

Synthèse opérationnelle / Executive Summary

Novembre 2017

INERIS-DRC-17-168484-04927A

**SURVEILLANCE ET REDUCTION DES EMISSIONS EN
BENZENE ET BENZO(A)PYRENE AU VOISINAGE DES
COKERIES: ETAT DE L'ART EUROPEEN ET
ENSEIGNEMENTS**

**BENZENE AND BENZO(A)PYRENE EMISSIONS
MONITORING AND REDUCTION IN THE VICINITY OF
COKE OVENS: EUROPEAN STATE OF THE ART AND
ADVANCEMENTS**

INERIS

maîtriser le risque |
pour un développement durable |

**SURVEILLANCE ET REDUCTION DES EMISSIONS EN BENZENE ET
BENZO(A)PYRENE AU VOISINAGE DES COKERIES: ETAT DE L'ART
EUROPEEN ET ENSEIGNEMENTS**

**BENZENE AND BENZO(A)PYRENE EMISSIONS MONITORING AND
REDUCTION IN THE VICINITY OF COKE OVENS: EUROPEAN STATE OF THE
ART AND ADVANCEMENTS**

Synthèse opérationnelle / Executive Summary

Rapport réalisé pour le Ministère de la Transition Ecologique et de la Solidarité
Study report conducted for French Ministry of Environment

PRÉAMBULE

Le rapport a été établi sur la base des informations fournies à l'INERIS, des données (scientifiques ou techniques) disponibles et objectives et de la réglementation en vigueur.

La responsabilité de l'INERIS ne pourra être engagée si les informations qui lui ont été communiquées sont incomplètes ou erronées.

Les avis, recommandations, préconisations ou équivalent qui seraient portés par l'INERIS dans le cadre des prestations qui lui sont confiées, peuvent aider à la prise de décision. Etant donné la mission qui incombe à l'INERIS de par son décret de création, l'INERIS n'intervient pas dans la prise de décision proprement dite. La responsabilité de l'INERIS ne peut donc se substituer à celle du décideur.

Le destinataire utilisera les résultats inclus dans le présent rapport intégralement ou sinon de manière objective. Son utilisation sous forme d'extraits ou de notes de synthèse sera faite sous la seule et entière responsabilité du destinataire. Il en est de même pour toute modification qui y serait apportée.

L'INERIS dégage toute responsabilité pour chaque utilisation du rapport en dehors de la destination de la prestation.

FOREWORD

The report was drawn up on the basis of the information provides to INERIS and the objective (scientific or technical) data available as well as applicable regulations and standards.

INERIS cannot be held liable if the information received was incomplete or erroneous.

Any findings, recommendations, suggestions or equivalents that are recorded by INERIS as part of the services it is contracted to perform may assist with decision making. Given the tasks entrusted to INERIS on the basis of the decree founding the organization, INERIS cannot be involved in the decision making process itself. INERIS cannot therefore take responsibility in lieu and place of the decision maker.

The addressee shall use the results comprised in this report in whole or at least in an objective manner. Using this information in the form of excerpts of summary memos may take place only under the full and complete responsibility of the addressee. The same applies to any modification made to this report.

INERIS declines any liability for any use of this report outside of the scope of the service provided.

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Hélène PARTAIX	Rodolphe GAUCHER	Martine RAMEL
Qualité	Ingénieur de l'unité Technologies et Procédés Propres et Durables	Responsable de l'unité Technologies et Procédés Propres et Durables	Responsable du Pôle Risque et Technologies Durables
Visa			

SURVEILLANCE ET REDUCTION DES EMISSIONS EN BENZENE ET BENZO(A)PYRENE AU VOISINAGE DES COKERIES : Etat de l'art européen et enseignements

SYNTHESE OPERATIONNELLE

• Contexte et objectifs

La surveillance des concentrations de benzène et de B(a)P¹ dans l'air au voisinage d'une cokerie française conduite respectivement depuis 2011 et 2013 révèle des niveaux supérieurs aux valeurs réglementaires de surveillance de la qualité de l'air².

Dans le cadre de ses missions d'appui aux pouvoirs publics et à la demande de l'autorité compétente, l'INERIS a réalisé en 2015 et 2016 un état de l'art de la maîtrise des émissions des cokeries européennes et de la surveillance des polluants dans l'environnement proche, en s'appuyant sur la bibliographie et sur un retour d'expérience d'installations similaires en France et en Europe.

L'étude s'est attachée à recueillir, pour des installations disposant de procédés relativement comparables à ceux de l'installation en question, des informations relatives aux niveaux d'émissions en benzène et B(a)P à l'émission et dans l'environnement ainsi que les éléments des procédés qui y sont associés, y compris mesures de réduction. Elle a permis également de faire état des limites qui s'imposent pour effectuer cette analyse, par exemple en termes de différences sur les modes de comptabilisation des émissions diffuses et sur l'existence d'une surveillance des rejets et dans l'environnement.

L'objectif était, au final, de mettre en perspective les informations ayant pu faire l'objet d'une analyse détaillée avec la situation rencontrée pour l'installation française faisant l'objet des niveaux élevés (dénommée installation de référence dans la suite du rapport).

• Contexte réglementaire

La production de coke est visée sans seuil par la rubrique 1.3 de l'Annexe I de la directive IED³, transposée dans la nomenclature française des Installations Classées au sein de la rubrique 3130. La première révision du BREF⁴ Iron and Steel Production a été publiée en mars 2012 et les conclusions sur les Meilleures Techniques Disponibles (MTD)⁵ associées sont parues au Journal Officiel de l'Union Européenne en date du 8 mars 2012. La révision des autorisations d'exploiter des installations de production de coke sur la base des MTD et la conformité des installations à leur autorisation d'exploiter devaient être réalisées avant le 9 mars 2016. Au sein du BREF, la production de coke est visée par le chapitre 5 et les conclusions sur les MTD applicables sont celles numérotées de 42 à 58.

¹ Benzo(a)Pyrène

² Directive n° 2008/50/CE du 21/05/08 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe et Directive n°2004/107/CE du 15/12/04 concernant l'arsenic, le cadmium, le mercure, le nickel et les hydrocarbures aromatiques polycycliques dans l'air ambiant

³ Directive 2010/75/UE du parlement européen et du conseil du 24 novembre 2010 relative aux émissions industrielles (prévention et réduction intégrées de la pollution) (refonte)

⁴ Best REference

⁵ Décision d'exécution de la commission du 28 février 2012 établissant les conclusions sur les meilleures techniques disponibles (MTD) dans la sidérurgie, au titre de la directive 2010/75/UE du Parlement européen et du Conseil relative aux émissions industrielles - JOUE 08/03/2012

Aucun niveau d'émission associé aux MTD (NEA-MTD) n'est cependant établi en référence au benzène et au B(a)P, les NEA-MTD concernant essentiellement les émissions de poussières.

En France, les dispositions de l'arrêté du 2 février 1998⁶ sont applicables à toutes installations mettant en œuvre cette activité.

Dans le cadre du registre intégré des rejets et des transferts de polluants au niveau communautaire (dénommé "E-PRTR", European Pollutant Release and Transfer Register)⁷, la production de coke est visée au titre de l'activité du secteur énergétique 1.d). Les émissions atmosphériques de benzène doivent être déclarées par l'exploitant si elles excèdent le seuil annuel de 1 tonne. Le seuil de déclaration des 4 hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) : benzo(a)pyrène, benzo(b)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène et indéno(1,2,3-cd)pyrène, est de 50 kg par an (seuil portant sur la somme des émissions des composés). Pour la France, les données sont reportées dans le registre français IREP (Registre français des émissions polluantes)⁸ selon les mêmes seuils.

Le benzène fait l'objet d'une classification harmonisée (Annexe VI du Règlement CLP 1272/2008⁹) lui attribuant, notamment, les mentions de dangers H340 (peut induire des anomalies génétiques) et H350 (peut provoquer le cancer).

Il en va de même pour le Benzo(a)Pyrène avec les mentions de dangers H340 (peut induire des anomalies génétiques), H350 (peut provoquer le cancer) et H360 (peut nuire à la fertilité ou au fœtus). Le B(a)P fait partie de la famille des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) qui sont des polluants organiques persistants bioaccumulables et toxiques. Le B(a)P est considéré comme traceur du risque cancérigène pour la famille des HAP.

Pour l'activité cokerie, le benzène et le B(a)P ne font pas l'objet des valeurs limites d'émissions atmosphériques au niveau européen. En France, l'arrêté ministériel du 2 février 1998²⁵ prévoit, pour les installations classées soumises au régime de l'autorisation, une régulation des émissions en certains COV¹⁰ incluant le benzène et le B(a)P (valeur limite d'émission de 2 mg/m³, si le flux horaire maximal de l'ensemble de l'installation est supérieur ou égal à 10 g/h).

Les directives 2008/50/CE¹¹ et 2004/107/CE¹², transposées à l'article R.221-1 du Code de l'Environnement, imposent aux états membres de veiller à ce que, dans l'ensemble de leurs zones et agglomérations, les niveaux de benzène dans l'air ambiant ne dépassent pas la valeur limite¹³ de 5 µg/m³, applicable depuis le 1^{er} janvier 2010, et les niveaux de B(a)P ne dépassent pas la valeur limite¹⁴ de 1 ng/m³ à compter du 31 décembre 2012. L'Environmental European Agency (EEA) met à disposition du public la base de données des valeurs moyennes annuelles issues des résultats de la surveillance rapportées au niveau européen par les états membres.

