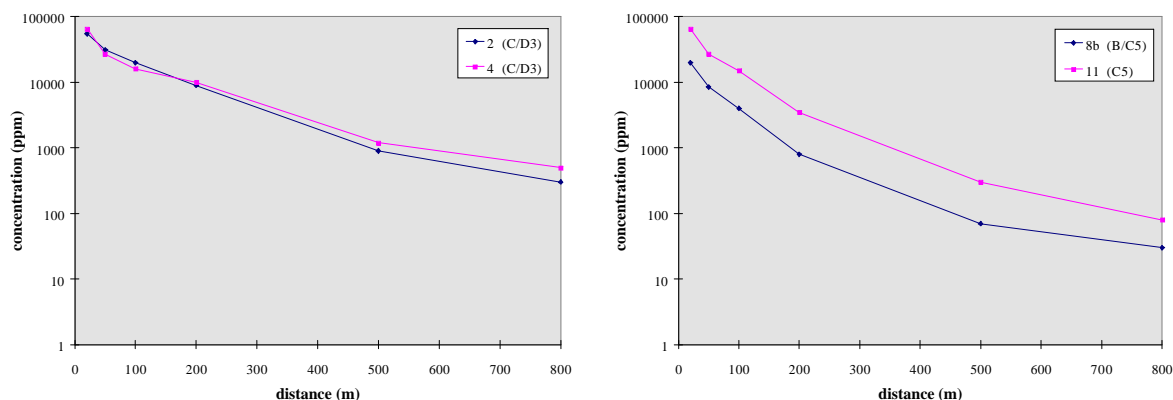


figure 24 : Evolution des concentrations sur l'axe du rejet en fonction de la distance pour des conditions météorologiques similaires.

L'évolution des concentrations d'ammoniac en fonction de la distance au point de rejet est presque identique entre les essais. Il est à noter que dans la réalité, l'écoulement atmosphérique est difficilement reproductible, et ainsi, il est peu probable que deux essais avec le même terme source aboutissent à des résultats identiques en terme de concentrations sous le vent d'un rejet.

6.2.3. Influence d'un obstacle placé dans le champ proche

Durant la campagne d'essais, six rejets impactant une surface dans le champ proche ont été mis en œuvre, à savoir les essais 5, 6, 7, 8, 8b et 9. Pour mémoire, les essais 5 et 6 étaient des rejets horizontaux contre un mur respectivement placé à 3 et à 1 mètre du point de rejet. Les 4 autres essais concernent des rejets verticaux descendant et impactant le sol. Pour les essais 7 et 8, il n'y avait pas de rétention au sol. Pour les essais 8b et 9, une rétention a été installée. Ces deux derniers essais seront étudiés dans le paragraphe suivant intitulé « Influence d'une rétention ».

Il est à noter que lors des essais 5 à 9, les conditions de stabilité atmosphérique déterminées expérimentalement ont été quasiment toutes différentes, allant de la classe A/B à la classe D.



Concernant les deux rejets horizontaux impactant un mur, les conditions de rejets sont similaires aux conditions de l'essai 4 (rejet en champ libre). Une comparaison de ces trois essais a donc été réalisée. L'évolution des valeurs de concentrations d'ammoniac sous le vent du rejet est reportée sur la figure ci-après pour ces trois essais.

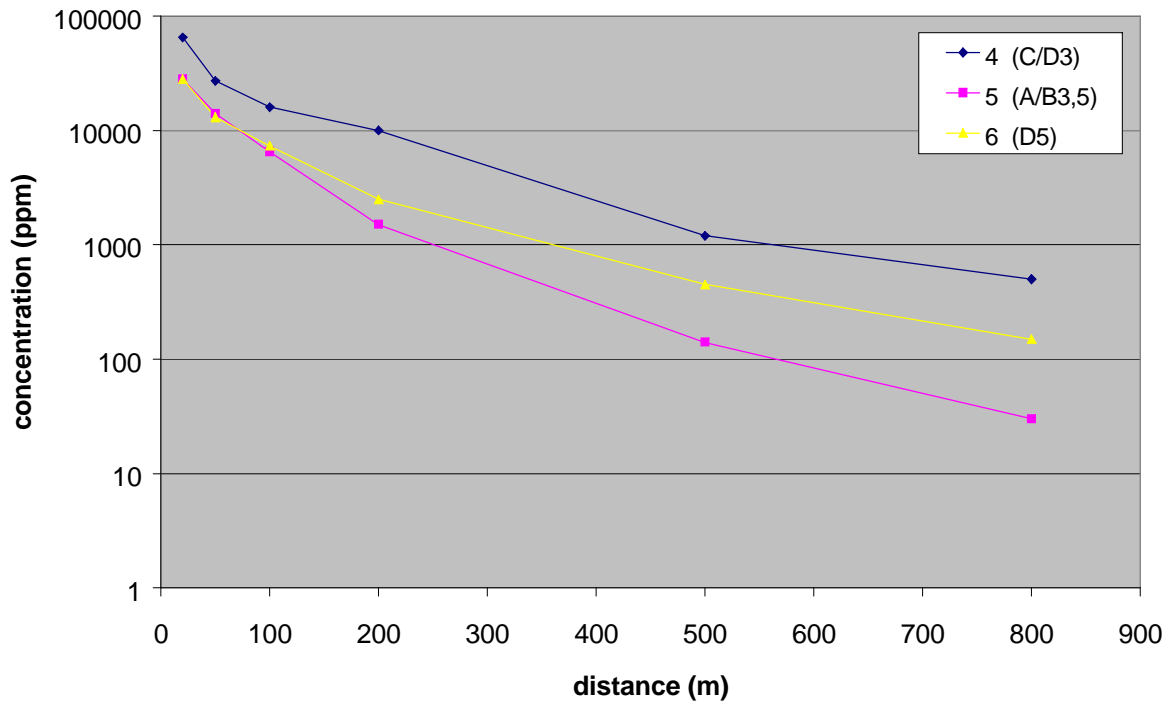


figure 25 : Evolution des concentrations en fonction de la distance pour les essais 4, 5 et 6

On constate que les valeurs de concentration d'ammoniac enregistrées pour les essais 5 et 6 après le mur à 20 et 50 mètres du point de rejet sont très proches, et ce, que le mur soit situé à 1 ou 3 mètres du point de rejet.

En revanche, lorsque le rejet s'effectue en champ libre, les valeurs des concentrations d'ammoniac enregistrées par les capteurs sont supérieures d'un facteur 2 jusqu'à 50 mètres du point de rejet. Ensuite, il est plus difficile de comparer les valeurs, l'influence des conditions météorologiques étant prépondérante sur la dispersion du panache.

Deux phénomènes peuvent expliquer la diminution de la concentration dans le champ proche (à moins de 50 mètres du lieu du rejet en l'occurrence) lorsque l'on passe de l'essai 4 aux essais 5 et 6.

En premier lieu, il y a une augmentation du niveau de turbulence mécanique, car le panache est obligé de contourner l'obstacle constitué par le mur. L'écoulement de l'air s'effectue alors par les côtés et par le dessus du mur.

En second lieu, l'impact du jet d'ammoniac constitué de fines gouttelettes sur la face du mur conduit à la formation d'un film très froid d'ammoniac liquide ce qui favorise le ruissellement des gouttelettes puis la formation d'une flaque au pied du mur. A cet égard, les thermocouples installés sur la dalle de rejet pour les essais 5 et 6 indiquent :

- des valeurs de température comprises entre -40°C et -60°C pour les thermocouples installés sur le mur ;
- et des valeurs de température de l'ordre de -60°C tout au long du rejet pour la majorité de ceux installés au niveau du sol.

Ainsi, un des effets de la présence d'un mur dans le champ proche d'un rejet de gaz liquéfié est de favoriser la recondensation d'une partie de l'ammoniac rejeté et au travers de la formation d'un film liquide d'ammoniac d'engendrer le ruissellement de la phase liquide. Ceci a pour conséquence immédiate de diminuer les concentrations d'ammoniac en aval du mur. Il est à noter que pour ces deux essais, il n'y avait pas de cuvette de rétention. Ainsi, une partie de l'ammoniac liquide s'est répandu sur une surface, dont la dimension est difficile à estimer. Cet ammoniac sous forme liquide s'est ensuite vaporisé. De ce point de vue, rien n'a pu être chiffré.

Au paragraphe 6.1, nous avons vu que le nuage d'ammoniac avait un comportement de type gaz lourd jusqu'à une distance supérieure à 200 mètres du point de rejet lorsqu'il était rejeté en phase liquide dans nos conditions d'essais et notamment sous forme de jet en champ libre. A l'analyse des résultats, il apparaît que ce comportement de type gaz lourd est moins prononcé pour les rejets ayant impacté un mur dans le champ proche.

Typiquement, lorsque le rejet a été réalisé en champ libre, deux capteurs installés à deux hauteurs différentes, sur un même mât de mesure situé à 50 m du point de rejet, indiquent à 3 m de hauteur des valeurs de concentrations de 5 à 10 fois plus faibles que celles mesurées à 1 m de hauteur.

Après un impact contre un mur, le gradient vertical de concentration est tel que les valeurs de concentration mesurées à 3 m de hauteur ne sont que deux fois plus faibles environ que celles mesurées à 1 m de hauteur.

- Concernant les deux rejets verticaux impactant le sol sans rétention (essais 7 et 8), leurs conditions de rejets étaient voisines de celles des essais 4, 5 et 6. Nous avons reporté sur le graphe ci-après, l'évolution des concentrations en ammoniac sous le vent des rejets des essais 4, 5, 6, 7 et 8.

