



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



THÈSE

Pour l'obtention du titre de :
Docteur de l'Université de Lorraine

Spécialité : **Sciences du Bois et des Fibres**

Benoît BRANDELET

Date de soutenance : 13 Décembre 2016

Caractérisation physico-chimique des particules issues du chauffage domestique au bois

Direction de la thèse : Yann ROGAUME et Caroline ROGAUME

Membres du jury :

Mme. Claire COURSON, Maître de Conférences HDR, Université de Strasbourg
M. Jean-Luc JAFFREZO, Directeur de recherche CNRS, Université Joseph Fourier (Grenoble)
Mme. Gwenaëlle TROUVE, Professeur, Université de Haute-Alsace (Mulhouse)
M. Pascal BOULET, Professeur, Université de Lorraine (Nancy)
Mme. Caroline ROGAUME, Maître de Conférences, Université de Lorraine (Epinal)
M. Yann ROGAUME, Professeur, Université de Lorraine (Epinal)
Mme. Florence PROHARAM, Ingénieur ADEME (Angers)

Rapporteur
Rapporteur
Examinateur
Examinateur
Co-directrice de thèse
Directeur de thèse
Invitée

Le monde est dangereux à vivre ! Non pas tant à cause de ceux qui le font mal, mais à cause de ceux qui regardent et laissent faire.

Albert Einstein, Mathématicien, Physicien, Scientifique (1879 - 1955)

Résumé

Dans un monde où la transition énergétique et la réduction de l’empreinte écologique de l’Homme sont des véritables enjeux, le bois énergie doit s’accorder avec les considérations environnementales. Le chauffage domestique au bois est en particulier un secteur dont la part de marché en constante évolution lui impose de s’approcher au plus près de la neutralité écologique. La combustion de bois dans les appareils domestiques de chauffage mérite par conséquent que l’on s’intéresse à ses émissions polluantes. La problématique des émissions de particules fines, posant des risques sanitaires mais aussi environnementaux avérés, a été très médiatisée ces dernières années. La solution mise en place par les gouvernements consiste principalement à aider financièrement les particuliers pour renouveler le parc d’appareils. Or, une utilisation non optimisée d’un appareil performant peut dégrader de manière significative ses émissions polluantes. Ce travail de thèse s’est nourri de cette constatation initiale. Afin d’amender entre autres cette réflexion, de nombreuses campagnes expérimentales ont été menées au travers de caractérisations physico-chimiques complètes et surtout innovantes des fumées et en particulier des particules fines : la Microscopie Electronique à Balayage, la microanalyse X et la détermination du type de carbone constitutif (Carbone Elémentaire et Carbone Organique) ont nécessité d’adapter ou de développer des méthodologies d’analyses novatrices des particules fines issues de la combustion du bois. En premier lieu, la définition des paramètres d’utilisation de l’appareil et leurs niveaux de réponse ont permis de proposer une réduction significative des émissions dont celles de particules fines. Ainsi, dans ce travail de thèse, les impacts des paramètres comme la nature du combustible (essence, écorces, humidité), le mode d’allumage (inversé ou traditionnel) et l’injection d’air secondaire ont été quantifiés. Ces connaissances permettront d’adapter les utilisations des appareils de chauffage domestique au bois aux nouvelles problématiques environnementales. Pour mieux comprendre l’origine des émissions générées quelle que soit la qualité de la combustion (même si les concentrations sont faibles), les mécanismes de formations des particules (aussi différentes soient elles) ont été définis. Dans un second temps, ce travail de thèse s’est intéressé à l’évolution des caractéristiques et du nombre de particules entre la chambre de combustion de l’appareil et le champ proche, permettant d’aller au-delà de l’étude normative classique pour laquelle les émissions sont caractérisées à une distance imposée de la chambre de combustion et qui ne reflète pas l’impact réel. De nouveaux savoirs sur les particules ont ainsi été mis en évidence. L’ensemble de ces nouvelles connaissances, aidant à mieux connaître les particules produites par la combustion de bois dans des appareils indépendants, pourrait permettre dans le futur de créer des systèmes de traitement spécifiques et efficaces.

Mots clés : **Bois-énergie, Chauffage domestique, Particules, OC/EC, HAP, MEB, Microanalyse**

Abstract

In a world within the energy transition and the reduction of the ecological footprint of Mankind are real challenges, wood energy has to be in accordance with environmental considerations. The market share of the domestic wood heating, which increases constantly, requires being close as possible to the ecological neutrality. Therefore, the pollutants emitted from the wood combustion in domestic appliances deserve attention. The issue of the emissions of fine particles, known for their health and environmental hazards, has been significantly covered in recent years. The governments made the decision to help mainly financially the private individuals in order to renew the domestic appliances stock. However, a non-optimized use of an energy-efficient appliance can degrade system performances. This PhD thesis began with this statement. In order to solve this issue, many experimental campaigns have been achieved through complete and above all innovative physicochemical characterizations of the smoke and particularly of the fine particles. The Scanning Electron Microscope, the X-ray microanalysis and the assessment of the constitutive Carbon (Elemental Carbon and Organic Carbon) required adapting or developing new analysis methods of the fine particles emitted from wood combustion. First of all, the definition of the use parameters for the appliance and their impacts allowed offering a significant reduction of the fine particles emissions. In this work, the influences of the parameters such as the nature of the fuel (species, barks, and moisture), the ignition mode (reversed or classical) and the air secondary injection were in this way quantified. This knowledge will enable to adapt the uses in wood domestic appliances to the new environmental issues. In order to better understand the origin of these emissions produced regardless of the combustion quality (even if the concentrations were low), the mechanisms of formation of all kinds of particles were defined. In a second phase, this work paid attention to the evolution of the characteristics and number of particles from the combustion room to the near-field. This enabled to go over the classic normative study in which the emissions are characterized at a specific distance of the combustion room and do not reflect the real impact. New knowledge on particles was brought to light, helping to better know the particles generation from domestic wood appliances. This could allow in the future to create some specific and efficient treatment systems.

Key word: Wood Energy, Domestic heating, Particles, OC/EC, PAH, SEM, Microanalysis

Table des matières

Introduction générale.....	27
Chapitre 1. Etat de l'art	31
1.1 Contexte global	31
1.1.1 L'énergie en France	31
1.1.2 Les énergies renouvelables	33
1.1.3 Le bois énergie en France	35
1.2 Bois énergie et pollution	44
1.2.1 Comparaison des polluants émis par le bois énergie et les autres types de chauffage.....	44
1.2.2 Les différents polluants.....	45
1.2.3 Les normes et les labels	56
1.3 Les particules	60
1.3.1 Généralités	60
1.3.2 Contexte	65
1.3.3 Bois énergie et particules	67
1.3.4 Méthode de prélèvement :.....	77
1.3.5 Réduction des émissions :.....	82
1.4 Conclusion / Discussion.....	84
Chapitre 2. Matériels et méthodes	87
2.1 Dispositif expérimental	87
2.1.1 Caractérisation des combustibles	87
2.1.2 Appareils de chauffage domestique au bois utilisés	89
2.1.3 La plateforme expérimentale	90
2.2 Les mesures directes des émissions de gaz	92
2.2.1 O ₂ , CO, NO _x ,	92
2.2.2 Les COV	94
2.3 Les mesures en direct des émissions de particules	95
2.3.1 Les caractéristiques communes.....	95
2.3.2 Les particules totales (TSP) et hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP).....	98
2.3.3 La granulométrie des particules	99
2.4 Les analyses indirectes.....	100
2.4.1 Les HAP	100

2.4.2	Les analyses OC/EC.....	101
2.4.3	La microscopie.....	110
2.5	Les campagnes expérimentales.....	117
2.5.1	Emissions d'un foyer fermés à bûches et d'un poêle à granulés	117
2.5.2	Etude des trois phases de combustion.....	117
2.5.3	Evolution selon la génération de l'appareil.....	118
2.5.4	Influence du mode d'allumage.....	118
2.5.5	Influence de l'utilisateur	119
2.5.6	Evolution des particules dans le conduit.....	121
2.6	Conclusion	122
Chapitre 3.	Caractérisation des émissions.....	125
3.1	Influence de la technologie de l'appareil	125
3.1.1	Emissions d'un foyer fermé à bûches et d'un poêle à granulés	125
3.1.2	Etude des trois phases de combustion.....	130
3.1.3	Evolution selon la génération de l'appareil.....	142
3.2	Influences de divers paramètres sur les émissions.....	153
3.2.1	Méthode d'allumage	153
3.2.2	Caractéristiques des Combustible	159
3.2.3	Ouverture de l'air de l'appareil	170
3.2.4	Conclusion	175
3.3	Relations entre les différents polluants	176
3.3.1	Corrélation « température / imbrûlés gazeux ».....	176
3.3.2	Corrélation « CO / imbrûlés gazeux »	177
3.3.3	Corrélation « TSP / nature des particules ».....	178
3.3.4	Corrélation « TSP / précurseurs ».....	180
3.3.5	Corrélation « couleur des filtres / type de carbone »	181
3.3.6	Corrélation « qualité de combustion / teneur en Carbone des particules (mesurés par microanalyse X) ».....	184
3.4	Conclusion	185
Chapitre 4.	De la flamme au champ proche	187
4.1	Etude comparative des résultats d'essais	187
4.2	Les émissions au point de référence	190
4.2.1	Les émissions gazeuses	190
4.2.2	Les émissions particulaires	190
4.2.3	Microanalyse X et imagerie des particules	193

4.2.4	Conclusion	193
4.3	Les émissions au niveau de la chambre de combustion.....	194
4.3.1	Les émissions gazeuses	194
4.3.2	Les émissions particulaires	196
4.3.3	La microscopie (microanalyse X et imagerie)	201
4.3.4	Conclusion	205
4.4	Les émissions avant l'évacuation dans l'air ambiant.....	206
4.4.1	Les émissions gazeuses	206
4.4.2	Les émissions particulaires	208
4.4.3	La microscopie (microanalyse X et imagerie)	212
4.4.4	Conclusion	216
4.5	Les émissions au champ proche.....	217
4.5.1	Les émissions particulaires	217
4.5.2	La microscopie (microanalyse X et imagerie)	222
4.5.3	Conclusion	225
4.6	Conclusion	225
Chapitre 5.	Analyse phénoménologique	227
5.1	Mécanismes et conditions de formation des particules.....	227
5.1.1	Les envolées de cendres	227
5.1.2	Les particules de bois	228
5.1.3	Les particules de charbon.....	229
5.1.4	Les nano-cristaux	230
5.1.5	Les nanoparticules.....	231
5.1.6	Les agglomérats de nanoparticules	233
5.1.7	Les HAP.....	236
5.1.8	Conclusion	238
5.2	Une vie de particule	239
5.3	Conclusion	242
Conclusion générale		243
A.	ANNEXES: Listes des abréviations	255
B.	ANNEXES: Scénario Top-Down	258
C.	ANNEXES: Définition des trois modes expérimentaux.....	260

Liste des figures

Figure 1-1 : Consommation d'énergie primaire par type d'énergie en France [1] (a) et consommation d'énergie finale par secteur en France [2] (b)	31
Figure 1-2 : Répartition de la consommation d'énergie finale dans les secteurs résidentiel et tertiaire [2]	32
Figure 1-3 : Part des énergies renouvelables dans l'approvisionnement énergétique mondial [3]	33
Figure 1-4 : Objectifs de progression des différentes énergies renouvelables en France [4]	33
Figure 1-5 : Comparaison des objectifs de 2010 à 2020 [5] à la situation réelle en 2014 [2]	34
Figure 1-6 : Répartition des sources d'ENRt en 2014 [7]	34
Figure 1-7 : Consommation finale d'ENRt dans le résidentiel/tertiaire en Mtep [2] [7]	35
Figure 1-8 : Description des différentes étapes de la combustion d'une bûche [9] ...	36
Figure 1-9 : Schématisation de l'étape de combustion homogène	38
Figure 1-10 : Evolution du parc entre 1999 et 2012 [14]	39
Figure 1-11 : Schéma de principe d'un poêle à bûches (marque SUPRA)	41
Figure 1-12 : Schéma de l'impact du positionnement de l'oxydation des gaz sur le rayonnement reçu par le combustible	41
Figure 1-13 : Répartition par type de combustible dans la consommation des résidences principales en 2013 [14]	42
Figure 1-14 : Evolution de la production française de granulés de bois [17] [18]	43
Figure 1-15 : Bilan des émissions de gaz à effet de serre [19]	44
Figure 1-16 : Courbe d'évolution des émissions de CO durant la combustion d'une bûche de hêtre dans un foyer fermé de petite puissance (9kW)	46
Figure 1-17 : Evolution des émissions de CO selon la température (a) et selon l'excès d'air (b), [28]	46
Figure 1-18 : Evolution et modification des COV dans l'atmosphère [29]	47
Figure 1-19 : Mécanisme de Bittner-Howard [30]	48
Figure 1-20 : Mécanismes de formation de Frenklach [30]	49
Figure 1-21 : Schéma global des mécanismes de formations des Composés Aromatiques Polycycliques [32]	49
Figure 1-22 : Influence de l'air secondaire sur les émissions de HAP [35]	50
Figure 1-23 : Variation de la composition des COV selon deux types d'appareils et trois combustibles différents [34]	51
Figure 1-24 : Effets de la température et du temps de séjour sur la formation de NOx thermique [40]	52
Figure 1-25 : Effets de l'excès d'air et du temps de séjour sur la formation de NOx thermique [40]	53
Figure 1-26 : Effet de l'excès d'air à une température fixe sur la formation de NOx thermique [40]	53
Figure 1-27 : Schéma des réactions de formation/destruction du NO combustible [45]	54
Figure 1-28 : Définition des trois mécanismes de formation de NO [40]	54
Figure 1-29 : Facteurs d'émissions pour le bois selon les pays (d'après [46])	56
Figure 1-30 : Schématisation de la procédure de calcul du label « Flamme Verte » [58]	59
Figure 1-31 : Comparaison de la taille des particules à la taille d'un cheveu [60]	60

Figure 1-32 : Appareil respiratoire et pénétration des particules [71]	62
Figure 1-33 : Estimation statistique des mois de vie perdus en 2000 à cause des PM _{2,5} dans l'air ambiant [72].....	63
Figure 1-34 : Comparatifs des morts prématurées annuelles dues aux fumées de biomasse et celles dues à différentes maladie [74].....	63
Figure 1-35 : Tests de cytotoxicité sur des particules de diesel et des particules issues de bonne et mauvaise combustion de biomasse [75]	64
Figure 1-36 : Comparaison des effets des particules d'un poêle maçonné et d'une chaudière à granulés sur les cellules macrophages RAW264.7 [76].....	64
Figure 1-37 : Principe de formation des particules de suie (a, [88]) et clichés d'agglomérats de particules de suies (b, [77]).....	68
Figure 1-38 : Principe de formation des particules de cendres dans une centrale à charbon [89]	68
Figure 1-39 : Compositions minérales de particules émises par un poêle à granulés de diamètre moyen 0,13 µm (a) et 0,32 µm (b) [87]	69
Figure 1-40 : Echantillons de particules provenant d'un foyer fermé (x151) [37]	71
Figure 1-41 : Morceaux de bois non dégradé (a, x350), Squelette de bois ou morceaux de bois partiellement dégradé (b, x1100), Agglomérations de particules fines et de morceaux de bois (c, x250) ; Les particules sur les trois clichés proviennent d'un foyer fermé [37].....	71
Figure 1-42 : Élément de bois dégradé gardant une structure orienté (a, x1100), Élément de bois dégradé avec une structure désorganisée (b, x300), Détail de la structure désorganisée (c, x2030), Les particules sur les trois clichés proviennent d'une chaudière, [37]	71
Figure 1-43 : Répartition par secteurs et granulométries des émissions de particules en France [20]	72
Figure 1-44 : Proportion massique des PM _{2,5} et proportion numérique des PM ₁₀ issues d'un foyer fermé [95]	73
Figure 1-45 : Schéma de dégradation par combustion de la cellulose [12]	74
Figure 1-46: Prévion des émissions de particules dues au chauffage domestique (a, [100]) et évolution réelle des émissions (b, [101])	74
Figure 1-47 : Influence du facteur d'air sur la nature des particules [46]	75
Figure 1-48 : Influence de la taille de la bûche (Log Size) sur les émissions des OGC (gC.kg ⁻¹), de CO (g.kg ⁻¹) et de PM ₁ (g.kg ⁻¹) selon les trois phases de combustion (Allumage : Firing, Combustion homogène : Combusting, Combustion hétérogène : Burn out) [102]	76
Figure 1-49 : Impact de la méthode de prélèvement sur le niveau de PM récupéré [46]	77
Figure 1-50 : Influence de différents paramètres sur le facteur d'émission de TSP [21]	78
Figure 1-51 : Schéma de formation et évolution des particules [106]	81
Figure 2-1 : Foyer <i>SUNFLAM</i> (2000).....	89
Figure 2-2 : Foyer prototype <i>AXIS/SUPRA/LERMAB</i> (2006).....	89
Figure 2-3 : Poêle <i>WABI</i> de chez <i>D2I Invicta</i> (2012)	90
Figure 2-4 : Poêle à granulés <i>LEIOS GALET</i> de chez <i>SUPRA</i>	90
Figure 2-5 : Schéma de la plateforme d'essai	91
Figure 2-6 : Suivi de l'évolution de la concentration en CO et en O ₂ dans les fumées par les deux appareils d'analyses sur un essai de calibrage.....	93
Figure 2-7 : Suivi de l'évolution de la concentration en NO dans les fumées par les deux appareils d'analyses sur un essai de calibrage	93

Figure 2-8 : Schéma du système permettant une mesure en deux points pour l'analyseur COV	94
Figure 2-9 : Circuit de pesée des filtres quartz	95
Figure 2-10 : Ecarts à la moyenne des pesées pour chaque filtre quartz vierge de 90mm de diamètre	96
Figure 2-11 : Surface du filtre en fonction de l'erreur standard	97
Figure 2-12 : Orientation de la buse dans les fumées	97
Figure 2-13 : Canne de prélèvement isocinétique (a), porte-filtre quartz (b) et porte-filtre démonté (c)	98
Figure 2-14 : Schéma du système de prélèvement des HAP	98
Figure 2-15 : Impacteur Electrique Basse Pression (<i>ELPI</i> , a, image issue du mode d'emploi) et Impacteur Manuel (IM, b, image issue du mode d'emploi)	99
Figure 2-16 : Courbe de principe de l'analyse OC/EC	101
Figure 2-17 : Photographie de la canne de prélèvement OC/EC (a : thermocouple et électrode côté verrerie ; b: électrode côté conduit)	103
Figure 2-18 : Résultats de l'étude de précision de la seringue	104
Figure 2-19 : Précision de réponse de l'analyseur OC/EC	105
Figure 2-20 : Précision de l'analyseur OC/EC dans le cas de filtres sombres	106
Figure 2-21 : Précision de mesure du ratio OC de l'analyseur OC/EC dans le cas de filtres sombres	106
Figure 2-22 : Schéma des flux traversant le filtre	107
Figure 2-23 : Filtre brun clair de vérification de la procédure choisie	107
Figure 2-24 : Système de prélèvement sur filtre en polycarbonate pour microscopie (analyse et imagerie)	111
Figure 2-25 : Schéma des flux de fumées au travers du filtre forcées par la grille support	111
Figure 2-26 : Principales émissions électroniques et électromagnétiques due aux interactions d'un faisceau d'électrons avec un échantillon [122] ...	113
Figure 2-27 : Les différentes émissions dues à un bombardement d'électrons primaires	113
Figure 2-28 : Particules auto-détectées (a) selon des seuils de niveaux de gris définis (b)	115
Figure 2-29 : Protocole schématique des champs de détection et d'analyses	116
Figure 2-30 : Limites et biais	116
Figure 2-31 : Allumage Top & Down (a) et traditionnel (b)	119
Figure 2-32 : Définition des 3 modes expérimentaux	121
Figure 3-2 : Clichés de charbon (a, x20000), de mâchefer (b, x50000) et de bois thermiquement dégradé (c, x100000) tous accompagnés par des nanoparticules émises par les poêles à granulés	129
Figure 3-3 : Clichés de morceaux de charbon (a, x5000), nanoparticules agglomérées (b, x19000) et de nanoparticules isolées (c, x300000) émises par le foyer fermé de 2006	129
Figure 3-4 : Relation entre la perte de masse globale des échantillons et la perte relative de trois éléments (S, Cl et Fe)	134
Figure 3-5 : Evolution de la composition en Carbone et en Oxygène pour les 6000 particules des trois phases d'allumage analysées	135
Figure 3-6 : Images de bois non dégradé (a, x8440) et thermiquement dégradé (b, x40000) et avec présence de nanoparticules (a et b) émis durant la phase d'allumage	136

Figure 3-7 : Evolution de la composition en Carbone et en Oxygène pour les 6000 particules des trois phases de combustion homogène analysées.	137
Figure 3-8 : Images de nanoparticules très peu agglomérées à x70000 (a) et x420000 (b) émises durant la combustion homogène.....	138
Figure 3-9 : Evolution de la composition en Carbone et en Oxygène pour les 6000 particules des trois phases de combustion hétérogène analysées	139
Figure 3-10 : Images de deux envolées de charbons avec quelques nanoparticules en fond à x105000 (a) et x150000 (b) émises durant la combustion hétérogène	140
Figure 3-11 : Résumé des caractéristiques physiques des particules aux trois phases de combustion	141
Figure 3-12 : Evolution des émissions OC, EC et non carbonées selon la génération de l'appareil	143
Figure 3-13 : Lien entre les émissions de TC avec les émissions d'EC et de TSP pour les appareils présentant à la fois une arrivée d'air secondaire et une chambre de combustion isolée.....	144
Figure 3-14 : Lien entre les émissions de TC avec les émissions d'EC et de TSP pour les appareils ne présentant ni entrée d'air secondaire ni isolation de la chambre de combustion	145
Figure 3-15 : Evolution de ratio OC/TC pour chaque génération d'appareil	145
Figure 3-16 : Moyenne des émissions de HAP16 pour chaque appareil	146
Figure 3-17 : Répartition des HAP pour chaque appareil	146
Figure 3-18 : Evolution de la fréquence de particules contenant des éléments autres que le Carbone et l'Oxygène en fonction des émissions d'OC.....	148
Figure 3-19 : Evolution des émissions non carbonées en fonction de l'écart entre le taux de Carbone mesuré par microanalyse X et par l'analyseur OC/EC.....	148
Figure 3-20 : Clichés de morceaux de charbon (a, x40000 ; b, x50000) et d'envolées de cendres (c x50000) émis par le foyer fermé de 2000	151
Figure 3-21 : Clichés d'agglomérats de nanoparticules et de morceaux de charbon (a, x12000 ; b, x35000) émis par le foyer fermé de 2006 avec l'air secondaire fermé.....	151
Figure 3-22 : Clichés de morceaux de charbon (a, x5000), nanoparticules agglomérées (b, x19000) et de nanoparticules isolées (c, x300000) émises par le foyer fermé de 2006 avec l'air secondaire ouvert ...	151
Figure 3-23 : Allumage Top&Down (a) et allumage traditionnel (b)	153
Figure 3-24 : Evolution de la composition en Carbone et en Oxygène pour 6000 particules de chaque type d'allumage	156
Figure 3-25 : Clichés de morceaux de charbon (a, x15000) et de nanoparticules (b, x40000 et c, x250000).....	156
Figure 3-26 : Agglomérats de nanoparticules (a, x10000) et bois thermiquement très dégradé (b, x100000)	157
Figure 3-27 : Morceaux de charbons (a, x30000 et b, x50000)	157
Figure 3-28 : Condensats sphériques (a, x35000 ; b, x40000 ; c, x40280)	157
Figure 3-29 : Bilan des émissions de HAP16 pour chaque essai (a) et répartition des HAP majoritaires (b).....	162
Figure 3-30 : Clichés de morceaux de charbon (a, x40000), de bois thermiquement dégradé (b, x200000) et de nanoparticules (c, x200000) émis par la combustion de bûches humides	162

Figure 3-31 : Bilan des émissions de HAP16 pour chaque type d'essai (a) et répartitions des différentes molécules (b) émises par les essais 3 et 7 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB et des écorces	165
Figure 3-32 : Clichés MEB de cendres d'écorces (a, x22000), de charbons (b, x40000 ; c x50000) et de nano-cristaux de Silice et/ou de Sodium (a, particules brillantes en haut à gauche ; b, particules brillantes sur le haut du clichés ainsi qu'en bas à droite) émis par la combustion de HHUMae	166
Figure 3-33 : Clichés MEB d'agglomérats de nanoparticules (a, x30000) de cendres d'écorces (b, x40000) et de nano-cristal de Silice (c, x200000) émis par la combustion d'écorces seules	166
Figure 3-34 : Bilan des émissions de HAP16 pour chaque type d'essai (a) et répartitions des différentes molécules (b) émises par les essais 1 et thèse 2	173
Figure 3-35 : Clichés de nanoparticules agglomérées et unitaires (a, x60000) de nano-cristaux de Silice (b, x100000) et de COSV condensé (c, x150000) émis par l'appareil récent lors d'une mauvaise utilisation	174
Figure 3-36 : Evolution des émissions de CO en fonction de la température des fumées pour l'intégralité des essais sur l'appareil de 2012 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB (a) et pour l'intégralité des essais utilisés à l'étude de l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil (b).....	176
Figure 3-37 : Evolution des émissions de COVT (a) et de HAP16 (b) en fonction de la température des fumées sur une série d'essais de répétitions sur le poêle étanche (WABI, 2012)	177
Figure 3-38 : Evolution des émissions de COVT (a) et de HAP16 (b) en fonction des émissions de CO pour l'intégralité des essais utilisés à l'étude de l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil	177
Figure 3-39 : Evolution des émissions de COVT en fonction des émissions de CO pour l'intégralité des essais sur l'appareil ancienne génération utilisé dans l'étude de l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil.....	178
Figure 3-40 : Evolution des émissions d'OC en fonction des émissions de TSP pour l'intégralité des essais de l'étude de l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil	178
Figure 3-41 : Evolution des émissions de PM ₁ en fonction des émissions TSP sur l'intégralité des essais réalisés en interne au LERMAB pour le projet QUALICOMB (a) et sur seulement les essais sur l'appareil récent avec une bonne utilisation (b)	179
Figure 3-42 : Evolution des émissions de TSP en fonction des émissions de HAP16 sur l'intégralité des essais réalisés en interne au LERMAB pour le projet QUALICOMB (a) et sur la série d'essais sur l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil (b) (zoom en c).....	180
Figure 3-43 : Evolution entre le taux d'EC présent par cm ² de filtre et le paramètre L de la mesure de la couleur	181
Figure 3-44 : Evolution du rapport entre la somme OC et EC et la racine carrée de a et b en fonction du paramètre E	182