⁶ Arrêté du 02/02/98 relatif aux prélèvements et à la consommation d'eau ainsi qu'aux émissions de toute nature des installations classées pour la protection de l'environnement soumises à autorisation

⁷ Règlement n° 166/2006 du 18/01/06 concernant la création d'un registre européen des rejets et des transferts de polluants, et modifiant les directives 91/689/CEE et 96/61/CE du Conseil - Annexe I

⁸ Arrêté du 31/01/08 relatif au registre et à la déclaration annuelle des émissions et des transferts de polluants et des déchets

⁹ Règlement n° 1272/2008 du 16/12/08 relatif à la classification, à l'étiquetage et à l'emballage des substances et des mélanges, modifiant et abrogeant les directives 67/548/CEE et 1999/45/CE et modifiant le règlement (CE) n° 1907/2006

¹⁰ Composés Organiques Volatils

¹¹ Directive n° 2008/50/CE du 21/05/08 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe

¹² Directive n° 2004/107/CE du 15/12/04 concernant l'arsenic, le cadmium, le mercure, le nickel et les hydrocarbures aromatiques polycycliques dans l'air ambiant

¹³ Moyenne annuelle de 90 % des valeurs sur une heure ou (si elles ne sont pas disponibles) des valeurs relevées sur 24 heures durant l'année

¹⁴ Moyenne calculée sur l'année civile du contenu total de la fraction PM10

• Méthodologie de l'étude

L'étude a été conduite selon la méthodologie suivante :

1. Identification et analyse des données disponibles :

- Identification des procédés existants et des meilleures techniques disponibles associées, sur la base du BREF Iron & Steel et bibliographie autre,
- Identification de l'ensemble des installations concernées sur la base du BREF Iron & Steel et des informations issues du registre européen des émissions E-PRTR ,
- Evaluation des émissions en benzène et B(a)P des cokeries ou sites sidérurgiques incluant une cokerie au sein de registre européen des émissions (E-PRTR),
- Identification des résultats de surveillance environnementale des stations de mesure de benzène et de B(a)P dans l'environnement situées à proximité d'une cokerie grâce à la base de données mise à disposition par l'European Environmental Agency (EEA).



2. Choix des sites à comparer :

- Définition de critères pour la sélection des cokeries présentant des caractéristiques telles que leurs émissions puissent être comparées à celles de l'installation de référence,
- Première sélection, selon les critères définis, de 15 cokeries réparties dans 10 pays,
- Prises de contact pour la recherche d'informations supplémentaires (au-delà de celles disponibles au sein des sources précitées) sur les cokeries sélectionnées auprès d'organismes de référence : agences environnementales, UBA, VITO, INFOMIL, etc., puis autorités compétentes pour les 15 installations,
- Sur la base des résultats des contacts, sélection de 6 cokeries ayant des caractéristiques proches de celles du site de référence, pouvant faire l'objet d'une analyse détaillée relative aux procédés utilisés, à la maîtrise des émissions de benzène et de B(a)P en place (technique et organisationnelle), aux niveaux d'activité et d'émissions ainsi qu'à la surveillance environnementale éventuelle.



3. Comparaison et analyse des informations ainsi obtenues en matière de :

- Procédés de cuisson du coke et de traitement du gaz de cokerie mis en œuvre et investissements réalisés ou planifiés en lien avec la maîtrise des émissions en benzène et B(a)P,
- Surveillance des émissions canalisées et diffuses prescrite et/ou mise en œuvre volontairement, notamment réalisation d'études pour l'élaboration de facteurs d'émissions spécifiques à chaque installation,
- Mode de calcul et périmètre des sources pour la déclaration annuelle des émissions en benzène et B(a)P,
- Surveillance dans l'environnement en benzène et B(a)P.

• Inventaire des installations et choix des cokeries à investiguer

Environ 500 cokeries sont recensées dans le monde, dont 65 % en Chine¹⁵ et environ 50 en Europe. La plupart des cokeries sont exploitées au sein d'un site sidérurgique.

Afin de pouvoir appuyer l'analyse des émissions sur des données quantitatives, le **premier critère de choix** pour les cokeries à inclure dans l'étude était le fait que ces **installations déclarent des émissions atmosphériques en benzène ou HAP au sein du registre européen E-PRTR**. 32 cokeries en activité (hors l'installation de référence) déclarent dans E-PRTR. Parmi elles, 20 seulement déclarent du benzène et/ou des HAP, les autres sites sont en-dessous des seuils de déclaration ou ne connaissent pas leurs niveaux d'émissions.

Les fours des batteries de l'installation de référence, mis en service en 1978, ont un volume de 36 m³ pour une hauteur de 6,16 m et peuvent être considérés comme de petit volume. Or la bibliographie indique que les émissions diffuses, qui représentent une des sources principales d'émissions de la batterie, varient fortement en fonction notamment de la taille des fours. Le **second critère de choix** des sites à investiguer dans le cadre de l'étude a été la **taille des fours**, ce qui a permis de retenir 15 usines réparties sur 10 pays.

Les contacts avec les organismes et les autorités compétentes se sont étalés entre avril 2015 et septembre 2016 et ont permis d'établir une liste réduite de 6 cokeries (référencées de A à D dans la suite du document) présentant des caractéristiques relativement proches de celles de l'installation de référence et pour lesquelles il a été possible d'obtenir des informations plus détaillées. 2 de ces installations ont pu faire l'objet de visites.

• Sources d'émissions dans le procédé

L'usine cokière est constituée de 3 zones :

- Stockages et ateliers de préparation et transfert des solides,
- Fours de cuisson regroupés en batteries,
- Ateliers de traitement du gaz produit.

Les fours sont des parallélépipèdes rectangles dont les parois verticales sont chauffées par des carnaux de chauffage regroupés en piédroits et équipés de brûleurs à gaz, les fumées sont évacuées à la cheminée de la batterie. La partie haute du four est équipée d'une colonne montante permettant l'évacuation des gaz de procédé produits lors de la cuisson.

Diverses techniques sont employées pour le chargement du four au niveau des bouches situées sur la partie supérieure des fours, mais les plus usuelles sont de type gravitaire. Durant la cuisson, qui peut durer entre 15 et 25 h, l'évacuation des gaz se fait par les colonnes montantes. Les portes du four sont au final ouvertes et le coke incandescent est poussé à l'extérieur du four par la machine de défournement. Le coke est ensuite refroidi dans la tour d'extinction.

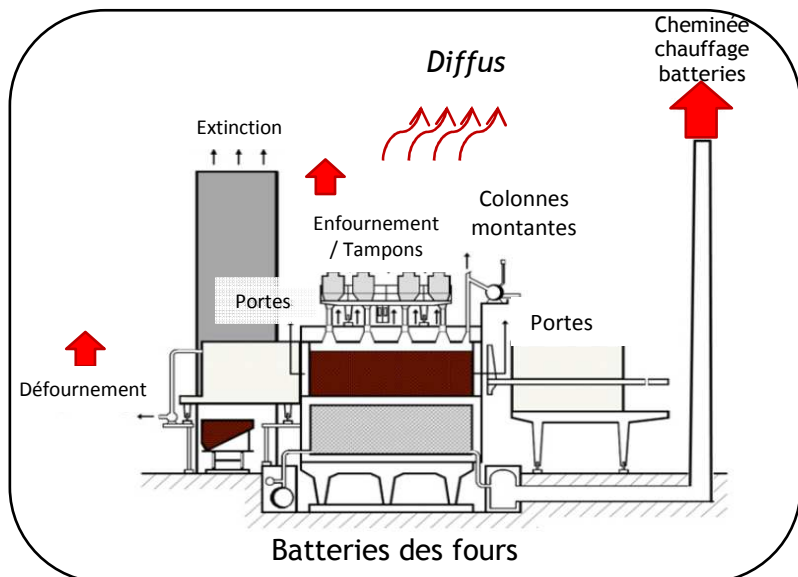
Le gaz de cokerie, gaz riche produit au sein des fours, remplace généralement le gaz naturel à l'aciérie. Pour cela, il est au sortir des fours, refroidi par aspersion d'eau ammoniacale. Le mélange conflue dans un collecteur horizontal, situé latéralement à la batterie appelé le barillet, il est refroidi dans des échangeurs indirects (condenseurs primaires) puis des dégoudronneurs électrostatiques permettent d'extraire le goudron qui est valorisé. Divers procédés peuvent, par la suite, être mis en œuvre pour permettre le traitement du gaz. L'ammoniac et le soufre contenus dans le gaz sont récupérés respectivement pour réutilisation dans le procédé et pour commercialisation. Enfin, les hydrocarbures légers présents dans le gaz sont également extraits, soit par simple lavage au fioul permettant la revente de fioul naphthaliné soit par débenzolage, extraction différenciée par laveurs à huile et distillation, d'une part du benzol et d'autre part du reste des solvants naphtha.

¹⁵ Environmental Control and Emission Reduction for Coking Plants - INTECH - 2012

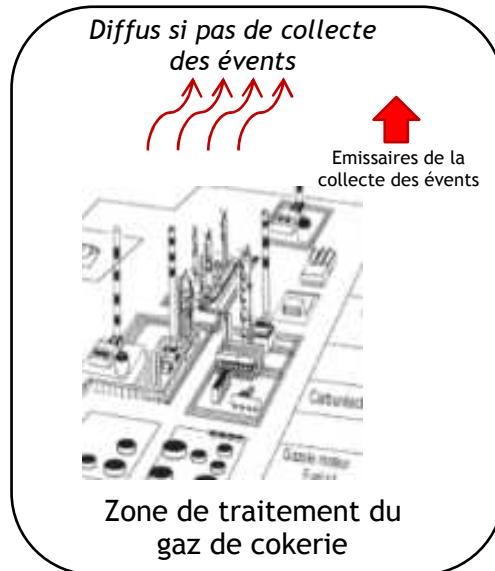
L'installation de référence est une cokerie isolée qui brûle le gaz de cokerie pour le chauffage des batteries. Les autres cokeries étudiées sont incluses dans un site sidérurgique et envoient le gaz de cokerie vers les hauts fourneaux alors qu'elles brûlent le gaz des hauts fourneaux pour le chauffage des batteries.