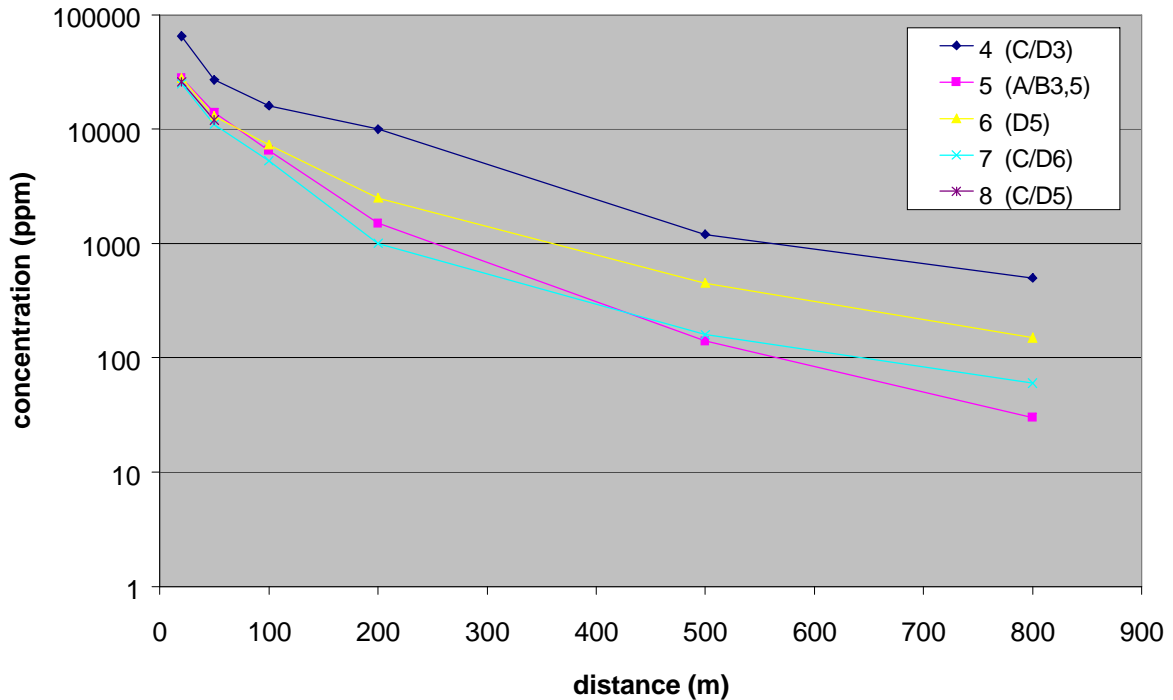


figure 26 : Evolution des concentrations en fonction de la distance pour les essais 4, 5, 6, 7 et 8.

Sur la figure précédente, l'essai 8 n'apparaît pas au-delà de 50 m en raison d'un changement de la direction du vent en cours d'essai tel que les mesures faites ne permettent pas de déduire la concentration moyenne sur l'axe alors déporté du nuage. Néanmoins, il apparaît que le niveau de concentration en ammoniac est du même ordre de grandeur jusqu'à 50 m du point de rejet pour les quatre essais ayant rencontré un obstacle.

Les conditions de rejet des essais 7 et 8 sont telles que le débit massique de ces essais (3,9 kg/s) est légèrement inférieur par rapport aux essais 4, 5 et 6 (4,2 kg/s). De manière identique aux essais 5 et 6, on retrouve à peu près la même différence de concentration entre les essais 7 et 8 et l'essai 4, soit une diminution d'environ 50% jusqu'à 50 m du point de rejet. Au-delà, nous n'avons pas suffisamment d'informations pour pouvoir comparer par rapport à l'essai 8.

Concernant les essais 4, 6 et 7, la stabilité de l'atmosphère a été estimée comme étant toujours neutre (classes C ou D de Pasquill). Cependant, la vitesse du vent est différente pour ces trois essais. La vitesse moyenne pendant ces trois essais a été calculée entre 3 et 6 m/s, avec des amplitudes de la vitesse comprises entre 1 et 10 m/s. La différence de l'évolution des concentrations en ammoniac sous le vent des rejets 6 et 7 peut s'expliquer de deux manières :

- par une meilleure dilution du panache due à des conditions atmosphériques plus favorables ;
- par une quantité d'ammoniac liquide piégée autour du point de rejet plus importante.

Par ailleurs, des températures de l'ordre de -60°C ont été relevées au sol pour chaque essai. L'étendue de cette flaque n'a pu être estimée de manière précise et encore moins son épaisseur (a priori faible). Au cours du rejet, cette flaque s'évapore. Une fois le rejet terminé, certains capteurs décèlent des températures en dessous de -50°C encore 4 minutes après la fin du rejet, ce qui souligne l'importance de la flaque au sol sans qu'il ait été possible de la quantifier en l'absence de rétention.

En résumé, le fait qu'un rejet soit orienté contre un mur ou contre le sol semble engendrer une réduction importante des concentrations en ammoniac sous le vent de (environ 50 % dans nos configurations de rejet) à la fois dans le champ proche du rejet et dans le champ lointain.

6.2.4. Influence d'une rétention

Parmi les quinze essais réalisés lors de cette campagne, une rétention a été mise en place sur la dalle de rejet pour les essais 8b et 9. La configuration du rejet est identique pour ces deux essais, à savoir des rejets verticaux impactant le sol depuis 1 m de hauteur. Seule la dimension de la rétention est différente entre ces deux essais. Pour l'essai 8b, la surface de la rétention était de 100 m^2 et la hauteur de 5 cm, soit un volume de rétention de 5 m^3 . Pour l'essai 9, la surface de la rétention était réduite à 4 m^2 et la hauteur de 1 m, soit un volume de rétention de 4 m^3 .

Nous avons vu dans le paragraphe précédent relatif aux rejets impactant un obstacle (essais 5, 6, 7 et 8) que, d'une manière générale, à la fin de chaque rejet impactant, la dalle de béton était largement mouillée par l'ammoniac liquide. En particulier, pour les rejets qui ont directement impacté le sol, la totalité de la dalle était mouillée. Toutefois, la quantité d'ammoniac liquide au sol n'a pas pu être estimée. En revanche, les essais 8b et 9 permettent d'estimer la quantité d'ammoniac liquide piégée au sol.

Lors de l'essai 8b, 2 120 kg d'ammoniac ont été relâchés pendant la durée de l'essai. A la fin de cet essai, une hauteur d'environ 1,5 à 2 cm d'ammoniac liquide était observable dans la cuvette de rétention, soit un volume d'environ 1,5 à 2 m^3 . La température de l'ammoniac liquide à la fin du rejet était d'environ -60°C comme pour les essais précédents.

Ainsi, nous pouvons estimer que la quantité d'ammoniac liquide présente sur la dalle de rejet était comprise entre 1 050 et 1 400 kg, ce qui représente entre 50 % et 65 % de la quantité massique totale rejetée.



Lors de l'essai 9, 2 370 kg d'ammoniac ont été relâchés pendant la durée de l'essai. A la fin de l'essai 9, une hauteur d'environ 55 cm de liquide était observable dans la cuvette de rétention, soit un volume d'environ 2,2 m³. La température de l'ammoniac liquide à la fin du rejet était aux alentours de -42°C. Il faut noter qu'au cours de cet essai, de légères fuites ont été observées en partie basse de la rétention. De plus, une partie de l'ammoniac liquide a été projetée hors de la rétention sous l'effet de la vitesse du jet sur la nappe d'ammoniac. Les projections d'ammoniac liquide en dehors de la rétention n'ont pas pu être quantifiées avec précision.

Ainsi, nous pouvons estimer qu'à la fin du rejet, la quantité d'ammoniac liquide présente dans la rétention était supérieure à 1 520 kg, ce qui représente environ 65 % de la quantité massique totale rejetée.

Par ailleurs, l'ammoniac liquide dans une rétention ne s'évapore pas rapidement. En effet, l'ammoniac a besoin d'une quantité de chaleur importante pour se vaporiser. Il trouve cette énergie par apport extérieur (température de l'air ambiant, vitesse du vent, radiation solaire, pluie, ..), et en abaissant sa température. C'est ainsi que lors de l'essai 9, la température de l'ammoniac liquide est passée de -40°C à la fin du rejet, à -60°C une heure après (température atteinte pour les autres essais beaucoup plus rapidement).

L'évolution des concentrations en ammoniac sous le vent des rejets impactant dans une cuvette est difficile à comparer avec les rejets impactant sans cuvette, car

- Les mesures faites lors de l'essai 8 (changement de direction du vent) sont insuffisantes pour comparer avec l'essai 8b ;
- lors de l'essai 9, on constate une décroissance des valeurs de concentration en ammoniac au cours du temps ;
- et les conditions météorologiques des différents essais sont différentes.

La figure suivante représente l'évolution de la concentration en ammoniac mesurée en champ proche à 20 m du point de rejet en fonction du temps pour l'essai 9.

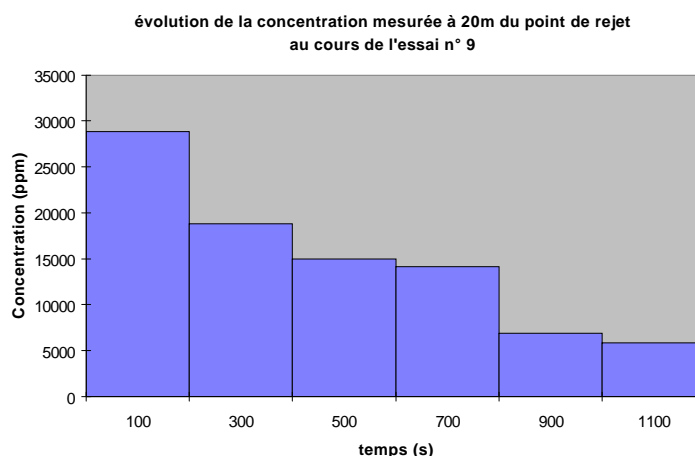


figure 27

Sur cette figure, une moyenne des valeurs de concentration en ammoniac a été effectuée à partir des mesures faites toutes les 200 secondes.