Figure 3-45 : Résultats de l'ACP sous forme de schéma selon les trois dimensions les plus caractéristiques des filtres.....	182
Figure 3-46 : Précision de l'estimation selon les 6 familles de filtres.....	183
Figure 3-47 : Evolution des coefficients directeur et ordonnées à l'origine issus de l'équation $O\% = a \cdot C + b$ en fonction de la température des fumées durant le prélèvement pour les essais issus de l'étude du mode d'allumage.....	184
Figure 4-1 : Rappel des points de prélèvements de chaque série d'essais.....	187
Figure 4-2 : Bilan des émissions de HAP16 au point de référence.....	191
Figure 4-3 : Clichés de morceaux de bois dégradé (a, x180000), d'agglomérats de nanoparticules (b, x 180000) et de nanoparticules non agglomérées (c, x300000) prélevés au point de référence.....	193
Figure 4-4 : Evolution de la teneur en O_2 et de la température des fumées aux deux points de mesure Chambre et Référence.....	195
Figure 4-5 : Evolution des émissions de CH_4 en fonction des émissions de COVT.....	195
Figure 4-6 : Concentration en HAP16 aux deux points de mesures Chambre et Référence.....	197
Figure 4-7 : Comparaison entre les répartitions en pourcentage de chaque HAP sur les HAP16 présents aux deux points de mesure Chambre et Référence.....	198
Figure 4-8 : Evolution de la fréquence de présence d'autres éléments que C et O en fonction des émissions TSP (a) ; Evolution de l'ordonnée à l'origine en fonction du coefficient directeur de la droite de corrélation de O en fonction de C (b).....	203
Figure 4-9 : Clichés de morceaux de bois dégradé thermiquement (a, x19000), d'agglomérats de nanoparticules (b, x 19000) et de nanoparticules peu/pas agglomérées (c, x183790) prélevés durant la combustion homogène dans la chambre de combustion.....	203
Figure 4-10 : Clichés de morceaux de charbon (a, x5000), d'agglomérats de nanoparticules (b, x19000) et de nanoparticules non-agglomérées (c, x300000) prélevés durant la combustion homogène au point de référence.....	204
Figure 4-11 : Evolution de la teneur en O_2 en fonction de la température des fumées aux deux points de mesures Référence et Sortie.....	207
Figure 4-12 : Evolution de la concentration des fumées en CH_4 en fonction de la concentration en COVT.....	207
Figure 4-13 : Evolution de la concentration en EC et en OC en fonction de la concentration en TSP au point de référence (a) et en sortie (b)....	208
Figure 4-14 : Concentration des HAP16 aux deux points de mesure Référence et Sortie.....	209
Figure 4-15 : Perte moyenne entre la sortie et le point de référence pour chaque HAP analysé en fonction de son point d'ébullition.....	210
Figure 4-16 : Comparaison entre les répartitions en pourcentage de chaque HAP sur les HAP16 présents aux deux points de mesure Référence et Sortie.....	210
Figure 4-17 : Evolution de l'ordonnée à l'origine en fonction du coefficient directeur des droites de corrélation $O\% = aC\% + b$ des points de Référence et Sortie.....	212
Figure 4-18 : Evolution des concentrations de NO en fonction des fréquences d'éléments autres que C et O.....	213

Figure 4-19 : Clichés d'agglomérats de nanoparticules (a, x12000) et de morceaux de charbon (b, x15000 ; c, x60000) prélevés durant la combustion homogène à la sortie de cheminée	215
Figure 4-20 : Clichés de morceaux de charbon (a, x80000), de bois thermiquement dégradé (b, x180000) et d'agglomérats de nanoparticules (c, x180000) prélevés durant la combustion homogène au point de référence	215
Figure 4-21 : Evolution de la concentration en CH ₄ en fonction de la concentration en COVT aux deux points de mesure Référence et Sortie Diluée	218
Figure 4-22 : Concentration des HAP16 aux deux points de mesure Référence et Sortie Diluée.....	219
Figure 4-23 : Perte moyenne entre la sortie diluée et le point de référence pour chaque HAP en fonction de son point d'ébullition	220
Figure 4-24 : Ecart des répartitions de chaque HAP sur les HAP16 présents entre la sortie diluée et le point de référence et entre la sortie non diluée et le point de référence	220
Figure 4-25 : Evolution de l'ordonnée à l'origine en fonction du coefficient directeur des droites de corrélation $O\% = aC\% + b$ des points de Référence et Sortie Diluée.....	222
Figure 4-26 : Clichés d'importants agglomérats de nanoparticules (a, x6000), de charbons organisés (b, x12000) et de petits agglomérats de nanoparticules (c, x60000) prélevés à la sortie avec la dilution active	224
Figure 4-27 : Clichés d'agglomérats de nanoparticules (a, x40000) et de nanoparticules peu ou pas agglomérées (b, x200000) prélevés au point de référence	224
Figure 5-1 : Clichés de particules de bois « sain » (a, x8440), de bois dégradé thermiquement en phase 1 (b, x19000) et en phase 2 (c, x100000)	228
Figure 5-2 : Clichés de morceaux de charbons (a, x5000 ; b, x12000 ; c, x30000)	229
Figure 5-3 : Clichés de nano-cristaux de Silice et/ou Sodium (a, x100000) et de nano-cristaux de Silice (b, x150000 ; c, x200000).....	230
Figure 5-4 : Schéma de formation par dégradation thermique des nanoparticules	232
Figure 5-5 : Clichés d'agglomérats de nanoparticules (a, x30000), de bois dégradé thermiquement en fin de phase 2 avec des brins qui se séparent (b, x100000) et de bois dégradé en début de phase 2 (c, x150000) ..	233
Figure 5-6 : Mécanisme d'agglomération des nanoparticules.....	235
Figure 5-7 : Clichés de COSV condensés (a, x40000 ; c, x150000) et de COSV condensés s'agglomérant (b, x120000)	237
Figure 5-8 : Schéma de l'évolution des particules dans le conduit de fumées (conduit et appareil inspiré de [146]).....	241
Figure B-1 : Diagramme comparatif des deux réponses du scénario pour tous les polluants à l'échelle d'une soirée de chauffage	258

Liste des tableaux

Tableau 1-1 : Evolution des ventes d'appareils de chauffage domestique au bois de 2005 à 2015 [15]	40
Tableau 1-2 : Facteurs d'émission de la combustion du bois et contribution aux émissions nationales pour l'année 2005 [20]	45
Tableau 1-3 : Présentation des polluants émis par la combustion [21] [22] [23] [24] [25]	45
Tableau 1-4 : Synthèse des normes applicables en France [48] [49] [50] [51] [52] [53] [54] [55] [56]	57
Tableau 1-5 : Synthèse non exhaustive des labels de différents pays européens relatifs au chauffage domestique au bois	57
Tableau 1-6 : Evolution des exigences du label Flamme Verte de 2001 à 2015 [57]	58
Tableau 1-7 : Part des appareils certifiés en 2015 « Flamme Verte » [15]	58
Tableau 1-8 : Caractéristiques des différentes sources d'émissions de particules primaires naturelles	61
Tableau 1-9 : Tableau récapitulatif des valeurs de la norme sur les particules [83] [84] [85]	65
Tableau 1-10 : Résultats des analyses chimiques de particules émises d'un appareil américain pour six combustibles différents [93]	70
Tableau 1-11 : Contribution en $\mu\text{g.m}^{-3}$ des différentes sources en $\text{PM}_{2,5}$ en zone urbaine [94]	73
Tableau 1-12 : Facteurs d'émissions TSP et composition OC/EC liées à la combustion de six combustibles différents [93]	76
Tableau 1-13 : Liste des différents types de mesure des émissions particulaires	79
Tableau 1-14 : Présentation de différentes techniques de filtration des fumées des appareils collectifs et industriels [46]	83
Tableau 2-1 : Caractérisation des combustibles	88
Tableau 2-2 : Résultats des pesées successives des filtres quartz vierges de 90mm de diamètre	96
Tableau 2-3 : Résultats d'analyse OC/EC de filtre de combustion avec trois standards	103
Les résultats du Tableau 2-4 prouvent bien que, dans le cas du filtre brun clair les trois surfaces décrites précédemment n'ont pas été traversées par la même quantité de gaz car elles ne présentent pas la même quantité de Carbone :	107
Tableau 2-5 : Résultats des analyses effectuées sur le filtre brun clair et sur le filtre foncé pour la vérification de la procédure	109
Tableau 2-6 : Résultats obtenus lors de l'analyse de filtres quartz vierge	110
Tableau 2-7 : Caractéristiques des différentes sources [122]	112
Tableau 2-8 : Définition des critères	120
Tableau 2-9 : Description des essais LERMAB dans le projet QUALICOMB	120
Tableau 3-1 : Résultats globaux des émissions gazeuses du poêle à granulés et du foyer fermé	126
Tableau 3-2 : Résultats globaux des émissions de particules du poêle à granulés et du foyer fermé de 2006	126
Tableau 3-3 : Bilan des résultats de microanalyse X pour le poêle à granulés de 2006 et le foyer fermé de 2006	128
Tableau 3-4 : Résultats globaux sans différenciation des phases	130

Tableau 3-5 : Définition et caractérisation physique des trois phases de combustion	131
Tableau 3-6 : Résultats des émissions gazeuses et solides durant la phase d'allumage.....	132
Tableau 3-7 : Résultats des pertes pour chaque élément selon la perte de masse de l'échantillon	134
Tableau 3-8 : Résultats des émissions gazeuses et solides durant la phase homogène	137
Tableau 3-9 : Résultats des émissions gazeuses et solides durant la phase hétérogène	139
Tableau 3-10 : Résultats globaux des émissions de trois générations différentes de chauffage domestique au bois	143
Tableau 3-11 : Moyenne des résultats obtenus via l'ELPI	144
Tableau 3-12 : Bilan des résultats de microanalyse X sur les différents appareils .	150
Tableau 3-13 : Description des charges de combustible de la série d'essais sur l'influence du mode d'allumage	153
Tableau 3-14 : Résultats des émissions gazeuses.....	154
Tableau 3-15 : Résultats des émissions de particules en masse et en nombre	155
Tableau 3-16 : Résultats des analyses OC/EC	155
Tableau 3-17 : Rappel des caractéristiques des essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB	159
Tableau 3-18 : Bilan des émissions gazeuses des essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB	159
Tableau 3-19 : Bilan des émissions solides des essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB	160
Tableau 3-20 : Bilan de la répartition granulométrique en masse et en nombre des essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB	161
Tableau 3-21 : Résultats globaux de microanalyse X des particules sur les essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB	161
Tableau 3-22 : Rappel des caractéristiques des essais 3 et 7 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB	163
Tableau 3-23 : Bilan des émissions gazeuses des essais 3 et 7 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB et des écorces	163
Tableau 3-24 : Bilan des émissions solides des essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB et des écorces.....	164
Tableau 3-25 : Bilan de la répartition granulométrique en masse et en nombre des essais 3 et 7 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB et des écorces	165
Tableau 3-26 : Bilan des résultats de la microanalyse X des particules émises par les essais 3 et 7 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB et des écorces	167
Tableau 3-27 : Caractéristiques des essais 3, CERIC 19, thèse 1 et Seguin Duteriez 20 réalisés par le LERMAB et le CERIC pour le projet QUALICOMB	168
Tableau 3-28 : Bilan des émissions pour la visualisation de l'impact de l'essence du combustible sur deux générations d'appareils	168
Tableau 3-29 : Bilan de l'impact de la nature du combustible sur les émissions	169
Tableau 3-30 : Caractéristiques des essais 1, thèse 2, thèse 1 et Seguin Duteriez 26 réalisés par le LERMAB et le CERIC pour le projet QUALICOMB	170

Tableau 3-31 : Résultats des émissions gazeuses pour l'étude de l'impact de l'utilisation sur l'appareil récent	170
Tableau 3-32 : Résultats des émissions solides pour l'étude de l'impact de l'utilisation sur l'appareil récent.....	171
Tableau 3-33 : Résultats des mesures granulométriques pour l'étude de l'impact de l'utilisation sur l'appareil récent	172
Tableau 3-34 : Résultats globaux de microanalyse X des particules sur les essais 1 et thèse 2 (appareil de 2012)	173
Tableau 3-35 : Bilan des émissions pour la visualisation de l'impact de l'utilisation sur l'appareil de 2000	174
Tableau 3-36 : Bilan de l'impact de la fermeture de l'arrivée d'air	175
Tableau 4-1 : Description des charges	188
Tableau 4-2 : Répétabilité des mesures classiques au point de référence pour les trois séries d'essais	188
Tableau 4-3 : Bilan des analyses gazeuses réalisées au point de référence	190
Tableau 4-4 : Bilan des émissions solides au point de référence	190
Tableau 4-5 : Bilan de la répartition granulométrique en nombre des particules du point de référence	191
Tableau 4-6 : Bilan des proportions de chaque HAP16 du point de référence	192
Tableau 4-7 : Bilan des émissions gazeuses aux points de mesure Chambre et Référence.....	194
Tableau 4-8 : Bilan des émissions solides aux points de mesure Chambre et Référence.....	196
Tableau 4-9 : Bilan de la concentration en nombre des particules et de leur répartition granulométrique aux deux points de mesure Chambre et Référence.....	197
Tableau 4-10 : Répartition en pourcentage des HAP16 aux deux points de mesure Chambre et Référence	200
Tableau 4-11 : Bilan des résultats de la microanalyse X aux deux points de mesure Chambre et Référence	202
Tableau 4-12 : Bilan des émissions gazeuses aux points de mesure Référence et Sortie.....	206
Tableau 4-13 : Bilan des émissions solides aux points de mesure Référence et Sortie	208
Tableau 4-14 : Bilan de la concentration en nombre des particules et de leur répartition granulométrique aux deux points de mesure Référence et Sortie.....	209
Tableau 4-15 : Concentration de chaque HAP aux deux points de mesure Référence et Sortie.....	211
Tableau 4-16 : Bilan des résultats de la microanalyse X aux deux points de mesure Référence et Sortie	214
Tableau 4-17 : Résultats des mesures de COVT, CH ₄ , TSP et température des fumées aux deux points de mesure Référence et Sortie Diluée....	217
Tableau 4-18 : Concentration de chaque HAP aux deux points de mesure Référence et Sortie Diluée.....	221
Tableau 4-19 : Bilan des résultats de la microanalyse X des particules aux deux points de mesure Référence et Sortie Diluée	223
Tableau 5-1 : Bilan des effets de quelques paramètres	238
Tableau B-1 : Facteurs d'émissions calculés des trois configurations pour tous les polluants mesurés	258

Tableau B-2 : Résultats globaux des deux réponses au scénario complet 259

Liste des équations

Équation 1-1 : Détermination du Pouvoir Calorifique Inférieur Humide [12].....	37
Équation 1-2 : Equation de la production de méthane lors de la combustion de biomasse	48
Équation 1-3 : Réactions principales de formation de NO thermique [38].....	52
Équation 1-4 : Troisième équilibre du mécanisme de Zeldovitch élargi	52
Équation 1-5 : Formation précoce de cyanures et d'amines dans la flamme de pré-mélange [41].....	53
Équation 1-6 : Réactions de formation du NO précoce [41].....	54
Équation 1-7 : Equation de production de NO combustible [45].....	55
Équation 1-8 : Détermination du diamètre de coupure d'un système de prélèvement [105]...	79
Équation 9 : Formule de calcul de l'erreur standard	97
Équation 3-1 : Equation d'estimation de la teneur en EC d'un filtre via le paramètre L.....	181
Équation 3-2 : Equation d'estimation de la teneur en OC du filtre via un rapport de paramètre.....	182

INTRODUCTION GENERALE

Des problématiques énergétiques et environnementales majeures rythment ce début de 21^{ème} siècle. En effet, les effets du réchauffement climatique sont dorénavant réellement ressentis, les réserves de pétrole s'amenuisent et les études liant la pollution à la mortalité fleurissent. Une transition énergétique est ainsi engagée. Mais, quelles énergies peuvent être à la fois considérées comme renouvelables, sans aucun impact sur l'environnement, favorisant les emplois locaux et acceptées par les populations ? A l'heure actuelle, plusieurs énergies répondent à trois de ces critères, notamment le bois énergie, mais aucune ne les satisfait tous. C'est la raison pour laquelle il est primordial de travailler sur l'optimisation des énergies renouvelables existantes en parallèle des recherches menées sur de nouvelles énergies.

Le bois énergie répond favorablement à de nombreux critères. En effet, cette énergie est renouvelable si l'exploitation de la forêt est réalisée de manière durable. Ensuite, le bois énergie favorise clairement les emplois locaux tout en restant à des tarifs très bas. Pour terminer, le bois énergie est une énergie traditionnelle déjà acceptée par les populations. Bien que le chauffage au bois ne puisse pas répondre à l'intégralité de la demande, il paraît important qu'il en assume une part. En revanche, le bois énergie, et plus particulièrement le chauffage domestique au bois, est décrit comme une source importante d'émissions de particules. C'est sur la base de cette constatation que débute ce travail de thèse.

Les particules toxiques présentes dans l'air ambiant le sont du fait de leur composition, de leur taille et de leur surface. Leur origine anthropique est variée : agriculture, transport, énergie, industrie, ... Néanmoins, le chauffage domestique au bois est décrit comme la source majoritaire pour les plus fines d'entre elles.

Des normes limitent les émissions de ces particules, et des labels se sont développés, certifiant que les appareils sont performants et donc, peu émissifs. Ainsi, les émissions de particules du chauffage domestique au bois sont de plus en plus faibles, mais restent à des niveaux encore trop élevés. Quelques systèmes de filtration des fumées existent, mais restent anecdotiques à l'heure actuelle car non-appropriés au secteur domestique (coût, entretien, ...).

Les particules mesurées dans le conduit d'évacuation des fumées sont généralement quantifiées en masse, et parfois en nombre. Quelques caractéristiques physiques des particules sont aussi couramment évaluées, comme leur granulométrie (en masse et/ou en nombre). En revanche, peu de mesures chimiques sont réalisées sur ces particules, qui ne sont différenciées généralement que par leur taille. Pourtant, la composition des particules, notamment en Carbone Organique et en Carbone Élémentaire, est un point essentiel pour la compréhension de leur toxicité.

Il est également admis que la mesure des particules dans le conduit d'évacuation des fumées ne représente pas exactement les émissions réelles dans l'atmosphère. En effet, la combustion de bois est aussi génératrice de précurseurs, comme les Composés Organiques Volatils ou les

Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques. Ces composés, sous forme gazeuse dans les fumées à la sortie de l'appareil, vont ensuite condenser dans le conduit de cheminée, puis dans l'atmosphère, formant alors de nouvelles particules. Cependant, ces composés sont complexes à mesurer. Les niveaux d'émissions en particules et en précurseurs sont très variables. Tout d'abord, la méthode de prélèvement influe de manière considérable sur les niveaux d'émissions attribués au chauffage domestique au bois. Diverses études, dont notamment le projet européen EN PME TEST, ont mis en évidence ce phénomène. C'est la raison pour laquelle un projet de norme européenne est à l'étude actuellement. Cependant, de nombreux autres facteurs impactent significativement les niveaux d'émissions.

Différentes technologies d'appareils sont actuellement présentes sur le marché : les appareils à granulés et les appareils à bûches sont les deux principales catégories. Bien que les niveaux d'émissions de ces types d'appareils soient bien renseignés, les caractéristiques physico-chimiques des particules sont méconnues. Les émissions d'un appareil de chauffage à bûches sont plus influencées par la méthode d'utilisation que pour un poêle à granulés par exemple, puisqu'aucune automatisation n'existe dans la combustion de bûches. Ainsi, l'utilisateur, via son choix de combustible et l'utilisation de son appareil, agit de manière directe sur la quantité et les caractéristiques des émissions.

De nombreuses expérimentations ont été réalisées dans le cadre de ce travail, afin d'apporter des réponses à la globalité des questionnements soulevés.

Ce mémoire se scinde en cinq chapitres.

Le Chapitre 1 présentera une étude bibliographique sur les principaux points liés au sujet. Après avoir placé le chauffage domestique au bois dans le contexte énergétique actuel, nous réaliserons un point sur les connaissances des émissions polluantes du chauffage domestique au bois. Diverses problématiques vont être identifiées dans ce chapitre auxquelles ce travail tentera d'apporter des éléments de réponse.

Le Chapitre 2 permettra de définir non seulement les différentes campagnes expérimentales, mais aussi les différents protocoles et les différentes analyses réalisés, comme la mise au point de méthodologies de l'analyse OC/EC ou encore d'imagerie et de microanalyse X adaptées pour les particules issues de la combustion du bois.

Ensuite, le Chapitre 3 aura pour objet de définir les émissions types des différents appareils de chauffage domestiques, mais aussi les facteurs influant sur ces émissions, comme notamment la nature du combustible, le mode d'allumage, les réglages des arrivées d'air...

Le Chapitre 4 se concentrera sur l'observation de l'évolution des particules dans le conduit d'évacuation des fumées. Les caractéristiques physico-chimiques de la matière particulaire seront donc définies de la chambre de combustion jusqu'à l'évacuation des fumées.

Pour terminer, le Chapitre 5 présentera une analyse phénoménologique permettant de synthétiser et appliquer les résultats des chapitres précédents. C'est notamment dans ce chapitre que les mécanismes de formation/destruction et d'évolution des particules seront définis.

Chapitre 1. ETAT DE L'ART

Ce chapitre a pour objectif de mieux cibler les objectifs de ce travail. Après avoir placé cette étude dans son contexte, les polluants émis par le bois énergie seront définis. Ensuite, une partie plus spécifique sera dédiée aux connaissances relatives aux particules et clôturera cet état de l'art. Une liste des abréviations dépliantes est placée en annexe A.

1.1 Contexte global

Cette partie a pour objectif de bien situer le contexte dans lequel cette étude se déroule. Ainsi, des bilans sur l'énergie en France, les énergies renouvelables (ENR) puis sur le bois énergie en particulier permettront de mieux saisir les problématiques et enjeux actuels.

1.1.1 L'énergie en France

La consommation d'énergie primaire (à climat normal) en France s'est stabilisée depuis 2005 et présente une tendance à la diminution. Elle atteint un niveau de 256,6 Mtep en 2014 [1]. Parallèlement, la production d'énergie primaire en France continue sa progression, atteignant en 2014 un niveau de production de 139,1 Mtep. L'indépendance énergétique de la France n'est toujours pas d'actualité puisqu'il n'est produit que 54,2% de l'énergie primaire consommée en 2014. Cette dépendance provient de l'utilisation d'énergies fossiles comme le pétrole, le gaz et le charbon (transport et chauffage majoritairement) non présentes sur le territoire français. La France utilise principalement cinq grands types d'énergie :

- électrique (nucléaire principalement), produite en France ;
- pétrole, importé ;
- gaz, importé ;
- énergie renouvelable et déchets (renouvelables ou non), produits en France ;
- charbon, importé.

Ces données peuvent être analysées par type d'énergie et par secteur. La Figure 1-1 présente l'évolution de la consommation d'énergie primaire en France par type d'énergie (a) ainsi l'évolution de la consommation d'énergie finale par secteur (b).

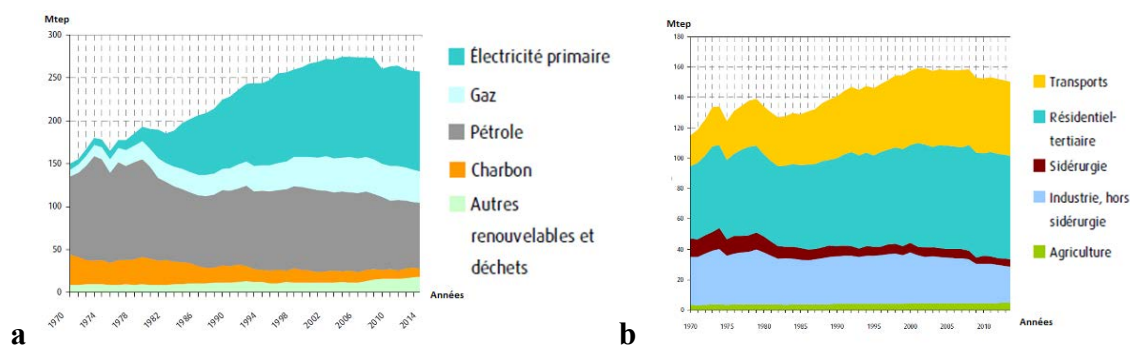


Figure 1-1 : Consommation d'énergie primaire par type d'énergie en France [1] (a) et consommation d'énergie finale par secteur en France [2] (b)

L'électricité reste stable depuis 2010 alors que le pétrole demeure en baisse. Le charbon poursuit sa régression depuis plus de trente ans, alors que le gaz reste stable. La consommation d'énergie finale suit elle aussi la même tendance. Elle reproduit exactement le même type d'évolution mais en étant plus régulière, puisque les rendements énergétiques sont de plus en plus élevés. La Figure 1-1 témoigne de ce phénomène. La consommation d'énergie finale des transports connaît une légère baisse de 0,8% en 2012. Ce creux de consommation calculé sur une seule année n'induit pas forcément une réelle tendance durable à la diminution. L'agriculture reste stable depuis 2006, alors que l'industrie continue sa chute. Elle a diminué de 26,5% depuis 1970, et de 1,2% entre 2011 et 2012.

Cette figure montre aussi que le secteur du résidentiel/tertiaire est le premier consommateur d'énergie finale (environ 40% de la consommation totale). Ce secteur comprend une forte part de chauffage bois. La Figure 1-2 confirme l'importance des ENR (majoritairement composées de bois énergie) dans la consommation d'énergie finale du résidentiel/tertiaire.

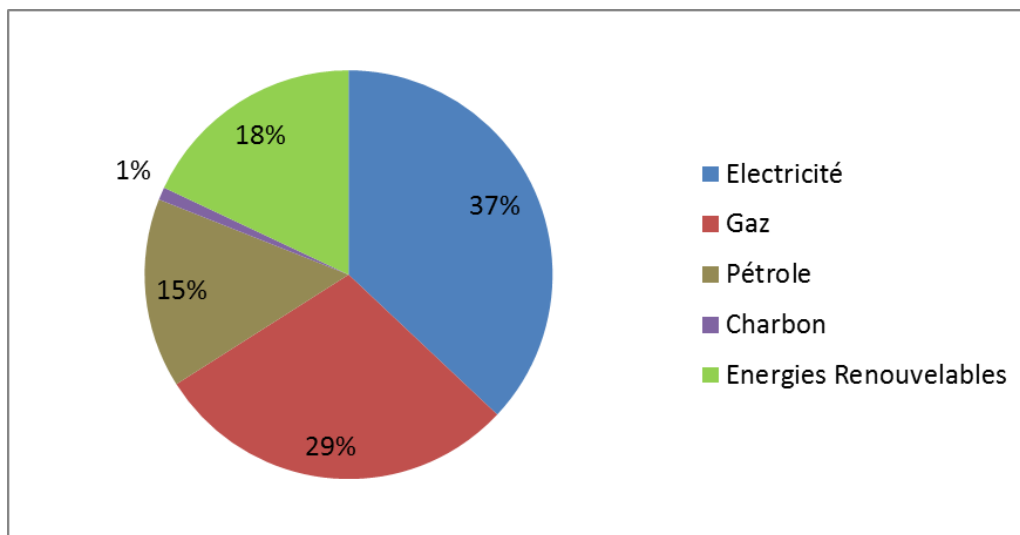


Figure 1-2 : Répartition de la consommation d'énergie finale dans les secteurs résidentiel et tertiaire [2]

La stabilisation de la consommation d'énergie finale devrait conduire à une facture énergétique décroissante puisque les rendements installés augmentent peu à peu et les bâtiments sont de moins en moins énergivores (via l'isolation par exemple). Le développement des ENR comme le bois est devenu un enjeu écologique mais aussi économique. En effet celles-ci sont un moyen efficace d'alléger la facture énergétique de la France, mais aussi d'augmenter son taux d'indépendance énergétique.