D'une manière générale, les zones principalement impactantes sont les batteries pour les émissions de benzène et B(a)P et les ateliers de traitement du gaz pour les émissions de benzène.

Benzène et B(a)P



Benzène



Le Tableau 1 présente, pour les zones des batteries de four et traitement du gaz, une synthèse des principales sources identifiées sur chacune des 6 installations :

- La **cheminée du chauffage des batteries** fait l'objet d'une surveillance pour le benzène ou les HAP pour 4 des installations investiguées (dont l'installation de référence).
- La technologie utilisée pour **l'enfournement** est différente selon les cokeries. L'enfournement sans fumée peut générer quelques émissions diffuses au niveau des orifices de chargement (appelés tampons), et peut occasionner des panaches (relargage au niveau des colonnes montantes). L'enfournement de type « japonais », tel que pratiqué sur l'installation de référence, n'a été rencontré que sur une seule des cokeries investiguées.
- Les fuites aux **portes** sont une des sources majoritaires d'émissions. Les portes à joints flexibles sont reconnues comme étant généralement moins émissives que celles à joints couteaux¹⁶. Les rénovations effectuées ou prévues sur les portes et les bâtis sur les différentes cokeries sont indiquées au sein de ce même tableau.
- Le **défournement** fait généralement l'objet d'une captation, avec ou sans traitement par filtre à manche destiné à capter les poussières, et avec ou sans surveillance en benzène et HAP.
- **L'extinction** fait parfois l'objet de mesures des émissions diffuses.
- L'une des principales différences entre les installations en termes de procédés de **traitement des gaz** est le fait qu'elles pratiquent ou non l'extraction du benzol (mélange de benzène, toluène et xylènes) pour valorisation. Les travaux destinés à limiter les émissions diffuses des réservoirs (captation des événements ou inertage des réservoirs) sont également présentés.

¹⁶ INTECH : Facteurs d'émissions en B(a)P associés aux portes à joints membrane et aux portes à joints couteaux : Portes joints membrane : 1-10 mg B(a)P/t coke, Portes joints couteaux : 10-45 mg B(a)P/t coke

Tableau 1 : Synthèse des principales sources identifiées sur chacune des installations et informations significatives associées (surveillance réglementaire, investissements réalisés ou prévus)

Installation	Batteries						Traitement gaz	
	Chauffage batteries	Enfouissement	Portes		Défournement : captation	Extinction	Extraction du benzol	Prévention des émissions diffuses des réservoirs
			Types de portes	Rénovations				
Installation de référence	S – VLE en benzène et HAP	Japonais S - VLE	Jointes couteaux	Engagé en 2016 (8/64 fours)	Filtre à manche S – VLE en benzène et HAP	Néant	Oui	Travaux de 2013-2016 de collecte et brûlage en chaudière
A	S en HAP	Japonais	Jointes couteaux avec adaptation permettant un meilleur ajustement	Modification pour une meilleure étanchéité Remplacement ponctuel au besoin	Filtre à manche S en HAP	S en HAP	Oui	Travaux de 2000 à 2014 - Inertage azote
B	Néant	Sans fumée	Jointes flexibles	Changement des portes (date non communiquée)	/	Néant	Oui	/
C	Néant	Sans fumée	Jointes flexibles	2016 : Baisse de la production et plan de rénovation des châssis, portes, joints...	Pas de filtre	Néant	Oui	Remplacement des installations de traitement de gaz planifié
D	Néant	Par pilonnage S - VLE	Jointes flexibles Régulation de pression / four	2012 : Changement des portes et régulation de pression /four	/	Néant	/	2012 : Rénovation des installation
E	S - VLE en benzène	Sans fumée	Jointes flexibles - Auto-serrantes - Conception locale et spécifique.	2007 à 2016 : changement des cadres batterie n°1 - batterie n°2 en cours	Filtre à manche S en HAP	Néant	Non	2007 à 2009 captation décantation goudrons Etude en cours pour le reste
F	S - VLE en benzène	Sans fumée	Jointes flexibles	1990-91 : Changement des cadres, montants d'ancrage, tirants et portes 2011-2016 : réfection des réfractaires des fours et bâtis des portes	Filtre à manche	Néant	Non	Installations en depression

Canalisé
Diffus
Canalisé et diffus

S : Surveillance réglementaire prescrite

VLE : valeur limite d'émission

/: Information non disponible

- **Enseignements tirés de l'analyse**

- **Enseignements généraux**

Il ressort en premier lieu que la **surveillance réglementaire** des émissions en benzène et B(a)P est hétérogène au niveau des cokeries étudiées, la surveillance en France apparaissant plus poussée que dans les autres états membres.

De fortes disparités sont observées sur les **émissions reportées dans E-PRTR**, tant sur les sources d'émissions prises en compte que sur la méthode de comptabilisation de ces émissions. Le Tableau 2 synthétise, pour le benzène et pour le B(a)P, l'ensemble des informations qui a pu être recueilli pour chacun des sites. Il convient de noter que **FE** correspond à un facteur d'émission générique retenu par l'exploitant dans une fourchette de valeurs issue du BREF I&S pour un procédé donné.

Tableau 2 : Comparaison des périmètres et méthodes de comptabilisation des émissions par les sites¹⁷

	Installation	Comptage des canalisés			Comptage des diffus							
		Chauffage batterie	Enfournement	Défournement	Portes	Enfournement	Tampons	Colonnes montantes	Défournement	Tour d'extinction	Traitement gaz	Agglomération
Benzène	Installation de référence	M	M	M	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	FE (2011)	Ø
	A	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	C	Ø
	B	Ø	Ø	Ø	FE (1987)	FE	FE	FE	Ø	Ø	X	X
	C	FE (2005)	Ø	Ø	FE (2005)	Ø	FE (2005)	Ø	Ø	Ø	Ø	X
	E	M	Ø	Ø	FE (2013)	FE (2013)	FE (2013)	FE (2013)	Ø	Ø	FE (2006)	/
	F	M	Ø	Ø	FE (2012)	FE (2012)	FE (2012)	FE (2012)	FE (2012)	Ø	FE (2012)	X
HAP	Installation de référence	M	M	M	FE (2013)	Ø	FE (2013)	FE (2013)	Ø	Ø		
	A	M	Ø	M	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	M		
	B	Ø	Ø	Ø	FE (1987)	FE	FE	FE	Ø	Ø		
	C	FE (2005)	Ø	Ø	FE (2005)	Ø	FE (2005)	Ø	Ø	Ø		
	E	Ø	Ø	M	FE (2013)	FE (2013)	FE (2013)	FE (2013)	FE (2013)	FE (2013)		
	F	Ø	Ø	Ø	FE (2012)	FE (2012)	FE (2012)	FE (2012)	FE (2012)	Ø		

M	Réalisation de mesures	X	Comptabilisé – Méthode inconnue	C	Calcul
FE	Facteur d'émission générique issu du BREF I&S	Ø	Pas de comptage		
FE	Facteur d'émission spécifique à l'installation	/	Information non disponible		

¹⁷ Pour le site D, les informations n'ont pas été communiquées

Les méthodologies mises en œuvre pour l'élaboration des **facteurs d'émission** au niveau des batteries sont très variables. Il s'agit de campagnes de mesures des émissions diffuses des fours consistant notamment en un capotage des portes, tampons et colonnes montantes pour collecte et analyse des émissions. L'Annexe 1 synthétise les périmètres de mesures et les différentes méthodologies utilisées.

Les facteurs d'émission ainsi calculés et utilisés par les installations sont présentés en Annexe 2. Ils présentent une forte dispersion qu'on retrouve également au niveau du BREF. Les divergences de méthodologies et les incertitudes non quantifiables associées à ces résultats amènent à les considérer avec réserve.

Les conditions de dispersion des émissions dans l'environnement sont très différentes : 4 cokeries (installations A, B, E et F) sont en bord de mer ; la topographie dégagée ainsi que le régime des vents sont plus favorables à la dispersion des polluants que sur les cokeries implantées dans les terres (installations de référence, installations C et D).

En matière de **surveillance dans l'environnement**, les informations collectées auprès des autorités locales ou des exploitants sont présentées en Annexe 3. A noter que certaines des données correspondent à des périodes de prélèvements courtes ne permettant pas de calculer une moyenne annuelle au sens des directives européennes¹⁸, laquelle est en théorie à comparer aux valeurs seuil. Le croisement de la base de données de de l'Agence Européenne de l'Environnement avec les coordonnées géographiques des cokeries¹⁹ déclarant au sein du registre E-PRTR a permis de compléter les résultats.

Compte tenu des niveaux mesurés dans l'environnement et de son implantation en milieu urbain dense, l'installation de référence fait l'objet d'une surveillance plus importante en nombre de points et fréquence de mesures que la majorité des autres cokeries. Des dépassements de la valeur de référence européenne y sont constatés de façon récurrente, pour le benzène et le B(a)P, dans un rayon de 600 m dans lequel sont inclus des habitations.

Pour les autres installations, sur la base des résultats disponibles, tous les niveaux mesurés dans l'environnement en benzène sont inférieurs à la valeur limite de 5 µg/Nm³. Pour ces établissements, la distance exacte entre la cokerie et le point de mesure n'est pas précisément connue. Elle est estimée comme étant a priori supérieure à 1 000 m sans pouvoir exclure que certains points soient plus proches. De plus, les données à disposition ne permettent généralement pas d'apprécier si les points de mesure sur les cokeries autres que l'installation de référence correspondent aux points d'impacts maximaux (roses des vents non disponibles). Pour certaines installations, seules des données antérieures à 2007 sont accessibles.