La décroissance des concentrations en ammoniac au cours du temps pour l'essai 9 peut être interprétée de la façon suivante. Au début du rejet, l'ammoniac liquide impactant la rétention se vaporise très vite grâce à l'apport d'énergie du béton constituant la rétention. Au cours du temps la température diminue progressivement permettant la rétention d'ammoniac liquide et la diminution de la quantité d'ammoniac vaporisée au cours du temps.

Ainsi, une rétention peut constituer un moyen efficace pour réduire le niveau de concentration dans l'environnement suite à un rejet pour autant qu'elle soit convenablement placée et dimensionnée. En particulier, il faut noter qu'une rétention installée sous le lieu de la fuite peut s'avérer inefficace si le jet ne vient pas l'impacter directement, ou indirectement après l'impact sur un obstacle.

Par ailleurs, la rétention doit être bien entretenue. Notamment, il faut éviter la présence d'eau à l'intérieur car cette eau apporterait de l'énergie supplémentaire pour vaporiser une quantité plus importante d'ammoniac liquide.

6.2.5. Influence d'un écran d'eau réalisé à partir de queues de paon

Lors de cette campagne d'essais, deux rejets ont mis en œuvre des queues de paon installées sur la trajectoire du rejet. Pour ces deux essais, notés 10 et 11, deux queues de paon de diamètre 70 mm ont été respectivement situées à 25 m et à 60 m du point de rejet tel que décrit dans le chapitre 4. L'objectif de ces deux essais était d'essayer d'évaluer l'influence de la présence d'un écran d'eau sur la dispersion atmosphérique.

Pour étudier cette influence pour chacun des deux essais, nous avons réalisé un rejet en champ libre pendant environ 10 minutes. Afin de pouvoir comparer les résultats des valeurs de concentration en ammoniac dans des conditions de dispersion atmosphérique qui soient les plus semblables possibles avant et après la mise en service des queues de paon, nous avons déclenché le fonctionnement des queues de paon seulement 5 minutes après le début du rejet.

A l'analyse des résultats, il apparaît que d'importantes fluctuations des conditions atmosphériques ont été enregistrées durant les essais, et notamment la direction du vent qui n'est pas restée constante. Ainsi, durant les essais, le panache d'ammoniac est passé quelquefois à côté de l'écran d'eau.

Par ailleurs, dans nos conditions de rejet lors de l'essai 10, le jet d'ammoniac traversait l'écran d'eau situé à 20 m, ce qui rend pratiquement inefficace ce type d'écran. Par moment, le jet était dirigé sur la queue de paon où l'eau sort à sa plus grande vitesse. Dans ces conditions, un brassage mécanique du panache pouvait être observé car le jet était dévié de sa trajectoire. Cependant, lors de cet essai, le nuage est passé le plus souvent entre les deux queues de paon ce qui fait que la concentration au centre du panache ne s'en est pas trouvé beaucoup affectée.

A titre d'illustration des pages précédentes, nous avons reporté sur le graphe de la figure suivante l'évolution des concentrations moyennes en ammoniac sous le vent du rejet 11 avant et après la mise en service des rideaux d'eau.

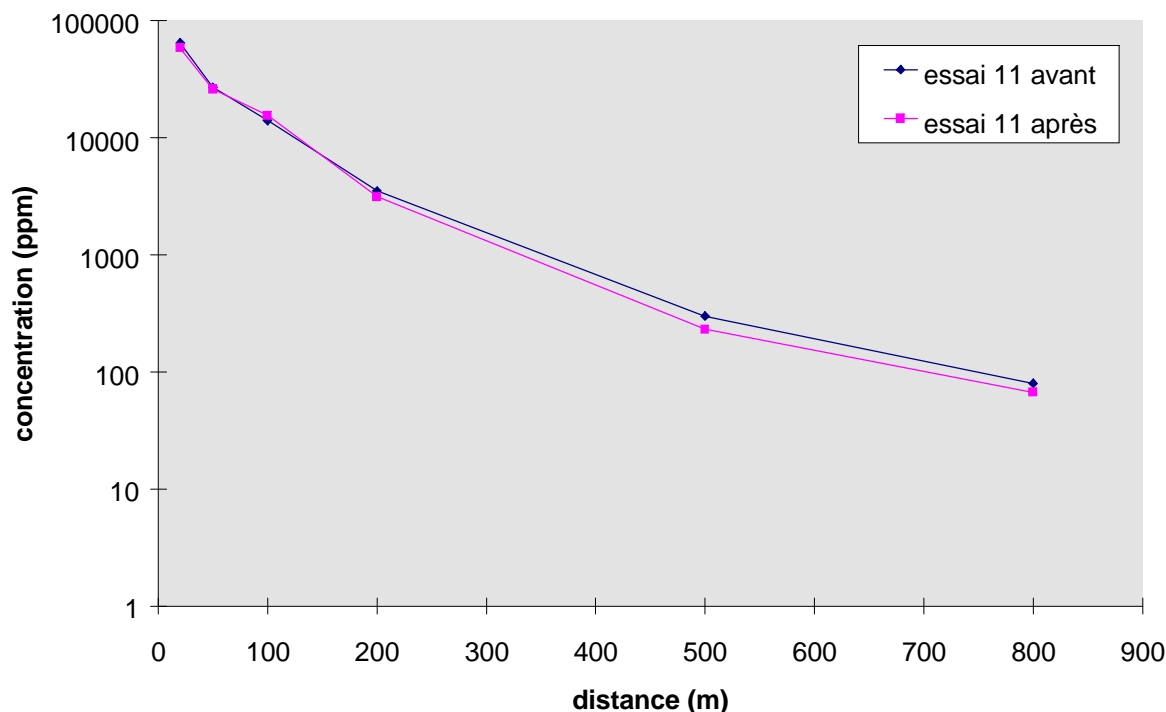


figure 28 : Evolution des concentrations en ammoniac sous le vent du rejet 11 avant et après la mise en service des queues de paon

Sur la figure ci-dessus, on constate qu'il n'y a pas de grandes différences avant et après la mise en œuvre des queues de paon. Néanmoins, il faut noter que ces valeurs de concentration sont tributaires de la direction prise par le nuage.

Par ailleurs, il est à noter que durant l'essai 11, le vent soufflait relativement fort. La vitesse moyenne du vent était de 5 m/s, avec des vitesses maximums de 9 m/s qui ont été enregistrées. Lors de cet essai, l'écran d'eau lui-même s'est couché sous la force du vent.

Ainsi, dans cette campagne d'essais, la présence d'un écran d'eau réalisé avec des queues de paon n'a pas diminué de façon significative les concentrations avant et après l'écran d'eau. Ceci peut s'expliquer par le fait qu'un jet d'ammoniac peut transpercer un rideau d'eau si sa quantité de mouvement est suffisante, et par des conditions météorologiques changeantes durant les essais. Un rejet de même nature que ceux qui ont été mis en œuvre dans cette campagne d'essais, mais avec une quantité de mouvement beaucoup plus faible lors du passage à travers l'écran d'eau conduirait peut être à des valeurs de concentration plus faibles dans l'environnement. Ce point mériterait d'être approfondi.

6.2.6. Comparaisons expérimentations / modélisations

Dans ce paragraphe, les résultats expérimentaux obtenus lors de la campagne d'essais ont été comparés à des résultats de calculs obtenus au moyen d'un logiciel permettant d'évaluer les conséquences de la mise à l'atmosphère accidentelle de produits toxiques ou inflammables. Ce type de logiciel permet notamment de calculer la dispersion de ces produits dans l'atmosphère.

Parmi les logiciels existants, le logiciel PHAST a été utilisé dans sa version 4.2. Ce modèle est de type intégral, c'est-à-dire qu'il permet de résoudre les équations de conservation sur la base d'hypothèses simplificatrices. A cet égard, les limitations inhérentes à ce logiciel sont notamment les suivantes :

- le terrain doit être plat, de rugosité uniforme et non-encombré d'obstacles ;
- la vitesse du vent doit être au moins égale à 1 m/s pour obtenir des résultats plausibles ;
- les conditions météorologiques doivent être invariables tout le temps de l'émission et de la dispersion ;
- le terme source du rejet doit être constant dans le temps.

Pour effectuer des calculs de dispersion d'un produit dans l'atmosphère, il faut au préalable définir dans le modèle le terme source du rejet et les conditions météorologiques dans lesquelles il se disperse.

Nous avons vu au chapitre 5 que la détermination du terme source d'un rejet avec un modèle pouvait conduire à des résultats différents de ce que l'on mesure dans la réalité. Afin de s'affranchir du problème du terme source (l'objet de ce paragraphe étant l'étude de la dispersion dans l'atmosphère), les comparaisons ont été effectuées de la manière suivante. Dans un premier temps, les paramètres mesurés dans le réservoir lors d'un rejet donné ont été renseignés dans le logiciel, et dans un deuxième temps, les autres paramètres tels que les pertes de charge régulières et singulières ont été ajustés de manière à calculer un débit massique identique au débit mesuré expérimentalement.

Ensuite, les données météorologiques mesurées lors de l'essai ont été renseignées à partir des données expérimentales (température ambiante, humidité relative, ..). La vitesse moyenne du vent pendant l'essai a été retenue pour les calculs. Concernant la stabilité atmosphérique, nous avons retenu celles qui ont été calculées à l'aide des deux méthodes exposées au chapitre 5. Lorsque les deux méthodes donnent des classes de stabilité différentes, les deux classes sont retenues pour effectuer les calculs.

Avec ces conditions renseignées dans le logiciel, nous avons en premier lieu calculé la dispersion de l'ammoniac dans l'atmosphère pour les rejets effectués en champ libre, c'est-à-dire les essais 1, 2, 2b, 4, 10, 11 et 12.

Les 4 graphiques présentés sur la figure suivante présentent une comparaison entre les résultats expérimentaux (courbe bleue) et les résultats de calculs de dispersion dans l'atmosphère.