1.1.2 Les énergies renouvelables

Les ENR représentent environ 13% de l’approvisionnement mondial énergétique [3], soit plus de six fois l’énergie nucléaire et environ un tiers de l’énergie fossile (pétrole). Parmi les ENR, la biomasse est très largement majoritaire (environ 80%). La Figure 1-3 représente cette répartition mondiale.

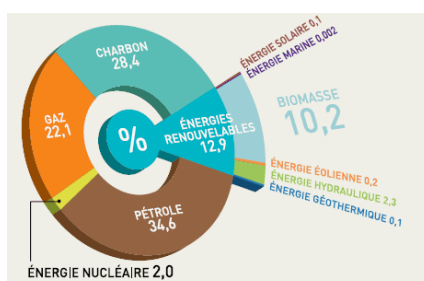


Figure 1-3 : Part des énergies renouvelables dans l’approvisionnement énergétique mondial [3]

En France, dans ce contexte et après le Grenelle de l’Environnement, la politique actuelle est de favoriser le plus possible la production et la consommation d’ENR. Cela permettra de diminuer les consommations d’énergies fossiles mais aussi de réduire la part du nucléaire, ce qui est une volonté affirmée du gouvernement actuel. La Figure 1-4 présente les objectifs de progression des ENR en France pour 2020.

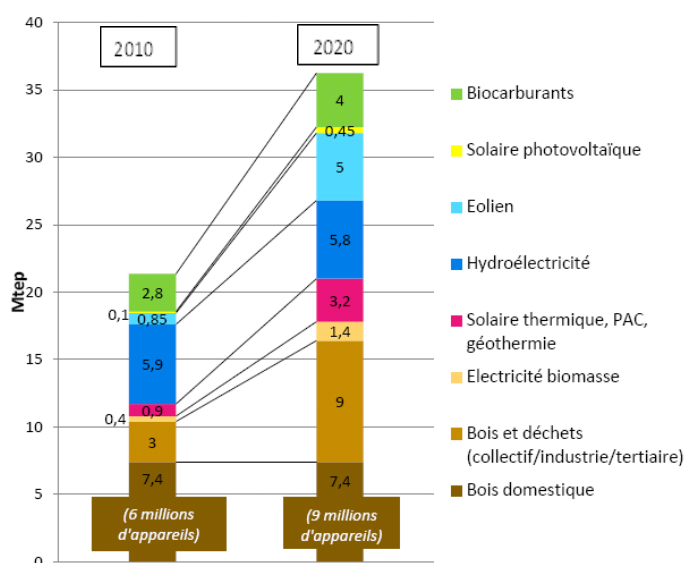


Figure 1-4 : Objectifs de progression des différentes énergies renouvelables en France [4]

L’hydroélectricité est la seule ENR qui ne devrait pas augmenter d’ici 2020. Le bois domestique est aussi un cas particulier puisque le nombre d’appareils doit augmenter de 33% (de six à neuf millions d’habitations chauffées en partie au bois entre 2010 et 2020) sans pour autant augmenter la consommation en énergie primaire. En effet, les habitations sont de mieux en mieux isolées (cela est dû aux Réglementations Thermiques qui conduisent à des bâtiments de moins en moins énergivores) et les appareils de plus en plus performants. Au global, une croissance d’environ 70% des ENR est prévue pour 2020 par rapport à 2010. La Figure 1-4 peut être traduite en part de chaque ENR dans le mix énergétique. La Figure 1-5

permet de comparer la répartition de 2014 et celle souhaitée en 2020 ainsi que la quantité d'ENR produite. Concernant la quantité, l'année 2014 ne permet pas de visionner une évolution réelle. En effet, l'année 2014 est particulière puisqu'elle est l'année la plus chaude depuis l'enregistrement des données météorologiques (1900). La comparaison n'aurait pu être validée sur l'année 2013 car celle-ci présentait un été plutôt frais mais un hiver clément. La capacité de production est donc plus élevée, mais la quantité produite est directement liée à la météo.

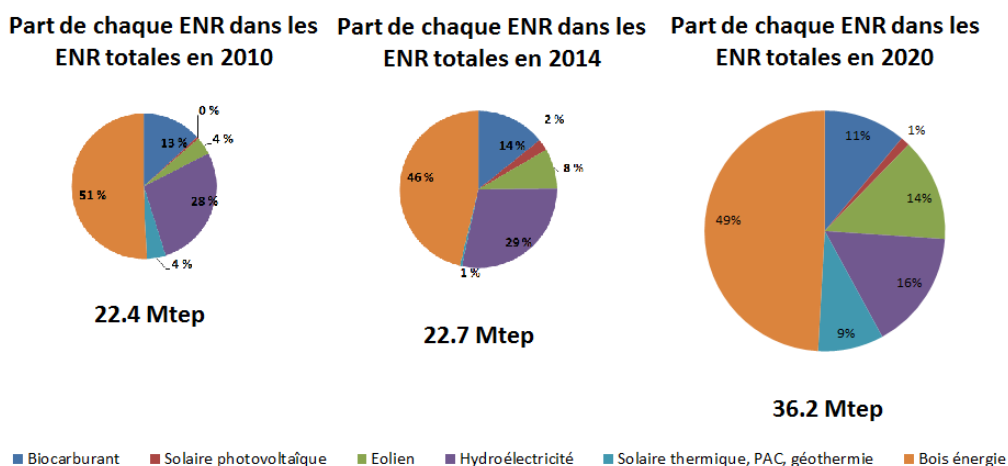


Figure 1-5 : Comparaison des objectifs de 2010 à 2020 [5] à la situation réelle en 2014 [2]

En 2014, quatre chiffres montrent l'importance des ENR en France [6]:

- 17,1% d'électricité renouvelable dans la consommation totale d'électricité ;
- 18,3% d'énergie renouvelable thermique dans la consommation totale de chaleur ;
- 7,1% d'énergie renouvelable dans le secteur des transports ;
- 14,2% d'énergie renouvelable dans la consommation finale.

La consommation d'énergies renouvelables thermiques (ENRt) pour la production de chaleur représente 12.5 Mtep en 2014 en France [7]. La Figure 1-6 montre l'importance du bois énergie dans le panel des ENRt.

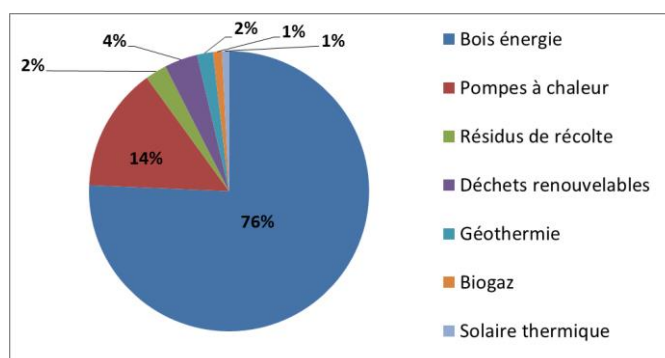


Figure 1-6 : Répartition des sources d'ENRt en 2014 [7]

Ainsi, 76% des ENRt proviennent de la filière bois énergie. La Figure 1-7 permet de mieux comprendre le fait que cette part du bois énergie dans les ENRt est fortement liée à la consommation d'ENRt du secteur résidentiel et tertiaire.

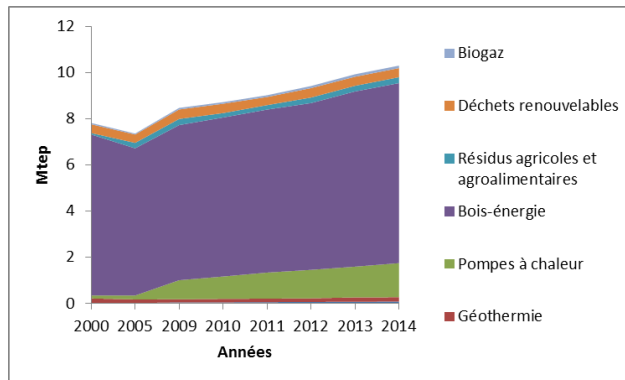


Figure 1-7 : Consommation finale d'ENRt dans le résidentiel/tertiaire en Mtep [2] [7]

Les pompes à chaleur sont de plus en plus utilisées, mais une fois encore le bois énergie est largement majoritaire, avec plus de 70% des ENRt dans le secteur résidentiel/tertiaire en 2014. C'est donc un enjeu majeur que de favoriser cette filière prometteuse et renouvelable en améliorant les performances énergétiques et en réduisant son impact environnemental.

1.1.3 Le bois énergie en France

1.1.3.1 Généralités

Le bois énergie est utilisé depuis la découverte et la maîtrise du feu, soit il y a un demi-million d'années. Ses premières utilisations furent d'assurer la cuisson des aliments et de se réchauffer. Jusqu'avant la première révolution industrielle et la généralisation des énergies fossiles, la biomasse fut la source d'énergie la plus exploitée par l'homme. Le bois énergie appartient à une famille d'énergie produite par la biomasse. Selon la loi n°1169, la biomasse est définie ainsi [5].

« La biomasse regroupe toutes les matières organiques qui peuvent dégager de l'énergie par combustion directe ou suite à une étape de transformation. Cela implique que la biomasse représente tout autant la fraction biodégradable des déchets industriels que le bois issu directement de la forêt. Elle donne naissance à trois sous-familles :

- le bois énergie
- le biogaz
- les biocarburants »

Le Syndicat des Energies Renouvelables a mis en place la commission France Biomasse Energie qui se charge de suivre et favoriser ces trois pôles dans les secteurs du collectif, de l'industrie et du tertiaire. En effet, la biomasse est indispensable pour répondre aux objectifs que la France s'est fixée dans le cadre du Paquet Energie Climat Européen et du Grenelle de l'Environnement. Elle permet de répondre à cinq points environnementaux clés [8] :

- réduire la consommation d'énergie ;
- lutter contre le changement climatique ;
- réduire la dépendance énergétique de la France vis-à-vis des matières premières fossiles ;
- anticiper l'épuisement des gisements d'hydrocarbures ;
- favoriser l'émergence de méthodes de productions alternatives.

Le bois énergie est un terme générique recouvrant toutes les activités liées à la production d'énergie via le matériau bois. Les principales utilisations sont :

- le chauffage domestique ;
- le chauffage collectif ;
- l'utilisation industrielle ;
- la cogénération (chaleur plus électricité) ;
- la tri-génération (chaleur plus froid plus électricité) ;
- la gazéification (gaz).

Sur les 8,4% de la consommation française en énergie primaire de source renouvelable en 2011, 3,6% proviennent de la filière bois énergie [6], soit plus de 40%. L'ADEME précise que la consommation en énergie finale du résidentiel/tertiaire est de 68,1 Mt_{ep} dont 9,7 Mt_{ep} venant du bois. Le secteur résidentiel est ainsi le principal utilisateur de bois énergie. En effet, de nombreuses habitations sont chauffées intégralement ou partiellement au bois. Avant de détailler le chauffage domestique au bois, il nous faut définir et expliquer le principe même de la combustion.

1.1.3.2 Principe de combustion

Il existe trois moyens thermochimiques principaux pour valoriser énergétiquement le bois :

- la combustion (oxydation totale) ;
- la gazéification (oxydation partielle) ;
- la pyrolyse (sans Oxygène).

La combustion consiste à une oxydation la plus complète possible des composés du bois, dont l'objectif est la production directe de chaleur. La pyrolyse quant à elle se déroule sans Oxygène afin de produire des charbons et des gaz. Enfin, la gazéification se déroule avec un manque d'Oxygène afin de n'oxyder que partiellement les composés et ainsi produire des gaz de type CO ou H₂.

Tout procédé de valorisation thermochimique débute par une pyrolyse. La combustion est un procédé complexe décrit schématiquement dans la Figure 1-8.

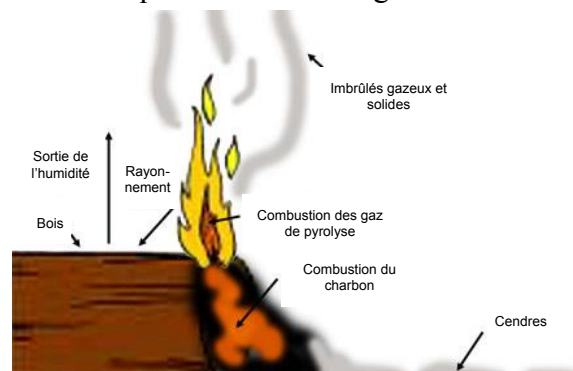


Figure 1-8 : Description des différentes étapes de la combustion d'une bûche [9]

La combustion comporte trois phases :

- le séchage du combustible ;
- la combustion des gaz de pyrolyse : combustion homogène ou vive ;
- la combustion charbon : combustion hétérogène ou lente.

Ces étapes de combustion ne sont pas distinctes dans le temps. En revanche, dans le cas de la combustion d'une bûche, les phases peuvent être visibles. Cela est dû au fait qu'au moment de l'introduction de la bûche dans l'appareil, la phase d'allumage est majoritaire. Ensuite, lorsque la bûche émet beaucoup de gaz de pyrolyse, c'est la phase de combustion homogène qui devient majoritaire. Puis, quand il ne reste plus que du charbon, la combustion hétérogène est majoritaire. Cependant, cela ne signifie en aucun cas que durant la combustion homogène, il ne se déroule pas du séchage ou de la combustion de charbon.

⇒ *Le séchage du combustible :*

Le bois est un matériau hygroscopique qui possède une humidité non nulle à température ambiante. Lorsque ce combustible est soumis à de la chaleur, l'eau qu'il contient va changer d'état et s'échapper du matériau. La zone dans laquelle ce changement de phase se déroule est une barrière à la propagation de la chaleur puisque cette réaction est fortement endothermique. Cette étape demande énormément d'énergie : ainsi, si le bois présente une humidité sur brute supérieure (masse d'eau divisée par la masse de bois humide) à 60%, le système ne sera pas en capacité de maintenir la température minimale au bon déroulement de la combustion [10]. Un combustible davantage sec présentera un pouvoir calorifique inférieur humide plus élevé. Cela explique la raison pour laquelle il est important de sécher le combustible avant de le brûler. L'Équation 1-1 définit le Pouvoir Calorifique Inférieur Humide (PCIh). Cette phase se termine généralement avant que les hémicelluloses ne se dégradent, soit avant 200°C [11].

$$PCIh = PCI_s * (1 - (Hb / 100)) - 2500 * (Hb / 100)$$

Avec :

- *PCIh* : Pouvoir Calorifique Inférieur Humide du combustible en kJ.kg^{-1} de combustible ;
- *Hb* : Humidité sur brute du combustible en % ;
- *PCI_s* : Pouvoir Calorifique Inférieur Sec du combustible en kJ.kg^{-1} de combustible, calculé par la relation suivante :

$$PCI_s = PCS - 226 * H\%$$

Avec :

- *PCS* : Pouvoir Calorifique Supérieur du combustible en kJ.kg^{-1} de combustible ;
- *H%* : Le rapport massique en Hydrogène dans le combustible en %.

Équation 1-1 : Détermination du Pouvoir Calorifique Inférieur Humide [12]

⇒ *La combustion homogène*

Durant cette étape, à partir de 250°C, le bois commence à émettre des gaz qui proviennent de la dégradation thermique de ses composants. Ces gaz réagissent avec l'Oxygène environnant et brûlent. Le flux d'Oxygène étant consommé avant la surface du solide, la flamme ne touche pas le combustible. Cette flamme chauffe par rayonnement et convection le bois et permet donc de maintenir la réaction de pyrolyse. La Figure 1-9 présente le fonctionnement circulaire de cette étape suivant le principe de la flamme de diffusion.

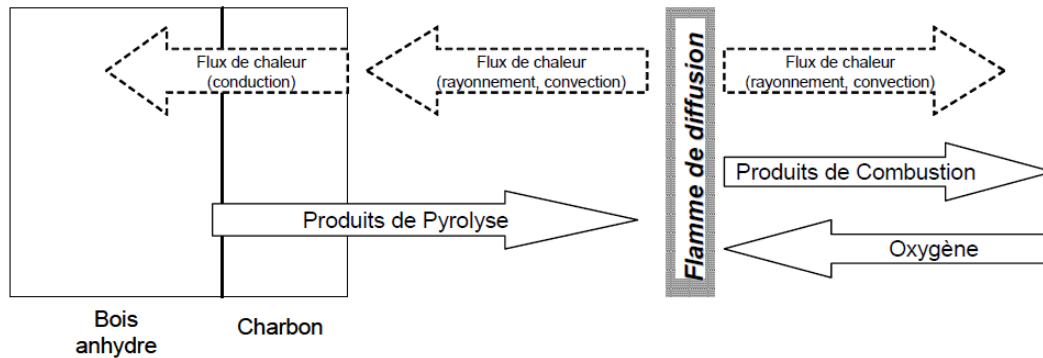


Figure 1-9 : Schématisation de l'étape de combustion homogène

⇒ *La combustion hétérogène*

Une fois que le combustible ne peut plus produire de produits de pyrolyse il ne reste plus qu'une structure carbonée à haute température, appelée carbone fixe. L'Oxygène va pouvoir atteindre ce solide puisqu'il n'y a plus de gaz de pyrolyse à oxyder. Le Dioxygène doit donc se diffuser dans le charbon afin d'oxyder le carbone fixe et de produire du CO₂. C'est pour cette raison que cette étape est relativement longue pour une perte de masse relativement faible. La combustion des braises commence alors et se termine lorsque la température ne permet plus d'entretenir la réaction, et donc quand il n'y a plus assez de matière carbonée à brûler.

⇒ *Maîtriser une combustion*

Pour optimiser un procédé de combustion, il faut respecter la règle des « 4T », dont trois paramètres sur quatre ont pour but de favoriser la rencontre entre les gaz de pyrolyse et le Dioxygène afin que les réactions d'oxydation aient lieu. Les 4T sont :

- teneur en Dioxygène ;
- temps de séjour ;
- température ;
- turbulence.

La teneur en Dioxygène est un paramètre extrêmement important. Pour oxyder tous les gaz, une solution est d'introduire dans le système une proportion significative de Dioxygène. Cependant, dans la plupart des appareils et notamment pour les appareils de chauffage domestique au bois, le Dioxygène injecté est celui de l'air. L'air étant composé en première approche à 21% d'O₂ et 79% de N₂, une forte injection d'air conduit à une augmentation très importante des quantités d'Azote. Ainsi, si cette injection est trop importante, la température va drastiquement chuter. Le débit d'air doit donc être bien maîtrisé et injecté en des points propices.

Le temps de séjour correspond au temps de passage des gaz dans la chambre de combustion. L'objectif est de laisser du temps aux molécules de se « rencontrer ». Ce temps est réglé lors de la conception via le volume de la chambre de combustion, le chicanage et les déflecteurs. Si celle-ci possède un volume élevé, le temps de séjour sera élevé. Un temps de séjour trop élevé conduit à une baisse du niveau moyen de température. Deux secondes correspondent à un temps de séjour moyen utilisé dans les applications de chauffage au bois.

La température est une conséquence des deux paramètres précédents ainsi que des matériaux utilisés. Il est important d'avoir une température élevée dans un système puisqu'elle assure des réactions complètes. En revanche, une température trop élevée conduira à une forte production de CO, de NOx, de suies ainsi qu'à la fusion des cendres. Une température idéale est comprise entre 850 et 1000°C. Dans un appareil de chauffage domestique au bois, la température varie généralement entre 550 et 700°C.

La turbulence caractérise la qualité du mélange. Si les trois paramètres précédents sont fixes mais que la turbulence augmente, les molécules de gaz et de Dioxygène vont se rencontrer plus facilement, favorisant ainsi les réactions d'oxydation. Ce mélange est principalement réglé via les vitesses des gaz. A la conception, des dispositifs de type chicanes peuvent être mis en place afin d'augmenter les vitesses et favoriser le mélange.

Chaque paramètre influe et est influé par les autres paramètres. Ainsi, l'optimisation de la combustion peut être réalisée via des compromis entre les quatre paramètres précédemment cités.

1.1.3.3 Le chauffage domestique au bois

⇒ *Généralités :*

La filière chauffage domestique au bois en France est l'une des plus dynamiques d'Europe. Elle représente un chiffre d'affaire de 500 millions d'euros et plus de 18 000 emplois en 2010 [13] sans compter toutes les fonctions supports (installateurs, maintenance, associations, fédérations, ...). Il existe de nombreux types de chauffage domestique. Ne sera présentée ici qu'une introduction/présentation de deux types d'appareils qui sont les plus fréquents :

- poêles à bois ;
- foyers fermés.

Ces deux appareils font partie de ce que l'on appelle des appareils divisés, c'est-à-dire des appareils de chauffage indépendants, non reliés à un système de distribution de la chaleur. Ils représentent environ 70% du parc actuel comme le montre la Figure 1-10.

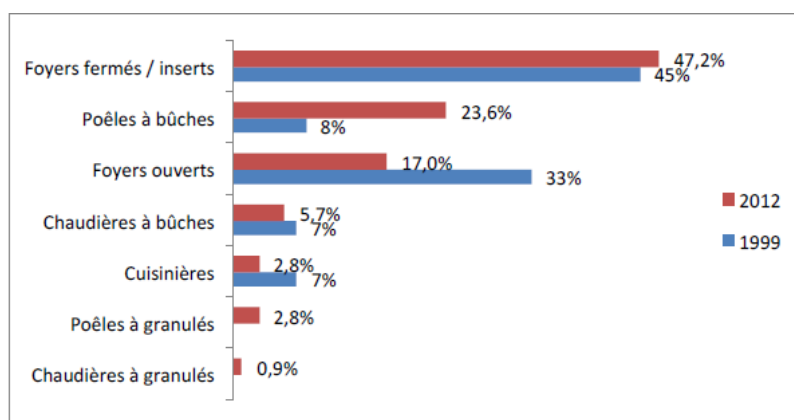


Figure 1-10 : Evolution du parc entre 1999 et 2012 [14]

Les foyers ouverts disparaissent petit à petit du parc à cause de leur rendement énergétique très faible et de leurs émissions polluantes plus élevées. Le Tableau 1-1 présente l'évolution des ventes elles-mêmes de 2005 à 2015.

Types d'appareils		2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015
Poêles	Bûches	121 365	195 214	174 619	199 940	234 670	231 770	225 885	247 300	254 170	200 930	166 000
	Granulés	5 710	10 278	13 787	17 100	20 000	27 000	37 400	58 000	94 200	91 150	98 000
Foyers et Inserts		253 400	281 565	217 502	237 790	194 200	180 000	179 750	156 600	151 500	120 750	97 950
Chaudières		18 545	28 414	15 043	27 070	20 900	17 340	16 970	19 360	20 950	14 165	11 380
Cuisinières		10 715	13 658	11 299	11 200	9 870	7 770	7 350	6 615	6 000	4 800	4 820
TOTAL		409 735	529 129	432 250	493 100	479 640	463 880	467 355	487 875	526 820	431 795	378 150

Tableau 1-1 : Evolution des ventes d'appareils de chauffage domestique au bois de 2005 à 2015 [15]

Les mêmes phénomènes se retrouvent. En 2012, plus de 62% des ventes d'appareils de chauffage domestique au bois étaient des poêles et 32% des foyers fermés. Ces deux types d'appareils représentent donc plus de 94% des ventes actuelles. Les ventes de poêles à bûches sont en baisse alors que la part des ventes des poêles à granulés sur marché global augmente jusqu'à atteindre 25% en 2015.

⇒ *Présentation de deux appareils :*

Les éléments décrits dans cette partie sont tirés des *Techniques de l'Ingénieurs* [16]. Les poêles (à bûches ou à granulés) ont l'avantage d'être moins onéreux que la majorité des autres appareils et possèdent des designs différents, ce qui répond bien aux attentes des utilisateurs. Les performances peuvent être très variables selon la date de fabrication et le type d'appareils. Aujourd'hui, les rendements varient de 70% à 90% sur PCI environ. Notons cependant que de nombreux appareils anciens existent sur site et peuvent avoir des rendements inférieurs. Leur puissance varie de 5 à plus de 15kW. Si les appareils anciens (avant 2000) avaient un fonctionnement très simple avec une seule injection d'air sous les bûches, les appareils commercialisés aujourd'hui sont beaucoup plus perfectionnés.

Un schéma de principe d'un poêle à bûches est proposé en Figure 1-11. L'air primaire arrive sous des grilles où le bois est placé. Dans cette zone, le bois est pyrolysé et une première phase d'oxydation des gaz se produit. C'est également dans cette zone que la combustion hétérogène du charbon est réalisée. L'air secondaire provient de l'air de vitre et permet une oxydation des gaz restants. L'entrée d'air secondaire peut aussi être totalement dissociée de l'air de vitre. Généralement, l'entrée d'air secondaire dans les poêles se fait à l'arrière de la chambre via une série de de trous (permettant une répartition homogène), juste au-dessus des bûches. Les technologies pour les poêles à granulés sont semblables, mais la chambre de combustion est généralement plus petite.

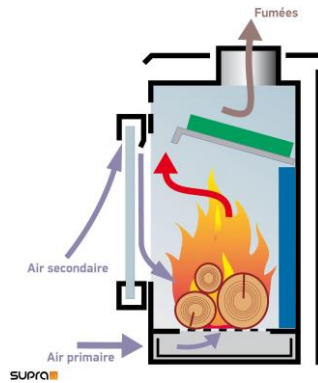


Figure 1-11 : Schéma de principe d'un poêle à bûches (marque SUPRA)

L'air primaire a ainsi deux fonctions principales : entretenir la dégradation du bois et donc gérer la puissance d'une part et oxyder le charbon résiduel en fin de combustion d'autre part. Si l'oxydation des gaz se déroule au plus proche de la bûche, le rayonnement sur celle-ci sera plus important. La bûche recevra alors plus de chaleur qui augmentera sa vitesse de dégradation. Ce faisant, une quantité plus importante de gaz va être produite. Si la quantité d'air injecté est suffisante, la puissance va augmenter. A contrario, si l'oxydation se déroule loin de la bûche, le rayonnement vers la bûche sera plus faible et la dégradation du bois sera ralentie, entraînant une diminution de la puissance. Ces différences de puissance rayonnée vers la bûche sont liées à deux phénomènes : une flamme davantage éloignée correspondra à un angle solide plus faible ; de même, la quantité de gaz absorbants sera plus importante dans ce cas. La Figure 1-12 schématise ces deux phénomènes limitant le transfert de chaleur. La gestion de l'air primaire est donc primordiale pour maîtriser la puissance et pour oxyder le carbone fixe en fin de combustion.