Globalement, moins de données de surveillance sont disponibles pour le B(a)P que pour le benzène. Sur certaines installations, les distances d'échantillonnage par rapport à la source sont parfois inférieures à 1 000 m, correspondant généralement à des localisations d'habitations. Des dépassements en B(a)P existent ou ont existé sur au moins 3 installations hors des limites de propriété : installation de référence, installations B et C. Pour le site C, ce dépassement récurrent des seuils au niveau des habitations a trouvé une réponse avec la fermeture d'une partie du site cokier, ainsi qu'un plan de rénovation pour l'installation maintenue. Sur le site B, les dépassements sont antérieurs à 2007. Entre 2008 et 2013, les valeurs sont inférieures au seuil de 1 ng/Nm³.

¹⁸ La couverture temporelle doit être supérieure à 77% de la durée annuelle pour les sites de surveillance industrielle de benzène et à 28 % pour une mesure fixe de B(a)P.

¹⁹ Les coordonnées géographiques dans E-PRTR étant généralement celles du site sidérurgique dans son ensemble, les distances ainsi calculées ne correspondent pas forcément à la distance exacte entre la cokerie et la station de mesure mais procurent un ordre de grandeur de celle-ci.

- Conclusion relative aux émissions canalisées de la zone Batteries

Parmi les différents émissaires canalisés de la partie batteries, les concentrations en benzène à l'enfournement sur l'installation de référence présentent des dépassements de la VLE française de 2 mg/Nm³. La phase de combustion au moment de l'extraction décrite par l'installation de référence n'est pas conforme à la MTD 44 (mise en place d'une combustion post-extraction) qui vise à réduire les émissions de COV. Seule une autre cokerie parmi les installations étudiées utilise un mode d'enfournement similaire, mais n'effectue pas de mesures de benzène ou B(a)P à l'émission.

Au-delà des incertitudes relevées sur les résultats de mesures et des fortes variations des flux estimés, l'enfournement apparaît clairement comme la source canalisée prépondérante (comparativement aux autres sources canalisées) pour l'installation de référence, mais ce flux est mineur au regard de l'ensemble des émissions du site (7 % en benzène en 2014 et 6 % en HAP), alors que, pour le benzène, on peut considérer que l'ensemble des émissions diffuses n'est pas pris en compte pour les calculs.

- Conclusion relative aux émissions diffuses de la zone de traitement des gaz

Au moins trois cokeries autres que l'installation de référence ont mis en place des travaux destinés à limiter les émissions en benzène (inertage des réservoirs ou captation des événements).

L'exploitant de l'installation de référence a réalisé des travaux de collecte des événements ainsi que le changement de certaines pompes de 2013 à 2016 afin de limiter les émissions de benzène sur la zone de traitement de gaz.

La bibliographie et la prise en compte des émissions de benzène pour cette zone par les autres installations confirment que ces travaux devaient être menés car il s'agit d'une des sources prépondérantes de benzène.

Il convient cependant de confirmer l'efficacité des travaux réalisés par un nombre de campagnes de surveillance du benzène dans l'environnement suffisant au regard de la variabilité des conditions de vents. De plus, des mesures sur les points de fuite résiduels (méthode sniffing) mais aussi l'instauration en routine d'une surveillance des fuites (même méthode) permettraient d'assurer la pérennité de l'action.

- Conclusion relative aux émissions diffuses de la zone Batteries

La bibliographie et le retour d'expérience européen montrent que les portes sont la source principale pour le B(a)P et ne permettent pas de les considérer comme une source mineure pour le benzène.

Les exploitants des installations étudiées ont tous annoncé avoir mené ou planifié des travaux de rénovations des batteries et disposent, dans la majorité des cas, de portes à joints flexibles, présentant une meilleure étanchéité.

Pour le site D, les niveaux de benzène à environ 1 200 m des installations ont connu des valeurs supérieures à 2 µg/Nm³ mais inférieures à 5 µg/Nm³ avant 2012. A partir de cette date, où une réhabilitation de la cokerie a été menée, incluant la rénovation des installations de traitement de gaz et le changement des portes des fours, les valeurs ont systématiquement été inférieures à 2 µg/Nm³.

Les facteurs d'émission utilisés sur l'installation de référence sont parmi les plus faibles de ceux qui ont pu être collectés dans le cadre de cette étude et inférieurs ou égaux à la valeur basse de la plage de valeurs reportée dans le BREF, et ce, pour chacune des sources d'émission.

Sur cette même installation, le remplacement des portes à joints couteaux par des portes à joints flexibles (technologie reconnue comme étant moins émissive) ainsi que de leurs bâtis a été initié (8 fours sur 64 en 2016). Ce site présente donc la technologie la plus ancienne de portes avec, semble-t-il, le moins de rénovations réalisées à ce jour parmi tous les sites étudiés. L'amélioration de la régulation de la pression des fours au niveau des 3 barillets qui induira une diminution de la pression dans les fours et donc des fuites a été planifiée.

Au regard des enseignements sur les sources d'émission et sur les actions conduites sur les autres installations européennes, la poursuite de l'action de maîtrise des émissions au niveau des portes sur l'installation de référence apparaît comme prioritaire. Elle impactera à la fois les émissions en benzène et en B(a)P. Son efficacité dépendra aussi d'une conduite de l'exploitation et d'un programme de maintenance adéquat. Les facteurs d'émission devront être révisés en conséquence.

BENZENE AND BENZO(A)PYRENE EMISSIONS MONITORING AND REDUCTION IN THE VICINITY OF COKE OVENS: European state of the art and advancements

EXECUTIVE SUMMARY

• Context and objectives

Monitoring of benzene and B(a)P concentrations²⁰ in the air in the vicinity of a French coke plant, conducted respectively since 2011 and 2013, has revealed levels in excess of the regulatory air quality monitoring limits.²¹

In the context of its stated mandate and at the request of the competent authority, INERIS conducted, between 2015 and 2016, a survey of the control of emissions from European coke plants and monitoring of pollutants in the surrounding environment, based on the bibliography and on feedback from similar facilities in France and Europe.

The purpose of the study was to collect information for facilities using processes that were more or less comparable to those of the installation in question, relative to the levels of benzene and B(a)P emissions at the point of emission and in the environment, as well as the elements of the related processes, including reduction measures. It also facilitated a survey of the limits imposed for this analysis, for example in terms of differences regarding the methods of quantifying emissions and the existence of monitoring of discharges and the environment.

The objective in the end was to put the information that was the subject of a detailed analysis into perspective with regard to the situation in place for the French installation that was the subject of elevated levels (referred to as the reference installation hereafter in this report).

• Regulatory context

Coke production is specified without any threshold in Item 1.3 of Appendix I of the IED Directive,²² transposed into the French nomenclature for Classified Facilities in category 3130. The first revision of the BREF²³ Iron and Steel Production was published in March 2012 and the conclusions regarding the related Best Available Techniques (BAT)²⁴ were published in the Official Journal of the European Union on March 8, 2012. The review of operating permits for coke production facilities based on BATs and compliance by the facilities with their operating permits were to be completed by March 9, 2016. Within the BREF, coke production is authorized by Chapter 5 and the conclusions regarding applicable BATs are numbers 42 through 58.

²⁰ Benzo(a)pyrene

²¹ Directive No. 2008/50/EC of May 21, 2008, regarding ambient air quality and pure air for Europe and Directive No. 2004/107/EC of December 15, 2004, regarding arsenic, cadmium, mercury, nickel and polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air

²² Directive 2010/75/EU of the European Parliament and Council dated November 24, 2010, relative to industrial emissions (integrated pollution reduction and prevention) (amended)

²³ Best REference

²⁴ Implementation resolution of the Commission dated February 28, 2012, establishing the conclusions regarding Best Available Techniques (BATs) in steel-making, pursuant to Directive 2010/75/EU of the European

Nevertheless, no emissions level associated with Best Available Techniques (BAT-AEL) has been established with regard to benzene or B(a)P, since BAT-AEL provisions primarily relate to dust emissions.

In France, the provisions of the decree dated February 2, 1998²⁵ are applicable to all facilities conducting this activity.

In the context of the integrated register of discharges and transfers of pollutants at the community level (known as "E-PRTR," European Pollutant Release and Transfer Register),²⁶ coke production is specified as an activity of the energy sector 1.d). Atmospheric emissions of benzene must be declared by the operator if they exceed the threshold of 1 ton/year. The declaration threshold for the 4 polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) is: benzo(a)pyrene, benzo(b)fluoranthene, benzo(k)fluoranthene and indeno(1,2,3-cd)pyrene, 50 kg/year (threshold for the sum of emissions of these compounds). For France, data are reported in the French IREP register (*Registre français des émissions polluantes* – French Register of Pollutant Emissions)²⁷ according to the same thresholds.

Benzene is the subject of harmonised classification (Appendix VI of CLP Regulation 1272/2008²⁸), including in particular the hazard statement codes H340 (may cause genetic defects) and H350 (may cause cancer).

The same is the case for Benzo(a)Pyrene with mentions of H340 (may cause genetic defects), H350 (may cause cancer) and H360 (may damage fertility or the unborn child) hazards. B(a)P is a member of the family of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) that are bioaccumulable and toxic persistent organic pollutants. B(a)P is deemed a carcinogenic risk tracer for the family of PAHs.

For coke-producing activity, benzene and B(a)P are not subject to atmospheric emission limits within Europe. In France, the ministerial decree of February 2, 1998²⁵ provides, for classified facilities requiring a permit, regulation of certain VOC emissions²⁹ including benzene and B(a)P (emission limit of 2 mg/m³, if the overall maximum flow rate per hour for the installation is greater than or equal to 10 g/h).

