

Projet RHAPSODIE 2

Note de synthèse

Répartition gazeuse et
particulaire des HAPs, nitro-HAP
et Oxy-HAP émis par les
biocarburants Diesel



EXPERTISES

Mai
2022

REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient l'ADEME pour l'aide financière accordée à la réalisation de ce projet, ainsi que Mme Martine COUSTAL pour le suivi administratif/financier et M. Laurent GAGNEPAIN pour le suivi technique.

CITATION DE CE RAPPORT

Français :

Mickaël Leblanc¹, Alexandre Albinet², Stéphane Raux¹, 2021. CORTEA 2019. *RHAPSODIE 2 - Répartition gazeuse et particulaire des HAPs, nitro-HAP et Oxy-HAP émis par les biocarburants Diesel (convention ADEME 1966C0007). Synthèse. 15 pages*

¹ IFP Energies Nouvelles, Institut Carnot IFPEN Transports Energie, Rond-point de l'échangeur de Solaize, BP 3, 69360 Solaize, France

² Ineris, Parc Technologique Alata, Verneuil-en-Halatte, 60550, France

Anglais :

Mickaël Leblanc¹, Alexandre Albinet², Stéphane Raux¹, 2021. CORTEA 2019. *RHAPSODIE 2 – Gas/particle phase distribution of PAHs, nitro-PAHs and oxy-PAHs emitted by Diesel biofuels (ADEME convention 1966C0007). Synthesis. 15 pages*

¹ IFP Energies Nouvelles, Institut Carnot IFPEN Transports Energie, Rond-point de l'échangeur de Solaize, BP 3, 69360 Solaize, France

² Ineris, Parc Technologique Alata, Verneuil-en-Halatte, 60550, France

Cet ouvrage est disponible en ligne www.librairie.ademe.fr/

Toute représentation ou reproduction intégrale ou partielle faite sans le consentement de l'auteur ou de ses ayants droit ou ayants cause est illicite selon le Code de la propriété intellectuelle (art. L 122-4) et constitue une contrefaçon réprimée par le Code pénal. Seules sont autorisées (art. 122-5) les copies ou reproductions strictement réservées à l'usage privé de copiste et non destinées à une utilisation collective, ainsi que les analyses et courtes citations justifiées par le caractère critique, pédagogique ou d'information de l'œuvre à laquelle elles sont incorporées, sous réserve, toutefois, du respect des dispositions des articles L 122-10 à L 122-12 du même Code, relatives à la reproduction par reprographie.

Ce document est diffusé par l'ADEME

ADEME

20, avenue du Grésillé
BP 90 406 | 49004 Angers Cedex 01

Numéro de contrat : 1966C0007

Projet de recherche réalisée par IFP Énergies nouvelles et INERIS et financé par l'ADEME

Coordination : IFP Énergies nouvelles

Appel à projet de recherche : CORTEA 2019

Coordination technique - ADEME : GAGNEPAIN Laurent

Direction/Service : DVT/STM

SOMMAIRE

RÉSUMÉ	4
ABSTRACT	5
1. PRESENTATION DU PROJET	6
1.1. Contexte	6
1.2. Objectifs.....	7
1.3. Description	8
2. BILAN / PRINCIPAUX RESULTATS	10
2.1. Bilan	10
2.2. Principaux résultats.....	10
2.2.1.1. Polluants règlementés.....	10
3. CONCLUSIONS / RECOMMANDATIONS / PERSPECTIVES	13

RÉSUMÉ

Le projet RHAPSODIE 2 (2019-2022) avait pour objectif d'évaluer l'impact sur les émissions de différentes bases de biocarburants Diesel et taux d'introduction sur les émissions d'un véhicule Diesel Euro 6d-ISC ayant des caractéristiques proches de ceux évalués précédemment lors du projet RHAPSODIE 1 (2017-2019) (1 véhicule Diesel et 2 véhicules essence Euro 6-dTemp). La matrice carburants, créée à partir d'un gazole B0 et de 3 bases d'origines distinctes, inclut trois teneurs d'ester méthylique d'huile de colza (RME en anglais) (7, 10 et 19 %), deux teneurs d'huile végétale hydrogénée (HVO ; 10 et 28 %) et de biocarburant issu de gaz via le procédé Fischer-Tropsch (GTL ; 10 et 26 %), ainsi qu'un mélange contenant 10 % d'EMHV+HVO.

Les essais (environ 7500 km parcourus et près de 225 tests) ont été menés au banc à rouleau sur cycles WLTC et répétitions de phases WLTC low afin d'évaluer les émissions du véhicule dans des conditions de roulage mixtes et urbaines, ainsi que pour des démarrages moteur à température ambiante ou chaude. Parmi les principales conclusions du projet RHAPSODIE 2 :