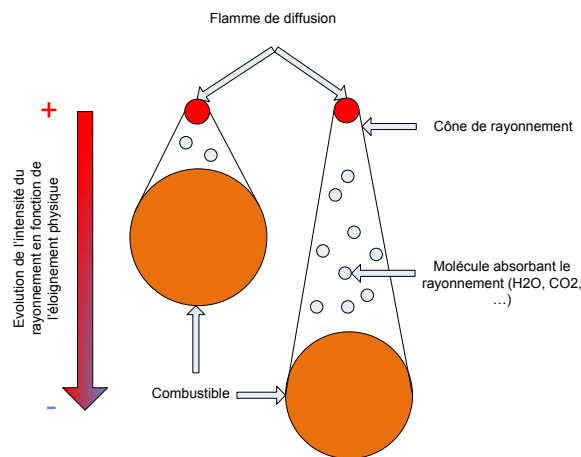


Figure 1-12 : Schéma de l'impact du positionnement de l'oxydation des gaz sur le rayonnement reçu par le combustible

Les foyers fermés se rapprochent beaucoup des inserts. Un insert peut s'installer dans une cheminée déjà existante en rénovation alors que le foyer fermé s'installe avant la mise en place de l'habillage. Une seconde différence notable est la présence d'un avaloir pyramidal (pour la majorité des cas) en partie haute du foyer fermé. Aujourd'hui, les foyers fermés ont pour la plupart un rendement compris entre 75% et 85% sur PCI. Ils peuvent être très

efficaces s'ils sont bien entretenus et bien utilisés. Les anciens foyers fermés encore présents dans le parc d'appareils possèdent un rendement plus faible, allant de 50 à 70%. Le principe de combustion de ces appareils est semblable à celui décrit pour les poêles.

⇒ *Les différents combustibles bois:*

Il existe de nombreux combustibles utilisés dans le chauffage au bois :

- bûches : application domestique ;
- bûches densifiées : application domestique ;
- granulés : application majoritairement domestique, mais aussi pour le collectif ;
- plaquettes forestières (broyats forestiers) : application majoritairement pour le collectif et l'industriel ;
- plaquettes industrielles (broyats de palettes industrielles) : application majoritairement pour le collectif et l'industriel.

Le bois énergie, tous combustibles confondus, représente une consommation dans les résidences principales de 7,3 Mtep dont 6,9 Mtep venant du bois bûches en 2013, soit 95% [14]. La Figure 1-13 présente la répartition des combustibles dans la consommation des résidences principales.

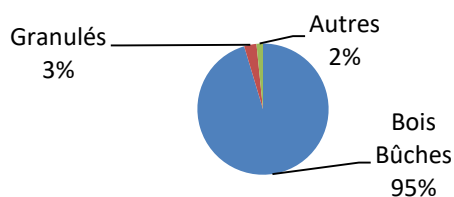


Figure 1-13 : Répartition par type de combustible dans la consommation des résidences principales en 2013 [14]

Cette étude concernant uniquement le chauffage domestique au bois, seuls les combustibles bûches et granulés seront présentés. Le volume de bois bûches utilisé est particulièrement difficile à évaluer. En effet, la possibilité d'auto-approvisionnement complique la lecture des chiffres. Cet auto-approvisionnement a été évalué en 2012 à environ 46% de la consommation totale du bois bûches, soit 24,7 millions de stères (3,334 Mtep) sur les 51 millions de stères totaux. Cette valeur est calculée par différence entre la valeur totale (connue) et la valeur vendue (connue).

Le bois bûches possède plusieurs avantages :

- facilité d'approvisionnement ;
- combustible le moins cher du marché des combustibles domestiques.

Les granulés bois connaissent un essor malgré une stabilité de la consommation depuis 2013. En revanche, la production de granulés est de plus en plus ajustée à la consommation. La Figure 1-14 illustre ce phénomène. La stabilité de la consommation depuis 2013 correspond à la phase de stabilité des ventes de poêles à granulés depuis cette date (Tableau 1-1).

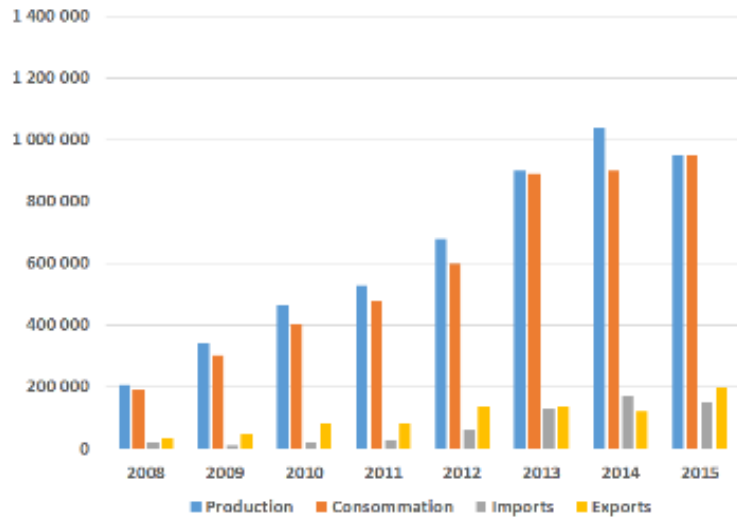


Figure 1-14 : Evolution de la production française de granulés de bois [17] [18]

Le bois bûche reste majoritairement utilisé, mais la part du granulé progresse nettement. Cela est dû à plusieurs raisons :

- propreté du combustible lors de l'utilisation et de la manutention ;
- stockage du combustible très simple ;
- faible taux de cendres donc peu de nettoyage de foyer ;
- très pratique et mieux régulé via un thermostat d'ambiance ;
- allumage et programmation à distance par usage de la domotique.

1.1.3.4 Conclusion

La filière bois énergie est un moyen efficace pour lutter contre le réchauffement climatique, mais aussi pour réduire notre dépendance aux énergies fossiles. Le chauffage domestique au bois représente une part importante de cette solution d'avenir. Dans la suite de ce travail de thèse seront présentés les impacts environnementaux de cette source d'énergie.

1.2 Bois énergie et pollution

Le secteur bois énergie est responsable, comme toute source d'énergie, de certaines émissions polluantes. L'objectif de cette partie est de définir de la manière la plus exhaustive possible les polluants liés au secteur du bois énergie.

1.2.1 Comparaison des polluants émis par le bois énergie et les autres types de chauffage

La comparaison des émissions polluantes liées au bois énergie à celles d'autres sources d'énergie permet de mieux comprendre pourquoi le bois énergie est considéré comme renouvelable. Pour ces comparatifs, le bois énergie est décomposé en trois filières :

- chauffage domestique ;
- chauffage collectif ;
- chauffage industriel.

Il est en effet nécessaire de distinguer ces trois catégories étant donné les différences des systèmes. De plus, dans le cas des chaudières, une puissance plus élevée induit une combustion mieux maîtrisée, ce qui implique une baisse significative des émissions polluantes. La Figure 1-15 montre qu'au niveau des émissions de gaz à effet de serre, le bois énergie (tous combustibles et catégories confondus) présente un bilan extrêmement positif, et bien en dessous des autres types d'énergie.

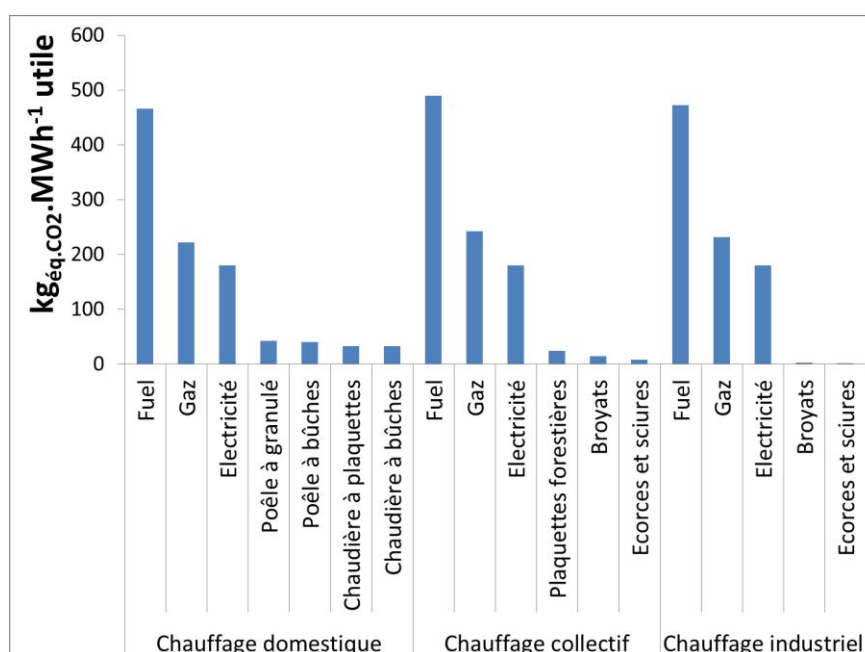


Figure 1-15 : Bilan des émissions de gaz à effet de serre [19]

Si le bois énergie est si peu émetteur de gaz à effet de serre, c'est parce que durant sa vie, l'arbre a piégé du CO₂ par photosynthèse. Ainsi, le CO₂ émis lors de la combustion du bois est en quantité égale à celui qui a été piégé lors de sa croissance. Son seul impact en CO₂ n'est ainsi lié qu'à sa préparation (coupe, fendage, transport, ...), ce qui représente des quantités très faibles. Le Tableau 1-2 illustre les émissions totales et la part dans les émissions nationales de

SO₂, NO_x, CO, HAP₄, Poussières totales (PME), PM₁₀ et PM_{2,5} des deux filières de bois énergie présentées précédemment selon le CITEPA [20]. L'année choisie pour réaliser ce tableau est l'année 2005. La raison de ce choix provient du fait que cette année présentait un climat très standard, impliquant une utilisation du bois énergie relevant d'un scénario classique

	SO ₂	NO _x	CO	COVNM	HAP ₄	Dioxines	Poussières Totales	PM ₁₀	PM _{2,5}
Combustion du bois dans le domestique	6.4 kt	19.2 kt	1704.4 kt	303.9 kt	19.1 t	21.9 g (ITEQ*)	138.2 kt	131.3 kt	128.6 kt
Combustion du bois dans l'industrie, l'agriculture et le collectif	1.4 kt	8.7 kt	35.3 kt	2.9 kt	0.3 t	2.1 g (ITEQ*)	4.9 kt	4.1 kt	3.5 kt
% des émissions totales nationales (tous les secteurs)	2%	2%	31%	22%	77%	11%	12%	27%	40%

* ITEQ : Indice de Toxicité Equivalente

Tableau 1-2 : Facteurs d'émission de la combustion du bois et contribution aux émissions nationales pour l'année 2005 [20]

Ce tableau montre que le bois énergie était en 2005 :

- une source mineure d'émission de SO₂ et de NO_x (environ 2%) ;
- une source moyenne d'émission de poussières totales (environ 10%) ;
- une source importante d'émission de COVNM (22%), CO (31%), HAP₄ (77%), PM₁₀ (27%) et PM_{2,5} (40%).

Néanmoins, la part nationale du bois énergie dans les émissions de « HAP₄ » est discutable. En effet, cet impact de 77% diminue drastiquement si les « HAP₈ » ou les « HAP₁₆ » sont considérés.

1.2.2 Les différents polluants

Le bois énergie est une source d'émission de différents polluants. Le Tableau 1-3 présente les polluants les plus connus (ce qui ne signifie pas qu'ils sont fortement émis par le bois énergie) ainsi que leurs origines et leurs effets de manière succincte.

Familles	Polluants	Origines	Effets
Gaz	CO ₂	Produit d'une combustion complète après oxydation du carbone	Gaz à effet de serre
	CO	Produit d'une combustion incomplète lors de l'oxydation du carbone	Toxique et dangereux pour la couche d'ozone
	COV	Produit d'une combustion incomplète lors de l'oxydation du carbone	Toxiques et gaz à effet de serre
	NO _x	Oxydation de l'azote contenu dans le combustible	Toxiques, gaz à effet de serre et pluies acides
	SO _x	Oxydation du soufre contenu dans le combustible	Toxiques, gaz à effet de serre et pluies acides
	HCl	Présence faible dans le combustible	Toxique, pluies acides et corrosif
Mixte gazeux et particulaire	HAP	Produit durant le cycle d'oxydation du carbone en CO ₂ et goudrons pendant l'étape de pyrolyse	Toxique, gaz à effet de serre et corrosif
	Particules	Envolées de cendres, de combustible, de charbon	Toxique
		Produites pendant la combustion par nucléation et condensation dans les fumées (métaux, K, Na, Cl, S, goudrons)	
Dioxines/Furanes	Produits par synthèse de novo à partir de structures macromoléculaires (cendres, suies,...) ou par synthèse à partir de précurseurs organiques chlorés	Toxique et gaz à effet de serre	

Tableau 1-3 : Présentation des polluants émis par la combustion [21] [22] [23] [24] [25]

Ces émissions polluantes sont donc liées à deux causes majeures :

- une combustion incomplète ;
- la composition même du bois.

1.2.2.1 Le monoxyde de carbone (CO)

Le CO est l'un des principaux produits d'une combustion incomplète, c'est la raison pour laquelle il est utilisé comme un indicateur de la qualité de la combustion. Suivre les émissions de CO permet aussi de caractériser l'avancement d'une combustion (dans le cas d'un appareil de chauffage utilisant du bois bûches) [26]. Durant l'allumage, le combustible est peu à peu mis dans des conditions idéales avant la combustion homogène. Ainsi, les émissions de CO vont être plus élevées durant l'allumage, puis diminuent et se stabilisent pendant la combustion homogène. Une fois la combustion hétérogène démarrée, les émissions de CO vont augmenter lentement jusqu'à l'extinction du feu. La Figure 1-16 présente une courbe type d'évolution des émissions de CO durant les différentes étapes de combustion.

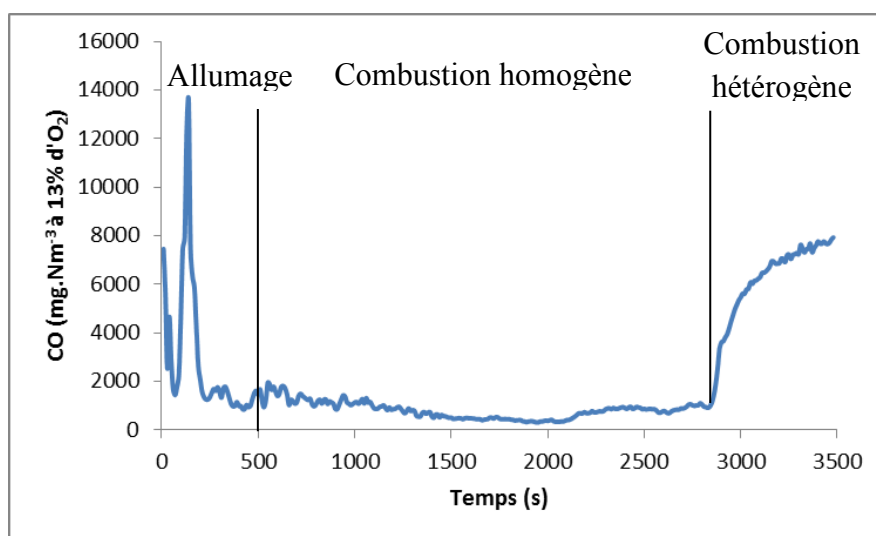


Figure 1-16 : Courbe d'évolution des émissions de CO durant la combustion d'une bûche de hêtre dans un foyer fermé de petite puissance (9kW)

Les émissions peuvent varier jusqu'à un facteur 50 selon le type d'appareil et un facteur 20 selon la puissance [27]. La température au sein du foyer et l'excès d'air sont des paramètres très influents. La Figure 1-17 présente l'évolution des émissions de CO selon ces deux facteurs dans des chaudières.

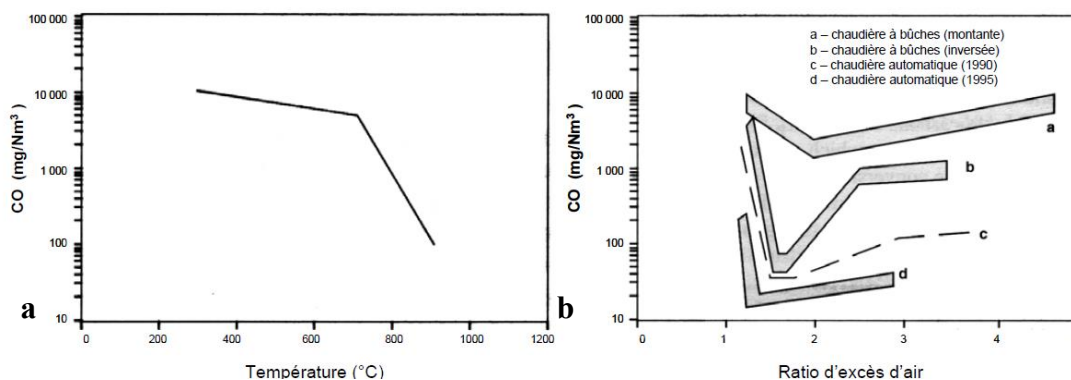


Figure 1-17 : Evolution des émissions de CO selon la température (a) et selon l'excès d'air (b), [28]

Bien entendu, les valeurs sont différentes d'un appareil à un autre, en revanche, les tendances restent les mêmes. Quoiqu'il en soit, les émissions de CO commencent véritablement à chuter à partir d'une température supérieure à 700°C. L'excès d'air qui semble idéal (dans les chaudières) semble être compris entre 1,3 et 2.

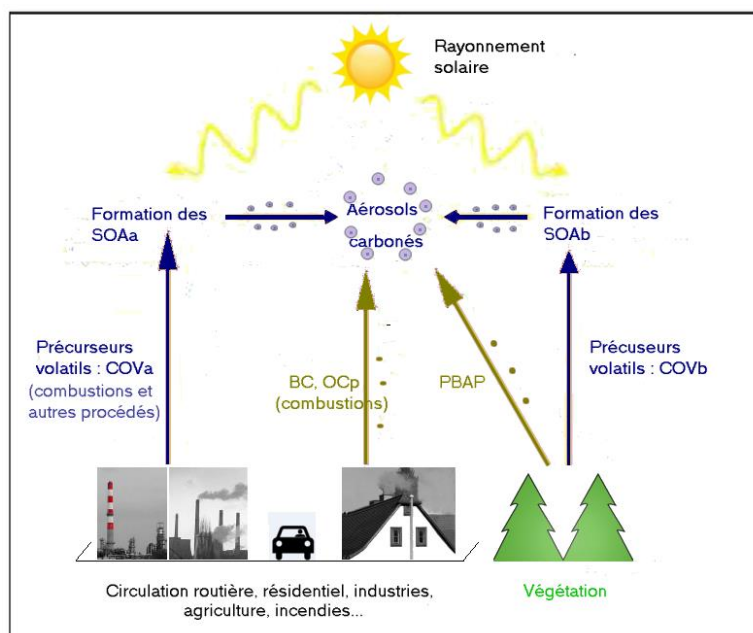
1.2.2.2 Les composés organiques volatils (COV) et les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)

Le terme COV regroupe trois types de polluants :

- les composés organiques semi-volatils (SVOC, point d'ébullition >250°C) ;
- les composés organiques volatils (VOC, point d'ébullition 100-250°C) ;
- les composés organiques très volatils (VVOC, point d'ébullition <100°C).

La somme de ces trois types (SVOC, VOC et VVOC) forme les Composés Organiques Volatils Totaux (TVOC). Ces composés sont à l'origine d'une fraction des particules présentes dans l'atmosphère. En effet, lorsque les COV sont émis vers l'atmosphère, ils subissent des transformations pour devenir en partie des Aérosols Organique Primaires (POA) et Aérosols Organique Secondaires (SOA) particulaires (solides et/ou liquides) ou gazeux. Les COVT sont souvent confondus avec les Composés Organiques Gazeux (OGC). Les OGC sont en fait composés de Composés Organiques Condensables (COC), des SOA et des gaz types CH₄. La Figure 1-18 résume cette évolution dans l'atmosphère des COV, qui peuvent être émis par différentes sources :

- activité anthropique : combustion et autres procédés (SOAa, COVa);
- activité biogénique : émission de COV par les végétaux (SOAb, COVb).



PBAP : Aérosols Primaires Biogéniques

Figure 1-18 : Evolution et modification des COV dans l'atmosphère [29]

Cette partie se limitera à la description et l'analyse des mécanismes de formation des COV émis par la combustion de bois, même si comme décrit dans un chapitre précédent, ses

émissions sont plutôt faibles. La transformation des COV en SOA particulières dans l'atmosphère justifie l'intérêt porté au suivi des émissions de COV mais ne sera pas décrite dans ce rapport. Dans le cas des COV émis par la combustion du bois, leur formation provient d'une oxydation incomplète des gaz de pyrolyse émis par le bois. En effet, la pyrolyse produit des radicaux hydrocarbonés de type CH_a (avec 0 < a ≤ 4). Ces radicaux vont ensuite se combiner et/ou s'oxyder partiellement. L'Équation 1-2 présente un exemple de production de méthane par des réactions radicalaires. Ce méthane formé est ensuite de nouveau plus stable, même s'il peut être oxydé en fonction des conditions environnantes.



Équation 1-2 : Equation de la production de méthane lors de la combustion de biomasse

Ce type de mécanisme conduit ainsi à des émissions de COV. Mais, ces radicaux peuvent aussi former des particules de suies, de l'Acétylène et du Benzène, toujours par une sous-oxydation de ces gaz. Deux molécules d'Acétylène peuvent aussi réagir entre elles et former du Benzène. Le Benzène est le précurseur de la formation de HAP (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques) qui sont également des COV, bien que souvent traités séparément à cause de leurs effets et comportements différents sur la santé et l'environnement.

Deux mécanismes principaux régissent la formation de HAP [30] selon le niveau de température. A basse température, le mécanisme de Bittner-Howard, présenté en Figure 1-19 sera prépondérant. Ce mécanisme consiste en un départ d'un atome d'Hydrogène remplacé par une molécule d'Acétylène (C₂H₂), puis la réaction d'une deuxième molécule d'Acétylène avec la première, et finalement la fermeture du cycle (l'atome d'Hydrogène supplémentaire se sépare du cycle après fermeture du cycle). A température élevée, le mécanisme Frenklach, présenté sur la Figure 1-20, sera prépondérant, c'est-à-dire le départ d'un atome d'Hydrogène qui va être remplacé par une molécule d'Acétylène (C₂H₂), puis le départ d'un deuxième atome d'Hydrogène remplacé par une deuxième molécule d'Acétylène, qui va pouvoir réagir avec la première et fermer le cycle.

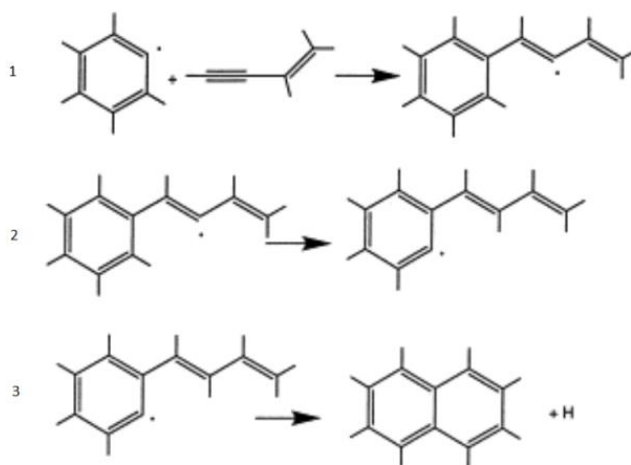


Figure 1-19 : Mécanisme de Bittner-Howard [30]

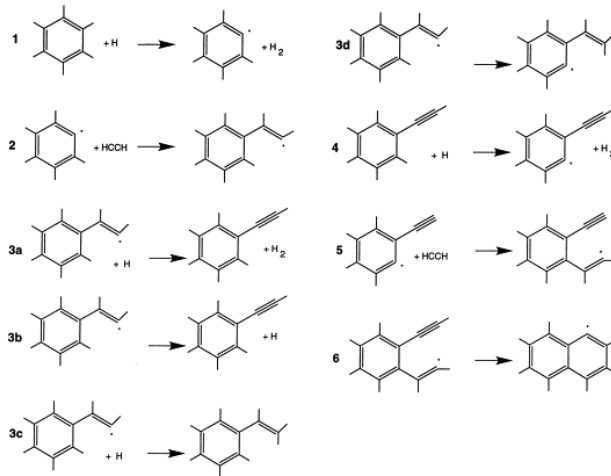


Figure 1-20 : Mécanismes de formation de Frenklach [30]

Pour des températures relativement basses (400 à 650°C), les HAP peuvent être obtenus par un autre processus : la carbonisation. En effet, le résidu carbonneux va subir des réactions chimiques et des réarrangements, comme la déshydratation, la décarbonylation, la déshydrogénation, la décarboxylation et des « cross-linking ». Ces réactions vont donner des structures aromatiques polycycliques et des condensés [31]. La Figure 1-21 schématise les différents processus de formation des Composés Aromatiques Polycycliques (dont les HAP font partie).

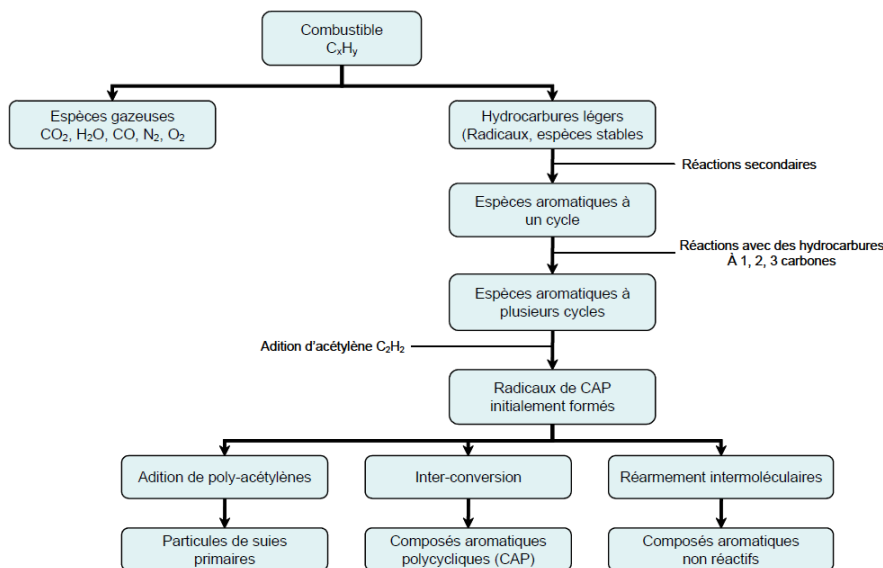


Figure 1-21 : Schéma global des mécanismes de formations des Composés Aromatiques Polycycliques [32]

L'essence du combustible influence également sur la quantité de HAP émis. Il apparaît dans la littérature que les résineux génèrent moins d'émissions de HAP que les feuillus [33]. Le type d'appareils semble aussi jouer un rôle. En 2000, les foyers étaient environ deux fois moins polluants que les inserts et les poêles [34]. Avec les évolutions des technologies, cet écart tend maintenant vers zéro. La répartition air primaire/air secondaire affecte la température du foyer

en certains points, et donc le temps de séjour des gaz dans des zones froides. La Figure 1-22 présente l'influence du débit d'air secondaire sur des émissions de HAP.