Directives 2008/50/CE³⁰ and 2004/107/CE³¹, transposed in Article R.221-1 of the French Environmental Code, require member states to ensure that, overall in their regions and urban areas, benzene levels in ambient air do not exceed a limit³² of 5 µg/m³, which has been applicable since January 1, 2010, and that levels of B(a)P do not exceed a limit³³ of 1 ng/m³ as of December 31, 2012. The European Environment Agency (EEA) has made the database of annual average values resulting from monitoring publicly available at the European level for member states.

Parliament and the Council relative to industrial emissions - Official Gazette of the European Union dated March 8, 2012.

²⁵ Decree of February 2, 1998, relative to diversions and consumption of water as well as emissions of all types from permitted classified facilities for environmental protection.

²⁶ Regulation No. 166/2006 of January 18, 2006, regarding the creation of a European register of discharges and transfers of pollutants, and amending Directives 91/689/EEC and 96/61/EC of the Council - Appendix 1.

²⁷ Decree of January 31, 2008, relative to the annual declaration and reporting of emissions and transfers of pollutants and waste.

²⁸ Regulation No. 1272/2008 dated December 16, 2008, relative to the classification, labeling and packaging of substances and mixtures, amending and repealing Directives 67/548/EEC and 199/45/EC and amending (EC) regulation No. 1907/2006.

²⁹ Volatile Organic Compounds

³⁰ Directive No. 2008/50/EC of May 21, 2008, regarding ambient air quality and pure air for Europe

³¹ Directive No. 2004/107/EC of December 15, 2004, regarding arsenic, cadmium, mercury, nickel and polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air

³² Annual average of 90% of the values for one hour or (if they are not available) values detected over 24 hours during the year

³³ Average total content PM10 fraction value calculated over the calendar year

- **Methodology of the study**

The study was conducted using the following methodology:

1. Identification and analysis of available data:

- Identification of existing processes and the related best available techniques, based on the BREF Iron & Steel and other literature;
- Identification of all the facilities involved based on the BREF Iron & Steel and information resulting from the E-PRTR European emissions register;
- Assessment of benzene and B(a)P emissions from coke plants or steel-producing sites per the European emissions register (E-PRTR);
- Identification of environmental monitoring results from benzene and B(a)P measurement stations in the environment located near a coke plant thanks to the database made available by the European Environmental Agency (EEA).



2. Choice of sites to be compared:

- Definition of criteria for the selection of coke plants presenting features such that their emissions may be compared to those of the reference facility;
- First selection, based on established criteria, for 15 coke plants spread throughout 10 countries;
- Contacts made to research supplemental information (beyond that available from the aforementioned sources) on selected coke plants through reference entities: environmental agencies, UBA, VITO, INFOMIL, etc., then competent authorities for the 15 sites;
- Based on the results of these contacts, selection of 6 coke plants having features close to those of the reference site, that may be the subject of detailed analysis relative to: the processes used, the actions (technical and organizational) implemented in order to control benzene and B(a)P emissions, the levels of activity and emissions, and as well as possible environmental monitoring.



3. Comparison and analysis of the corresponding information obtained with regard to:

- Coke firing and coke plant gas treatment processes implemented and investments made or planned in relation to controlling benzene and B(a)P emissions;
- Monitoring of channelled and diffuse emissions prescribed and/or implemented voluntarily, in particular performance of studies for determining emission factors specific to each facility;
- Calculation method and scope of sources for the annual report of benzene and B(a)P emissions;
- Environmental monitoring of benzene and B(a)P.

- **Inventory of facilities and choice of coke plants to be investigated**

Approximately 500 coke plants were surveyed throughout the world, 65% of which were in China³⁴ and approximately 50 in Europe. Most of the coke plants are operated at a steel-producing site.

In order to be able to support the analysis of emissions with quantitative data, the **first selection criterion** for coke plants to be included in the study was the fact that the **facilities report atmospheric emissions of benzene or PAH to the European registry E-PRTR**. 32 operating coke plants (excluding the reference installation) report to the E-PRTR. Among them, only 20 report benzene and/or PAH. The other sites are below the reporting thresholds or do not know their emission levels.

The battery ovens of the reference installation, placed into service in 1978, have a volume of 36 m³, a height of 6.16 m and are considered to be low-volume. The literature indicates that diffuse emissions, which represent one of the primary emission sources of the battery, vary significantly in particular based on the size of the oven. The **second criterion for selection** of the sites to investigate in this study was the **size of the ovens**, which facilitated the selection of 15 plants located in 10 countries.

Contact with the competent authorities and agencies took place between April 2015 and September 2016 and allowed a shortlist of 6 coke plants (referenced as A through D in this document) that had features that were relatively similar to those of the reference installation, and for which it was possible to obtain more detailed information. Two of these facilities were able to be visited.

- **Sources of emissions in the process**

A coke plant comprises 3 zones:

- coal and coke handling and preparation;
- Ovens grouped into batteries;
- Treatment facilities for the gas produced.

The ovens are rectangular parallelepipeds. The oven chambers are heated through heating flues, located between the chambers, in which cleaned coke oven gas or blast furnace gas is combusted. Smoke is exhausted through the battery stack. The upper portion of the oven is equipped with an ascension pipe allowing process gas produced during the coke heating process to be exhausted into the collecting main.

Various techniques are used to load the oven at the openings located in the top of the oven, but the most usual types are gravity-fed. During the cooking process, which may last between 15 and 25 hours, gas is vented via the ascension pipe. The oven doors are opened at the end and the glowing coke is pushed out of the oven by the coke pushing machine. The coke is then cooled in the quenching tower.

The coke oven gas, a rich gas produced by the ovens, generally replaces natural gas in steelmaking. So as it leaves the ovens it is cooled by spraying with ammonia water. The mixture flows together into a horizontal collector, located alongside the battery and it is cooled in indirect exchangers (primary condensers) then in electrical separators allowing the tar to be removed to be recycled. Various procedures may, then, be used to treat the gas. The ammonia and sulfur contained in the gas are respectively recovered for reuse in the process and for sale. Lastly, the light hydrocarbons present in the gas are also extracted, either by simple fuel oil washing allowing the naphthalinated fuel oil to be sold, or by debenzolization, differentiated extraction by oil washers and distillation, of the benzole as well as the other naphtha solvents.

³⁴ Environmental Control and Emission Reduction for Coking Plants - INTECH - 2012

The reference installation is a stand-alone coke plant that burns the coke oven gas to heat the batteries. The other coke plants studied were part of a steelmaking site and sent the coke oven gas to the blast furnaces, while they burned the blast furnace gas to heat the batteries.

In general, the primary zones that have an impact are the batteries due to benzene and B(a)P emissions and the gas treatment facilities for benzene emissions.

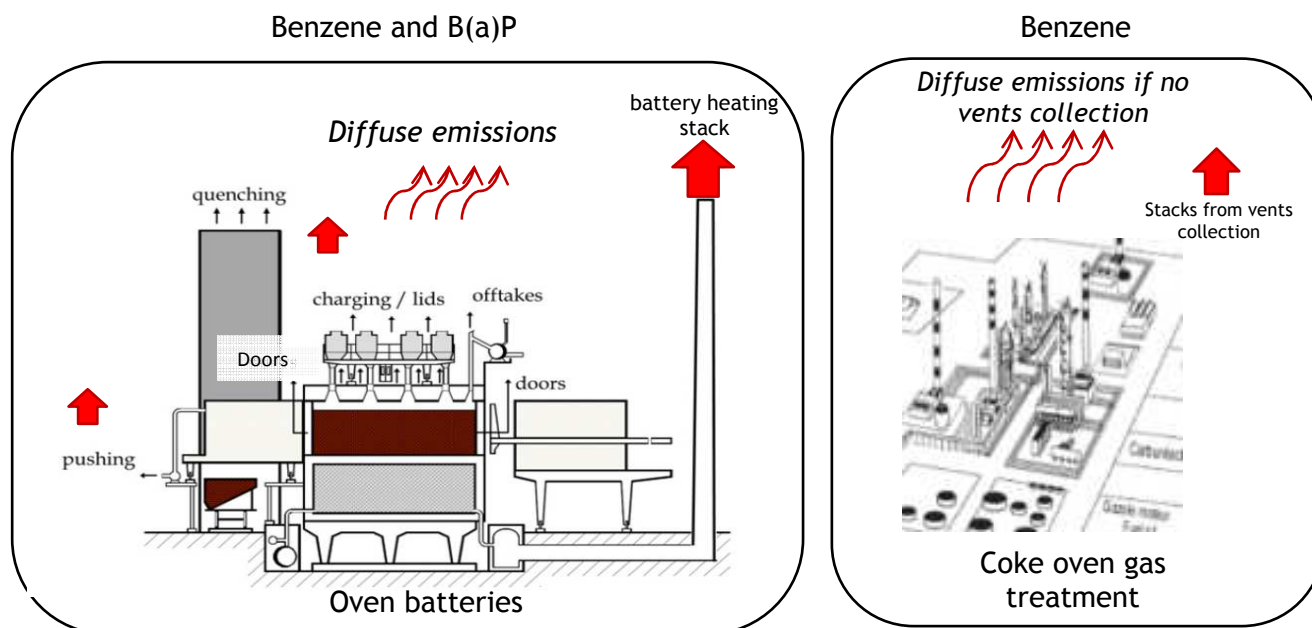


Table 1 presents, for the oven battery and gas treatment areas, a summary of the primary sources identified at each of the 6 facilities:

- The **battery heating stack** is the subject of monitoring for benzene and PAHs for 4 of the facilities studied (including the reference installation).
- The technology used for **loading** is different for each coke plant. Smokeless loading may generate some diffuse emissions at the loading openings (called lids) and may cause plumes of smoke (released at the level of the ascension pipes). "Japanese" loading, as carried out at the reference installation, was only found at one of the studied coke plants.
- Leaks around the **doors** are one of the sources of the majority of emissions. Doors with flexible seals are generally known to be the source of fewer emissions than those with knife-edge seals.³⁵ Renovations conducted or planned for the doors and the frames of the various coke plants are specified in the same table.
- **Pushing** is generally the subject of capture, with or without processing using a bag filter intended to capture dust, with or without benzene and PAH monitoring.
- **Quenching** is sometimes the subject of diffuse emission measurement.
- One of the primary differences between the facilities in terms of **gas treatment** processes is whether or not benzole (a mixture of benzene, toluene and xylenes) is extracted for recycling. Work intended to limit diffuse emissions from the tanks (capture of events or inerting of tanks) is also present.