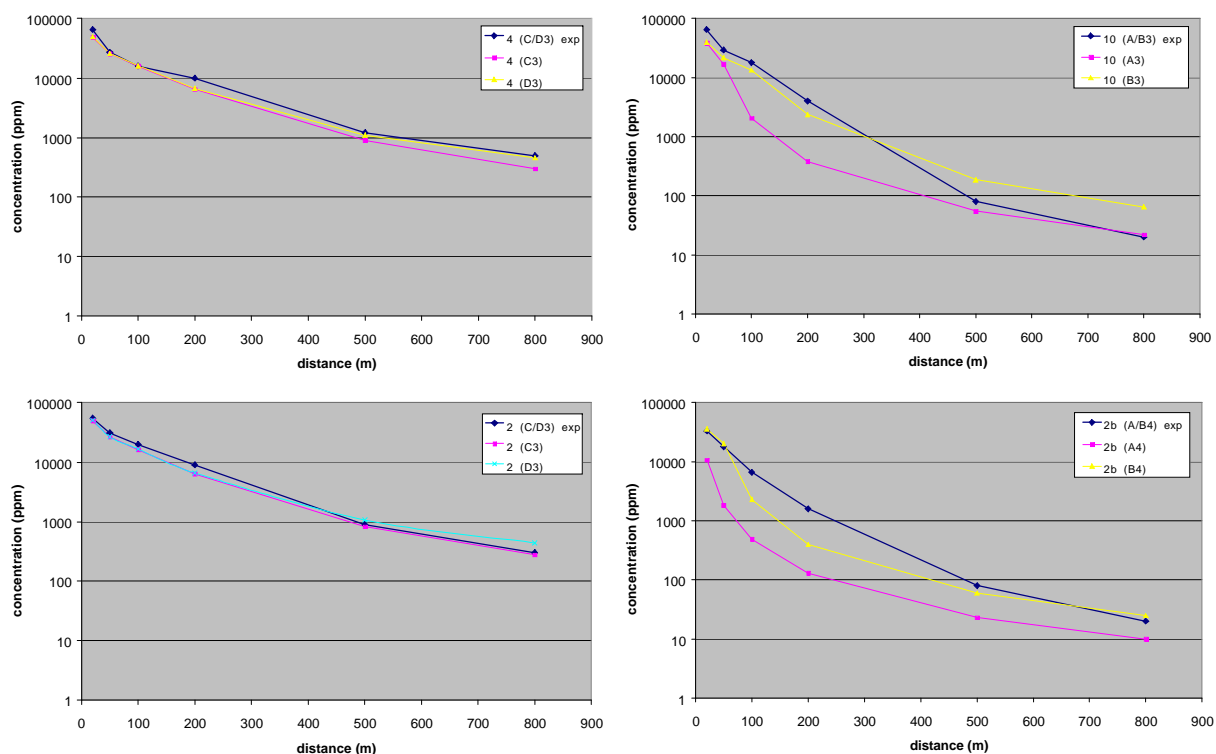


figure 29 : Comparaisons entre les résultats de calculs et les résultats expérimentaux pour les essais 4, 10, 2 et 2b.

Sur ces graphes, il apparaît que le logiciel calcule des valeurs de concentration en ammoniac du même ordre de grandeur que les valeurs mesurées expérimentalement. Seul l'essai 2b, parmi les rejets en champ libre, a conduit à calculer deux valeurs de concentration à 100 m et 200 m du point de rejet significativement inférieures aux valeurs expérimentales.

Néanmoins, d'une manière générale, la modélisation de la dispersion dans l'atmosphère d'un rejet de gaz liquéfié tel que l'ammoniac donne des ordres de grandeur comparables à ce que l'on peut observer lors de rejet à grande échelle, pour autant que

- l'on détermine correctement le terme source dans le logiciel ;
- les conditions météorologiques soient correctement définies, sachant qu'elles peuvent varier dans le temps de manière rapide (aussi bien la vitesse du vent que la stabilité de l'atmosphère) ;

- le rejet s'effectue horizontalement, dans le sens du vent, en terrain plat et sans obstacles.

En second lieu, nous avons effectué des calculs avec les rejets impactant. Sur la figure suivante, nous avons reporté l'évolution des concentrations expérimentales (courbe bleue) et des concentrations calculées avec le modèle pour les rejets contre un mur (essais 5 et 6) et sur le sol (essais 7 et 8b).

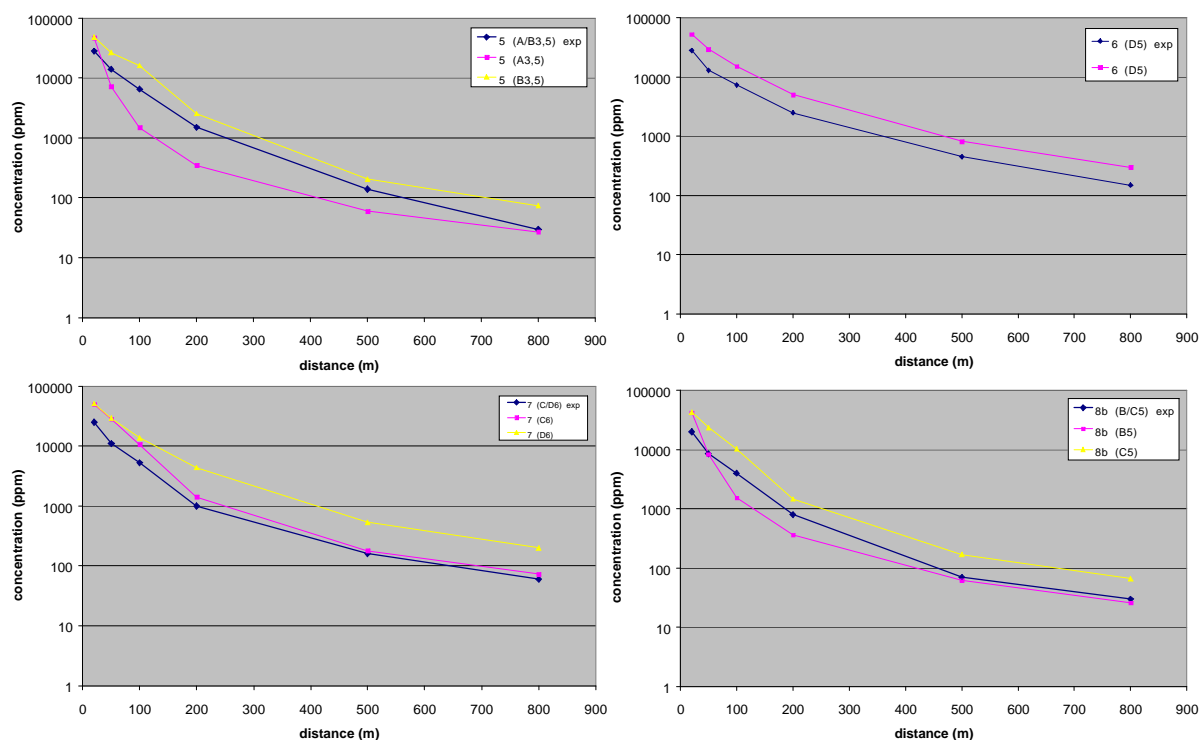


figure 30 : Comparaisons entre les résultats de calculs et les résultats expérimentaux pour les essais 5, 6, 7 et 8b.

Sur cette figure, il apparaît que, à 20 m du point de rejet, le modèle calcule systématiquement une concentration environ deux fois supérieure à celle qui a été mesurée expérimentalement. Ensuite, l'évolution des concentrations dépend des conditions atmosphériques. Pour l'essai 6, où ces conditions étaient vraisemblablement de type (D ; 5 m/s), les deux courbes (expérimentale et calculée) présentent toujours la même différence lors de l'évolution du nuage sous le vent du rejet. Le brassage du nuage suite à l'impact du rejet d'une part, et la rétention d'ammoniac au niveau du point de rejet d'autre part, peuvent expliquer cette différence.

A l'heure actuelle, les modèles de type intégral ne prennent pas en considération les rejets impactant des surfaces solides. Des différences de l'ordre de 50% peuvent être observées entre des résultats d'essais à grande échelle et des calculs effectués avec ce type de modèle. Des différences encore plus importantes peuvent être observées si la configuration de l'impact est complexe ou si une rétention est convenablement placée par rapport au rejet.

7. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Dans le cadre de ce programme de recherche, l'INERIS a essentiellement réalisé une campagne d'essais afin d'améliorer les connaissances sur la dispersion atmosphérique de l'ammoniac, notamment en milieux libres ou encombrés.

De l'ensemble des résultats issus de cette campagne d'essais, les quelques points suivants sont à retenir :

- 15 essais de configurations différentes ont été réalisés sur la période comprise entre décembre 1996 et avril 1997 ;
- la quantité d'ammoniac rejetée à partir de la phase liquide a été, selon les essais, comprise entre 1 400 kg et 3 500 kg par essai pendant une durée comprise entre 7 et 14 minutes, soit des débits compris entre 2 et 4,5 kg/s ;
- s'agissant de l'évolution thermodynamique de l'ammoniac dans les réservoirs, des mesures de température et de pression ont été réalisées pendant les rejets. Ces mesures et les interprétations sont reportées au chapitre 5 ;
- s'agissant de l'évolution thermodynamique de l'ammoniac dans les canalisations, les mesures effectuées en un même endroit ont montrées que la valeur de la pression est voisine de la pression de vapeur saturante correspondant à la température mesurée à cet endroit ;
- environ 200 capteurs, pour la mesure de la concentration de l'ammoniac et de la température, ont été installés pour chaque essai ;
- le nuage d'ammoniac formé se comporte comme un gaz lourd, et aucune élévation du nuage n'est observée ;
- la température dans le jet d'ammoniac peut descendre typiquement à -70°C ;
- des obstacles solides (mur ou sol) placés dans un jet diphasique d'ammoniac à quelques mètres du point de rejet ont une grande influence sur les valeurs de concentration mesurées après l'obstacle. Dans cette campagne d'essais, des concentrations environ deux fois plus faibles ont été mesurées après l'obstacle par rapport à un rejet en champ libre ;
- Lorsque le rejet est orienté vers la cuvette de rétention, celle-ci permet de récupérer une importante quantité d'ammoniac sous forme liquide. Pour deux essais, des quantités supérieures à 50 % de la masse totale rejetée ont été recueillies sous forme liquide à une température d'environ -60°C ;
- La nappe d'ammoniac liquide ainsi formée ne s'évapore pas rapidement ;
- les écrans d'eau réalisés avec des queues de paon et situés sur la trajectoire du panache ont eu peu d'influence sur la dispersion de l'ammoniac dans les conditions d'essais ;
- les résultats obtenus montrent, par ailleurs, que les modèles de dispersion de type intégral disponibles à l'heure actuelle peuvent donner des ordres de grandeur corrects des concentrations sous le vent d'un rejet libre. Dans le cas d'un rejet impactant, les résultats obtenus ne sont corrects que si les modèles sont préalablement renseignés sur la quantité rejetée à l'atmosphère (sous forme de vapeur ou d'aérosol) après l'impact.