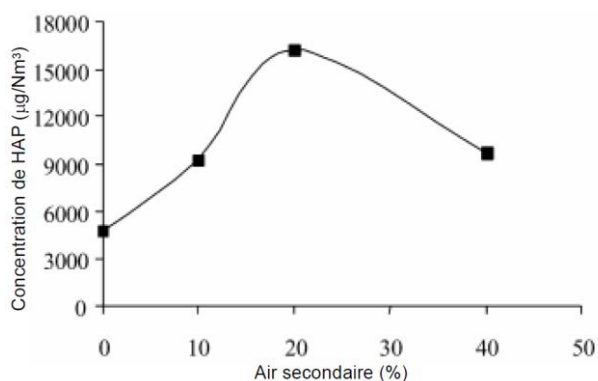


Figure 1-22 : Influence de l'air secondaire sur les émissions de HAP [35]

Les émissions de COV sont donc, comme le CO, un bon traceur de la qualité de la combustion. Trois paramètres principaux peuvent influencer la formation de COV :

- la température ;
- le facteur d'air ;
- la nature du combustible.

Une température élevée facilite l'oxydation des hydrocarbures et va donc réduire les émissions de COV. De même, un facteur d'air élevé implique un taux de Dioxygène élevé à proximité des molécules d'hydrocarbures et va donc favoriser les rencontres entre les COV et l'Oxygène pour finalement produire du CO₂ et de l'eau (H₂O).

La nature du combustible joue également un rôle très important sur les émissions de COV. En effet, selon l'essence du combustible, et avant même la combustion de ce dernier, les émissions de COV sont extrêmement variables. Elles peuvent avoisiner zéro dans le cas des pruniers par exemple, alors qu'avec un peuplier 100 $\mu\text{g}(\text{gh})^{-1}$ peuvent être atteints (microgramme de COV par heure et par gramme de combustible) [36]. Bien entendu, ces émissions de COV ne sont pas comparables à celles après combustion qui sont beaucoup plus faibles, mais cela met en évidence l'importance de l'essence du combustible. Cela s'explique par la quantité d'extractibles contenus dans le bois, mais aussi la nature même de ces extractibles qui sont très variables d'une essence à l'autre. La présence ou non d'écorces, ainsi que son épaisseur joue sans doute un rôle. Dans le cas d'une combustion, le type d'appareil combiné à l'essence du combustible représente un facteur très influent. En effet, la combustion de feuillus ou de résineux va changer la composition des COV émis, et le type d'appareil va modifier la quantité émise [37].

L'humidité du combustible a un impact quasi-nul sur la quantité de COV émis. En effet, d'un côté, une forte humidité abaisse significativement la température et favorise la production de COV. Dans le même temps, elle implique une forte concentration en vapeur d'eau dans la chambre de combustion, ce qui va abaisser la pression partielle des réactifs et donc en favoriser l'oxydation [35]. De plus, la vapeur d'eau participe de façon très efficace à

l'oxydation des hydrocarbures car sa dissociation conduit à la production de radicaux O et OH très réactifs pour oxyder ces hydrocarbures.

Ainsi, les paramètres idéaux pour éviter la production de COV sont une température élevée et un facteur d'air plutôt élevé avec un bon mélange de l'ensemble des gaz. On retrouve ici le principe même d'une bonne combustion avec le respect notamment de la règle des « 4T » (Température, Teneur en Dioxygène, Temps de séjour et Turbulence).

La Figure 1-23 montre qu'un poêle (quel que soit le combustible) produit principalement des alcools alors qu'un foyer fermé à bûches favorisera la formation d'alcane.

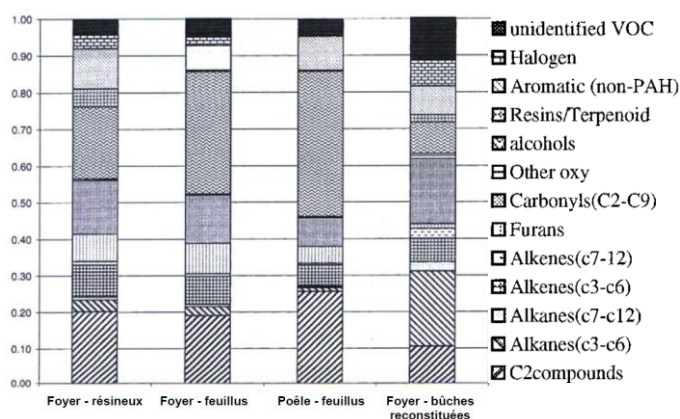


Figure 1-23 : Variation de la composition des COV selon deux types d'appareils et trois combustibles différents [34]

Les résultats de cette étude sont obtenus sur des appareils américains des années 2000 dont l'ingénierie et la conception sont complètement différentes des appareils européens. Il ne serait donc pas étonnant d'avoir des résultats qui diffèrent si l'étude était réalisée avec des poêles européens.

1.2.2.3 Les oxydes d'Azote (NOx)

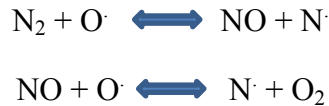
Le terme NOx regroupe deux produits :

- le monoxyde d'Azote (NO) ;
- le dioxyde d'Azote (NO₂).

Remarquons que la majeure partie des oxydes d'azote formés durant la combustion, à partir du bois ou d'un autre combustible, sont émis sous la forme de monoxyde d'Azote. Notons également que du point de vue réglementaire, les émissions de NO et de NO₂ sont suivies. Celles de N₂O ne sont pas mesurées et pas comptabilisées dans les NOx alors que pour certains appareils (lit fluidisés notamment), leurs émissions peuvent être importantes. Trois mécanismes différents coexistent pour former les oxydes d'Azote :

- mécanisme du NO thermique : lié à la température ;
- mécanisme du NO précoce : lié à des réactions entre le Diazote de l'air et des radicaux du combustible ;
- mécanisme du NO combustible : lié à l'oxydation de l'Azote contenu dans le combustible.

Le mécanisme du NO thermique a été proposé en 1946 par Zeldovitch [38]. Il s'agit de la dissociation du Diazote présent dans l'air, qui sous l'effet d'une température élevée se scinde en deux atomes d'Azote qui vont réagir avec l'Oxygène de l'air pour former du NO. Les deux réactions principales sont décrites dans l'Équation 1-3.



Équation 1-3 : Réactions principales de formation de NO thermique [38]

S'ajoute à ces deux réactions un troisième équilibre présenté en Équation 1-4.



Équation 1-4 : Troisième équilibre du mécanisme de Zeldovitch élargi

L'énergie nécessaire pour que ce type de réaction se produise est très importante, ce qui implique dans le cas d'une combustion une température très importante dans le foyer. La formation de NO selon ce mécanisme est influencée par trois phénomènes [39] :

- le temps de séjour dans des zones chaudes : plus il est élevé, plus l'énergie apportée est importante, ce qui conduit à l'augmentation de la production de NO ;
- la température locale de la flamme : la production de NO est directement liée à cette température et débute à partir de 1000°C environ même si elle devient importante seulement à partir de 1300°C ;
- la teneur en Dioxygène du milieu qui favorise également la formation de NO.

L'impact de la température et du temps de séjour (en abscisse) sur la formation de NO thermique est présenté en Figure 1-24. Ainsi, une température élevée et un temps de séjour élevé faciliteront la production de NOx.

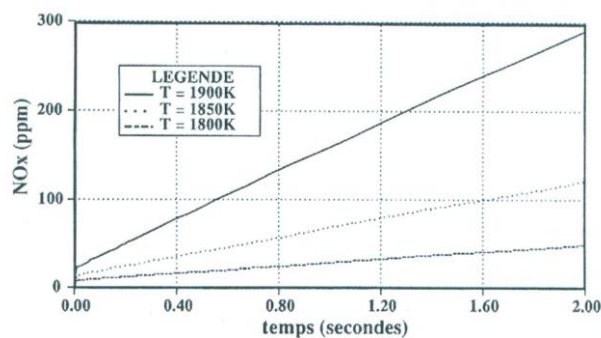


Figure 1-24 : Effets de la température et du temps de séjour sur la formation de NOx thermique [40]

L'excès d'air lambda du milieu joue également un rôle primordial. En effet, une forte concentration d'O₂ augmente la probabilité de rencontre entre un atome d'Azote (N) et un atome d'Oxygène (O) et favorise donc la formation de NO. La Figure 1-25 présente cet impact.

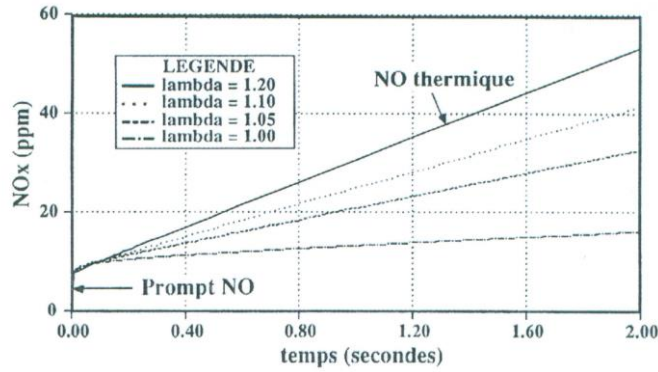


Figure 1-25 : Effets de l'excès d'air et du temps de séjour sur la formation de NOx thermique [40]

En revanche, un excès d'air important implique une diminution de la température du foyer. L'effet conjoint de la température et de l'excès d'air sur la formation de NOx présente donc naturellement un maximum d'émissions. La Figure 1-26 illustre ce phénomène dans un foyer fixe de combustion.

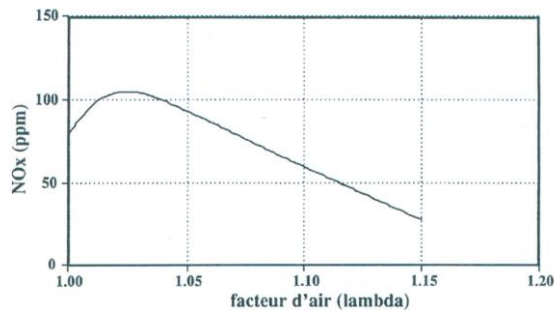
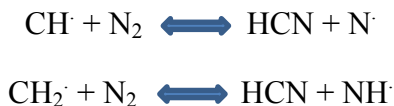


Figure 1-26 : Effet de l'excès d'air à une température fixe sur la formation de NOx thermique [40]

Comme le montre ces résultats, le NO thermique nécessite des niveaux de températures élevés (plus de 1300°C) qui ne sont jamais atteints dans le cas d'un chauffage domestique au bois. Ce mécanisme ne peut donc pas être à l'origine de la formation de NO lors de la combustion de bois dans les appareils indépendants, ou alors dans des proportions extrêmement faibles.

Le prompt NO se forme quant à lui dans le front de flamme. Le Diazote moléculaire réagit avec les radicaux hydrocarbonés pour former des cyanures et des amines. L'Équation 1-5 présente deux équilibres régissant cette réaction [41].



Équation 1-5 : Formation précoce de cyanures et d'amines dans la flamme de pré-mélange [41]

Les molécules produites par l'Équation 1-5 sont instables et vont donc être oxydées par un atome d'Oxygène ou avec des radicaux oxygénés. C'est à cette étape que le NO est formé. L'Équation 1-6 décrit les équilibres de formation/destruction du prompt NO.

Ainsi, les NOx produits dans les appareils domestiques de chauffage au bois ne sont issus que d'un seul mécanisme : le NO combustible. La production de NO combustible peut être évaluée via l'équation de De Soete [45], présentée en Équation 1-7. Les trois paramètres qui influent principalement sur la production de NOx selon ce mécanisme sont :

- la teneur en Azote du combustible.
- la température ;
- le taux de Dioxygène.

$$\mu = \frac{\sqrt{\frac{k_{A0} X_{O_2}^b e^{\frac{\theta_A}{T}}}{k_{B0} X_{NO}^b e^{\frac{\theta_B}{T}}}}}{\sqrt{\frac{k_{A0} X_{O_2}^b e^{\frac{\theta_B - \theta_A}{T}}}{k_{B0} X_{NO}^b}}}$$

Avec :

- μ : Rendement en NO du combustible ;
- k : Facteurs pré-exponentiels des réactions A et B ;
- X : Fraction molaire des produits désignés ;
- θ : Températures d'activation ;
- T : Température du milieu.

Équation 1-7 : Equation de production de NO combustible [45]

En effet, si le combustible ne contient pas d'Azote, aucune formation n'aura lieu suivant ce mécanisme, et comme toute réaction chimique d'oxydation, son taux de production sera favorisé par la température du milieu mais surtout par la teneur en Dioxygène (fonction croissante). Ainsi, pour un combustible connu, les paramètres idéaux pour limiter la formation de NOx sont une température relativement basse et un facteur d'air plutôt faible, soit le strict opposé de ce qui est demandé pour limiter les formations d'imbrûlés comme le CO ou les COV. Il apparaît donc clairement difficile de réduire dans le même temps les émissions d'imbrûlés et celles de NOx.

Des techniques primaires de combustion ont cependant été développées depuis les années 80 pour apporter des remèdes possibles à ces difficultés. Il s'agit notamment de développer des techniques d'étagement de l'injection de l'air ou du combustible, ou de mettre en place des techniques de recirculation des fumées. Les objectifs principaux de ces deux grandes techniques consistent d'une part à abaisser la teneur locale en Dioxygène et d'autre part à faire circuler le NO déjà formé dans des zones réductrices pour lui car elles contiennent des radicaux, notamment azotés qui vont permettre de former du N₂ et donc de limiter les émissions de NOx. Ces techniques sont cependant difficiles à mettre en œuvre dans des appareils de petite taille car elles demandent des moyens de régulation spécifiques.

1.2.2.4 Les particules

Les particules fines font partie des polluants émis par la combustion du bois. A l'heure actuelle, ce polluant attire l'attention des autorités et des organismes traitant de la qualité de l'air. Il y a en effet des taux très élevés de ce polluant dans l'air. Les pays européens ont tous conscience des dangers de ce polluant. Des méthodes de mesures ont ainsi été développées de manière indépendante pour évaluer leurs propres émissions. Ces mesures permettent de calculer un facteur d'émissions. Celui-ci, exprimé généralement en mg.Nm⁻³ ou mg.MJ⁻¹, permet de déterminer la quantité de polluants émis par les différents secteurs, dont le parc

d'appareils de chauffage domestique au bois. Ces calculs sont réalisés sur des bases statistiques, avec des estimations sur le parc et des hypothèses sur les utilisations.

De plus, les méthodes diffèrent d'un pays à l'autre. Toutes ces méthodes seront décrites dans une partie spécifique (1.3.4). Les valeurs des facteurs d'émissions du chauffage domestique au bois ne sont donc pas comparables entre les différents pays. La Figure 1-29 présente ces facteurs d'émissions dans sept pays. Pour l'Allemagne, la Suède, la Suisse et l'Angleterre, les prélèvements sont réalisés sur filtre chaud (SP, la température de prélèvement varie). Pour la Finlande et la Norvège, la méthode du tunnel à dilution (DT) est appliquée.

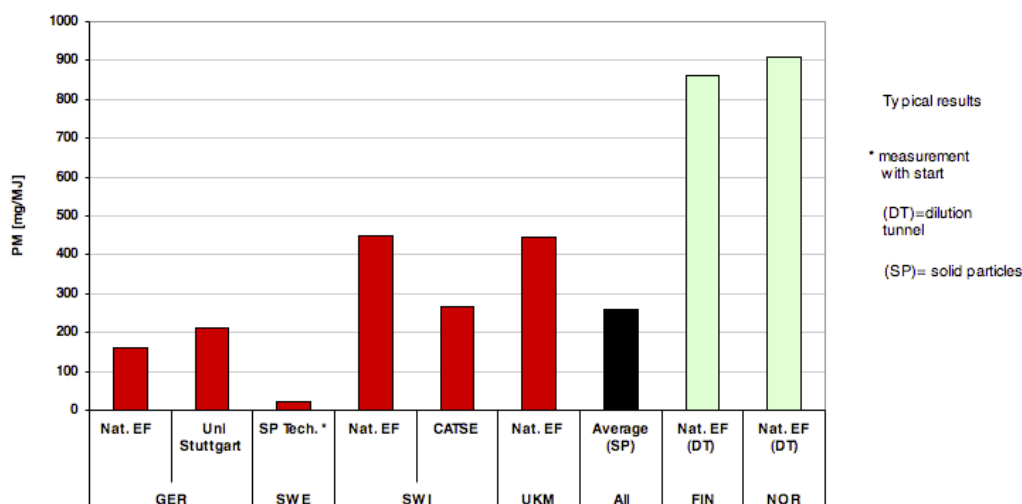


Figure 1-29 : Facteurs d'émissions pour le bois selon les pays (d'après [46])

Les écarts sont très importants et influent sur les bilans nationaux. A titre d'exemple, alors que leur parc d'appareils est semblable, la Suède donne un facteur d'émissions de particules pour le bois énergie de 10 mg.MJ^{-1} et la Norvège de plus de 900 mg.MJ^{-1} , soit un rapport de 90 entre les deux valeurs. Afin de mieux comprendre l'origine et les conséquences de ces disparités, la partie 1.3 traite spécialement du sujet des particules.

1.2.3 Les normes et les labels

1.2.3.1 Les normes

Les parties précédentes prouvent la nécessité de contrôler et de réglementer les émissions de polluants, d'autant plus qu'il est globalement admis que ce type d'énergie va croître dans les années futures.

Les anciens appareils de chauffage domestique au bois sont beaucoup plus polluants que les actuels [47]. En effet, la technologie et les normes ont évolué de manière conjointe, amenant des appareils de qualité croissante sur le marché. L'évolution des appareils est parfaitement reliée à l'évolution des normes et des labels. Ainsi, les émissions liées au bois énergie ont été réglementées dans le monde entier. Le Tableau 1-4 présente une synthèse des normes en vigueur en France.

Appareil	NF EN	Classe	Rendement	CO (à 13% d'O ₂)	OGC (à 13% d'O ₂)	TSP (à 13% d'O ₂)
Foyers & Inserts	13 229	1	>70%	<0,3%	-	-
		2	<70% & >60%	>0,3% & <1%	-	-
Poêles à Bûches	13 240	1	>70%	<0,3%	-	-
		2	<70% & >60%	>0,3% & <1%	-	-
Poêles à Granulés	14 785	-	>75%	<0,04%	-	-
Poêles de masse	15 250 (et pr 15 250)	-	>70%	<0,3% (<0,2% dans le pr)	-	-
Foyers, Inserts et Poêles à bûches	pr 16 510	Norme qui remplacera toutes les précédentes, introduisant une méthode de mesure commune pour tous les pays de l'Union Européenne et prenant en compte les émissions d'OGC et de TSP				

Tableau 1-4 : Synthèse des normes applicables en France [48] [49] [50] [51] [52] [53] [54] [55] [56]

Une grande quantité de normes régule les émissions et le rendement des appareils en France. Ces normes sont spécifiques à chaque appareil et à chaque type de combustible. Les émissions de TSP (Particules Totales en Suspension) et d'OGC ne seront limitées qu'une fois le projet de norme Pr EN 16510 amendé.

1.2.3.2 Les labels

En plus des normes, des labels sont nés dans l'Union Européenne. Il existe des labels relatifs à la qualité du combustible et d'autres relatifs à la qualité de l'appareil. Ces derniers sont en avance sur les normes, et prouvent aux consommateurs que l'appareil labellisé possède un rendement élevé et émet peu de polluants. Le Tableau 1-5 présente une synthèse des différents labels de ce type en Europe.

Pays	Labels Existant	Rendement (%)	CO (en % à 13% d'O ₂)	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	Nox (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	CnHm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)
France	Flamme Verte 5 étoiles	70*	0.3*	90*	Pris en compte à partir de 2018	
	Flamme Verte 6 étoiles	75*	0.15*	50*		
	Flamme Verte 7 étoiles	75*	0.12*	40*		
Allemagne	Din + (Munich Regensburg)	Poêle: 73	0.1	40	200	120
		Insert: 75	0.1	40	200	120
Suisse	Energie Bois Suisse	78	0.12	75	/	/
Autriche	/	78	0.13	88	221	109
Suède	Nordic Swan	73	0.2	Poêle: 10g.kg ⁻¹	/	150
		73	0.2	Insert: 15g.kg ⁻¹	/	150

*: Valeurs limites d'émissions pour des appareils de chauffage domestiques aux bûches

Tableau 1-5 : Synthèse non exhaustive des labels de différents pays européens relatifs au chauffage domestique au bois

En France, le label Flamme Verte (FV) a été créé en 2001 par l'ADEME et le SER (Syndicat des Energies Renouvelables). Le but de ce label est double :

- à court terme : permettre aux consommateurs de connaître les appareils les plus performants ;
- à long terme : amener une obligation de qualité et de performance aux constructeurs.

Ainsi le label est devenu de plus en plus rigoureux au fil des années comme le montre le Tableau 1-6.


	2001	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011 (3, 4 ou 5 étoiles)	2012 (4 ou 5 étoiles)	2015 (5 étoiles)
Rendement minimum	60%	60%	65%	65%	70%	70%	70%	Affichage des appareils obligatoires 	70%	70%	70%
Taux de CO (en % à 13% d'O2)		1%	0.8%	0.6%	0.6%	0.5%	0.3%		0.3%	0.3%	0.3%
Particules (mg/Nm3 à 13% d'O2)									125	125	125

Tableau 1-6 : Evolution des exigences du label Flamme Verte de 2001 à 2015 [57]

Depuis 2015, le classement permet de labelliser des appareils six et sept étoiles. D'ici 2018, seuls les appareils six et sept étoiles seront labellisés, et en 2020, seulement les sept étoiles.

L'évolution de ce label donne une bonne idée globale de l'évolution des émissions du parc d'appareils de chauffages indépendants. De plus, le Tableau 1-7 montre que la majorité des appareils sont certifiés « *Flamme Verte* » malgré la disparition de la classe 4. Cette disparition entraîne une légère baisse de la part des appareils certifiés vendus. En revanche, les classes six et sept étoiles sont extrêmement bien représentées.

Types d'appareils	Marché total 2015	% labellisés FV (classes 5, 6 et 7)	Dont classes 6 & 7	Évolution 2014 - 2015 du nombre de produits labellisés FV (%)
Poêles	265 619	91 %	39 %	- 3 %
Poêles à bois	164 650	91 %	36 %	- 5 %
Poêles à granulés	98 000	92 %	44 %	3 %
Poêles de masse	1 350	80 %	0 %	- 9 %
Poêles hydrauliques	1 620	78 %	27 %	- 7 %
Foyers fermés & inserts	97 950	73 %	30 %	- 23 %
Foyers fermés & inserts à bûches	92 500	72 %	29 %	- 23 %
Foyers fermés & inserts à granulés	5 450	100 %	60 %	0 %
Chaudières	11 380	57 %	46 %	- 9 %
Chaudières bois	5 900	37 %	33 %	- 4 %
Chaudières granulés	4 410	86 %	65 %	- 12 %
Chaudières bi-énergie	600	17 %	13 %	- 23 %
Chaudières plaquettes	450	49 %	49 %	- 21 %
Chaudières céréales	20	0 %	0 %	0 %
Cuisinières	4 820	50 %	25 %	- 15 %
Cuisinières simples	3 110	66 %	38 %	- 14 %
Cuisinières chaudières	1 710	14 %	0 %	- 21 %
Marché total	379 769	84 %	38 %	- 9 %

Tableau 1-7 : Part des appareils certifiés en 2015 « Flamme Verte » [15]

Pour pouvoir déterminer la classe d'un appareil, il faut suivre une procédure précise, présentée sur la Figure 1-30. La distinction entre un appareil cinq, six et sept étoiles est réalisée via des seuils d'émissions. Ainsi, pour obtenir cinq étoiles, l'appareil doit avoir un I' inférieur à 1. Pour en obtenir six ou sept, l'indice I' doit être inférieur à 1 mais les émissions de chacun des polluants doivent être sous des seuils.

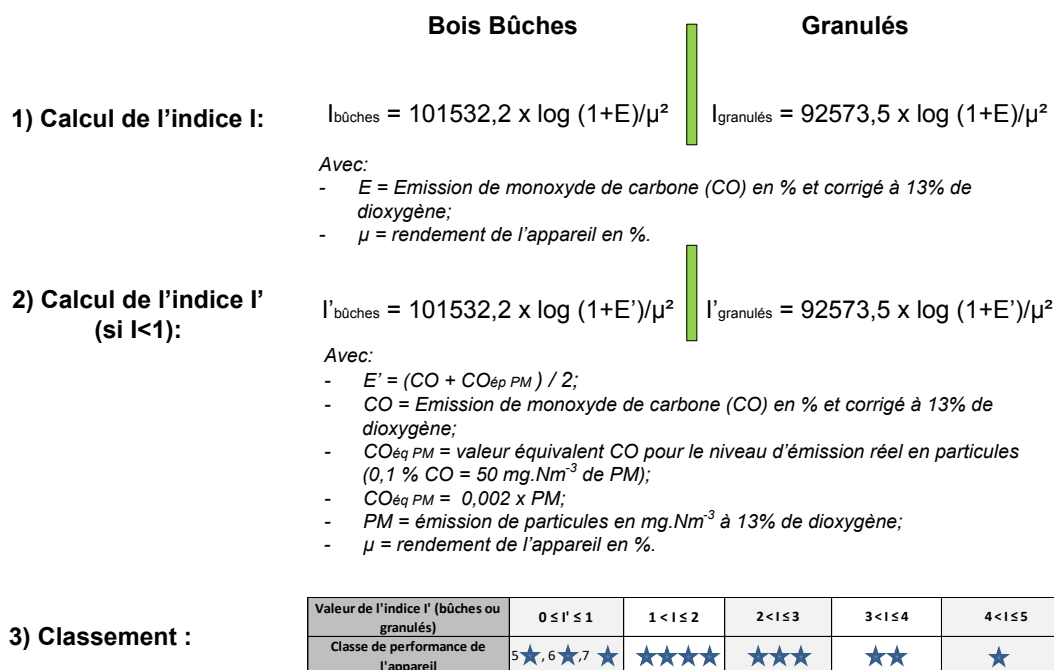


Figure 1-30 : Schématisation de la procédure de calcul du label « Flamme Verte » [58]

Actuellement, le calcul de ce label n'est réalisé en ne prenant en compte que le rendement, les émissions de CO et de TSP de l'appareil. D'ici 2018, les émissions de COV et de NOx deviendront aussi un critère d'obtention du label. Ce label permet ainsi de classer les appareils, mais aussi incite les fabricants à concevoir et construire des appareils de plus en plus performants.

1.2.3.3 Les Plans de Protection de l'Atmosphère

Toutes ces normes et tous ces labels contribuent à l'amélioration de la qualité de l'air. Pour aller plus loin, des Plans de Protection de l'Atmosphère (PPA) ont été créés dans de nombreuses régions françaises. Ces plans ont de nombreux objectifs :

- réunir les différents acteurs intéressés par la qualité de l'air ;
- surveiller la qualité de l'air de zones précises ;
- mener une réflexion collective sur l'amélioration de la qualité de l'air ;
- appliquer des mesures effectives (réduction de la vitesse des automobilistes, interdiction de certains moyens de chauffage type foyer ouvert, ...).