³⁵ INTECH: B(a)P emission factors associated with membrane seal doors and knife-edge seal doors: Membrane seal doors: 1-10 mg B(a)P/t coke, Knife-edge seal doors: 10-45 mg B(a)P/t coke

Table 1: Summary of the primary sources identified at each of the facilities and related significant information (regulatory monitoring, investments already made or planned)

Installation	Batteries						Gas treatment	
	Battery heating	Loading	Doors		Pushing: capture	Quenching	Benzole extraction	Prevention of diffuse emissions from tanks
			Door types	Renovations				
Ref. Installation	M – ELV for benzene and PAH	Japanese M - ELV	Knife-edge seals	Started in 2016 (8/64 ovens)	Bagfilter M – ELV for benzene and PAH	n/a	Yes	Work from 2013-2016 to collect and burn in boilers
A	M of PAH	Japanese	Knife-edge seals with adaptation allowing better sealing	Modification for better sealing Replacement as necessary	Bag filter M of PAH	M of PAH	Yes	Work from 2000 to 2014 – Nitrogen inerting
B	n/a	Smokeless	Flexible seals	Door replacement (date not specified)	/	n/a	Yes	/
C	n/a	Smokeless	Flexible seals	2016: Decrease in production and plan for renovation offrames, doors, seals, etc.	No filter	n/a	Yes	Replacement of gas treatment facilities planned
D	n/a	Stationary stamping M - ELV	Flexible seals Pressure regulation / oven	2012: Change doors and pressure regulation / oven	/	n/a	/	2012: Renovation of facilities
E	M - ELV for benzene	Smokeless	Flexible seals – Self-sealing – Local and specific design	2007 to 2016: Replace frames of Battery No. 1 – Battery No. 2 in progress	Bag filter M of PAH	n/a	No	2007 to 2009 capture decanting of tar Study in progress for the remainder
F	M - ELV for benzene	Smokeless	Flexible seals	1990-91: Change frames, closers and doors 2011-2016: Overhaul refractories of ovens and door frames	Bag filter	n/a	No	Low pressure facilities

Channelled
Diffused
Channelled and diffused

M: Monitoring req. by regulation

ELV: Emission limit value

/: Information not available

- **Lessons drawn from the analysis**

- **General information**

First, it was shown that **regulation requirements for monitoring of emissions** for benzene and B(a)P are not uniform among the coke plants studied; monitoring in France appears to be more determined than in other member countries.

There are significant disparities between **emission levels reported in E-PRTR**, with regard to emission sources considered as well as methods of reporting the emissions. Table 2 summarizes, for benzene and for B(a)P, all the information that was able to be collected for each of the sites. It is helpful to note that *EF* is a generic emission factor selected by the operator within a range of values from the I&S REPORT for a given process.

Table 2: Comparison of scope and method for reporting emissions by sites³⁶

	Installation	Channelled emissions			Diffused emissions							
		Battery heating	Loading	Pushing: capture	Doors	Loading	Lids	Offtakes	Pushing: capture	Quenching tower	Gas treatment	Collection area
Benzene	Ref. Installation	M	M	M	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	EF (2011)	Ø
	A	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	C	Ø
	B	Ø	Ø	Ø	EF (1987)	EF	EF	EF	Ø	Ø	X	X
	C	EF (2005)	Ø	Ø	EF (2005)	Ø	EF (2005)	Ø	Ø	Ø	Ø	X
	E	M	Ø	Ø	EF (2013)	EF (2013)	EF (2013)	EF (2013)	Ø	Ø	EF (2006)	/
	F	M	Ø	Ø	EF (2012)	EF (2012)	EF (2012)	EF (2012)	EF (2012)	Ø	EF (2012)	X
PAH	Ref. Installation	M	M	M	EF (2013)	Ø	EF (2013)	EF (2013)	Ø	Ø		
	A	M	Ø	M	Ø	Ø	Ø	Ø	Ø	M		
	B	Ø	Ø	Ø	EF (1987)	EF	EF	EF	Ø	Ø		
	C	EF (2005)	Ø	Ø	EF (2005)	Ø	EF (2005)	Ø	Ø	Ø		
	E	Ø	Ø	M	EF (2013)	EF (2013)	EF (2013)	EF (2013)	EF (2013)	EF (2013)		
	F	Ø	Ø	Ø	EF (2012)	EF (2012)	EF (2012)	EF (2012)	EF (2012)	Ø		
M	Performing measurements				X	Record-keeping – Unknown method				C	Calculation	
EF	Generic emission factor from the I&S BREF				Ø	No emission considered						
EF	Emission factor specific to the installation				/	Information not available						

³⁶ For Site D, information was not reported

The methodologies implemented to prepare the **emission factors** for the batteries vary widely but are always based on emission measurement campaigns for the ovens comprising in particular encapsulating doors, lids and offtakes for emission collection and analysis. Appendix 1 synthesizes the scope of the measurements and the various methodologies used.

The emission factors calculated in this manner and used by the facilities are presented in Appendix 2. They show significant dispersal, which is also seen with regard to the BREF. Divergences between methodologies and the related unquantifiable uncertainties lead one to consider them with reservation.

The conditions for dispersal of emissions into the environment vary greatly: 4 coke plants (installations A, B, E and F) are on the coast; the open topography as well as winds conditions are more favorable to the dispersal of pollutants than for coke plants located inland (reference installation, installations C and D).

With regard to **environmental monitoring**, the information collected from local authorities or operators is presented in Appendix 3. It should be noted that certain of the data correspond to short sampling periods which do not allow an annual average to be calculated pursuant to European directives,³⁷ which in theory is to be compared to threshold values. Cross-referencing the database of the European Environment Agency with the geographical data from the coke plants³⁸ reporting to the E-PRTR register has allowed the results to be filled out.

Considering the levels measured in the environment and the dense, urban location, the reference installation is the subject of more significant monitoring in terms of the number of points and frequency of measurement in comparison to the majority of other coke plants. The measurements for benzene and B(a)P repeatedly exceed the European reference value within a radius of 600 m within which residences are located.

For other installations, based on the available results, all benzene levels measured in the environment are below the limit value of 5 µg/Nm³. For these installations, the exact distance between the coke plant and the measurement point is not accurately known. It is estimated *a priori* to be in excess of 1,000 m without excluding the possibility that certain points may be closer. Additionally, available data generally do not allow assessment of whether the measurement points for the coke plants other than the reference installation correspond to the points of maximum impact (wind directions not available). For certain facilities, only data prior to 2007 are available.

Overall, less monitoring data is available for B(a)P than for benzene. For certain facilities, the sampling distances from the source are at times less than 1,000 m, generally corresponding to residential locations. B(a)P emissions in excess of limit value beyond property boundaries exist or have existed for at least 3 facilities: reference installation, facilities B and C. For Site C, this excess amount recurs over the thresholds in the vicinity of residences and the response has been to close a portion of the coke plant site, as well as a plan to renovate the portion of the installation still in service. At Site B, the excess emissions predate 2007. Between 2008 and 2013, the values are below the threshold of 1 ng/Nm³.

³⁷ Time coverage must be greater than 77% of the annual duration for industrial monitoring sites for benzene and 28% for stationary measurement of B(a)P.

³⁸ Since the geographic coordinates in E-PRTR are generally those of the steelmaking site as a whole, the distances thus calculated do not necessarily correspond to the exact distance between the coke plant and the measurement station, but they obtain an order of scale of the same.

- Conclusion relative to channelled emissions from the Batteries zone

Among the various channelled emissions from the batteries section, the benzene concentrations at charging for the reference installation exceed the French ELV of 2 mg/Nm³. The combustion stage at the time of extraction described by the reference installation does not comply with BAT 44 (implementation of post-extraction combustion) which is intended to reduce VOC emissions. Only one other coke plant among the studied facilities uses a similar charging procedure, but does not measure benzene or B(a)P emissions.

Beyond the uncertainties detected in the results of measurements and significant estimated variations in flow, charging appears to clearly be the predominant source (compared to other directed sources) for the reference installation, but this flow is minor in comparison to the total emissions of the site (7% benzene in 2014 and 6% PAH), while for benzene, total diffused emissions are not included for the calculations.

- Conclusions relative to diffused emissions in the gas treatment zone

At least three coke plants other than the reference installation conducted work intended to limit benzene emissions (inerting of tanks or vent capture).

The operator of the reference installation conducted collection work on vents as well as the replacement of certain pumps from 2013 through 2016 in order to limit benzene emissions in the gas treatment zone.

The literature and the inclusion of benzene emissions for this zone by other installations confirms that this work must be carried out because it involves one of the predominant sources of benzene.