Les résultats obtenus lors de ces essais nous ont conduit à élaborer un nouveau programme ayant pour objet l'étude de la « dispersion d'un gaz liquéfié en champ proche en présence d'obstacles ». Ce programme, qui a débuté en 1999 à l'INERIS, a notamment pour objectif de créer un modèle mathématique permettant de prendre en compte l'interaction d'un rejet de gaz liquéfié contre un obstacle. Ce modèle pourra à terme être intégré dans des logiciels de type intégral.

8. BIBLIOGRAPHIE

Air Liquide, Encyclopédie des gaz, 1980.

AUBURTIN, PICHARD, SCHORSCH, Toxicité aiguë de l'ammoniac, rapport INERIS, mai 1999.

BARA, DUSSERE, The use of water curtains to protect firemen in case of heavy gas dispersion, Journal of Loss prevention in the process industries, vol. 10, n°3, pp 179-180, 1997

B.I.T. (Bureau International du Travail), La Maîtrise des Risques d'Accident Majeur, guide pratique, Genève, 1993.

BLANKEN, Behaviour of ammonia in the event of a spillage, Ammonia safety plant, 22, 1980, cité par Wheatley (avril 1987).

BIGOT, Modélisation de la perte de confinement d'un gaz liquéfié, Ecole des Mines de Saint-Etienne, Eurforum, juin 1996.

BOUET, Essais de dispersion atmosphérique, INERIS, Rapport annuel, 1996.

BOUET, Essais de dispersion atmosphérique, INERIS, Rapport annuel, 1997.

BUCKLEY et HUSA, Combustion Properties of Ammonia, Chemical Engineering Progress vol.58, n° 2, p. 81-84, 1962.

BRETHERIK, Handbook of Reactive Chemical Hazards, ed Butterworths, 4^{ème} éd., 1990.

ABIVEN, CHAINEAUX, Caractéristiques d'inflammabilité et d'explosibilité de l'ammoniac, Rapport INERIS, EXP-Fab/DG F42 e/349 91.78.1120, 1991.

CHAINEAUX, EMERGE project (Extended Modelling and Experimental into Gas Explosion), 2nd progress report, INERIS, january 1995.

DELHAYE, Les écoulements diphasiques gaz, liquide en conduite, Entropie, n° 99, pp 3-25, 1981, cité par May (1996).

EMFA (European Fertilizer Manufacturer's Association, Zurich), IFA (International Fertilizer Industry Association Limited, Paris), Hazardous properties of ammonia, 1990, cité par le SNIE (1991).

FAUSKE, Two phase and one component critical flow, Symp. On two phase flow, Ed. P.M.C. Lacey, U. of Exeter, vol. 1, pp101-114, 1965.

FAUSKE, Flashing flows or some practical guidelines for emergency releases, Plant operation progress, vol. 4, n°3, p. 132, 1985.

FLETCHER, Flashing flow through orifices and pipes, CEP, march 1984.

FULLERINGER, Evaluation de la sûreté des installations utilisant de l'ammoniac, rapport IPSN, DES n°252, 1995.

- GIFFORD**, Diffusion in the Diabatic Surface Layer, J. Geophys. Res. , vol. 67, no. 8, pp. 3207-3212, 1962.
- GIFFORD**, An outline of theories of diffusion in the lower layers of the atmosphere, Meteorology and Atomic Energy, US Atomic Commission, D.H. Slade Edition, 1968.
- GOLDER**, relations among stability parameters in the surface layer, boundary layer meteorol., 3, pp 47-58, 1972.
- GOLDWIRE** et al., Desert Tortoise series data report - 1983 pressurized ammonia spills, UCID 20562, December 1985.
- GOLDWIRE**, Large-Scale Ammonia Spill Tests. A series of ammonia spill tests found that improved simple models are needed for predicting the consequences of accidental releases. Chemical Engineering Progress, pp 35-41. April 1986.
Idem : article comportant des commentaires, publié dans ammonia plant safety, Vol. 26, pp 203-211, 1986.
- HANNA, DAVID, CHANG**, Evaluation of fourteen hazardous gas models with ammonia and hydrogen fluoride field data, Journal of hazardous materials, Vol. 26, pp 127-158, 1991.
- HANNA, CHANG, STRIMAITIS**, Hazardous gas model evaluation with field observations, Atmospheric Environment, Vol. 27A, n°15, pp 2265-2285, 1993.
- HODIN**, Modélisation du débit à la brèche et du jet généré par une fuite d'ammoniac en phase liquide : état des connaissances et modélisation des rejets diphasiques, EdF, Centre Lyonnais d'Ingénierie, Note d'étude, 1995.
- IANELLO, ROTHE, WALLIS**, Aerosol Research Program : improved source term definition for modeling the ambient impact of accidental release of hazardous liquids, Paper presented at the 6th International Symposium on Loss Prevention and Safety Promotion in the Process Industries, Oslo, Norway, 1989.
- INRS**, Réactions Chimiques Dangereuses, ammoniac, note 1024-84-76, 1976.
- INRS**, Les Mélanges Explosifs, édition de 1989, A.CLEUET.
- INRS**, Fiche Toxicologique n° 16, gaz ammoniac et solutions aqueuses, édition révisée, 1992.
- KIRK-OTHMER**, Encyclopedia of Chemical Technology, 3^{ème} éd., vol.2, p. 470-516, 1978.
- KOOPMAN, McRAE, GOLDWIRE, ERMAK, KANSA**, Results of Recent Large -Scale NH₃ and N₂O₄ Dispersion Experiments, S. Hartwig (ed.), Heavy Gas and Risk Assessment - III, p 137-156, 1986.
- KRAMER**, Minimum ignition energie of ammonia-air mixture, Gas discharges. Their Appl. Proc. Int. Conf. 8th, 1985.
- LANGARD, ANSTETT, MAVROTHALASSITIS**, La prise en compte des phénomènes biphasiques dans l'analyse des risques, Rapport INERIS, Octobre 1995.

- LANTZY**, Vapor cloud source modeling workshop, Chairman's report, Plant/Operations Progress, Vol. 11, n°1, pp 41-45, 1992.
- LEUNG**, Two-phase flow discharge in nozzles and pipes, a unified approach, J. Loss Prevention Ind., vol.3, pp 27-32, janvier 1990.
- MAY**, Ecoulements diphasiques lors de la vidange de gaz liquéfiés initialement sous saturés, validation par l'eau et le CFC11, Thèse de l'école des Mines de Saint-Etienne et de Paris, 1996.
- MEDARD**, Les explosifs occasionnels, vol. 1, p. 210-211-213-261, 1979.
- NFPA** (National Fire Protection Association), n°325 M, 1990.
- NFPA** (National Fire Protection Association), Fire Protection Guide to Hazardous Materials, 11^{ème} édition, 1994.
- NIOSH** (National Institute for Occupational Safety and Health), pocket guide to chemical hazards, 1987.
- NIELSEN et OTT**, Fladis Field Experiments, Final Report, RISØ-R-898(EN), July 1996.
- NYRÉN, WINTER**, Two-phase discharge of liquefied gases through pipes, field experiments with ammonia and theoretical model, 4th international symposium on loss prevention and safety promotion in the process industries, n° 33, vol. 1, p E1-E11, 1983
- NYRÉN et al.**, Discharge trials with liquefied ammonia at Simpra, Landskrona, Sweden, Swedish National Defence Research Institute, FOA report E40009, 1983, cité par Wheatley (avril 1987).
- PASQUILL**, The Estimation of the Dispersion of Windborne Material, Meteorol. Mag., vol. 90, pp. 33-49, 1961.
- PASQUILL**, Atmospheric diffusion, 2nd edition, Ellis Howood, Londres, 1974.
- REED**, Containment of leaks from vessels containing liquefied gases with particular reference to ammonia, 1st international symposium on loss prevention and safety promotion in the process industries, The Hague, pp. 191-195, Elsevier, 1974, cité par Wheatley (avril 1987).
- RESPLANDY**, Etude des prescriptions à préconiser pour la sécurité du voisinage des dépôts d'ammoniac liquide. Compte-rendu des expériences effectuées le 28 juin 1967. Comité Consultatif des Etablissements Classés. Septembre 1967.
- RESPLANDY**, Etude des mesures à préconiser pour la sécurité du voisinage des stockages d'ammoniac liquéfié. Comité Consultatif des Etablissements Classés. Décembre 1968.
- RESPLANDY**, Etude expérimentale des propriétés de l'ammoniac conditionnant les mesures à prendre pour la sécurité du voisinage des stockages industriels. Chimie et Industrie - Génie chimique, Vol. 102, n°6, octobre 1969.
- RIOU**, Comment estimer la dispersion des gaz lourds ?, EdF bulletin de la direction des études et recherches, série A, Nucléaire, hydraulique, thermique, 1989.