1.3 Les particules

Les polluants émis par la combustion du bois qui posent le plus de problème à l'heure actuel sont les particules. Cette partie a donc pour objectif de réaliser un bilan sur les connaissances autour des particules.

1.3.1 Généralités

1.3.1.1 Les appellations

Les particules sont émises dans l'atmosphère par des phénomènes naturels (soulèvements de poussière, incendie, ...), ou des phénomènes anthropiques (agriculture, transport, chauffage).

Seinfeld et Pandis [59] décrivent trois types de particules :

- le type grossier : $>1 \mu\text{m}$ venant majoritairement de processus mécaniques (soulèvements de poussières désertiques, industrielles ou volcaniques)
- le type accumulation : entre $0,1$ et $1 \mu\text{m}$ venant de coagulation du troisième type
- le type fin : $<0,1 \mu\text{m}$ formées majoritairement par nucléation.

En 2007, le GIEC (Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat, IPCC, créé en 1988 par l'Organisation Météorologique Mondiale et le Programme des Nations Unies pour l'Environnement) publie un rapport affectant des effets néfastes des particules sur la santé et l'environnement. Depuis, les particules sont plus connues sous trois appellations différentes :

- PM_{10} : Particules de diamètre aérodynamique inférieur à $10 \mu\text{m}$;
- $\text{PM}_{2,5}$: Particules de diamètre aérodynamique inférieur à $2,5 \mu\text{m}$;
- PM_1 : Particules de diamètre aérodynamique inférieur à $1 \mu\text{m}$.

Les PM_1 appartiennent donc aux $\text{PM}_{2,5}$, qui appartiennent elles-mêmes aux PM_{10} . Les TSP comprennent toutes les tailles de particules, même de diamètre supérieur à $10 \mu\text{m}$. Cette appellation est née d'une différenciation des effets des particules sur la santé selon ces trois seuils de diamètre. Une partie spécifique des effets sur la santé précisera ce point. La Figure 1-31 permet de mieux visualiser la taille des particules en les comparant à un grain de sable et à un cheveu.

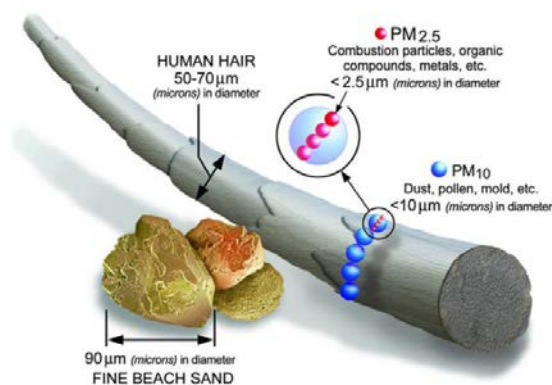


Figure 1-31 : Comparaison de la taille des particules à la taille d'un cheveu [60]

Ainsi, il faut cinq PM_{10} , ou vingt $PM_{2,5}$, et donc cinquante PM_1 pour avoir le diamètre d'un cheveu.

1.3.1.2 Les différents types de particules

De nombreuses sources d'émissions naturelles de particules existent. Leurs caractéristiques varient selon la source. Le Tableau 1-8 présente les sources naturelles d'émissions ainsi que les caractéristiques majeures associées à chaque source.

Origine	Caractéristiques	Référence
Marines (évaporation d'eau contenant des sels dans les océans)	Masse émise: $1,3 \cdot 10^9$ tonnes par an	Seinfeld [59]
	Composition: Cl: 55%; Na: 31%; Sulfates: 8%; Mg: 4%; Ca: 1%; K: 1%	
	Plus les particules sont fines, plus la fraction organique est importante	Cavalli [61]
Terrigènes (envolées de sables et de terres)	Masse émise: $1,5 \cdot 10^9$ tonnes par an	Seinfeld [59]
	Particules de grandes tailles ($>1 \mu m$)	
	Composition: Silicium, Aluminium, Fer, Calcium, Sodium, Potassium, agnèsium, ...	
Feux de forêt (combustion de biomasse conduisant à des envolées de cendres et des particules carbonées)	Masse émise: $10 \cdot 10^9$ tonnes par an (au site le plus impacté)	Seinfeld [59]
	Composition: Très variable selon le combustible (type de bois, structure, composition chimique, humidité, comportement au feu..) mais aussi selon la météorologie et la topographie	Christian [62]
		Urbanski [63]
	Masse émise: non déterminée	X
Biogéniques (spores, pollens, poussières d'abrasion des végétaux et les bactéries)	Selon la météorologie les aérosols biogéniques représentent de 2 à 50% des aérosols dans l'air d'un diamètre supérieur à $0,2 \mu m$.	Jaenicke [64] Battarbee [65]
	La majorité des aérosols biogéniques compris entre 2 et $10 \mu m$ sont des spores fongiques	Glikson [66]
Volcaniques (envolées de cendres et de divers éléments lors d'une éruption)	Masse émise: $3 \cdot 10^7$ tonnes par an	Seinfeld [59]
	Composition: particules acides, Sulfates, Ammonium, Potassium, Sodium, Cuivre, Plomb, Cadmium, Sélénium, Arsenic, Bismuth	Mather [67] Nriagu [68]

Tableau 1-8 : Caractéristiques des différentes sources d'émissions de particules primaires naturelles

Les particules d'origines naturelles ont été énormément étudiées, et le sont encore. Les connaissances sur ce domaine sont donc très importantes et ne cessent de croître.

1.3.1.3 Les effets des particules

⇒ *Sur la santé :*

Les particules fines ont un effet reconnu sur la santé humaine. Deux types d'impacts, dépendants de la durée d'exposition sont à considérer :

- court terme : augmentation de la sensibilité aux allergènes ;
- long terme : maladies respiratoires et cardiovasculaires.

Dans la littérature, il est communément admis que la toxicité des particules est d'autant plus importante que leur taille/granulométrie est fine [69]. En effet, elles vont avoir la possibilité de pénétrer plus loin dans le système respiratoire humain si elles sont de petite taille. Ainsi, les particules de diamètre supérieur à 10 μm stoppent leur progression dans le système ciliaire du nez, alors que les intermédiaires (3 à 10 μm) se déposent sur l'arbre pulmonaire (pathologies respiratoires) et les plus fines dans les alvéoles pulmonaires (pathologies cardiovasculaires puisque les alvéoles pulmonaires sont le siège de l'échange entre air inspiré et sang), comme le montre la Figure 1-32. Les particules qui pénétreraient le plus profondément dans le système respiratoire humain sont des nanoparticules (15 à 680 nm) [70].

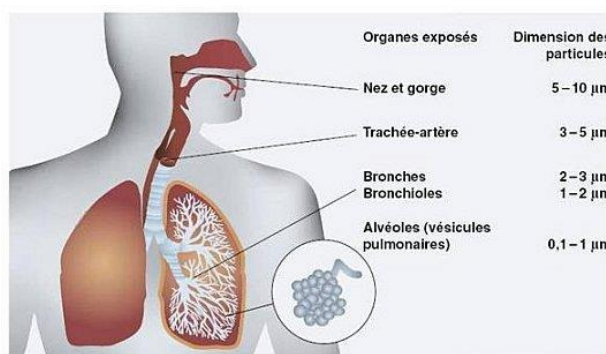


Figure 1-32 : Appareil respiratoire et pénétration des particules [71]

Il est difficile d'estimer l'impact des particules sur le nombre de cancers du poumon qui se déclarent ou sur les allergies. C'est donc par une méthode statistique que le programme CAFE [72] estime les mois de vie perdus imputables à la concentration moyenne en $\text{PM}_{2,5}$ dans l'air ambiant. La Figure 1-33 présente une cartographie des mois de vie perdus en Europe. Ainsi, 9 mois de vie en moyenne seraient perdus à cause de ces particules, la France étant située en dessous de cette moyenne.

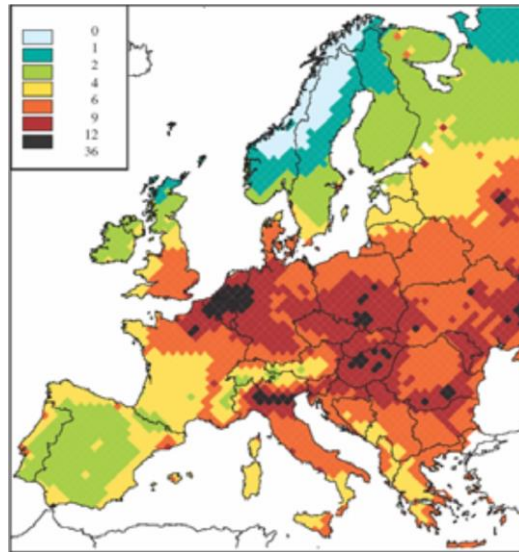


Figure 1-33 : Estimation statistique des mois de vie perdus en 2000 à cause des $PM_{2,5}$ dans l'air ambiant [72]

Si la concentration en particules du milieu augmente, la toxicité du milieu s'accroît également [73]. La Figure 1-34 présente un comparatif statistique des millions de morts prématurées dans le monde causées par des maladies (Malaria, Tuberculose et SIDA) ou induites par l'inhalation de fumées de biomasse. D'après cette même figure, l'impact des fumées de biomasse aurait une légère tendance à augmenter entre 2008 et 2030.

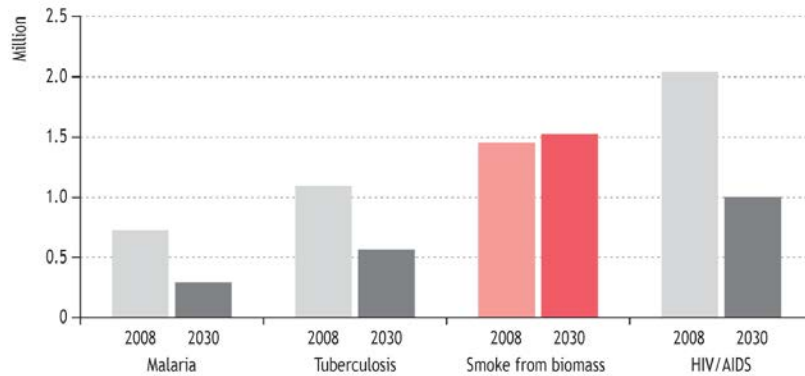


Figure 1-34 : Comparatifs des morts prématurées annuelles dues aux fumées de biomasse et celles dues à différentes maladie [74]

Il est important de préciser que les morts prématurées dues à l'inhalation de fumées de biomasse viennent des pays pauvres et en développement. Effectivement, la cuisine et le chauffage sont réalisés au bois, mais surtout dans l'habitat et sans conduit de cheminée. Les usagers respirent donc dans un environnement fortement concentré en fumées (puisque ces dernières sont directement émises dans leur pièce à vivre). Notons cependant que ces individus auraient de très graves problèmes de santé quel que soit le combustible utilisé. Ce problème n'est pas imputable au bois énergie mais à la pauvreté et au mode de fonctionnement.

La toxicité des particules est intimement liée à la combustion même. Ainsi, une mauvaise combustion produit des particules plus toxiques. La Figure 1-35 présente des résultats de cytotoxicité (toxicité pour des cellules) sur des particules de trois origines différentes :

- particules d'un poêle avec une combustion incomplète ;
- particules d'une chaudière automatique ;
- suie de Diesel.

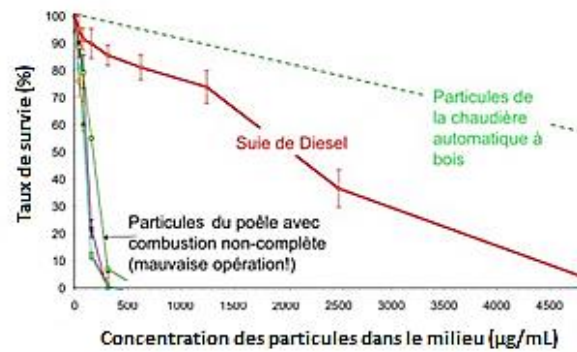


Figure 1-35 : Tests de cytotoxicité sur des particules de diesel et des particules issues de bonne et mauvaise combustion de biomasse [75]

Une mauvaise combustion produirait donc des particules plus dangereuses que celles du Diesel, alors qu'avec une combustion bien contrôlée (chaudière automatique par exemple), les particules seraient beaucoup moins toxiques. Ainsi, des particules émises par un feu extérieur (barbecue par exemple) ou dans une cuisinière sont donc plus toxiques car les appareils sont optimisés pour la cuisine et non pour la combustion.

Il découle de cette dernière observation que les types de combustibles ou de procédés doivent impacter la toxicité des particules émises. La Figure 1-36 présente un comparatif de la toxicité sur les gènes des particules émises par deux appareils de combustion au bois, une chaudière à granulés et un poêle à granulés. Les analyses ont été réalisées à quatre niveaux d'émissions. Pour les deux appareils, cette expérience confirme que la toxicité augmente dans le cas d'un milieu plus émissif. Il apparaît cependant que quel que soit le niveau d'émissions, le poêle à granulés émet des particules plus toxiques que la chaudière à granulés. Ce phénomène semble ne pas posséder d'effet de seuil puisque cela reste vrai aux quatre niveaux d'émissions.

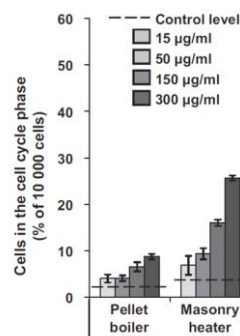


Figure 1-36 : Comparaison des effets des particules d'un poêle maçonné et d'une chaudière à granulés sur les cellules macrophages RAW264.7 [76]

Ainsi, selon le type d'appareil, les particules peuvent être plus ou moins mutagènes même si le combustible reste le même. Le Professeur Reto Gieré, parmi d'autres, a réalisé plusieurs études sur l'impact des particules sur la santé [77] [78]. Les résultats plutôt inquiétants obtenus accentuent la volonté des dirigeants de limiter les émissions particulaires. Il est communément admis que le danger est plus élevé lorsque l'air ambiant présente une forte concentration massique en particules fines. C'est la raison pour laquelle l'Union Européenne a fixé des seuils en mg.Nm^{-3} . Pourtant, la surface, les caractéristiques et la fraction organique des particules sont des facteurs très déterminants [79].

⇒ *Sur l'environnement :*

La thèse de Christine Piot [80] rappelle que les aérosols, et donc les particules, produisent deux effets principaux sur l'environnement :

- direct : correspondant au forçage radiatif par diffusion et absorption de toutes les composantes. Cela implique une diminution de l'énergie reçue sur la Terre, et donc un refroidissement de cette dernière ;
- indirect : changement de la microphysique des nuages, entraînant des pluies acides.

Le GIEC confirme dans son rapport de 2007 cet impact des aérosols dans le bilan radiatif de la Terre [81], bien qu'il ne soit pas quantifiable actuellement.

1.3.2 Contexte réglementaire

Depuis 2008, les taux de PM_{10} et de $\text{PM}_{2,5}$ dans l'atmosphère sont réglementés à l'échelle européenne. Le décret n°2010-1250 [82] définit des nouveaux termes. Voici ici trois types de valeurs définies et réglementées par ce décret :

- **objectif de qualité**, un niveau à atteindre à long terme et à maintenir, sauf lorsque cela n'est pas réalisable par des mesures proportionnées, afin d'assurer une protection efficace de la santé humaine et de l'environnement dans son ensemble ;
- **valeur limite**, un niveau à atteindre dans un délai donné et à ne pas dépasser, et fixé sur la base des connaissances scientifiques afin d'éviter, de prévenir ou de réduire les effets nocifs sur la santé humaine ou sur l'environnement dans son ensemble ;
- **valeur cible**, un niveau à atteindre, dans la mesure du possible, dans un délai donné, et fixé afin d'éviter, de prévenir ou de réduire les effets nocifs sur la santé humaine ou l'environnement dans son ensemble.

Ces trois valeurs sont fixes, seule la marge de dépassement de la valeur limite varie. Le Tableau 1-9 présente les différentes valeurs pour les $\text{PM}_{2,5}$ dans l'atmosphère au niveau européen.

PM_{2,5}	Objectif de qualité :	10 $\mu\text{g.m}^{-3}$	<i>En moyenne annuelle civile</i>				
	Valeur cible :	20 $\mu\text{g.m}^{-3}$	<i>En moyenne annuelle civile</i>				
	Valeur limite :	25 $\mu\text{g.m}^{-3}$	<i>En moyenne annuelle civile, augmentés des marges de dépassements suivantes pour les années antérieures au 1er janvier 2015</i>				
Année		2010	2011	2012	2013	2014	
Marge de dépassement en $\mu\text{g.m}^{-3}$		4	3	2	1	1	

Tableau 1-9 : Tableau récapitulatif des valeurs de la norme sur les particules [83] [84] [85]

Ce décret définit un nouveau moyen de mesure : l'Indicateur d'Exposition Moyenne (IEM). Cet indicateur correspond à une concentration moyenne sur trois années. Par exemple, l'IEM 2011 est calculé par la moyenne des concentrations annuelles de 2009, 2010 et 2011.

En 2009, la France est mise en demeure par l'Union Européenne pour non-respect des valeurs limites imposées. Le gouvernement vote alors des lois pour régulariser sa situation et ainsi en 2010 le Plan Particules via la loi Grenelle 1 est élaboré. Ce plan a deux objectifs principaux :

- réduire le niveau de fond en particules ;
- augmenter les connaissances sur les particules.

La loi Grenelle 2 suit cette première initiative avec la création des ZAPA (Zones d'Actions Prioritaires pour l'Air) et oblige les régions à réaliser un SRCAE (Schéma Régional Climat Air Energie) avant l'été 2011.

Le chauffage domestique au bois ayant été ciblé comme fortement émissif par certains instituts, il devient alors un sujet de débat intensif au sein du pays, et plus largement au sein de l'Europe.

1.3.3 Bois énergie et particules

1.3.3.1 Généralités

⇒ *Les différents types de particules liées à la combustion de biomasse :*

Il existe deux principaux types de particules [86]:

- les particules primaires : elles sont directement émises à la sortie de la chambre de combustion ;
- les particules secondaires : il s'agit de particules primaires qui ont subi des recombinaisons dans l'atmosphère.

Johansson va plus loin en décomposant les particules primaires en deux catégories [87] :

- les particules primaires venant d'une combustion incomplète : suie, particules organiques volatiles, particules carbonées de type charbon ;
- les particules primaires venant de la matière inorganique contenue dans le combustible : envolées de cendres.

Les particules primaires venant d'une combustion incomplète représentent aussi une perte de rendement de l'appareil, puisqu'il s'agit de matière organique partiellement oxydée. Elles vont être la cible d'autres molécules partiellement oxydées qui vont s'agglomérer à sa surface, et ainsi créer un ensemble stable. Il s'agit donc d'une double perte de semi-produits de combustion.

⇒ *Principe de formation des particules lors d'une combustion de biomasse :*

Les poussières de taille importante sont généralement formées par des procédés mécaniques tels que l'envol ou l'éclatement thermiques. Les aérosols ont quant à eux une origine thermique, telle que la condensation du noyau suivie d'une croissance autour de ce dernier.

La formation des particules de suies (Figure 1-37, b) est complexe et ne peut se produire que si la combustion est incomplète. La présence de suies dans les conduits est ainsi un bon indicateur de la qualité de la combustion. Cela implique la présence dans les fumées de nombreux autres polluants. La suie est chimiquement très proche du charbon. Son processus de formation demeure actuellement partiellement élucidé. La Figure 1-37 (a) décrit de manière schématique les points connus de ces mécanismes. Le combustible, soumis à une température suffisante va émettre des composés volatils. Ces produits hydrocarbonés vont être craqués en plus petites molécules. Elles vont alors réagir avec les gaz environnants ou d'autres produits hydrocarbonés. Des cercles aromatiques se créent dans cette structure, attirant des groupes alkyles. Il s'agit alors de HAP. S'en suit une agglomération à la surface de ces particules, résultant finalement une particule composée d'agglomérats de petites particules.

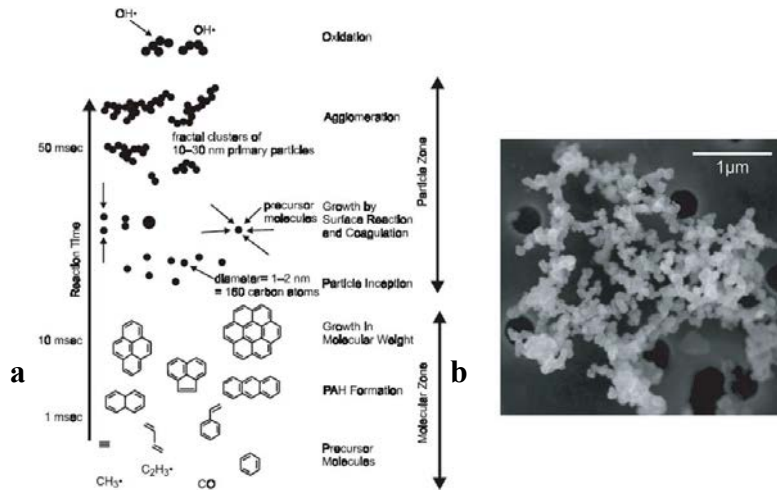


Figure 1-37 : Principe de formation des particules de suie (a, [88]) et clichés d'agglomérats de particules de suies (b, [77])

Le processus de formation des particules de cendres est mieux connu pour la combustion de charbon que pour celle de bois. Néanmoins, les mécanismes pour le charbon peuvent être appliqués en première approche. Ainsi, les particules de cendres émises par la combustion de biomasse pourraient être séparées en trois catégories [89] :

- les particules de cendres contenant des minéraux que le combustible a intégrés dans sa structure ;
- les particules de cendres contenant des minéraux étrangers aux combustibles (sables, cailloux, terre, ...) ;
- les particules de cendres contenant des minéraux qui font partie de la composition naturelle du combustible (le Calcium dans la paroi des cellules par exemple [90]).

Il y a trois mécanismes de formation pour ce genre de particules (présentées en Figure 1-38) :

- la condensation et la nucléation (hétérogène ou homogène) forment les particules submicroniques ;
- la condensation hétérogène de vapeurs inorganiques formant des particules submicroniques et des particules plus grosses ;
- la fragmentation durant la combustion du charbon (ou charbon assimilé) forme les particules plus grosses.

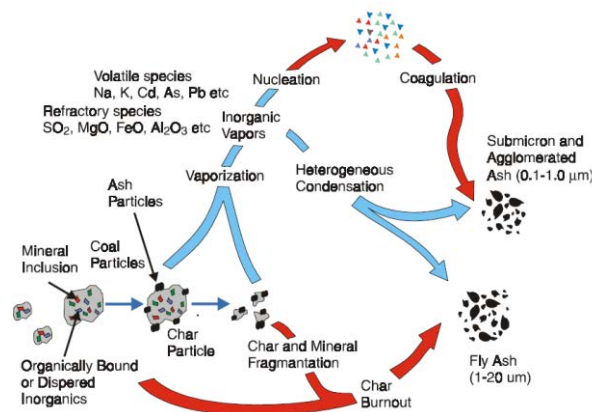


Figure 1-38 : Principe de formation des particules de cendres dans une centrale à charbon [89]

⇒ *Composition des particules :*

La composition des particules est particulièrement complexe et peut varier énormément. Une combustion idéale n'engendrerait que des émissions de particules de cendres (Potassium : 46%, Silice : 16%, Zinc : 13%, Soufre : 11%, Chlore : 9,6%, [91]). Lors d'une mauvaise combustion, les proportions de minéraux au sein des particules s'effondrent (entre 1 et 6% seulement). L'élément majoritaire devient le Carbone (à environ 70%). Les minéraux forment des sels (sulfates et chlorures de Potassium) dans les particules et ne sont que très rarement présents sous forme cristalline. La Figure 1-39 présente deux exemples de compositions chimiques de particules et met en évidence la présence de minéraux sous forme de sels.

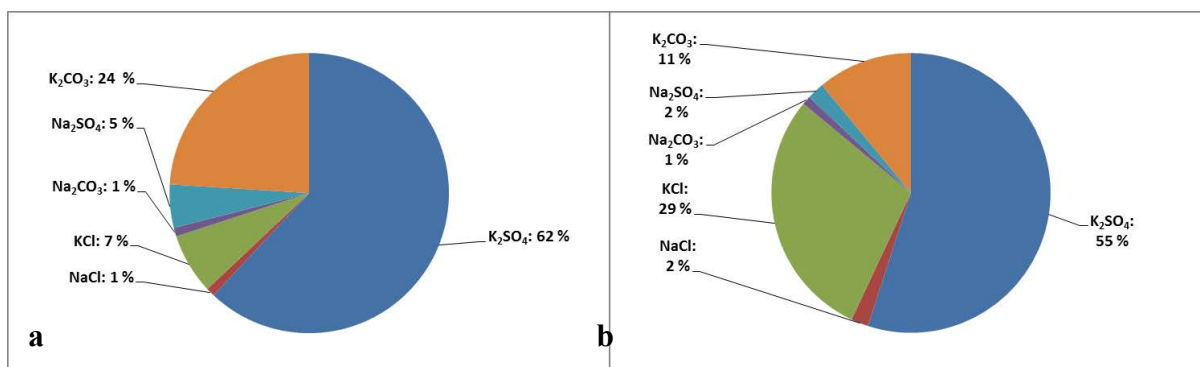


Figure 1-39 : Compositions minérales de particules émises par un poêle à granulés de diamètre moyen 0,13 µm (a) et 0,32 µm (b) [87]

Au sein d'une particule, deux types majoritaires de Carbone sont présents :

- Carbone Organique (OC) : Carbone amorphe ;
- Carbone Élémentaire (EC) : Carbone non-amorphe (aussi appelé Black Carbon ou Carbone fixe).

Il est nécessaire de bien différencier ces deux types de Carbone car ils semblent avoir des effets différents sur la santé [92]. L'OC aurait la possibilité de transporter davantage de polluants dans les poumons (de par sa facilité à créer des liaisons).

Des métaux peuvent également être présents dans ces particules. Ces métaux peuvent provenir de quatre origines principales:

- partie intégrante du combustible ;
- partie dépendante de la nature du sol où la croissance du combustible a eu lieu (si le sol est riche en Fer par exemple) ;
- partie étrangère au combustible souillé (sables, terres...) ;
- des matériaux constituant l'appareil de chauffage.

Il est donc normal d'avoir des traces d'une grande variété de métaux au sein de particules. Finalement, la part majoritaire de métaux se trouve dans les envolées de cendres. Le Fer est l'élément métallique le plus présent. Bien entendu, selon l'essence du combustible, les proportions peuvent varier. Le Tableau 1-10 prouve cette variabilité.