It is helpful, however, to confirm the effectiveness of the work conducted by a number of benzene monitoring campaigns in the environment as being sufficient with regard to the variability of wind conditions. In addition, measurements taken at residual leak sources (sniffing method) but also the start of routine leak monitoring (same method) will allow the action to be sustained.

- Conclusion relative to diffused emissions from the Batteries zone

The bibliography and European feedback show that doors are the primary source of B(a)P and they cannot be deemed a minor source of benzene.

The operators of the installations studied all stated that they had conducted or planned batteries renovation works and that they had, in most cases, flexible seal doors, which allow a better seal to be made.

For Site D, benzene levels at approximately 1,200 m from the installations were in excess of 2 µg/Nm³ but less than 5 µg/Nm³ prior to 2012. As of that year, when the coke plant was rehabilitated, including the renovation of gas treatment installations and the replacement of the oven doors, the values were systematically below 2 µg/Nm³.

The emission factors used on the reference installation are among the lowest of those that were able to be collected within this study and they were less than or equal to the low value of the range of values reported in BREF, for each of the emission sources.

At the same facility, the replacement of doors with knife-edge seals with doors with flexible seals (technology recognized as causing fewer emissions) as well as the corresponding frames was undertaken (8 ovens out of 64 in 2016). This site therefore has the oldest door technology with, it would seem, the fewest renovations carried out to date among all the sites that were studied. The improvement in oven pressure regulation of the 3 collecting mains that will decrease pressure in the ovens as well as leaks has been scheduled.

With regard to lessons learned regarding emission sources and actions carried out on other European installations, ongoing activities to control emissions related to the doors at the reference installation would seem to be a priority. The improvements will affect benzene as well as B(a)P emissions. Effectiveness of these actions will also depend on operations and a suitable maintenance program. The emission factors must therefore be reviewed.

LISTE DES ANNEXES / LIST OF APPENDIXES

Repère Benchmark	Désignation / Designation	Nb/Format pages Nb/Page format
1	Comparaison des méthodologies utilisées pour l'élaboration des facteurs d'émission diffuses spécifiques aux sites Comparison of methodologies used to determine site-specific diffuse emission factors	02 A4
2	Comparaison des facteurs d'émissions benzène et b(a)p disponibles Comparison of available benzene and B(a)P emission factors	02 A4
3	Synthèse des concentrations relatives à la surveillance environnementale autour des sites Summary of concentrations relative to environmental monitoring around sites	05 A4

**ANNEXE 1 : COMPARAISON DES METHODOLOGIES UTILISEES POUR
L'ELABORATION DES FACTEURS D'EMISSION DIFFUSES SPECIFIQUES
AUX SITES**

	Date de l'étude	Composés mesurés	Portes	Tampons	Enfournement	Défournement	Colonnes
Installation de référence	2013	16 HAP et benzène	7 essais sur 7 jours Chaque essai présente un réglage de fuite de 0, 1 ou 2 (EPA) Prélèvements séquencés sur 7 h	3 séries de mesure de 2 h sans lutage. Le facteur d'émission est calculé en prenant la moyenne des émissions sur les 2 h et en la ramenant à 10 min de fuite (avant lutage) et appliqué de façon systématique pour toutes les cuissons	Non traité	Non traité	3 séries de mesures de 2 h. Le facteur d'émission est ramené à 17 min de fuite et appliqué de façon systématique pour toutes les cuissons.
B	1987	16 HAP et benzène	Réalisé mais pas d'information	Non traité	Non traité	Non traité	Non traité
C	2005	16 HAP et benzène	8 essais sur 5 fours et sur 8 jours Chaque essai présente un réglage de fuite de 0, 2 ou 3 (méthode BCRA) 6 prélèvements de 3 h et 3 prélèvements séquencés sur 4 h	6 séries de mesures sur tampons de degré de fuite 0 et 1 Le facteur d'émission est calculé en prenant la moyenne des émissions sur les 2 h et en la ramenant à 10 min de fuite (avant lutage) et appliqué de façon systématique pour toutes les cuissons	Non traité	Non traité	Non traité

	Date de l'étude	Composés mesurés	Portes	Tampons	Enfournement	Défournement	Colonnes
E	2005	B(a)P et benzène	1 essai sur une porte avec atténuation du niveau de fuite pendant l'essai du grade 4 au grade 0 sur une durée de 8h30 (méthode BCRA)	5 mesures de 40 min à 2 h sur 3 tampons présentant 3 niveaux de fuite : lutage manuel, mauvais lutage, pas de lutage	2 séries de mesures sur rafales de chargement, chacune sur 2 tampons		
	2013	B(a)P et benzène	1 essai avec 3 échantillonnages de 20 min sur la 1 ^e heure et 8 échantillonnages de 30 min de la 2 ^e à la 5 ^e heure. 1 seul niveau de fuite	4 séries de mesures de 30 min sur 2 tampons fuyards Le facteur d'émission est ramené à 10 min de fuite et appliqué aux tampons jugés fuyards (1,6% en 2013)	4 séries de mesures sur 8 enfournements Le facteur d'émission est ramené la durée de rafale de 2 min 30 et multiplié par le nombre d'enfournements	B(a)P uniquement 8 défournements Le niveau d'émission est calculé sur la durée du défournement (2mn30) et le nombre de défournements	2 essais de 30 mn sur 2 colonnes à niveaux de fuite standards et importants Le niveau d'émission est calculé sur la durée de cuisson (19h30) en prenant en compte le niveau de fuite des colonnes (4 % jugés fuyards en 2013)
F	2012	16 HAP et benzène	2 portes présentant 2 niveaux de fuites Nombre d'essais / porte non disponible	Mesure de 2 h sur tampon avec lutage jugé fuyard. Le facteur d'émission est utilisé tel quel sur les tampons considérés fuyards (10% en 2012)	Pas d'information	Pas d'information	2 fonctionnements : normal (ouverture à l'enfournement) et dégradé (ouverture après l'enfournement)

APPENDIX 1 : COMPARISON OF METHODOLOGIES USED TO DETERMINE SITE-SPECIFIC DIFFUSE EMISSION FACTORS

	Study date	Compounds measured	Doors	Lids	Loading	Pushing	Offtakes
Ref. Installation	2013	16 PAH and benzene	7 tests over 7 days Each test presents a leak adjustment of 0, 1 or 2 (EPA) Sequential sampling over 7 hrs.	3 series of 2-hr. measurements without complete seal The emission factor is calculated by taking the average emissions over 2 hours and applying it to 10 mins. of leak (before complete seal) and applied systematically for all firings	Not covered	Not covered	3 series of 2-hr. measurements The emission factor is applied to 17 mins. of leaks and applied systematically for all firings.
B	1987	16 PAH and benzene	Conducted but no information	Not covered	Not covered	Not covered	Not covered
C	2005	16 PAH and benzene	8 tests on 5 ovens over 8 days Each test presents a leak adjustment of 0, 2 or 3 (BCRA method) 6 samplings of 3 hrs. and 3 sequential samplings over 4 hrs.	6 series of measurements on lids with a leak degree of 0 to 1 The emission factor is calculated by taking the average emissions over 2 hours and applying it to 10 mins. of leak (before complete seal) and applied systematically for all firings	Not covered	Not covered	Not covered

	Study date	Compounds measured	Doors	Lids	Loading	Pushing	Offtakes
E	2005	B(a)P and benzene	1 test on a door with attenuation of the leak level during the test from grade 4 to grade 0 over a period of 8 hrs. and 30 mins (BCRA method)	5 measurements of 40 mins. to 2 hrs. on 3 lids presenting 3 leak levels: Manual sealing, poor sealing, no sealing	2 series of measurements on charging bursts on 2 lids		
	2013	B(a)P and benzene	1 test with 3 sampling campaigns of 20 mins. in the 1st hour and 8 sampling campaigns of 30 mins. from the 2nd to the 5th hour. 1 single leak level	4 series of measurements of 30 mins. on 2 leaking lids The emission factor is brought to 10 min. of leak and applied to lids deemed to be leaking (1.6% in 2013)	4 series of measurements over 8 charges The emission factor is applied to the gust duration of 2 min. and 30 seconds and multiplied by the number of charges.	B(a)P only 8 pushes The emission level is calculated on the length of pushing (2:30 mins.) and the number of pushes	2 tests of 30 mins. on 2 offtakes at the standard and significant leak levels The emission level is calculated on the firing length (19hrs. 30 min.) taking into consideration the leak level of the offtakes (4% deemed leaky in 2013)
F	2012	16 PAH and benzene	2 doors presenting 2 leak levels Number of tests/door not available	Measurement of 2 hrs. on the lid with sealing deemed leaky. The emission factor is used as such on the lids deemed to be leaky (10% in 2012)	No information	No information	2 operating regimes: Normal (open at charging) and degraded (open after charging)

**ANNEXE 2 : COMPARAISON DES FACTEURS D'EMISSIONS BENZENE
ET B(A)P DISPONIBLES**

**APPENDIX 2: COMPARISON OF AVAILABLE BENZENE AND B(A)P
EMISSION FACTORS**

Comparaison des facteurs d'émission **benzène** disponibles (mg/t de coke)/ Comparison of available **benzene** emission factors (mg/t of coke)