- La consommation de carburant relevée avec le B7-RME de référence sur WLTC est similaire à celle déclarée par le constructeur et augmente avec la teneur en esters (B7 < B10 < B19), les résultats obtenus avec les différentes bases étant proches (+/- 1 %). La consommation d'AdBlue est de l'ordre de 0,11 l/100 km.
- Pour les essais sur cycle WLTC avec le B7-RME de référence, les émissions d'ammoniac (NH₃) équivalent à environ 1 à 2 fois la limite envisagée pour Euro 7 (20 mg/km), celles de protoxyde d'azote (N₂O) sont d'environ 7 mg/km et celles de formaldéhyde (CH₂O) sont inférieures à 0,5 mg/km.
- Les émissions de particules en nombre (PN₂₃ et PN₁₀; hors régénération active) sont très inférieures à la valeur du certificat de conformité du véhicule et à la limite réglementaire ; les émissions de carbone suie (*black carbon*, BC) sont également très faibles.
- Les émissions de HAP et de leurs dérivés nitrés et oxygénés sont principalement présentes en phase gazeuse (> 80-90 %). Par rapport aux véhicules Diesel Euro 6 d-temp testés lors du projet RHAPSODIE 1, les émissions de HAP mesurées avec le véhicule Diesel Euro 6d-ISC (RHAPSODIE 2) sont plus faibles (3,5 vs 0,4 µg/km), tandis que celles d'oxy-HAP sont comparables (≈ 2,5 µg/km) et enfin celles de nitro-HAP sont largement plus importantes (40 vs 290 ng/km).
- On distingue globalement peu d'effets significatifs des différentes bases (EMHV, HVO, GTL) et taux d'introduction (< 30 %) évalués sur les émissions. Parmi les carburants de la matrice, le mélange B28-HVO semble être la configuration apportant les effets les plus visibles avec des émissions réduites de CO₂, CO, CH₂O, OC et oxy-HAP (gazeux et particulaires), en conservant des émissions de HAP et nitro-HAP comparables à celles observées avec le B7-RME de référence et en minimisant le rapport d'émission entre dérivés et HAP parents. A l'inverse, la configuration B10-RME+HVO entraîne une augmentation des émissions des dérivés de HAP en phase particulaire et du rapport d'émission entre dérivés et HAP parents.

ABSTRACT

The main objective of the RHAPSODIE 2 (2019-2022) project was to evaluate the impact on the emissions of a Diesel Euro 6d-ISC vehicle, with similar characteristics to those previously assessed during the RHAPSODIE 1 project (2017-2019) (1 Diesel and 2 gasoline Euro 6d-Temp vehicles), of different Diesel biofuel bases and introduction rates. The fuel matrix, designed from a B0 Diesel fuel and 3 bases of distinct origins, includes 3 RME contents (7, 10 and 19%), 2 HVO (10 and 28%) and 2 GTL (10 and 26%), as well as a mixture containing 10% of RME+HVO.

The tests (approximately 7500 km and nearly 225 tests) were carried out on a chassis dynamometer on WLTC cycles and successive WLTC low phases to evaluate the vehicle's emissions under combined and urban driving conditions, as well as for engine starts at ambient or warm temperatures. Among the main conclusions of the RHAPSODIE 2 project:

- Fuel consumption (standard B7-RME) on WLTC is comparable to the one declared by the manufacturer and higher with increasing the biofuel content (B7 < B10 < B19); the results of the different bases are close (+/- 1%). AdBlue consumption is around 0.11 l/100 km.
- For WLTC tests with B7-RME reference fuel, ammonia (NH₃) emissions are 1-2 times the limit expected for Euro 7 (20 mg/km), those of nitrous oxide (N₂O) about 7 mg/km and those of formaldehyde (CH₂O) are below 0,5 mg/km.
- Particle Number emissions (PN₂₃ and PN₁₀; excluding active regeneration) are significantly lower than the value of the vehicle's certificate of conformity and the regulatory limit, with Black Carbon (BC) emissions also being very low
- PAHs emissions, as well as their nitrated and oxygenated derivatives are mainly found in the gaseous phase (> 80-90%). PAH emissions are the lowest for the Diesel vehicle tested here (Euro 6d-ISC, the most recent) while those of oxy-PAHs are comparable to the results of RHAPSODIE 1 and finally, nitro-PAH emissions are largely higher than for all other Euro 6 vehicles tested (RHAPSODIE 1 and 2).
- Overall, no significant impacts of the different bases (RME, HVO, GTL) and introduction rates (< 30%) tested are observed on the emissions. Among the evaluated biofuels, the B28-HVO mixture seems to be the configuration providing the most visible effects with lower emissions of CO₂, CO, CH₂O, OC and oxy-PAH emissions (gaseous and particulate phase), similar PAH and nitro-PAH emissions compared to B7-RME and lowered emission ratio between derivatives and parent PAHs. On the opposite, B10-RME+HVO leads to a deterioration in the emissions of PAH derivatives in particulate phase and higher emission ratio between derivatives and parent PAHs.

1. Présentation du projet

1.1. Contexte

Le renforcement des normes d'émissions depuis l'introduction de la norme Euro 1 en 1992, ainsi que les évolutions technologiques apportées aux motorisations thermiques et à leurs dispositifs de réduction des émissions (catalyseurs d'oxydation ou 3 voies, filtres à particules, catalyse SCR (*Selective Catalytic Reduction*) pour ne citer qu'eux), ont permis de réduire fortement la contribution du secteur des transports routiers à certaines émissions atmosphériques par rapport à celle de 1990 (CO : -96 % ; Composés Organiques Volatils (COV) : -96 % ; NO_x : -74 %) (CITEPA, 2022). Dans le même temps, les émissions de certains composés ont moins diminué comme celles des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) par exemple (-30 %), voire augmenté en raison de la croissance du parc automobile mondial (UNECE LRTAP, 2016 ; ACEA, 2016) et ce, bien qu'initialement réduites par suite de l'introduction des catalyseurs.