Essence de combustible	Feuillus				Résineux			
	Erable Rouge	Chêne Rouge	Bouleau	Moyenne	Pin Blanc	Sapin Ciguë	Sapin Baumier	Moyenne
Particules (g.kg ⁻¹)	3.3	5.7	2.7	3.9	11.4	3.7	4.8	6.6
OC (% des particules)	85.5	87.5	86.8	86.6	73.4	102.3*	106.3*	94
EC (% des particules)	6.7	3.8	22	10.8	31.3	5.4	7	14.6
OC/EC	12.8	23.0	3.9	13.2	2.3	18.9	15.2	12.2
Chloride (% des particules)	0.63	0.4	0.65	0.56	0.13	0.39	0.48	0.33
Nitrate (% des particules)	0.6	0.4	0.28	0.43	0.17	0.38	0.4	0.32
Sulfates (% des particules)	0.31	0.42	1.68	0.80	0.13	0.33	0.3	0.25
Ammonium (% des particules)	0.12	0.06	0.21	0.13	0.03	0.04	0.03	0.03
Silice (% des particules)	0.041	0.009	0.137	0.062	0.178	0.029	0.029	0.079
Souffre (% des particules)	0.127	0.129	0.197	0.151	0.08	0.115	0.13	0.108
Chlorine (% des particules)	0.674	0.357	0.784	0.605	0.145	0.381	0.488	0.338
Potassium (% des particules)	1.235	1.001	0.976	1.071	0.439	1.324	1.48	1.081
Zinc (% des particules)	0.039	0.012	0.491	0.181	0.021	0.012	0.073	0.035
Calcium (% des particules)	0.02	0.02	0.02	0.02	0.011	0.021	0.024	0.019
Bromine (% des particules)	0.004	0.005	0.006	0.005	0.001	0.002	0.002	0.002
Rubidium (% des particules)	0.006	0.005	0.006	0.006	0.002	0.002	0.008	0.004
Plomb (% des particules)	0.005	0.003	0.014	0.007	0.002	0.004	0.004	0.003

* : certains pourcentages sont supérieurs à 100%. Cela serait dû à l'adsorption de gaz sur les filtres de quartz durant le prélèvement. La valeur est donc faussée, mais la tendance reste vraie.

Tableau 1-10 : Résultats des analyses chimiques de particules émises d'un appareil américain pour six combustibles différents [93]

Ainsi, les particules émises par la combustion de feuillus contiendraient deux fois plus de Chlore et six fois plus de Zinc que celles émises par la combustion de résineux. A l'inverse, les particules émises par la combustion de résineux seraient plus riches en Silice. La méthode de prélèvement ayant permis d'obtenir ces résultats est la suivante :

- prélèvement des fumées à environ 4 m du foyer ;
- dilution avec un ratio minimum de 30 ;
- prélèvement sur filtre quartz après passage dans un lit de charbon actif ;
- filtre à température ambiante.

Les valeurs de ce tableau ne peuvent donc être comparées qu'entre elles à moins d'appliquer exactement le même protocole de prélèvement. En effet, la composition des particules est très affectées par :

- les niveaux de températures auxquels elles sont prélevées ;
- la composition de l'effluent dans lequel elles évoluent (dilution) ;
- la hauteur de prélèvement.

Quoiqu'il en soit, les tendances et les variations restent valables. Toutes les valeurs sont exprimées en pourcentage massique sur la globalité des particules émises.

⇒ *Physique des particules* :

La caractérisation physique des particules (géométrie, taille et aspect) est un point aussi très important. Ainsi, ML. Rabot-Querci [37] montre dans sa thèse qu'il existe différentes géométries et tailles de particules. La Figure 1-40 montre qu'un foyer fermé produit trois types de particules : des morceaux de bois, des agglomérats et des liquides condensés.

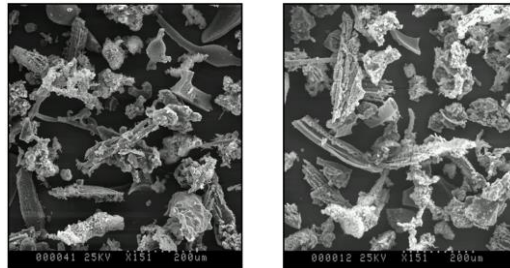


Figure 1-40 : Echantillons de particules provenant d'un foyer fermé (x151) [37]

Les morceaux de bois peuvent être plus ou moins dégradés. La Figure 1-41 montre trois différents types de particules.

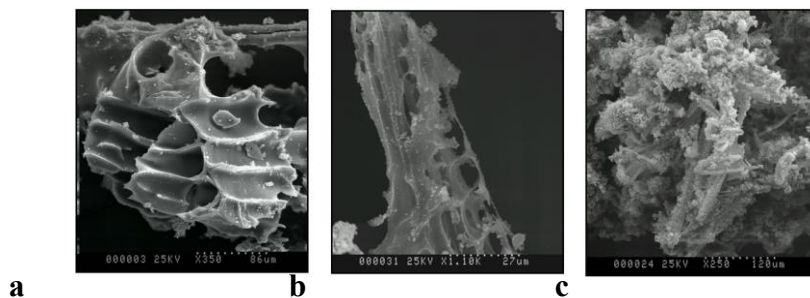


Figure 1-41 : Morceaux de bois non dégradé (a, x350), Squelette de bois ou morceaux de bois partiellement dégradé (b, x1100), Agglomérations de particules fines et de morceaux de bois (c, x250) ; Les particules sur les trois clichés proviennent d'un foyer fermé [37]

Les squelettes de bois peuvent ou non conserver une structure orientée. La Figure 1-42 présente différents types de particules ayant subi des dégradations thermiques plus ou moins importantes.

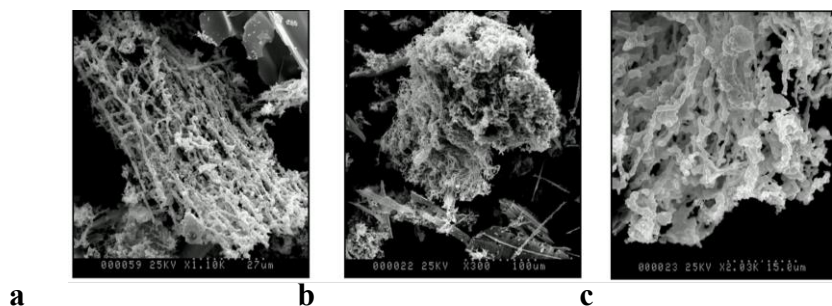


Figure 1-42 : Elément de bois dégradé gardant une structure orienté (a, x1100), Elément de bois dégradé avec une structure désorganisée (b, x300), Détail de la structure désorganisée (c, x2030), Les particules sur les trois clichés proviennent d'une chaudière, [37]

Notons que ce travail date de 2006 avec des appareils plus anciens et que les améliorations apportées à la conception peuvent avoir modifié les caractéristiques des particules.

⇒ Comparatif des émissions de particules des différentes sources anthropiques :

La proportion dans l'air ambiant des particules venant de la combustion de biomasse par rapport aux autres sources anthropiques est un critère important à prendre en compte pour estimer l'impact global de ce type d'énergie. La Figure 1-43 montre qu'en l'espace de vingt-cinq ans, la pollution du résidentiel/tertiaire a drastiquement été diminuée mais reste la principale source d'émissions des fractions fines. Il est précisé dans ce rapport que la source majoritaire du résidentiel/tertiaire est le chauffage domestique au bois. Les émissions de PM_{2,5} proviennent à 80% du bois énergie selon le CITEPA [94].

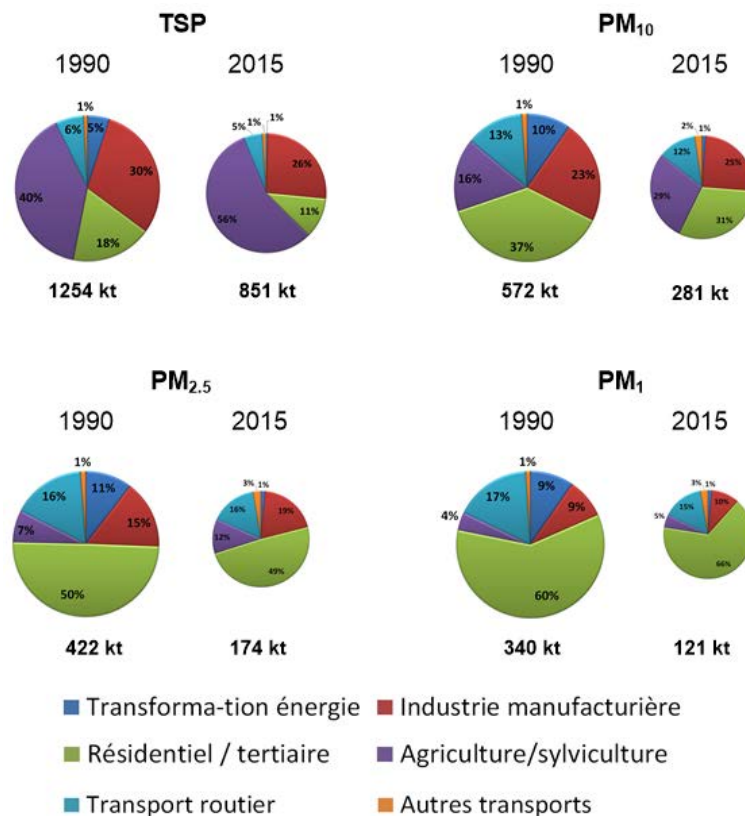


Figure 1-43 : Répartition par secteurs et granulométries des émissions de particules en France [20]

Cependant, cette dernière figure présente des chiffres très discutés. En effet, chaque secteur d'activités mesure les particules de manières différentes. Par exemple, l'automobile mesure les particules en nombre à l'aide d'un Impacteur Electrique Basse Pression (ELPI). Il est impossible de connaître la masse volumique des particules, mais pour autant, l'ELPI effectue une conversion en supposant que cette masse volumique est égale à 1kg.L^{-1} et ceci indépendamment de la granulométrie des particules (même si cette masse volumique peut être modifiée par l'utilisateur, la valeur reste dans tous les cas commune à toutes les fractions granulométriques). En revanche, dans le bois énergie, il est plus classique de mesurer les particules en masse avec des prélèvements sur filtre. De plus, les températures de prélèvement sont complètement différentes d'un secteur à l'autre. Dès lors, toute comparaison est faussée et ne permet pas de quantifier de façon certaine les niveaux d'émissions.

En revanche, il est certain que la part des émissions de particules du résidentiel et du tertiaire augmente avec la diminution de leur taille puisque la combustion de biomasse traduit ce phénomène. En effet, la majorité en masse des particules émises par la combustion de biomasse est constituée de particules fines (PM_{10}). Cependant, si on analyse en nombre, les particules ultrafines ($PM_{0,1}$) sont très largement majoritaires, comme le montre la Figure 1-44 qui présente des résultats d'analyses d'émissions de particules de foyers fermés de petites puissances.

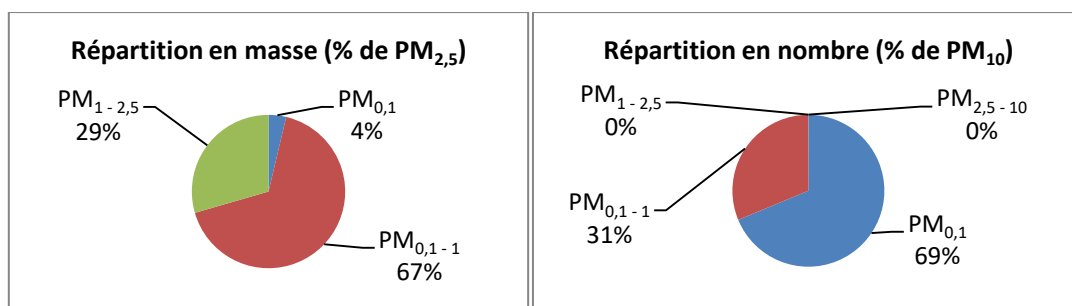


Figure 1-44 : Proportion massique des $PM_{2,5}$ et proportion numérique des PM_{10} issues d'un foyer fermé [95]

Malgré les améliorations des appareils, le chauffage au bois resterait une importante source d'émissions en particules fines d'après AirParif. Le Tableau 1-11 présente les résultats d'une étude de l'organisme de surveillance de la qualité de l'air en région parisienne.

Contribution en $\mu\text{g}/\text{m}^3$	été	hiver
Energie	0.06	0.05
Industrie	0.63	0.41
RES - Chauffage bois	0.36	1.44
RES - autres comb.	0.07	0.18
Tertiaire	0.08	0.17
Trafic - Echappé	1.35	1.00
Trafic - Non -échappé (sels de mer)	0.00	0.10
Autres transports	0.12	0.09
Agriculture	0.03	0.01
Nature	0.03	0.01
Secondaire	0.65	1.48
n.d.	0.05	0.11
Total	3.4	5.07

Tableau 1-11 : Contribution en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ des différentes sources en $PM_{2,5}$ en zone urbaine [94]

Pour attribuer les pollutions aux sources, AirParif procède d'une manière différente du CITEPA. Il s'agit là de mesures directes dans l'air, puis d'une analyse de ces particules. Ainsi, s'il y a présence de Lévo-glucosan (traceur utilisé aujourd'hui pour la combustion de biomasse [96]), alors la pollution est associée directement au bois énergie. Mais là encore, ces chiffres présentent des faiblesses. Ils sont basés sur des rapports de polluants, rapports qui ne sont à l'heure actuelle toujours pas démontrés clairement. De plus, tout incendie de forêt, ou tout brûlât extérieur émet des quantités très fortes de Lévo-glucosan et est ainsi rattaché aux émissions du bois énergie, puisqu'il est impossible avec cette méthode de différencier ces sources de celles du bois énergie alors qu'il ne s'agit pas là de production de chaleur.

Actuellement, un seul moyen existe pour différencier les incendies du chauffage. Piot et al [97] ont démontré que les feux de forêt dégageaient des particules possédant un rapport Potassium / Lévo-glucosan plus important. De plus, il apparaîtrait que les aérosols émis par

des feux de forêts seraient beaucoup plus chargés en certains minéraux (Potassium, Calcium et Fer) ainsi qu'en éléments traces (Manganèse, Titane et Zinc). Ceci viendrait du soulèvement des poussières du sol qui est favorisé par les mouvements d'air créés par le feu [98].

Il est fort probable qu'un incendie de forêt ou un brûlât extérieur entraînent des émissions particulaires très importantes. Il est en effet évident que la combustion est beaucoup mieux maîtrisée dans un appareil conçu à cet effet que lors d'incendies ou de brûlâts. Le lévoglucosane est utilisé comme traceur car il est issu de la première étape de la dégradation de la cellulose, comme le démontre le schéma de dégradation de la cellulose en Figure 1-45. Ainsi, il est certain qu'un incendie ou un brûlât entraîne d'importantes émissions particulaires et que celles-ci sont attribuées au bois énergie. Il est donc probable qu'une portion des émissions attribuées au bois énergie ne vient finalement pas de ce secteur, d'autant plus que le brûlage des déchets verts à l'air libre demeure une pratique très courante malgré son interdiction (circulaire du 18/11/2011 [99]).

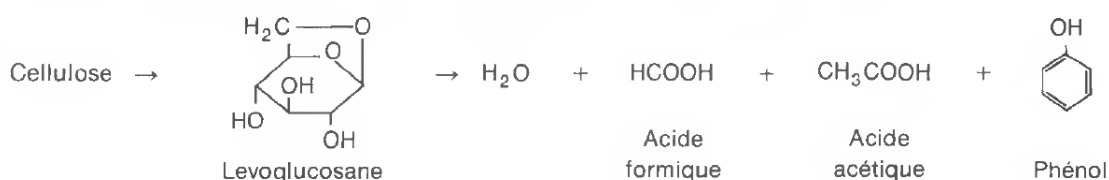


Figure 1-45 : Schéma de dégradation par combustion de la cellulose [12]

A l'heure actuelle, les outils et les méthodes d'analyses ne sont pas encore efficaces pour imputer de manière certaine les polluants à leur source d'émissions. De ce fait, il est particulièrement difficile de commenter ces chiffres. Il est en revanche possible d'observer les évolutions des émissions secteur par secteur, et ainsi de pouvoir dégager des tendances. La Figure 1-46 compare les prévisions du SER sur l'évolution des émissions de TSP pour le parc d'appareils indépendants au bois et la réelle évolution de ces émissions.

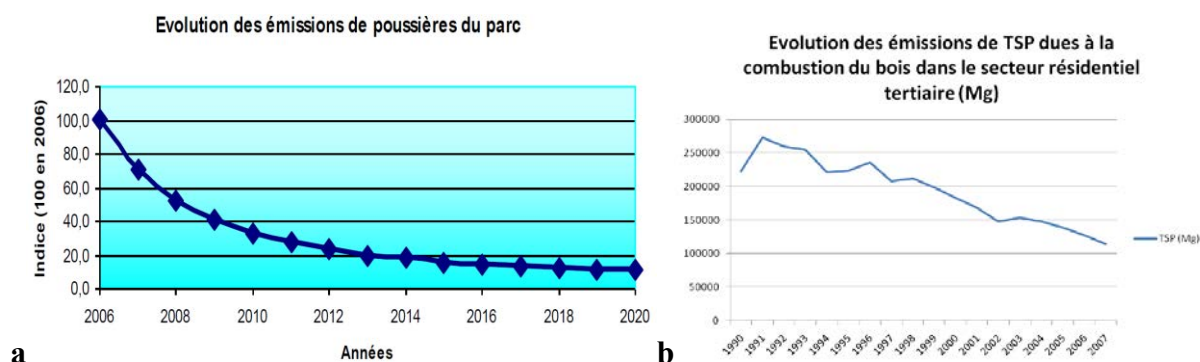


Figure 1-46: Prévion des émissions de particules dues au chauffage domestique (a, [100]) et évolution réelle des émissions (b, [101])

Il apparait clairement que les améliorations de conception des appareils permettent de réduire de façon significative les émissions de particules, comme les prévisions l'envisageaient.

1.3.3.2 Facteurs influents sur la nature des particules

La nature physico-chimique des particules peut varier en fonction de différents paramètres. Voici une liste non exhaustive de ces derniers :

- nature du combustible ;
- température ;
- type d'appareil ;
- facteur d'air dans la chambre de combustion.

En effet, une température basse moyenne ou localisée dans une zone de la chambre de combustion conduit à un blocage de la combustion et donc à la formation d'imbrûlés comme les suies. De même, une zone avec un manque en Dioxygène produit des COC (Composés Organiques Condensables). La Figure 1-47 présente l'effet du facteur d'air sur la nature même des particules.

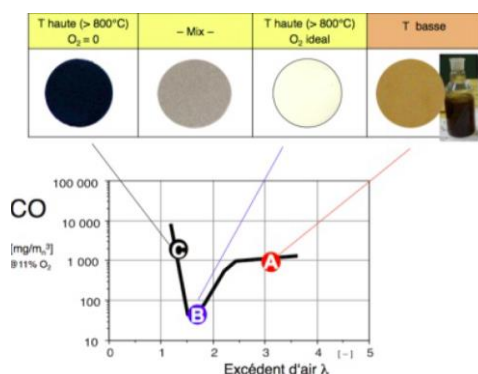


Figure 1-47 : Influence du facteur d'air sur la nature des particules [46]

Cette figure montre aussi que la couleur du filtre est un véritable indice sur la nature chimique des particules. L'OC est incolore ou marron (selon la composition même de la fraction organique) alors que l'EC est noir. Bien entendu, la méthode de prélèvement fait aussi varier cette composition. Par exemple, s'il s'agit d'un prélèvement sur filtre à basse température, la majorité des condensats seront récupérés, alors que s'il s'agit d'un prélèvement sur filtre à haute température, seule la partie solide sera récupérée. Les différentes méthodes de prélèvement seront présentées dans la partie 1.3.4. Comme explicité dans la partie 1.3.4, elles ont un impact fort sur la mesure.

L'humidité du combustible n'aurait a priori aucune influence sur la composition chimique des particules [93]. Il n'est en revanche pas encore démontré que l'humidité du combustible ne change pas les caractéristiques physiques des particules émises. Cependant, l'humidité influence la combustion en diminuant la température moyenne de la chambre, ce qui concourt à favoriser la formation de particules. De plus, selon Johannson, l'humidité a tendance à diminuer les émissions en nombre mais augmenter la masse des particules si elle est élevée [87]. Pour le type de combustible, une étude sur des OWB (Outdoor Wood Boiler : appareil de chauffage au bois extérieur) [93] observe la variation des quantités de particules émises en fonction de leur composition chimique. Les six combustibles (Erable rouge, Chêne rouge, Bouleau, Pin blanc, Sapin cigüe et Sapin Baumier) étant testés sur le même appareil, il est possible d'obtenir des pistes d'influence du combustible sur les particules. Le Tableau 1-10

présenté précédemment dans ce document résumait l'intégralité des résultats de cette étude. Le Tableau 1-12 en rappelle un point clé.

Essence de combustible	Feuillus				Résineux			
	Erable Rouge	Chêne Rouge	Bouleau	Moyenne	Pin Blanc	Sapin Ciguë	Sapin Baumier	Moyenne
Particules (g/kg)	3.3	5.7	2.7	3.9	11.4	3.7	4.8	6.6
OC (% des particules)	85.5	87.5	86.8	86.6	73.4	102.3*	106.3*	94
EC (% des particules)	6.7	3.8	22	10.8	31.3	5.4	7	14.6
OC/EC	12.8	23.0	3.9	13.2	2.3	18.9	15.2	12.2

Tableau 1-12 : Facteurs d'émissions TSP et composition OC/EC liées à la combustion de six combustible différents [93]

La variabilité des émissions dues au combustible est claire. Ainsi, les feuillus émettraient quasiment deux fois moins de particules que les résineux. Les feuillus semblent être assez constants en ce qui concerne la quantité d'OC, mais plus variable sur la quantité d'EC. Les résineux présentent davantage de variabilité dans les deux cas. En moyenne, les feuillus auraient un rapport OC/EC plus important.

En plus de la nature du combustible, dans le cas des bûches, la présence d'écorces et la dimension de la bûche influent sur les émissions de particules. Tissari [102] a démontré que des bûches de petites tailles conduisaient à des émissions plus importantes de trois polluants (OGC, CO et PM₁) que des bûches de tailles importantes, et ce à tous les stades de combustion. La Figure 1-48 présente les résultats de cette étude.

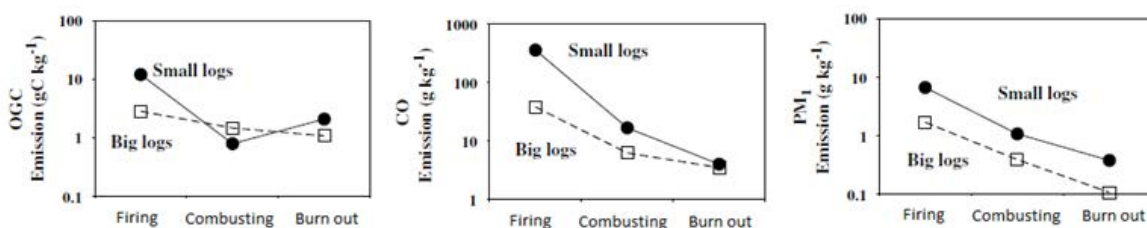


Figure 1-48 : Influence de la taille de la bûche (Log Size) sur les émissions des OGC (g.kg⁻¹), de CO (g.kg⁻¹) et de PM₁ (g.kg⁻¹) selon les trois phases de combustion (Allumage : Firing, Combustion homogène : Combusting, Combustion hétérogène : Burn out) [102]

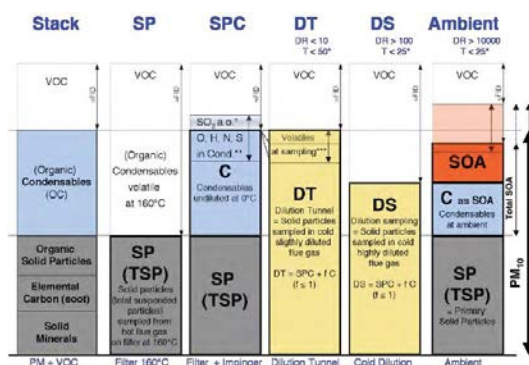
Il n'est pas pour autant certain que ces résultats soient exacts. En effet, les essais sont réalisés avec une masse de bois identique. Cela pose problème car les bûches de petites tailles vont brûler plus vite (plus de surface d'échange) et le contrôle de la combustion va être moindre.

Le type d'appareil influe énormément sur la quantité de particules émises. Il est très clair que la technologie utilisée modifie tous les paramètres de combustion, et donc finalement tous les paramètres influents sur les émissions particulières. Ainsi, l'alimentation joue un rôle primordial. Lorsqu'elle est discontinue, elle implique une période d'allumage, une combustion homogène puis une combustion hétérogène. Une séparation temporelle des trois phases de la combustion induit une température variable, et donc de nombreux produits de combustion incomplète lorsque celle-ci est basse. Si l'alimentation est continue, les poussières sont principalement dues à des envolées de cendres [103].

Le type d'appareil modifierait aussi la répartition granulométrique des particules. Wieser et Gaegauf trouvent des particules de 0,11 μm de diamètre moyen en nombre pour les foyers et les poêles, et de 0,08 pour des chaudières à alimentation automatique [104].

1.3.4 Méthode de prélèvement :

Le paragraphe précédent présente de nombreux paramètres influents sur la nature des particules (température de mesure par exemple). La méthode de prélèvement utilisée joue un rôle très important. Pour mieux comprendre, interpréter et comparer certaines valeurs, la méthode de prélèvement utilisée doit être connue. Idéalement, la connaissance de l'impact de chaque paramètre sur le prélèvement et la mesure permettrait de comparer des résultats d'une méthode et ceux d'une autre. Nussbaumer détermine dans une étude l'impact de la méthode de prélèvement sur la nature du prélèvement. La Figure 1-49 présente schématiquement les résultats de cette étude qui demeure néanmoins qualitative.



Avec :

- SP : Prélèvement sur filtre chaud ;
- SPC : Prélèvement sur filtre chaud suivi de barboteurs ;
- DT : Prélèvement dans un tunnel à dilution (dilution *10) ;
- DS : Prélèvement dans un tunnel à dilution (dilution supérieure à *10) ;
- PM₁₀ : Prélèvement dans l'air ambiant des particules ayant un diamètre aérodynamique inférieur à 10 μm

Figure 1-49 : Impact de la méthode de prélèvement sur le niveau de PM récupéré [46]

Sept principaux éléments permettent de définir une méthode de prélèvement clairement :

- la hauteur de prélèvement : distance entre le foyer et le point de prélèvement ;
- la durée de prélèvement ;
- la prise en compte de l'isocinétisme ou non, les débits et vitesses de prélèvement le cas échéant ;
- la température de la canne de prélèvement : prélèvement sur filtre froid ou chaud, et à quelle température précisément, en rapport ou non avec la température des fumées ;
- la dilution durant le prélèvement : taux de dilution de l'échantillon ;
- l'orientation de la buse de prélèvement : dans le sens des fumées, à contre-courant, à angle droit ;
- les caractéristiques physiques de la buse de prélèvement : taille, forme, diamètre intérieur et extérieur, ...

L'étude « Peren²Bois » a mis en évidence l'impact de certains de ces paramètres. La Figure 1-50 est inspirée des résultats de cette étude en mettant en avant les principales variations.