	Enfournement / Loading	Portes / Doors	Tampons / Lids	Colonnes montantes / Offtakes	Défournement / Pushing	Total diffus batterie / Total battery diff.	Chauffage batteries / Battery heating	Chauffage batteries / Total directed	Traitement gaz / Gas treatment
BREF	10-1 200	200- 14 000	800-8 000	10-100	Néant n/a	1 020- 23 300	Néant n/a	100-45 000	100-24 000 4 000-26 000 ³⁹
Installation de référence / Ref. Installation	Néant n/a	30-60- 220 ⁴⁰	34	11	Néant n/a	/	Néant n/a	/	121 600 (2011) 16 745 (2014)
B	10	468-503 ⁴¹	800	10	Néant n/a	/	Néant n/a	/	n/a
C	Néant n/a	1 123	0.5	n/a	Néant n/a	/	2 365	/	21 000
E	6 (2005) 10 (2013)	14 100 (2005) 370 (2013)	0.31 (2005) 3 (2013)	3 (2013)	Néant n/a		Néant n/a	/	Non disponible en mg/t Not available in mg/t
F	126	4 694	4 572	8 300	4	/	6 800	/	1 600

³⁹ Les valeurs inférieures correspondent à des sites mettant en œuvre des techniques d'inertage au gaz ou de captation des événements alors que les valeurs supérieures peuvent conduire à des émissions annuelles totales de l'ordre de 200 à 320 tonnes en benzène / The lower values correspond to sites using gas inerting techniques or vent capture, while the upper values may lead to total annual emissions on the order of 200 to 320 tons of benzene

⁴⁰ Pour chacun des 3 niveaux de fuites / For each of the 3 levels of leaks

⁴¹ Pour chacune des batteries / For each of the batteries

Comparaison des facteurs d'émission **B(a)P** disponibles (mg/t de coke)/ Comparison of available **B(a)P** emission factors (mg/t of coke)

	Enfournement Loading	Portes Doors	Tampons Lids	Défournement Pushing	Colonnes montantes Offtakes	Extinction Extinguish ment	Total diffuse batteries Total battery diff.	Chauffage batteries Battery heating	Total canalisé Total directed	Traitement gaz Gas treatment
BREF	0.02-4.5	4.5-45 ⁴²	9-15 ⁴³	Néant n/a	0.3-3 ⁴⁴	Néant n/a	13.82- 67.5	0	0	0.06-0.09
Installation de reference / Ref. Installation	Néant n/a	5.53-10.67- 14.68 ⁴⁵	0.42	Néant n/a	0.11	Néant n/a	/	Néant n/a	/	Néant n/a
B	0.02	4.1-4.4 ⁴⁶	9	Néant - n/a	0.3	Néant - n/a	/	Néant - n/a	/	Néant - n/a
C	Néant - n/a	100	0.13	Néant - n/a	n/a	Néant - n/a	100.6	0.46	/	Néant - n/a
E	0.087 (2005) 0.21 (2013)	90 (2005) 6.2 (2013)	0.0015 (2005)	0.098 (2005) 2.8 (2013)	0.16 (2013)	0.6 (2005) 5.99 (2013)	90.7 (2005)	Néant n/a	/	Néant n/a
F	10	19	10	0	729	Néant n/a	/	Néant n/a	/	Néant n/a

⁴² Intech - Approche "Single leak": Régulation pression four : < 1 mg/t, Membrane : 1-10 mg/t, couteaux : 10-45 mg/t/ Intech - "Single leak" approach: Oven pressure regulation: < 1 mg/t, Membrane 1-10 mg/t, knife-edges: 10-45 mg/t

⁴³ Intech - Approche "Single leak": étanche : 0,3-3 mg/t, Non étanche : 3-5 mg/t / Intech - "Single leak" approach: leakproof: 0.3-3 mg/t, Not leakproof: 3-5 mg/t

⁴⁴ Intech - Approche "Single leak": Joints à eau : <1 mg/t, Metal/métal : <3 mg/t / Intech - "Single leak" approach: Water seals: < 1 mg/t, Metal/metal: <3 mg/t

⁴⁵ Pour chacun des 3 niveaux de fuites / For each of the 3 levels of leaks

⁴⁶ Pour chacune des batteries / For each of the batteries

**ANNEXE 3 : SYNTHÈSE DES CONCENTRATIONS RELATIVES À LA
SURVEILLANCE ENVIRONNEMENTALE AUTOUR DES SITES**

**APPENDIX 3: SUMMARY OF CONCENTRATIONS RELATIVE TO
ENVIRONMENTAL MONITORING AROUND SITES**

Synthèse des concentrations en **benzène** (µg/m³) relatives à la surveillance environnementale autour des sites (données EEA et données collectées auprès des autorités ou des exploitants) /

Summary of **benzene** concentrations (µg/m³) relative to environmental monitoring around sites (EEA data and data collected from officials or operators)

Usine / Plant	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	Distance station / cokerie Station / coke plant distance
Installation de référence							20.8	15.4	15.4	8.4	8.0	300
							10.8	18.0	18.0	7.4	8.9	500
							8.3	7.0	7.0	8.8	7.7	620
Reference Installation							7.0	9.5	9.5	4.5	4.6	830
							5.2	7.4	7.4	3.1	4.0	1100
							9.0	5.1	5.1	3.2	3.3	600
A							4.8	4.9	4.9	5.6	4.9	600
							3.5	3.4	3.4	3.6	3.1	900
							4.0	3.4	3.4	2.5	2.7	850
							3.2	1.8	1.8	2.7	2.6	930
							3.1	2.0	2.0	2.4	2.3	1350
							2.4	1.9	1.9	2.8	2.4	1400
							2.6	1.6	1.6	2.7	2.4	1200
							1.6	1.3	1.3	1.5	1.6	1600

> 5 µg/m³	5 µg/m³ : valeur limite en moyenne annuelle limit value as annual average ⁴⁷
3.5-5 µg/m³	3.5 µg/m³: seuil d'évaluation supérieur / upper assessment threshold ²⁹
2-3.5 µg/m³	2 µg/m³: seuil d'évaluation inférieur / lower assessment threshold ²⁹
<i>Italique Italics:</i>	Informations collectées auprès des autorités locales ou des exploitants Information collected from local officials or operators

⁴⁷ Directive n° 2008/50/CE du 21/05/08 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe / Directive No. 2008/50/EC of May 21, 2008, regarding ambient air quality and pure air for Europe

Usine / Plant	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	Distance station / cokerie Station / coke plant distance
B		0.4										≈ 1300
		0.4										≈ 1500
C	1.80											2000 +/- 200
	1.93											2000 +/- 200
	1.89											2000 +/- 200
	1.57											2000 +/- 200
	1.37											2000 +/- 200
	1.39											2000 +/- 200
	1.50											2000 +/- 200
	1.08											2000 +/- 200
	1.31											2000 +/- 200
	3.39											≈ 800
	2.09											2000 +/- 200
	2.74											2000 +/- 200
	1.65											2000 +/- 200
	1.55											2000 +/- 200
								1.2	2.2	2.3		1242
D		2.3	1.5	2.1	1.7	2.2	1.5	1.7	1.4	1.6		1339
E	1.5		1.4	1.0								≈ 1747
										1.22	2.15	≈ 1000
F		2.4	1.3	1.7	2	1.8		1.0				≈ 4 300

Usine / Plant	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	Distance station / cokerie Station / coke plant distance
		1.6	1	1.3	0.9	1.3						≈ 4 700

Synthèse des concentrations **en B(a)P** (ng/m³) relatives à la surveillance environnementale autour des sites (données EEA et données collectées auprès des autorités ou des exploitants) / Summary of **B(a)P** concentrations (ng/m³) relative to environmental monitoring around sites (EEA data and data collected from officials or operators)

Usine / Plant	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	Distance entre la station de mesure et la cokerie Distance between the measurement station and the coke plant
Installation de référence Reference Installation ⁴⁸									0.24	1.32	1.16	1000
									0.96	1.46	2.34	600
									1.93	4.21	0.63	900
									1.47	6.56	2.06	1100
A		0.14						0.15				≈ 500
		0.1						0.11				≈ 1000
		0.05						0.02				≈ 900
		0.26						0.1				≈ 900
B ⁵⁰	0.8	1.7	1.2	0.55	0.65	0.59	0.82	0.7	0.51			≈ 1500
							0.36	0.4	0.62			≈ 1300
							0.55	0.51	0.4			≈ 1,900
							0.92	0.62	0.7			≈ 300
C				1.3	0.8	1.2	1.3	1.4	3.9	3.5		≈ 1,300
					1.8	3	2.9	3.4				≈ 800

> 1 ng/m ³	1 ng/m ³ : valeur limite en moyenne annuelle / limit value as annual average ⁴⁹
0.6-1 µg/m ³	0.6 ng/m ³ : seuil d'évaluation supérieur / upper assessment threshold ⁴⁹
0.4-0.6 µg/m ³	0.4 ng/m ³ : seuil d'évaluation inférieur / lower assessment threshold ³¹
<i>Italique</i> <i>Italics</i>	Informations collectées auprès des autorités locales ou des exploitants Information collected from local officials or operators

⁴⁸ Moyenne des campagnes réalisées sur l'année / Average of campaigns conducted during the year

⁴⁹ Directive n°2004/107/CE du 15/12/04 concernant l'arsenic, le cadmium, le mercure, le nickel et les hydrocarbures aromatiques polycycliques dans l'air ambiant / Directive No. 2004/107/EC of December 15, 2004 regarding arsenic, cadmium, mercury, nickel and polycyclic aromatic hydrocarbons in ambient air

⁵⁰ Valeurs extrapolées sur la base d'un graphe / Values extrapolated based on a graph

Usine / Plant	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	Distance entre la station de mesure et la cokerie Distance between the measurement station and the coke plant
F							0.15					≈ 4,700



INERIS

*maîtriser le risque
pour un développement durable*

Institut national de l'environnement industriel et des risques

Parc Technologique Alata
BP 2 - 60550 Verneuil-en-Halatte

Tél. : +33 (0)3 44 55 66 77 - Fax : +33 (0)3 44 55 66 99

E-mail : ineris@ineris.fr - Internet : <http://www.ineris.fr>