Le secteur des transports routiers contribuait en 2020 à hauteur de 5.9 % aux émissions totales de HAP en France (CITEPA, 2022). Parmi ces HAP, quinze sont classés par l'IARC comme cancérogènes certains (e.g. Benzo[a]pyrène, B[a]P) probables et possibles pour l'homme (groupes 2A et 2B) (IARC, 2012 ; Kim et al., 2013 ; IARC, 2010). Leurs dérivés nitrés et oxygénés (nitro-HAP et oxy-HAP), souvent rencontrés en proportions équivalentes ou moindres dans l'atmosphère (Yan et al., 2020 ; Idowu et al., 2019 ; Clergé et al., 2019 ; Abbas et al., 2018 ; Bandowe and Meusel, 2017 ; Walgraeve et al., 2010 ; Tomaz et al., 2016 ; Albinet et al., 2008, 2007 ; Degrendele et al., 2021), sont également considérés comme probablement plus toxiques que leurs HAPs parents. Certaines de ces espèces chimiques sont cancérogènes (groupes 2A et 2B) (IARC, 2013, 2012) et sont aussi des mutagènes directs contrairement aux HAP qui nécessitent une activation enzymatique et, de ce fait, sont potentiellement plus dangereux que leurs HAP parents (Durant et al., 1996, 1998 ; Environmental Health Criteria (EHC) 229, 2003 ; Misaki et al., 2016 ; Pedersen et al., 2005, 2004 ; Rosenkranz and Mermelstein, 1985). Cela s'explique également par le fait que ces composés forment de forts adduits à l'ADN (Abbas et al., 2018 ; Bolton et al., 2000 ; Clergé et al., 2019 ; Environmental Health Criteria (EHC) 229, 2003 ; Idowu et al., 2019). Enfin, ces composés, et notamment les quinones, favorisent la production d'espèces réactives de l'oxygène (ROS, reactive oxygen species : radicaux O₂·, HO₂, OH, ROO, RO ; ions ClO⁻ et ONOO⁻ ; et H₂O₂ ou ¹O₂) (Bolton et al., 2000) contribuant au stress oxydant de la matière particulaire probablement associé à différents effets nocifs sur la santé (effets respiratoires et cardiovasculaires) (Albinet, 2020 ; Baeza and Marano, 2007 ; Bates et al., 2019 ; Baulig et al., 2003 ; Dhalla et al., 2000 ; Donaldson et al., 2001 ; Gao et al., 2020 ; Kelly, 2003 ; Li et al., 2003 ; Mudway et al., 2020 ; Nel, 2005 ; Prahald et al., 2001 ; Sies et al., 2017). Ces composés peuvent être émis par les sources de combustion incluant les émissions des véhicules mais aussi être formés de façon secondaire par réaction des HAP avec les oxydants atmosphériques (O₃, OH, NO₃, NO₂...) (Abbas et al., 2018 ; Bandowe and Meusel, 2017 ; Keyte et al., 2013 ; Walgraeve et al., 2010). De plus, les HAPs les plus volatils rencontrés en phase gazeuse participent à la formation d'aérosols organiques secondaires (AOS) dont les oxy- et nitro-HAP sont des composés constitutifs importants (Chan et al., 2009 ; Kautzman et al., 2010 ; Shakya et al., 2010).

Les caractéristiques du carburant alimentant les motorisations ont un impact direct sur les émissions. Ainsi, à titre d'exemple, de façon à réduire les émissions de sulfates et par suite la formation d'acide sulfurique ou encore celles de particules des moteurs Diesel, les carburants ont vu leur teneur en soufre diminuer, ce qui a de plus permis de déployer des systèmes de post-traitement des NO_x efficaces. Depuis plusieurs années, afin de réduire la dépendance aux énergies fossiles, de réduire l'empreinte CO₂ des carburants et d'offrir un débouché supplémentaire aux filières agricoles, une part croissante de biocarburants est introduite dans les carburants pour moteurs à allumage commandé et à allumage par compression. Aujourd'hui, 5 à 10 % d'éthanol entrent dans la composition des essences, et 7 % de biodiesel – des esters méthyliques d'acides gras, ou EMAG – dans celle des gazoles. L'incorporation de biocarburants va probablement s'accroître, à un rythme encore incertain, avec l'avènement de procédés dits de deuxième génération n'entrant pas en compétition dans l'utilisation des ressources avec les besoins alimentaires.

L'éthanol est aujourd'hui obtenu par des procédés de première génération (production de sucre issu de betterave principalement). Les procédés de production d'éthanol de deuxième génération recourent à la filière lignocellulosique, encore en développement.

Côté biodiesel, les esters méthyliques d'huiles végétales sont les produits actuellement majoritairement disponibles. Les autres procédés de production de biodiesels comprennent l'hydrogénation d'huiles végétales, qui peuvent être usagées, et des procédés dits de deuxième génération et avancés tels que la gazéification de biomasse suivie de synthèse Fischer-Tropsch appelée *Biomass to Liquid* (BTL), ou encore la synthèse d'oxyméthylène éther (OME), à partir de biométhanol.

Cependant, les bilans de l'utilisation de tels produits en termes d'émissions de polluants non encore réglementés et de ceux faisant déjà l'objet de normes sont encore très peu documentés pour des véhicules récents (Bessagnet et al., 2022 ; Hakkarainen et al., 2020 ; Kontses et al., 2019). De plus, les travaux relatifs à l'impact de la formulation du carburant sur les émissions de HAP et de leurs dérivés, pour les véhicules récents ou plus anciens, sont généralement focalisés sur la phase particulaire et ne font donc pas état de facteurs d'émission totaux prenant en compte aussi bien les émissions en phase gazeuse que particulaire (Borillo et al., 2018 ; Karavalakis et al., 2009a, b, 2010b, c, a, 2011 ; Bakeas et al., 2011 ; Ahmed et al., 2018 ; Agarwal et al., 2015 ; Shibata, 2019 ; Nyström et al., 2016 ; Hakkarainen et al., 2020 ; Agarwal et al., 2013). Seule une étude fait état des émissions dans les 2 phases mais pour un générateur Diesel et non un véhicule léger (Yilmaz and Davis, 2016).