- SAX'S** Dangerous properties of industrial materials, 9^{ème} édition, 1996.
- S.E.I.** (Service de l'Environnement Industriel, du Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement), fiches techniques, courbes de toxicité par inhalation, 1998.
- S.N.I.E.** (Syndicat National de l'Industrie des engrais), Aide-mémoire sur les risques présentés par l'ammoniac, 1991.
- TURNER**, Workbook of Atmospheric Dispersion Estimates, US, Department of Health Education and Welfare, NTIS, Cincinnati, Ohio, 1970.
- U.I.C.** (Union des Industries Chimiques), Emission à la brèche d'une capacité, débit en phase gaz, débit en phase liquide, formation et vaporisation des flaques, Cahiers de sécurité n°11, Septembre 1987.
- U.I.C.** (Union des Industries Chimiques), Dispersion atmosphérique, Groupe de travail Prévention des risques majeurs, Cahier de Sécurité n°6, juin 1995.
- ULMANN**, Encyclopedia of Industrial Chemistry, 5^{ème} édition, vol. A2 p. 143-242, 1985.
- VAN DEN HAKKER, SNOEY, SPOELSTRA**, Discharges of pressurized liquefied gases through apertures and pipes, 4th international symposium on loss prevention and safety promotion in the process industries, n° 33, vol. 1, pp E23-E35, 1983.
- WEISS**, Hazardous Chemicals Data Book, NDC (Noyes Data Corporation), 2nd édition, 1985.
- WHEATLEY**, A theoretical study of NH₃ concentrations in moist air arising from accidental releases of liquified, using the computer code TRAUMA, Health and Safety Executive; SRD/HSE/R 393, February 1987.
- WHEATLEY**, Discharge of liquid ammonia to moist atmospheres - Survey of experimental data and model for estimating initial conditions for dispersion calculations, Health and Safety Executive; SRD/HSE/R 410, April 1987.
- WHO** (World Health Organisation), IPCS, Environmental Health Criteria 54, Ammonia, 1986.
- WOODWARD**, Expansion zone modeling of two phase and gas discharges, J. of Hazardous materials, 33, pp 307-318, 1993.
- WOODWARD, PAPADOURAKIS**, Modeling of droplet entrainment and evaporation in dispersing jet,
- YAN**, Modélisation de l'autoévaporation en écoulements subcritiques et critiques, thèse, U. Catholique de Louvain, Belgique, 1991, cité par May (1996).
- ZAKAZNOV, KURSHEVA, FEDINA**, Determination of Normal Flame Velocity and Critical Diameter of Flame Extinction in Ammonia-Air Mixture, Combustion, Explosion and Shock Waves, n°6, vol.14, p. 710-713, 1978.

ANNEXE 1

REPERAGE DES THERMOCOUPLES

Les thermocouples objet de cette annexe sont ceux qui ont été installés :

- dans le réservoir d'ammoniac,
- sur le dispositif de rejet,
- sur la dalle de rejet,
- et, lorsqu'il y en avait, sur le mur ou la cuvette de rétention.

Une description de la localisation des thermocouples est effectuée dans les tableaux ci-après.

Pour tous les essais, les thermocouples suivants ont été installés :

thermocouple location	Légende
dans le réservoir à 1 450 mm du fond	Tank 1 450 mm
dans le réservoir à 1 100 mm du fond	Tank 1 100 mm
dans le réservoir à 750 mm du fond	Tank 750 mm
dans le réservoir à 400 mm du fond	Tank 400 mm
dans le réservoir à 50 mm du fond	Tank 50 mm
à l'extrémité du dispositif de rejet	OUTLET - th6
entre les deux vannes du dispositif de rejet	th 7
à l'entrée du dispositif de rejet	th 8

Essai 4 :

Pour cet essai , quatre thermocouples supplémentaires ont été installés sur le sol. Deux dans la direction du rejet à 3 et 5 mètres de l'orifice, et deux de chaque côté à 3 mètres.

Positions des thermocouples	Légende
sur le sol, dans la direction du rejet (27), à 3 mètres de l'orifice	ground dir 27 at 3m
sur le sol, dans la direction du rejet (27), à 5 mètres de l'orifice	ground dir 27 at 5m
sur le sol, dans la direction (23), à 3 mètres de l'orifice	ground dir 23 at 3m
sur le sol, dans la direction (31), à 3 mètres de l'orifice	ground dir 31 at 3m

Essais 5 et 6 :

Concernant ces essais, un mur de 3 mètres de largeur, de 3 mètres de hauteur et de 1 mètre d'épaisseur a été construit à une distance depuis l'orifice respectivement de 3 mètres et de 1 mètre. Pour ces deux configurations, 19 thermocouples ont été installés, 4 sur le mur et 15 sur le sol.

Sur le mur, les 4 thermocouples repérés 11 à 14 étaient installés tel que décrit sur la figure 31 ci-dessous.

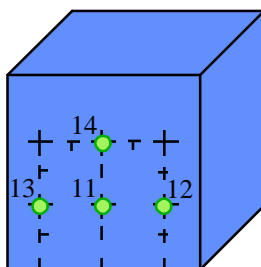


figure 31

Pour l'essai n°5, les thermocouples ont été installés sur le sol tel que décrits sur la figure 32.

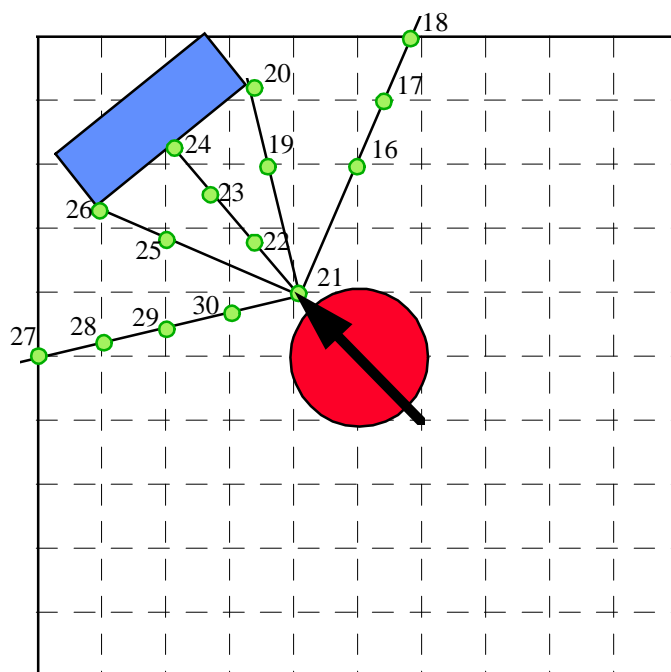


figure 32

La légende utilisée pour chacun de ces thermocouples est indiquée dans le tableau ci-dessous.

Légende	
th11 - wall 1 m centre	th21 - ground centre
th12 - wall 1 m right	th22 - ground centre
th13 - wall 1 m left	th23 - ground centre
th 14 - wall 2 m centre	th24 - ground centre
th16 - ground 60° right	th25 - ground 30° left
th17 - ground 60° right	th26 - ground 30° left
th18 - ground 60° right	th27 - ground 60° left
th19 - ground 30° right	th28 - ground 60° left
th20 - ground 30° right	th29 - ground 60° left
th30 - ground 60° left	

Pour l'essai 6, le mur se trouvait à un mètre de l'orifice du dispositif de rejet. Les thermocouples ont donc été installés sur le sol tel qu'indiqué sur la figure 33 ci-après.

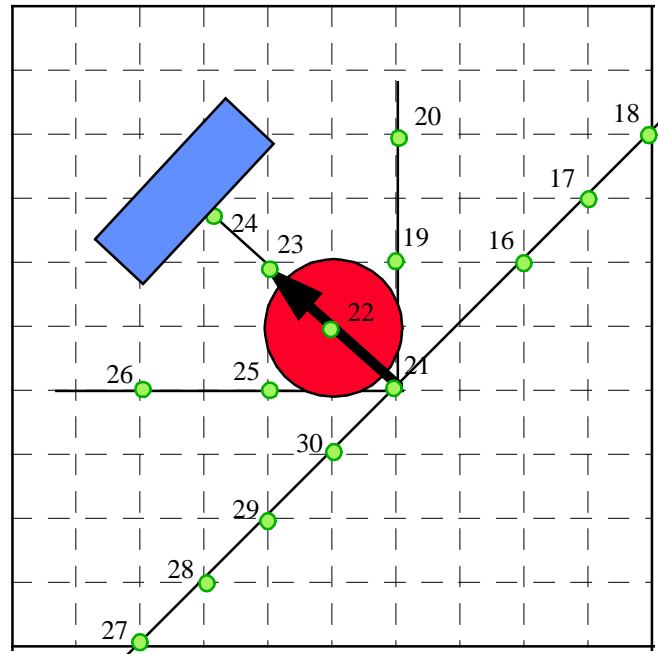


figure 33

Essais 7 et 8 : Ces essais étaient instrumentés de la façon suivante (Cf. figure 34) :