1.2. Objectifs

Le projet RHAPSODIE 2 proposait de caractériser de façon étendue l'impact de l'introduction d'une fraction de biocarburants dans le gazole sur les émissions primaires d'un véhicule Diesel Euro 6d-ISC, en particulier en termes d'émissions de HAP, nitro-HAP et oxy-HAP et de leur répartition entre phase gazeuse et particulaire.

Pour aider à la compréhension des émissions de HAP, nitro-HAP et oxy-HAP et offrir une image précise de l'impact des carburants sur les émissions primaires des véhicules, les émissions gazeuses réglementées (CO, HC, NO/NO₂) et non réglementées (NH₃, N₂O, SO₂, CH₂O et C₂H₄O en particulier) sont également étudiées, de même que les émissions particulaires pour lesquelles la masse (*particulate matter* ; PM), les émissions de carbone suie (*black carbon* ; BC), de matière carbonée (carbone élémentaire et organique; EC-OC) et le nombre de particules (*particle number* ; PN) contribuent à l'interprétation. Compte-tenu des réflexions et travaux en cours concernant un éventuel abaissement futur du diamètre de coupure du protocole PMP (*Particle Measurement Programme*) de 23 nm à 10 nm, le nombre de particules de diamètre inférieur au seuil de coupure actuel est également mesuré, en complément de la mesure réglementaire réalisée selon le protocole PMP.

Le recours à un véhicule homologué Euro 6d-ISC permet d'accéder à des applications calibrées spécifiquement en vue d'une homologation sur cycle WLTC et visant également une réduction des émissions en conditions réelles (RDE - Real Driving Emissions). Le projet s'appuie sur des conditions expérimentales basées majoritairement sur le cycle WLTC. Il prévoyait aussi de tester la matrice carburant sur la reproduction au banc à rouleau de conditions type RDE, en considérant également l'impact des conditions de démarrage (moteur froid ou chaud). Toutefois, une répétition de phases urbaines du WLTC a été préférée pour mieux cerner l'impact de rouler caractérisés par une forte proximité avec la population.

Le projet RHAPSODIE 2 étudie ainsi l'impact de l'introduction dans les gazoles de fractions de biocarburants issus de divers procédés sur les émissions de HAP, nitro- et oxy-HAP, ainsi que sur de nombreuses espèces chimiques polluantes réglementées ou non. La caractérisation étendue de ces émissions et de leur répartition entre phases gazeuse et particulaire permet :

- D'acquérir une connaissance précise de l'impact de la formulation des carburants pour un véhicule Diesel équipé des technologies de réduction des émissions satisfaisant les normes anti-pollution Euro 6d-ISC,
- D'étendre les caractérisations menées dans le cadre du projet RHAPSODIE (qui s'intéressait à l'impact des motorisations, de leurs organes de post-traitement et des conditions de roulage), en se concentrant cette fois-ci sur l'impact de biocarburants Diesel d'origines variées.

L'analyse détaillée des polluants primaires gazeux et particulaires réglementés et non réglementés contribue de plus à une meilleure compréhension du lien entre les émissions de HAP, nitro-HAP et oxy-HAP et certaines phases de fonctionnement du véhicule particulièrement émissives telles qu'un démarrage à température ambiante ou une phase de régénération active du filtre à particules.

1.3. Description

Le projet RHAPSODIE 2 mené par IFP Energies nouvelles & l'INERIS s'est déroulé de fin 2019 à mi-2022. En complément de la tâche de pilotage, suivi et coordination assurée par IFPEN, le projet était composé de trois tâches complémentaires :

- Une première tâche dont IFPEN était responsable, ayant pour objectifs la conception, la réalisation et l'analyse de la matrice carburants à évaluer, ainsi que le choix d'un véhicule de test adapté,
- Une deuxième tâche également pilotée par IFPEN, destinée à étudier l'impact des biocarburants sur les émissions réglementées et non réglementées du véhicule lors d'essais menés au banc à rouleau,
- Une troisième tâche dont l'INERIS était responsable, avec pour finalité d'évaluer l'impact des biocarburants sur les émissions de HAP, nitro-HAP et oxy-HAP, ainsi que sur leur répartition entre phases gazeuse et particulaire.

Pour cela, un véhicule particulier de type SUV (*sport utility vehicle*) compact, ayant un kilométrage initial de 14 750 km, équipé d'une motorisation Diesel (1,5 litres, 130 chevaux) et de ses dispositifs de post-traitement des gaz d'échappement (catalyseur d'oxydation [DOC], catalyseur de réduction sélective [SCR] des oxydes d'azote et filtre à particules intégrant également une fonction de réduction des oxydes d'azote [SCRF]) et satisfaisant la norme Euro 6d-ISC, la plus récente, a été sélectionné en raison de sa représentativité du marché automobile français actuel et à venir, afin d'en évaluer les émissions primaires gazeuses et particulaires, réglementées et non réglementées, ainsi que l'impact de l'introduction de différentes bases et teneurs de biocarburants sur ces émissions polluantes.