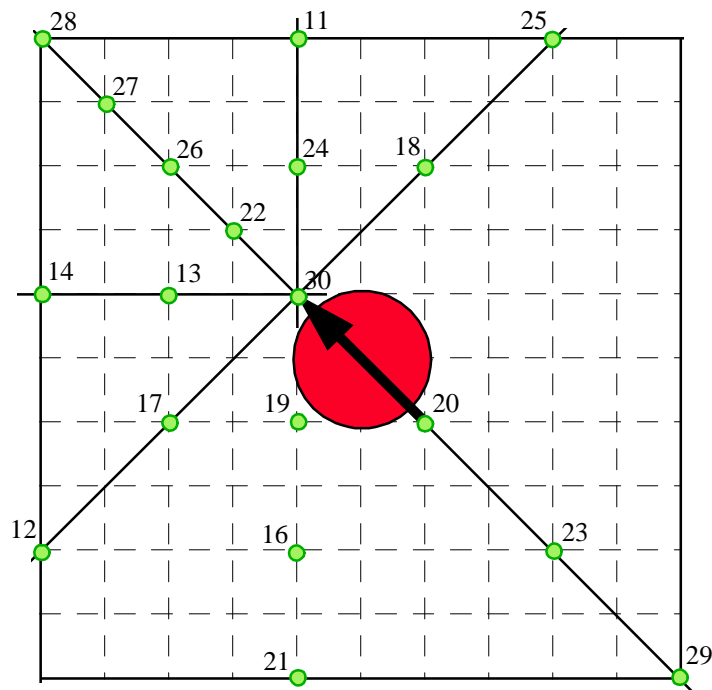
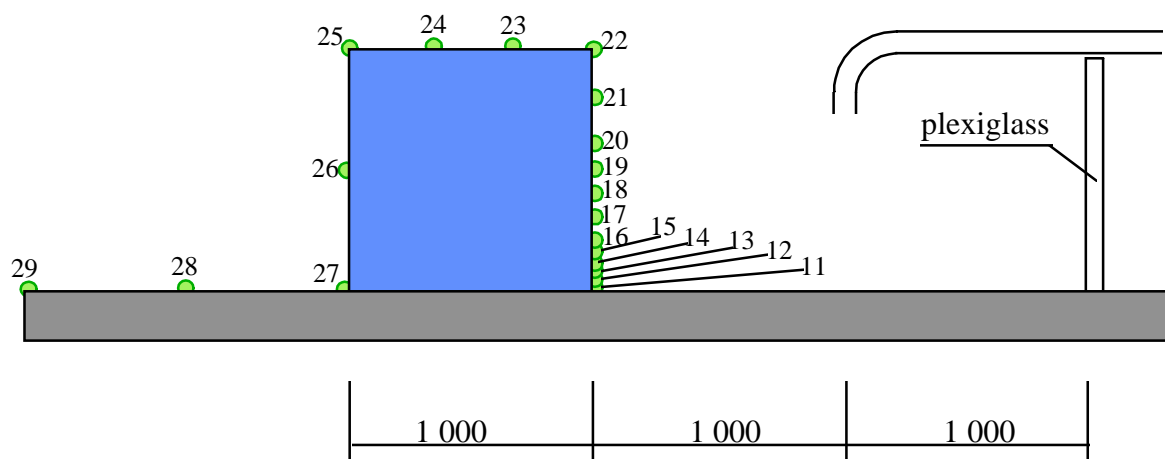


figure 34

Essai 9 :

Pour cet essai, l'extrémité du dispositif de rejet impactait dans une cuvette de rétention de 2m x 2m x 1m. Les thermocouples ont été installés selon la direction 20, tel que décrit sur la figure suivante.



hauteur / sol (mm)	thermocouples			
	th11	th27	th28	th29
0	th11	th27	th28	th29
30	th12			
60	th13			
100	th14			
150	th15			
200	th16			
300	th17			
400	th18			
500	th19	th26		
600	th20			
800	th21			
1 000	th22	th23	th24	th25

Essais 10, 11 et 12 :

Pour ces trois essais, 6 thermocouples ont été installés sur le sol dans l'axe du dispositif de rejet. A partir de la verticale du point de rejet, il y en avait un tous les mètres. Nous les avons repérés de la façon suivante :

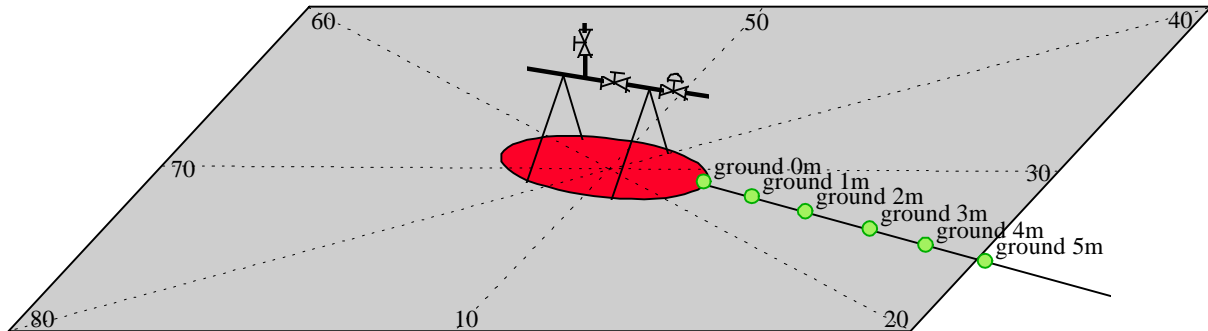


figure 35

Essais 2b et 8b :

Pour ces deux essais, en plus des 6 thermocouples décrits ci-dessus, nous en avons installés 12 sur deux mâts, et 1 à 50 cm au dessus de l'orifice du rejet. Ce dernier est repéré par la légende : « point 0 - h=1,5m ». Les autres thermocouples sont repérés de la façon suivante sur les mâts 1 et 2 respectivement situés à 2 et 4 mètres du point 0 dans la direction 7.

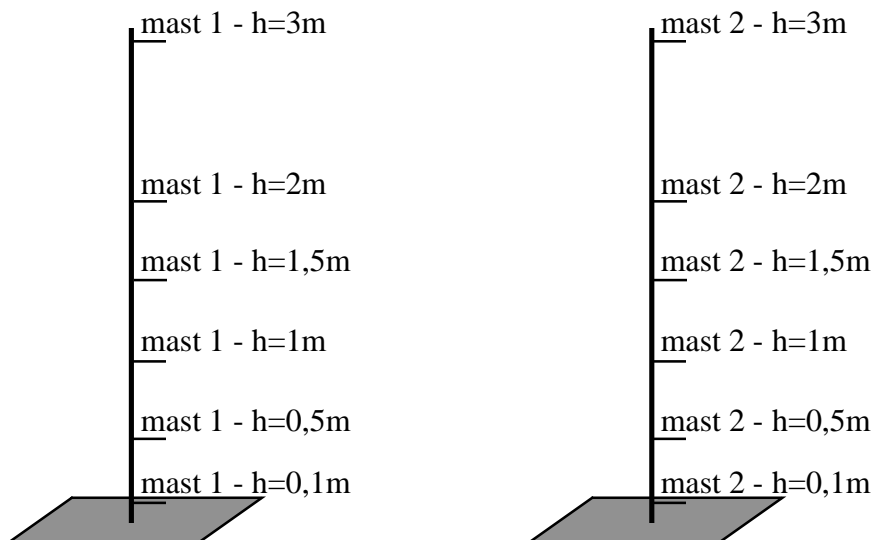


figure 36

ANNEXE 2

PRINCIPALES TECHNIQUES DE MESURES DIRECTES

L'annexe 2 a pour objectif de présenter sommairement les principales techniques de mesure de la concentration en ammoniac. Ce chapitre résulte notamment de travaux de l'équipe d'A. Accorsi [1,3] et des documentations fournies par les constructeurs, en particulier [2,4].

1 LES APPAREILS A CELLULES ELECTROCHIMIQUES

Ce paragraphe s'inspire principalement du document [1].

Les appareils de mesure des concentrations en gaz dans l'air qui utilisent des cellules électrochimiques sont apparus il y a une vingtaine d'années environ.

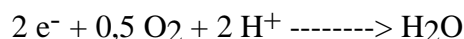
Principe de mesure

Chaque cellule électrochimique est relativement spécifique de la détection d'un seul gaz. Le gaz à mesurer traverse une membrane semi-perméable, c'est-à-dire perméable aux gaz mais imperméable aux liquides. Le gaz arrive au contact d'une électrode sensible recouverte d'un catalyseur en présence duquel il est oxydé, tandis qu'une contre-électrode réduit l'oxygène de l'air. Ces phénomènes l'oxydoréduction s'accompagnent d'un courant d'ions à travers l'électrolyte, et d'un courant d'électrons à l'extérieur. (Cf. Figure 2.1)

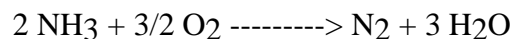
La réaction à l'électrode sensible est (d'après la documentation de MARTEC):



La réaction à la contre électrode est (d'après le rapport CECA):



Globalement :



Pour éviter des phénomènes de couches limites capacitives à l'interface électrode/électrolyte, une électrode de référence maintient le potentiel de l'électrode sensible à une valeur fixe, ce qui permet de garder un signal stable dans le temps.

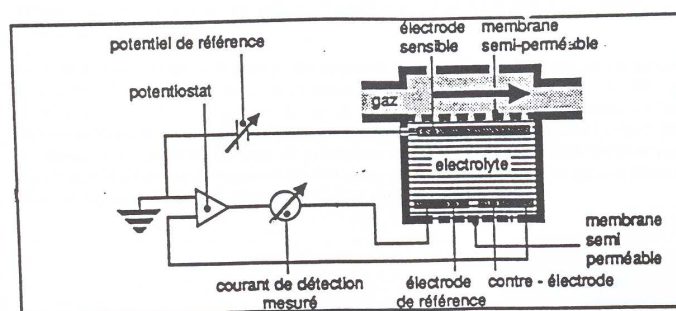


Figure 2.1 : Descriptif de fonctionnement d'une cellule électrochimique

Limites

La sélectivité est obtenue, d'une part, par la valeur du potentiel de référence, d'autre part, par le catalyseur d'oxydation. En pratique, une sélectivité absolue n'existe pas. A titre d'exemple, voici le tableau, fourni par Dräger, de quelques composés provoquant des interférences sur le PAC II NH₃ :

Gaz	Symbole	Concentration gaz d'essais (V/V)	Ecart en ppm NH ₃ de la valeur de mesure
Chlore	Cl ₂	10 ppm	< 1
Acide cyanhydrique	HCN	25 ppm	< 3
Dioxyde de carbone	CO ₂	1 %	-5 < et < 0 (signal de défaut)
Monoxyde de carbone	CO	115 ppm	< 3
Méthane	CH ₄	30 %	< 3
Méthanol	CH ₃ OH	170 ppm	< 35
Anhydride sulfureux	SO ₂	20 ppm	< 1
Hydrogène sulfuré	H ₂ S	20 ppm	< 75
Dioxyde d'azote	NO ₂	20 ppm	< 3
Hydrogène	H ₂	1,53 %	< 115

Tableau 2.1 : Composés provoquant des interférences sur le PAC II NH₃, tiré de la documentation technique du PAC II NH₃ de Dräger.