La matrice carburant évaluée se compose de huit mélanges, tous réalisés à partir de la même base carburant Diesel contenant 0 % de biocarburants, à laquelle ont été ajoutées trois différentes bases et plusieurs teneurs permettant toutes de respecter les limites imposées par la norme EN590 pour la densité et le pouvoir calorifique inférieur de façon à garantir le fonctionnement nominal du moteur. La composition des carburants formulés est donnée ci-après (les pourcentages sont volumiques) :

1. Carburant composé de 93 % de Diesel de référence et de 7 % d'ester méthylique d'huile végétale (colza) [dénommé par la suite B7-RME]
2. Carburant composé de 90 % de Diesel et de 10 % d'ester méthylique d'huile végétale [B10-RME]
3. Carburant composé de 81 % de Diesel et de 19 % d'ester méthylique d'huile végétale [B19-RME]
4. Carburant composé de 90 % de Diesel et de 10 % d'huile végétale hydrogénée [dénommé B10-HVO]
5. Carburant composé de 72 % de Diesel et de 28 % d'huile végétale hydrogénée [B28-HVO]
6. Carburant composé de 90 % de Diesel et de 10 % de biocarburant de deuxième génération issu de gaz, via le procédé Fischer-Tropsch [B10-GTL]
7. Carburant composé de 74 % de Diesel et de 26 % de GTL [B26-GTL]
8. Carburant composé de 90 % de Diesel et de 10 % de biocarburant, provenant pour 7 % d'ester méthylique d'huile végétale et pour 3 % d'huile végétale hydrogénée [dénommé B10-RME+HVO]

Le lubrifiant du moteur a été vidangé et remplacé en début de campagne d'essais par une huile neuve conforme aux préconisations du constructeur, puis conservé identique pour l'ensemble de la campagne d'essais. Ses caractéristiques principales ont été analysées à l'état initial et final. L'AdBlue nécessaire au fonctionnement du catalyseur SCR est pour sa part conforme à la norme ISO 22241-1, sa consommation ayant été suivie en mesurant en continu le nombre et la durée des injections, afin d'aider à l'interprétation des émissions polluantes du véhicule.

L'évaluation des polluants émis par le véhicule a été réalisée au moyen d'un banc à rouleau IFPEN selon le cycle WLTC d'homologation (*Worldwide harmonized Light vehicles Test Cycles*), de façon à évaluer les émissions dans des conditions de conduite variées (urbaines, extra-urbaines, autoroutières, mixtes), ainsi que selon sa phase à basse vitesse seule (WLTC low), de façon à évaluer les émissions dans des conditions urbaines, et ce pour deux conditions de démarrage du moteur (fluides à température ambiante ou chauds). Afin de collecter une quantité de polluants suffisante pour certaines analyses en laboratoire (HAP

et dérivés en particulier), les évaluations sur cycles WLTC complets ont été réalisées au moyen d'un à trois cycles successifs, selon la température de démarrage du moteur (ambiant ou chaud respectivement), les phases urbaines étant pour leur part évaluées lors d'enchaînements de quatre ou douze phases Low (démarrage du moteur avec fluides à température ambiante ou chauds, respectivement).

Un large éventail de protocoles d'échantillonnage et d'analyses en ligne et en laboratoire a été mis en œuvre afin d'évaluer de façon étendue les émissions polluantes du véhicule et l'impact potentiel des carburants de la matrice :

- Analyse des polluants gazeux réglementés et non réglementés en gaz bruts, via une baie 5 gaz et un analyseur FTIR (*Fourier Transform Infrared Spectroscopy*), ainsi que la collecte des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) et de leurs dérivés en phases gazeuse et particulaire via des prélèvements respectivement sur mousse et sur filtre, suivie d'analyses en laboratoire via chromatographie liquide [HPLC] et gazeuse [GC],
- Analyse en gaz dilués (après dilution via un FPS4000) de la teneur en *Black Carbon* [BC] de l'aérosol, via un analyseur AE-33 de MAGEE scientifique,
- Analyse en gaz dilués (après dilution via le tunnel CVS du banc) des polluants gazeux réglementés via une baie 5 gaz, des polluants particuliers réglementés en masse (PM) et en nombre (PN₂₃ et PN₁₀) via des prélèvements sur filtres, un analyseur SPCS d'HORIBA conforme au protocole PMP et un compteur optique TSI additionnel, ainsi que la spéciation des hydrocarbures imbrûlés via des prélèvements en sacs suivis d'analyses par chromatographie en phase gazeuse.

2. Bilan / Principaux résultats

2.1. Bilan

L'équivalent d'environ 7500 kilomètres ont été réalisés au banc à rouleau afin d'évaluer les émissions polluantes et les potentiels effets des huit carburants de la matrice (725-825 km par carburant, hors B7-RME de référence), chaque essai étant réalisé plusieurs fois afin d'estimer la répétabilité des mesures. Le carburant B7-RME a été pour sa part évalué à trois périodes (initiale, finale et mi-parcours, représentant plus de 2000 km) afin d'identifier d'éventuelles dérives des émissions dans le temps. Les carburants de la matrice ont été évalués dans l'ordre de numérotation précédemment indiqué.

Les résultats présentés sont la synthèse de plus de 220 tests valides (WLTC ou répétitions de phases urbaines) et de l'analyse de près de 100 échantillons HAP (hors blancs) permettant, grâce à la répétabilité offerte, de consolider les tendances observées et d'aider à la distinction entre impacts potentiels des carburants et variabilité usuelle des émissions.

En raison de la forte variabilité des conditions d'activation de la fonction Stop & Start du véhicule lors des tout premiers essais et de son impact très important sur les émissions cumulées, cette fonction a été désactivée pour l'ensemble de la campagne de tests afin de favoriser l'évaluation des seuls impacts des carburants. Par ailleurs, 19 régénérations actives du filtre à particules ont été observées (environ 400 km entre chaque occurrence); elles sont considérées distinctement dans l'évaluation des résultats finaux en raison de leurs effets bien supérieurs à celui des carburants évalués, de leur grande variabilité et de leur caractère essentiellement partiel au cours de nos essais (interruption en fin de cycle par exemple).

2.2. Principaux résultats

Les consommations de carburant calculées à partir des mesures réalisées sont équivalentes à celles déclarées par le constructeur en ce qui concerne le cycle WLTP (4,9 litres/100 km) et légèrement supérieures pour la phase urbaine (+ 3,1 %). Quelle que soit la base, l'introduction de biocarburant tend à augmenter les consommations.

La consommation réelle d'AdBlue calculée sur l'ensemble de la campagne d'essais s'élève à 0,11 l/100 km, pour une valeur théorique de l'ordre de 0,17 l/100 km selon le manuel utilisateur du véhicule ou 0,09 l/100km selon certains fournisseurs de ce type de fluides. Les consommations d'AdBlue sur cycles chauds sont supérieures à celles observées après démarrage à température ambiante, celles relevées en phases urbaines sont environ 50 % supérieures à celles sur cycle WLTC complet. Sans surprise, le délai entre le démarrage du moteur et la première injection d'AdBlue est bien supérieur lors des démarrages à froid par rapport au même cycle démarré moteur chaud, du fait de la température de gaz d'échappement minimale à atteindre afin d'assurer la vaporisation efficace de l'AdBlue injecté et la réaction sur le catalyseur. Aucune différence significative n'apparaît de ce point de vue entre les carburants testés, pas plus que pour ce qui concerne les conditions thermiques des systèmes de post-traitement des gaz d'échappement (catalyseur d'oxydation [DOC] et catalyseur de réduction sélective [SCR]).

2.2.1. Emissions gazeuses

2.2.1.1. Polluants réglementés

Les émissions de dioxyde de carbone (CO₂) mesurées sont proches des valeurs déclarées pour le WLTC et augmentent pour un démarrage moteur froid. On décèle une réduction de ces émissions pour les produits contenant HVO et GTL, celles-ci semblant corrélées au taux d'introduction. Cependant, le contenu carboné à iso quantité d'énergie introduite ne suffit pas à lui seul à expliquer ce constat.

Le monoxyde de carbone (CO) est émis tant que le catalyseur d'oxydation n'est pas actif, c'est-à-dire pendant les deux cents premières secondes de la phase « low » du cycle WLTC débuté moteur à température ambiante. Sur WLTC, ces émissions sont nettement inférieures aux limites réglementaires et même aux valeurs déclarées par le constructeur. L'introduction des bases GTL et HVO semble procurer une diminution des émissions, sans que l'effet n'apparaisse lié au taux d'introduction.

Les émissions d'hydrocarbures imbrûlés (HC) sont nettement inférieures aux valeurs déclarées, ainsi qu'à la limite normative; les HC sont très majoritairement émis (plus de 75 %) lors de la phase « low » du cycle WLTC débuté moteur à température ambiante. Les émissions moyennes sont légèrement réduites lorsque

HVO ou GTL sont incorporés, tandis que l'introduction d'EMHV tend à les augmenter, bien que cela demeure peu significatif eu égard à la variabilité des mesures. La spéciation de ces hydrocarbures imbrulés permet de préciser les principaux composés parmi lesquels l'éthylène (mono-oléfine) et le méthane sont largement majoritaires ; à noter la présence significative de benzène à hauteur de 2 à 4 %.

Les émissions de NO_x apparaissent assez dispersées pour certains carburants, surtout en début de cycle froid sans que cela doive être relié à la nature des constituants mais plutôt à la gestion du système de réduction des NO_x composé du système de post-traitement. Sur cycle WLTC, les niveaux mesurés sont très proches des valeurs déclarées par le constructeur et largement inférieures au seuil normatif. Les facteurs d'émission apparaissent nettement plus dispersés si on considère l'enchaînement de phases « low » initiées moteur à température ambiante pour lesquelles, pour la plupart des produits (exception faite du B28-HVO et du B10-RME+HVO), un essai sur trois mène à une valeur particulièrement élevée. En définitive, pour aucun des types de tests effectués on ne distingue d'effet significatif sur les émissions de NO_x lié au type de fraction de biodiesel incorporé ou au taux d'introduction.

2.2.1.1. Polluants non règlementés

Les émissions d'ammoniac (NH₃) se produisent principalement dans les cas de surdosage d'injection d'AdBlue ou de déstockage sans conversion d'ammoniac adsorbé sur le catalyseur SCR en cas d'élévation brusque de la température. Ces émissions sont constatées surtout lors des phases « high » et « extra-high » du WLTC, lorsque les besoins en réduction des NO_x sont importants. Les émissions de NH₃ apparaissent très dispersées, en lien avec la gestion du système SCR. Sur cycle WLTC, les niveaux mesurés sont supérieurs au seuil normatif envisagé pour Euro 7 (20 mg/km). On ne distingue pas d'effet de la base biodiesel incorporée.

Le protoxyde d'azote (N₂O), formé par des réductions incomplètes des NO_x sur les catalyseurs d'oxydation et de SCR, est émis de façon assez régulière tout au long des procédures de roulage, avec toutefois une contribution de la phase « low » plus importante et ce, malgré une distance parcourue inférieure aux autres phases. Les cumuls mènent à un facteur d'émission compris entre 5 et 8 mg/km sur cycle WLTC, tandis qu'ils s'établissent en moyenne entre 10 et 20 mg/km pour la seule phase « low ». Aucun impact significatif de la formulation des carburants n'est observé.