Ainsi, il est difficile de savoir exactement ce que l'on mesure et surtout avec quelle précision, lorsque l'on se trouve dans un milieu où plusieurs gaz sont présents (par exemple, dans les atmosphères industrielles).

Le domaine de mesure de la plupart des appareils de type électrochimique, en ce qui concerne la mesure des concentrations de l'ammoniac, s'étend de quelques ppm à 300, 500 ou 1 000 ppm. Les cellules capables de mesurer le millier de ppm sont très rares. La limite de détection est de l'ordre de 20 à 30 ppm. Le temps de réponse dépasse les 20 s et peut atteindre la minute, il est fonction du type de membrane utilisé pour protéger l'électrode sensible. La durée de vie de ce type d'appareil est d'environ un à deux ans. Le prix moyen d'une cellule électrochimique seule est d'environ 1 000 F et varie de 500 à 7 000 F.

2 LES APPAREILS A OXYDATION CATALYTIQUE (PELLISTOR)

Ce paragraphe propose une synthèse des documents techniques de EEV [2] et de l'INRS [3].

Principe

Le principe consiste à provoquer l'oxydation catalytique du gaz inflammable, ici l'ammoniac, et de mesurer l'échauffement produit.

Le détecteur catalytique est équipé en réalité de deux éléments : un détecteur catalytique actif et un élément compensateur non-actif. Chaque élément est composé d'un filament de platine dans une perle d'un matériau réfractaire. Pour l'élément détecteur, un mélange catalytique est appliqué sur cette perle, tandis que pour l'élément compensateur, la perle est traitée de sorte que l'oxydation catalytique ne puisse pas avoir lieu.

Les deux éléments sont connectés dans un Pont de Wheatstone suivant la figure 2.2 extraite du document [3].

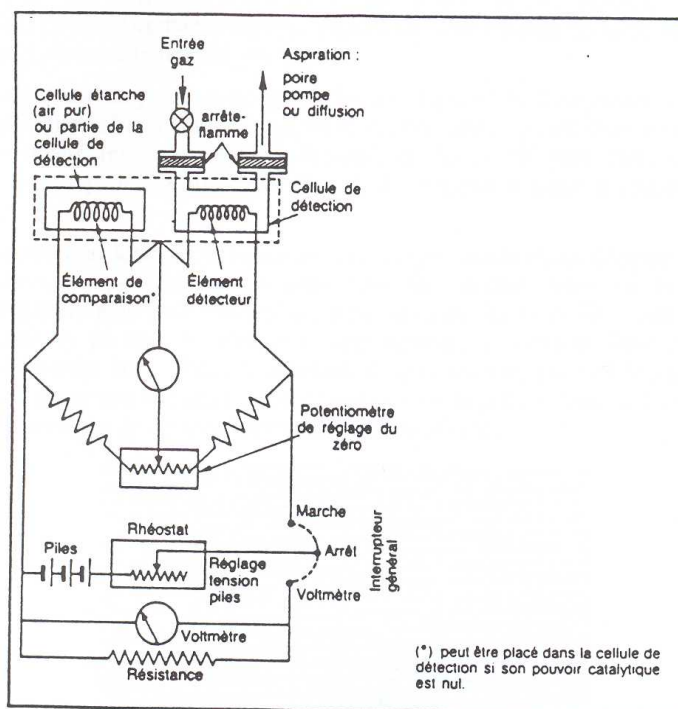


Figure 2.2 : Schéma de principe d'un appareil de mesure à oxydation catalytique

Le courant continu qui traverse les perles porte le détecteur à une température appropriée au gaz à détecter. Le filament du détecteur fonctionne comme un thermomètre : quand le gaz combustible s'oxyde sur la perle du détecteur, l'augmentation de la température résultante accroît la résistance du filament. Ceci déséquilibre le pont, donnant un signal pouvant être lu, soit en pourcentage de gaz, soit en pourcentage de la Limite Inférieure d'Explosibilité (LIE), ou bien encore déclenchant une alarme sonore ou visuelle.

Le taux avec lequel le gaz brûlera sur l'élément détecteur est une fonction du taux de diffusion du gaz dans le détecteur. Le taux de diffusion est contrôlé en enfermant les éléments dans un bloc de dimensions précises.

EEV explique en outre qu'il existe deux arrangements de montage. Dans le premier, les gaz circulent à un débit donné de 0,5 litre/minute. Le second arrangement est conçu pour une diffusion simple des gaz dans un bloc. Dans les deux cas, un fritté est inclus et un filtre de papier est placé dans la tête de diffusion pour empêcher la pénétration de poussières dans la cavité. Un autre possibilité est de remplacer le fritté par un disque de minuscules billes de bronze ou d'acier inox (recommandé pour l'ammoniac).

Limites

La durée de vie du détecteur est limitée. Elle est liée à la température de fonctionnement, mais également à une perte d'efficacité dans le temps, qui est dépendante d'un fonctionnement prolongé, d'une exposition à des concentrations trop importantes. Enfin, le détecteur peut être détérioré ("empoisonné") par certains gaz ou vapeurs. Pour protéger les détecteur des effets de certaines vapeurs organiques ou siliconées, un filtre interchangeable en charbon actif ou en carbone peut être utilisé.

Le signal de sortie du pont est du type représenté figure 2.3. Il augmente au-delà de la LIE (Limite Inférieure d'Explosibilité), jusqu'à la stœchiométrie qui est d'environ 10 % dans l'air pour le méthane (cas représenté ci-dessous) et de 21 % pour l'ammoniac. Pour des concentrations supérieures, le signal décroît de manière linéaire à cause du manque de comburant.

On peut noter que lorsque la concentration en gaz combustible dépasse la valeur de la stœchiométrie, on peut utiliser un autre type de détecteur basé sur le principe de la conductivité thermique pour mesurer les fortes concentrations et ainsi enlever le doute sur l'ambivalence. A ce titre, les éléments compensateurs de certains détecteurs à oxydation catalytique peuvent être utilisés. Cependant, d'après les informations fournies par EEV, la conductivité thermique de l'ammoniac est très proche de celle de l'air, si bien qu'une mesure précise et fine risque de s'avérer impossible, ou très délicate.

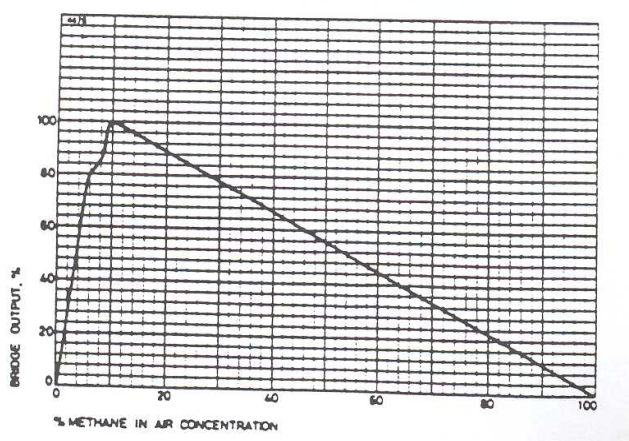


Figure 2.3 : Signal de sortie d'un capteur de type pellistor pour une exposition au méthane

La mesure des concentrations supérieures à la stœchiométrie pourrait être effectuée par dilution avec de l'air suivant un rapport de dilution connu : par exemple, 10. Ainsi 100 % v/v d'ammoniac serait abaissé à 10 %, et la sensibilité de détection serait alors de l'ordre de 1 % v/v.

3 LES SEMI-CONDUCTEURS

Pour la rédaction de ce paragraphe, nous avons utilisé les documents [3,4].

Principe

Un semi-conducteur est un matériau dont les propriétés conductrices de l'électricité sont intermédiaires entre celles d'un conducteur et celles d'un isolant. La présence d'un gaz provoque une variation de résistance électrique de l'élément semi-conducteur du détecteur par les phénomènes d'adsorption physique (phénomène réversible) et de combustion catalytique à la surface du semi-conducteur ; le gaz adsorbé s'oxyde en présence de l'oxygène de surface et le produit de la combustion se désorbe. La modification de la teneur en oxygène à la surface entraîne une modification de l'équilibre électrons-trous (le trou étant le site d'adsorption) dans le semi-conducteur. Cette variation est directement liée à la concentration en gaz et modifie l'équilibre électrique du circuit dans lequel le détecteur est placé.

Dans le cas du détecteur Figaro, le matériau semi-conducteur utilisé est du dioxyde d'étain ($\text{SnO}_2\text{-X}$) qui est chauffé à haute température (par exemple 400°C).

Limites

Les détecteurs à semi-conducteur sont très sensibles à la température : la conductibilité augmente avec la température. De plus, le fonctionnement des semi-conducteurs est perturbé par des paramètres interférents qui sont l'humidité, les poussières, les graisses ou d'autres gaz à adsorption préférentielle.

Références Bibliographiques

- [1] Accorsi. Rapport final CECA - Faisabilité de campagnes de mesures d'atmosphères de travail par des appareils multigaz transportables. 1992
- [2] EEV. Combustible Gas Detectors - Product Data.
- [3] A. Accorsi, J. C. Laforest, P. Huré. Détection de mélanges air-ammoniac. INRS. Cahiers de notes documentaires n°127, p 217-222, 2e trimestre 1987.
- [4] FIGARO - Products Catalog.