L'émission de formaldéhyde (CH₂O) se produit principalement en début de cycle débuté moteur à température ambiante, avant que le catalyseur d'oxydation soit actif. Les émissions spécifiques moyennes sur cycle s'établissent à moins de 3,5 mg/km. Il n'est pas observé de tendance claire quant à un éventuel impact du type de base incorporée ou du taux d'introduction.

Les concentrations mesurées de dioxyde de soufre (SO₂), d'acétaldéhyde (C₂H₄O), d'acide isocyanique (HNCO), d'acide nitrique (HNO₃), d'acide méthanoïque (CH₂O₂) et de cyanure d'hydrogène (HCN) sont très largement inférieures à leurs limites de détection respectives, quels que soient le cycle et le carburant considérés.

2.2.1. Emissions particulières

Après un prélèvement et un conditionnement de l'aérosol conforme au protocole PMP incluant un *Catalytic stripper*, les particules comptées simultanément au moyen de deux instruments dont les diamètres de coupure sont respectivement de 23 nm (Euro 6) et 10 nm (Euro 7) font apparaître les résultats suivants :

- Le nombre de particules émises par kilomètre parcouru apparaît très inférieur au seuil normatif (6.10¹¹ part./km), de plus d'un ordre de grandeur, et proche de la valeur déclarée par le constructeur ; les cycles démarrés moteur chaud génèrent des émissions de particules nettement plus basses encore. Ainsi, les phases de roulage pendant lesquelles moteur et système de post-traitement ont une température basse sont les plus émissives. La dispersion observée avec certains produits traduit des déficits de filtration probablement dus à des chargements en suie du filtre variables (distance par rapport à la régénération précédente) et vraisemblablement non imputables à la nature de la base biodiesel ou au taux d'introduction,
- Compté non plus à partir d'un diamètre de 23 nm mais dès 10 nm, le nombre de particules émises par kilomètre parcouru croît dans des proportions assez variables, la part des particules de

diamètre compris entre 10 et 23 nm dans le nombre total de particules comptées à partir de 10 nm s'échelonnant de 25 à près de 70 %. Malgré cette augmentation, le nombre de particules apparaît toujours très inférieur au seuil normatif, de plus d'un ordre de grandeur, et proche de la valeur déclarée par le constructeur.

Comme pour les émissions en nombre, il n'est pas observé d'effet des différents types de biocarburants et taux d'introduction sur les émissions de carbone suie (BC), ces émissions étant majoritairement observées lors des accélérations véhicule.

Les cycles démarrés moteur chaud génèrent des émissions de Carbone Élémentaire (EC) plus faibles que celles obtenues lors des démarrages à température ambiante, les phases de régénération active du filtre à particules engendrant également des surémissions. Aucune tendance claire n'apparaît quant à un éventuel impact du type de base de biocarburant incorporée ou du taux d'introduction.

Les émissions de Carbone Organique (OC) sont plus élevées lors de démarrages à température ambiante que lors de cycles démarrés à chaud. Seule l'incorporation de HVO et GTL semble induire une diminution des émissions, la régénération du filtre à particules n'entraînant pas de surémissions marquées.

La nature de la base biodiesel ou son taux d'introduction ne semblent pas avoir d'impact majeur sur le rapport OC/EC, qui est de 3.7 ± 2.7 en moyenne et du même ordre de grandeur que lors du projet RHAPSODIE (7.5 ± 9.3). Ce rapport était bien plus faible pour des véhicules Diesel plus anciens remettant en cause sa pertinence pour distinguer les sources de particules essence et Diesel.

2.2.1. Émissions d'Hydrocarbures aromatiques polycycliques

Les HAP et leurs dérivés nitrés et oxygénés sont principalement émis en phase gazeuse (> 80-90 %). Par rapport aux véhicules Diesel Euro 6 d-temp testés lors du projet RHAPSODIE, les émissions de HAP mesurées avec le véhicule Diesel Euro 6d-ISC RHAPSODIE 2 sont plus faibles (3,5 vs 0,4 $\mu\text{g}/\text{km}$), tandis que celles d'oxy-HAP sont comparables ($\approx 2,5 \mu\text{g}/\text{km}$) et enfin celles de nitro-HAP sont largement plus importantes (40 vs 290 ng/km).

On distingue globalement peu d'effets significatifs des différentes bases (EMHV, HVO, GTL) et taux d'introduction (< 30 %) évalués sur les émissions. Parmi les carburants de la matrice, le mélange B28-HVO semble être la configuration apportant les effets les plus visibles avec des émissions réduites de CO_2 , CO, CH_2O , OC et oxy-HAP (gazeux et particulaires), en conservant des émissions de HAP et nitro-HAP comparables à celles obtenues avec le B7-RME de référence et en minimisant le rapport d'émission entre dérivés et HAP parents. À l'inverse, la configuration B10-RME+HVO entraîne une augmentation des émissions des dérivés de HAP en phase particulaire et du rapport d'émission entre dérivés et HAP parents.

3. Conclusions / Recommandations / Perspectives

Le projet RHAPSODIE 2 a permis la quantification des émissions de nombreuses espèces chimiques d'un véhicule Diesel Euro 6d-ISC dans des conditions de roulage de type urbain et homologation et l'estimation de l'impact de l'incorporation de diverses bases de biocarburants. Environ 7 500 km ont été parcourus sur un banc d'essais véhicule au cours desquels 224 essais valides ont été produits (129 WLTC, 95 phases urbaines) et 19 régénérations de filtre à particules ont été observées. Les protocoles ont bénéficié d'améliorations issues de l'expérience acquise lors du projet Rhapsodie, tout particulièrement pour le prélèvement des échantillons en vue de l'analyse ultérieure des HAP et de leurs dérivés nitrés et oxygénés, ainsi que pour la mesure des particules de moins de 23 nm de diamètre.

Pour les essais sur cycle WLTC et opérés avec le B7-RME de référence, les émissions d'ammoniac (NH_3) équivalent à environ 1 à 2 fois la limite envisagée pour Euro 7 (20 mg/km), celles de protoxyde d'azote (N_2O) sont d'environ 7 mg/km et celles de formaldéhyde (CH_2O) sont inférieures à 0,5 mg/km. Les émissions de particules en nombre (PN_{23} et PN_{10} ; hors régénération active) sont quant à elles très inférieures à la valeur indiquée sur le certificat de conformité du véhicule et à la limite réglementaire ; les émissions de carbone suie (*black carbon*, BC) sont également très faibles. Les HAP et leurs dérivés nitrés et oxygénés sont principalement émis en phase gazeuse (> 80-90 %). Par rapport aux véhicules Diesel Euro 6 d-temp testés lors du projet RHAPSODIE, les émissions de HAP mesurées avec le véhicule Diesel Euro 6d-ISC RHAPSODIE 2 sont plus faibles (3,5 vs 0,4 $\mu\text{g}/\text{km}$), tandis que celles d'oxy-HAP sont comparables (\approx 2,5 $\mu\text{g}/\text{km}$) et enfin celles de nitro-HAP sont largement plus importantes (40 vs 290 ng/km).

De façon générale, quelle que soit la base de biocarburant (EMHV, HVO ou GTL) incorporée à la base gazole, et quel que soit le taux d'introduction retenu dans notre matrice d'essai, on ne distingue pas d'effet significatif sur les substances mesurées. Seules les émissions en carbone organique (OC) semblent plus faibles avec l'incorporation de HVO ou de GTL. La meilleure configuration de biodiesel semble la base B28-HVO qui donne des émissions comparables en HAP et nitro-HAP par rapport à la base B7-RME, mais qui permet de réduire les émissions d'oxy-HAP et de minimiser le rapport d'émission entre dérivés et HAP parents. La base B10-RME+HVO entraîne une dégradation des performances avec des émissions de dérivés de HAP plus élevées en phase particulaire et un rapport d'émission entre dérivés et HAP parents très élevé.

L'ADEME EN BREF

À l'ADEME - l'Agence de la transition écologique - nous sommes résolument engagés dans la lutte contre le réchauffement climatique et la dégradation des ressources.

Sur tous les fronts, nous mobilisons les citoyens, les acteurs économiques et les territoires, leur donnons les moyens de progresser vers une société économe en ressources, plus sobre en carbone, plus juste et harmonieuse.

Dans tous les domaines - énergie, air, économie circulaire, alimentation, déchets, sols, etc., nous conseillons, facilitons et aidons au financement de nombreux projets, de la recherche jusqu'au partage des solutions.

À tous les niveaux, nous mettons nos capacités d'expertise et de prospective au service des politiques publiques.

L'ADEME est un établissement public sous la tutelle du ministère de la Transition écologique et solidaire et du ministère de l'Enseignement supérieur, de la Recherche et de l'Innovation.

LES COLLECTIONS DE L'ADEME



FAITS ET CHIFFRES

L'ADEME référent : Elle fournit des analyses objectives à partir d'indicateurs chiffrés régulièrement mis à jour.



CLÉS POUR AGIR

L'ADEME facilitateur : Elle élabore des guides pratiques pour aider les acteurs à mettre en œuvre leurs projets de façon méthodique et/ou en conformité avec la réglementation.



ILS L'ONT FAIT

L'ADEME catalyseur : Les acteurs témoignent de leurs expériences et partagent leur savoir-faire.



EXPERTISES

L'ADEME expert : Elle rend compte des résultats de recherches, études et réalisations collectives menées sous son regard.



HORIZONS

L'ADEME tournée vers l'avenir : Elle propose une vision prospective et réaliste des enjeux de la transition énergétique et écologique, pour un futur désirable à construire ensemble.



Projet RHAPSODIE 2 Note de synthèse

Le projet RHAPSODIE 2 dresse une analyse approfondie des émissions d'un véhicule de type SUV Diesel compact homologué selon la norme la plus récente (Euro 6d-ISC), représentatif des marchés automobiles Français et Européens. Les nombreux polluants réglementés et non réglementés gazeux et particulaires étudiés en conditions de roulage mixtes et urbaines sur une distance cumulée supérieure à 7500 km mettent majoritairement en évidence l'absence ou le peu d'effets négatifs ou positifs de l'usage des carburants biodiesels évalués (issus de différentes bases : RME, HVO, GTL, et pour plusieurs teneurs (< 30 %), par rapport au gazole B7-RME de référence. Parmi ceux-ci, le carburant contenant 28 % d'huile végétale hydrogénée (B28-HVO) semble celui apportant les bénéfices les plus intéressants (e.g. réduction des émissions d'oxy-HAP) tandis que la configuration B10-RME+HVO entraîne une dégradation de certaines émissions notamment des dérivés nitrés et oxygénés de HAP en phase particulaire.

Avec plus de 150 composés étudiés (dont plus de 80 HAPs et dérivés) et plus de 100 quantifiés (dont plus de 60 HAPs et dérivés) sur une distance cumulée supérieure à 7500 km, le projet RHAPSODIE 2 dresse un bilan étendu des émissions réglementées et non réglementées gazeuses et particulaires d'un véhicule Euro 6d-ISC et met majoritairement en évidence le peu d'effets négatifs ou positifs de l'usage des biocarburants Diesel (RME, HVO, GTL à des teneurs < 30 %) évalués, par rapport au gazole B7-RME de référence.