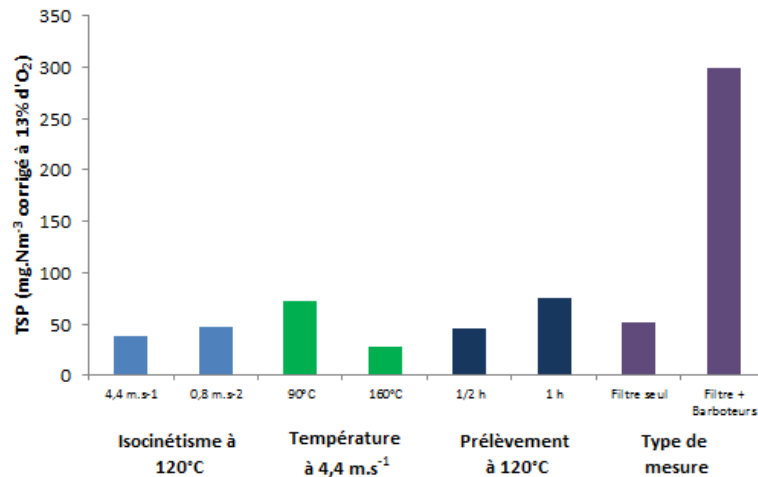


Figure 1-50 : Influence de différents paramètres sur le facteur d'émission de TSP [21]

La vitesse de prélèvement joue un rôle assez faible, voire négligeable. Une vitesse supérieure à l'isocinétisme semble diminuer la masse mesurée. Cela peut s'expliquer par une dilution plus importante liée à la très faible masse des gaz vis-à-vis des particules, même les plus fines. La température de prélèvement joue un rôle très important, les masses collectées étant d'autant plus importantes que la température est faible. Ces résultats s'expliquent par la condensation de certains éléments au fur et à mesure que la température baisse. Ce phénomène peut également être mis en avant en mesurant les taux d'émissions à différentes hauteurs dans le conduit de cheminée. La durée de prélèvement impacte aussi de façon significative les émissions de particules. Le phénomène pris en compte ici est principalement lié au moment durant lequel le prélèvement est réalisé. En effet, les fortes émissions de particules sont liées à la période d'allumage et à la combustion hétérogène en fin de cycle. Un prélèvement plus court effectué durant le régime établi surestimerait les performances de l'appareil par rapport à un prélèvement sur un cycle complet. La dernière partie de ce graphique montre l'influence de la nature même de la mesure. Ainsi, alors que la mesure simple de la masse déposée sur un filtre à 120°C donne 52 mg.Nm⁻³, la prise en compte de l'ensemble des éléments différenciés (PM, COV, HAP) conduit dans les mêmes conditions à un cumul des émissions de 300 mg.Nm⁻³.

La hauteur de prélèvement dans le conduit d'évacuation des fumées influe sur la température du gaz prélevé, puisque la température des fumées sera d'autant plus basse que l'on s'éloigne du foyer. Cela modifie donc la quantité d'aérosols organiques condensables qui seront prélevés. La température de la canne de prélèvement est aussi importante pour les mêmes raisons. La dilution modifie considérablement la composition du milieu gazeux dans lequel les particules évoluent. Cela peut provoquer des phénomènes de recombinaisons importantes, et ainsi changer la granulométrie des particules puisque de fait on n'obtient pas les mêmes niveaux de températures. Bien entendu, tous ces paramètres ont une influence qui leur est propre, mais il existe aussi des combinaisons et corrélations des paramètres créant de nouveaux impacts. Le plus connu et étudié à l'heure actuelle est le diamètre de coupure (Cut Off).

Une méthode de prélèvement engendre un Cut Off des particules. Si l'échantillon est prélevé à haute vitesse par exemple, les particules de diamètres importants ne pourront peut-être pas suivre la trajectoire pour entrer dans la buse (phénomène identique à celui de l'impaction dans un impacteur en cascade). Au contraire si l'échantillon est prélevé à très faible vitesse, il risque de se produire des accumulations dans la canne de prélèvement. Le rinçage du dispositif peut alors devenir nécessaire et déterminant. L'orientation de la buse influe elle aussi sur le Cut Off, pour des raisons similaires. La Figure 1-50 prouve que si la vitesse est élevée, le facteur d'émission de TSP diminue légèrement. Cela confirme qu'une vitesse élevée entraîne un Cut Off. L'Équation 1-8 donne le diamètre de coupure en fonction des paramètres importants. Il apparaît ainsi que :

- Le diamètre de coupure augmente avec la racine carré du flux volumique ;
- Une vitesse des fumées élevées dans le conduit diminuerait le diamètre de coupure (si le diamètre de coupure diminue, alors moins de particules sont prélevées) ;
- Un grand diamètre de buse amènera un petit diamètre de coupure (faible vitesse dans la buse).

$$x^2 = 3,7 * 10^{-8} * s^{-1} * \frac{V}{U_0 * D_s}$$

Avec:

- x : Diamètre de coupure des particules prélevées (en mètres) ;
- s : Paramètre augmentant si la taille médiane de l'échantillon augmente ;
- V : Viscosité de l'air à 150°C ;
- U_0 : Vitesse dans le conduit ;
- D_s : Diamètre de la sonde.

Équation 1-8 : Détermination du diamètre de coupure d'un système de prélèvement [105]

Le Tableau 1-13 synthétise les différentes méthodes de prélèvements existantes.

Méthode (s)	Domaine d'application	Description succincte
Méthode autrichienne/allemande DIN+	TSP solide, appareils de chauffage au bois	Prélèvement à l'iso cinétisme sur filtre chauffé (160°C)
Méthode US-EPA 5 H	TSP solide et condensable séparées, appareils de chauffage au bois	Prélèvement à l'iso cinétisme sur filtre chauffé (120°C) associé à un module de barboteurs (maintenus à 20°C)
Méthode US-EPA 5G	TSP, solide et espèces formées par dilution combinées appareils de chauffage au bois	Prélèvement par tunnel à dilution (Filtre à 32°C)
ASTM E 2515 – 07		
Norme AS/NZS 4013 :2014	TSP, solide et espèces formées par dilution combinées appareils de chauffage au bois	Prélèvement par tunnel à dilution (Filtre à 20°C)
BS 3841-1 :1994	TSP, solide et espèces formées par dilution combinées appareils de chauffage au bois	Prélèvement par tunnel à dilution (Filtre à 30°C)
NS 3058-2	TSP, solide et espèces formées par dilution combinées appareils de chauffage au bois	Prélèvement par tunnel à dilution (Filtre à 70°C)
BS 3841-1 :1994	TSP, appareils de chauffage au bois	Prélèvement par électrofiltre
ISO 9096:2003	TSP solide, sources fixes industrielles	Prélèvement à l'iso cinétisme sur filtre chauffé (120°C)
EN 13284-1:2001		
US EPA 5		
NF EN ISO 13271	PM10/PM2.5 solide, sources fixes industrielles, Hautes concentrations (>40 mg.m ⁻³ ₀)	Mesurage à l'aide des impacteurs virtuels sur gaz chaud (température de l'effluent)
NF EN ISO 23210	PM10/PM2.5 solide, sources fixes industrielles, Basses concentrations (<40 mg.m ⁻³ ₀)	Mesurage à l'aide des impacteurs en cascade sur gaz chaud (température de l'effluent)
ISO/DIS 25597	PM10/PM2.5 solides et espèces formées par dilution combinées, sources fixes industrielles, Hautes concentrations (>50 mg.Nm ⁻³ ₀)	Technique de dilution et échantillonneurs cyclone sur gaz dilué (température de l'effluent, moins de 35°C)
CTM 039		
EN TS 15349 :2006	Gazéification de biomasse-Goudron et particules TSP dans le gaz combustible-échantillonnage et analyse 20 mg.Nm ⁻³ ₀ et 30 g.m ⁻³ ₀	Prélèvement à l'iso cinétisme sur filtre chauffé (120°C) associé à un module de six barboteurs (20°C)

Tableau 1-13 : Liste des différents types de mesure des émissions particulaires

A partir de ces résultats une figure synthétique résumant le niveau du cycle d'évolution des particules dans le conduit peut être réalisée [106]. Cela permet de situer une méthode de prélèvement, et ainsi vérifier ce que cette méthode mesure véritablement. La Figure 1-51 présente un tel schéma organisé selon deux axes :

- En abscisse : la composition et la forme physique de la particule (solide, liquide ou gazeux)
 - o Des matières inorganiques (IM) : ceci comprend les minéraux et les sels (solide) ;
 - o De l'EC (solide) ;
 - o De la matière organique (OM) (gazeux) ;
 - o De l'eau, du dioxyde de Carbone, du monoxyde de Carbone, du dioxyde de Soufre, des oxydes d'Azote (liquides ou gazeux) ;
- En ordonnée : le gradient de température signifié par l'éloignement du foyer de combustion dans le conduit de cheminée jusqu'au rejet atmosphérique.

Selon la position dans le schéma, la nature de la particule est différente.

Les SVOC et les VOC vont être craqués (de manière différente selon le niveau de température) pour former les AOP ou ne vont pas être craqués et seront alors appelés OGC. Les VVOC vont quant à eux échapper à tout craquage et rejoindre la famille des OGC.

Les AOP vont subir différents phénomènes chimiques (agglomération, nucléation, condensation) avec la suie et la matière inorganique (minéraux, sels). La partie ne réagissant qu'avec la suie représente le TC (Carbone Total). Si l'on prend l'ensemble, il s'agit alors des PME (émissions de particules primaires) ce qui équivaut aux PA (Aérosols Primaires). Celles-ci vont se retrouver dans l'atmosphère et subiront des réactions éventuelles.

Quant à eux, les OGC vont se retrouver dans l'atmosphère et constitueront des précurseurs aux SOA ou des gaz de type méthane. L'addition des SOA et des PME représentent la matière particulaire ambiante dans l'atmosphère.

Ce schéma montre ainsi l'importance de préciser où l'on prélève (dans le conduit à une hauteur donnée, dans l'atmosphère plus ou moins proche de la cheminée,...). En effet, pour le même appareil et au même moment, deux prélèvements en des points distincts présenteront des répartitions en polluants et en concentrations complètement différents.

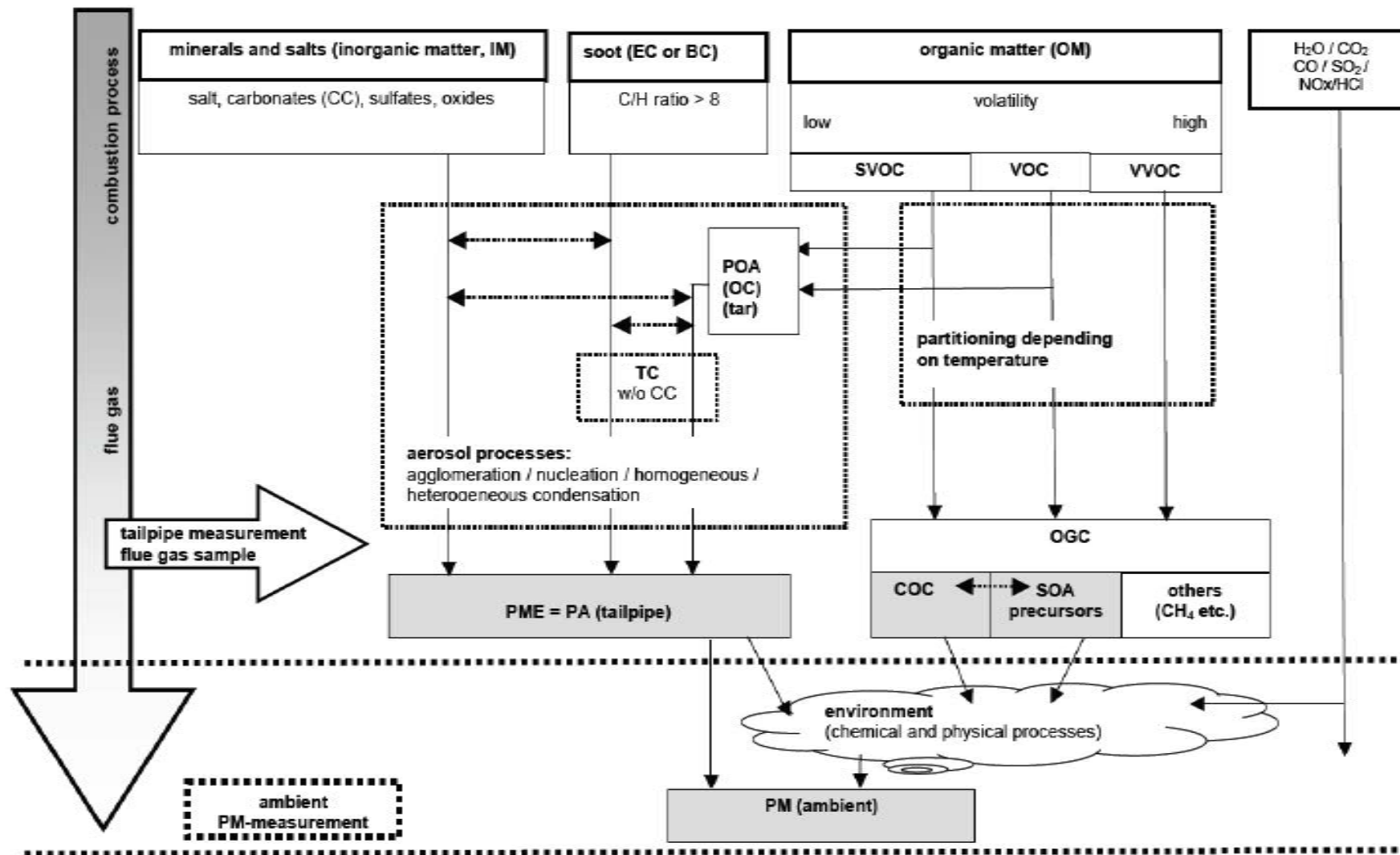


Figure 1-51 : Schéma de formation et évolution des particules [106]

1.3.5 Réduction des émissions :

Depuis plusieurs années, de nombreux travaux sont réalisés pour réduire les émissions polluantes. Pour ce faire, deux grandes techniques sont utilisées :

- techniques primaires : il s'agit de réduire les émissions en améliorant la combustion. Pour ce faire, on agit sur les caractéristiques mêmes de l'appareil (matériaux par exemple) et sur les réglages en se basant sur la règle des 4T précédemment décrite (volume et forme de la chambre de combustion, nombre et répartition des arrivées d'air, chargement, tirage, ...)
- techniques secondaires : il s'agit ici de mettre en place des systèmes de traitement à la sortie de l'appareil. Des dispositifs particuliers peuvent être développés en fonction de la nature du polluant à traiter.

Une réduction primaire consiste finalement à améliorer la combustion pour rendre l'appareil plus performant. Cela entraîne une augmentation des prix des appareils de chauffage. Cette augmentation reste minime face au tarif des dispositifs de traitement secondaire et le coût de leur entretien. Dans les techniques de réductions secondaires, de nombreuses méthodes de filtration des fumées existent :

- système de traitement des émissions de CO et de COV : utilisation de catalyseurs (souvent plus efficace pour les émissions de CO que pour celles de COV) ;
- systèmes de traitement des émissions de NOx : utilisation de la réduction sélective non catalytique (SNCR) et de la réduction sélective catalytique (SCR), mais inapplicable dans le secteur domestique ;
- systèmes de traitement des particules : il en existe de nombreux types.

Ces derniers systèmes de traitement des particules sont caractérisés par trois éléments principaux :

- la fraction granulométrique limite d'efficacité : il s'agit de la taille la plus fine des particules filtrées ;
- l'encombrement, l'emplacement et le coût ;
- la technologie utilisée.

Le Tableau 1-14 présente les systèmes les plus fréquemment rencontrés à l'heure actuelle dans les secteurs collectif et industriel.

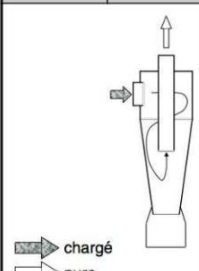
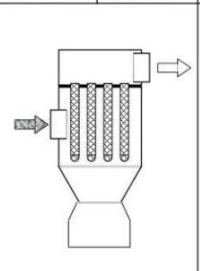
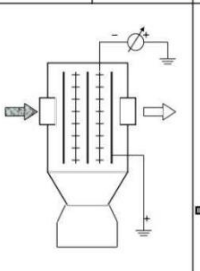
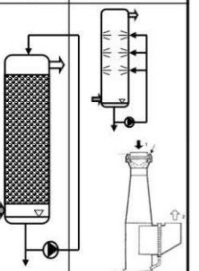
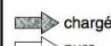
Séparateurs des particules épaisses (Dépoussiérage grossier)		Séparateurs des particules fines					
1. séparateurs gravimétriques (inertie)		2. séparateurs filtrants		3. séparateurs électrostatiques (≠ filtres !)		4. laveurs humides + séparateurs gravim.	
> 50 µm		> 5 µm		> 0.01 µm		> 0.01 µm	
gravitation	force centrifuge	filtre accumulant / filtration profonde dans le filtre	filtre décomaté filtration à la surface	sec	humide	à travers un liquide	gouttelette tracées
chambre de sédimentation	cyclone	filtre à particule épaisse, filtre à matière en suspension	filtres texturés par exemple filtres à manches	forme plaques ou tubes	forme tubes ou plaques	laveur de colonne avec planchers ou corps	laveur grandissement, venturi et courant radial
							
							

Tableau 1-14 : Présentation de différentes techniques de filtration des fumées des appareils collectifs et industriels [46]

La majorité des techniques présentées dans le Tableau 1-14 (Cyclones et Multi Cyclones, Filtres décomatés, texturés ou à manches, laveurs humides...) n'est peu ou pas adaptée aux appareils domestiques car les techniques créent des pertes de charge importantes et/ou nécessitent un entretien très fréquent et d'autres pollutions, comme l'eau par exemple. Malgré tout, certaines techniques destinées aux appareils domestiques apparaissent sur le marché ou sont en cours de développement, comme notamment :

- filtre à particules électrostatique : il s'agit de charger électriquement les particules pour qu'elles se fixent sur les parois du conduit de cheminée (déjà commercialisé) ;
- filtre à particules micro-ondes : il s'agit de filtrer les particules avec un élément filtrant adapté. Ensuite, les particules piégées dans le filtre sont régulièrement brûlées afin de le régénérer. Le problème principal de cette méthode est la limitation des pertes de charge du filtre.

Pour autant, le secteur du chauffage domestique est actuellement très peu équipé. Il est donc nécessaire de développer des systèmes filtrant les particules fines dans le chauffage domestique au bois, mais cela est très complexe. En effet, le cahier des charges idéal de tels systèmes serait le suivant :

- peu coûteux ;
- peu de maintenance ;
- efficace sur les granulométries les plus fines ;
- pas de manutention ou d'entretien par l'utilisateur ;
- volume limité : équipement compact ;
- éviter l'utilisation d'un extracteur maintenant le tirage (et donc limiter les pertes de charge) ;
- éviter le raccordement électrique.

Une connaissance plus approfondie des particules émises par le chauffage domestique au bois permettrait d'optimiser les techniques secondaires de traitement des fumées.

1.4 Conclusion / Discussion

Ainsi, différents paramètres impactant la nature physico-chimique des particules ressortent de cet état de l'art :

- la méthode de prélèvement ;
- la position du prélèvement ;
- le type d'appareils de chauffage domestique (granulés, bûches) ;
- la génération de l'appareil ;
- le mode opératoire ;
- la nature du combustible

Selon la méthode et la position du prélèvement, il apparaît que les facteurs d'émission des particules varient énormément. En revanche, peu d'études décrivent les variations de la composition même des particules. Ces différences de mesures pourraient être mieux comprises si les mécanismes de formation des particules ainsi que leur évolution dans le conduit étaient parfaitement définis.

L'impact du type d'appareil (granulés ou bûches) a été défini sur quelques paramètres, comme les émissions en masses (TSP) ou en nombre. Néanmoins, le type d'appareil doit impacter de nombreux autres paramètres.

L'état de l'art réalisé permet de confirmer qu'un appareil récent émettra moins de particules en masse, mais plus en nombre. En revanche, aucune explication claire ne permet d'expliquer ce phénomène. Ainsi, l'impact de la technologie de l'appareil n'est pas encore parfaitement défini.

Le mode opératoire influence aussi sur les émissions de particules. Bien qu'un mode opératoire pour mener la combustion soit décrit dans les normes et dans les manuels d'utilisation des appareils, les pratiques des utilisateurs peuvent être variées. Les impacts d'un allumage inversé ou d'une réduction des arrivées d'air ne sont par exemple que peu décrits dans la littérature.

La nature du combustible est un facteur qui influence aussi bien la quantité de particules émises que la nature même des particules émises. Ce phénomène a été observé, mais aucune étude ne précise le véritable impact global sur les particules de chaque critère (présence d'écorces, humidité, calibre, ...). L'étude de ces impacts est donc nécessaire afin d'établir une utilisation idéale des appareils.

Les mécanismes de formation et d'évolution des particules dans le conduit dans le cas de la combustion de bois dans des appareils domestique ne sont aussi que peu décrit. Pourtant, la compréhension des mécanismes peut permettre d'optimiser les appareils. Si ce point est impossible des éléments filtrant plus précis pourraient être développés avec ces connaissances.

Finally, this bibliographic study has allowed to establish a list of very precise objectives to which this thesis work tends to respond :

- determine the types of particles emitted by a device with logs and a device with granules ;
- evaluate the impact of the generation of the device on the globality of emissions, and more particularly the physico-chemical characteristics of the particles ;
- study the influence of different operating modes (traditional lighting/ inverse lighting ; reduced air arrival)
- establish the impacts on emissions of different characteristics of the fuel (essence, bark, diameter, humidity, ...) ;
- define for each type of aerosols (solid or gaseous) the formation mechanisms associated and the conditions necessary for their formation ;
- determine the evolution of particles in the chimney.

In order to respond to these different objectives, many parameters have been defined, sampling and analysis protocols have been developed, in order to carry out targeted experiments. The definition of the integrity of the parameters is the subject of the following chapter.

Chapitre 2. MATRIELS ET METHODES

Ce chapitre a pour objectif de définir les matériels et les méthodes mis en place afin d'atteindre les objectifs préalablement fixés. Ainsi, dans un premier temps, le dispositif expérimental sera décrit. Ensuite, les méthodes de mesures directes des émissions de gaz seront définies.

2.1 Dispositif expérimental

L'objectif de cette partie est de définir les différents combustibles utilisés et les appareils de chauffage domestique au bois étudiés. La plateforme expérimentale sera aussi décrite.

2.1.1 Caractérisation des combustibles

Différents combustibles ont été utilisés pour ce travail. Pour mieux comprendre les mécanismes de formation (CO, COVT, TSP, ...), les combustibles utilisés doivent être parfaitement connus. Les principaux paramètres qui permettent de caractériser ces combustibles sont :

- humidité ;
- Pouvoir Calorifique ;
- teneur en cendres ;
- composition chimique élémentaire.

La mesure de l'humidité était réalisée selon la norme NF EN 14774-2 [107] et était répétée quatre fois par échantillon. Cette mesure peut être décomposée en quatre étapes :

- 1 : Pesée de l'échantillon humide ;
- 2 : Mise en étuve ventilée à 103°C durant 24 h ;
- 3 : Pesée de l'échantillon anhydre (après passage au dessiccateur).

Les étapes 2 et 3 doivent être répétées jusqu'à ce que la masse de l'échantillon soit stable.

Les mesures des PCS étaient réalisées à partir d'échantillons anhydres. Un minimum de quatre pastilles étaient analysées par type de combustible. Cette analyse respecte la norme NF EN 14918 [108]. Le calorimètre *6100 Calorimeter* de chez *Parr* était utilisé pour réaliser cette caractérisation. Une fois les échantillons secs, ils étaient broyés et placés à nouveau en étuve. Des pastilles d'environ 1 gramme étaient alors confectionnées. Ces pastilles étaient ensuite caractérisées via un calorimètre. Il s'agit d'une enceinte contenant une quantité d'eau connue dont la température est mesurée très précisément et en continu. Dans cette eau est placée la bombe calorimétrique. Cette bombe contient l'échantillon ainsi que de l'Oxygène sous une pression de 25 Bars. Un filament conducteur permet d'initier la combustion. L'oxydation étant une réaction exothermique, l'eau en présence va voir sa température augmenter. Une fois la température stabilisée, le PCS est calculé. Pour les granulés, les étapes de broyage et de pastillage n'étaient pas utiles.

La mesure du taux de cendres était réalisée selon la norme NF EN ISO 18122 [109] à l'aide d'un four à moufles de marque *Nabertherm*. Une masse définie (généralement comprise entre 50 et 100 g) de broyats anhydres était placée dans des récipients en porcelaine de masse connue. Ces récipients étaient ensuite placés dans les fours à moufles régulés à deux températures caractéristiques de 550 et 815°C. L'échantillon restait dans le four à moufles (à 550 ou 815°C) durant 24 heures. Il était ensuite placé en dessiccateur et pesé à nouveau.

L'analyse élémentaire des combustibles n'était pas réalisée en interne. Cette analyse était réalisée par le groupe SOCOR (accrédité COFRAC) en suivant les normes EN 15289, NF EN 15104 et ISO 1171. Les éléments analysés étaient le Carbone, l'Hydrogène, l'Oxygène, l'Azote, le Soufre et le Chlore. Environ cinq grammes de chaque échantillons broyés et anhydres étaient envoyés à l'analyse.

Le Tableau 2-1 présente les résultats d'analyses des différents combustibles. Pour les bûches, sept combustibles différents ont été utilisés :

- Du hêtre sec sans écorces (HSECse) et avec écorces (HSECae) ;
- Du hêtre humide sans écorces (HHUMse) et avec écorces (HHUMae) ;
- Du sapin sec sans écorces (SSECse) et avec écorces (SSECae) ;
- Du sapin humide sans écorces (SHUMse).

Pour les granulés, un seul type a été étudié. Il s'agit d'un granulé de résineux. Les PCS sont exprimés sur sec. Le PCI_h est obtenu via l'Equation 1-1, c'est-à-dire en prenant en compte le taux d'humidité du combustible ainsi que l'hydrogène constitutif du bois (qui produire de l'eau).

Type	Nom	Essence	Ecorce	Humidité (%)	Taux de cendres (550°C, %)	Taux de cendres (815°C, %)	PCS _s (kJ.kg ⁻¹)	PCI _h (kJ.kg ⁻¹)
Bûches	HSECse	Hêtre	Non	14	0.27	0.14	19308	15106
	HSECae	Hêtre	Oui	14.1	0.51	0.29	19163	14982
	SSECse	Sapin	Non	13.05	0.95	0.67	19786	15653
	SSECae	Sapin	Oui	13.15	0.67	0.56	19114	15074
	HHUMse	Hêtre	Non	20.27	0.27	0.14	19308	13823
	HHUMae	Hêtre	Oui	21.35	0.51	0.29	19163	13506
	SHUMse	Sapin	Non	47.52	0.95	0.67	19786	8457
Granulés	Granulés	Résineux	Oui	6.94	0.62	0.51	20285	17366

Type	Nom	C (% _{secmass})	H (% _{secmass})	O (% _{secmass})	N (% _{secmass})	S (mg.kg ⁻¹ _{sec})	Cl (mg.kg ⁻¹ _{sec})
Bûches	HSECse	49.5	5.9	43.8	<0.3	108.0	64.0
	HSECae	49.0	5.8	43.7	0.3	133.4	67.3
	SSECse	51.9	6.2	41.3	<0.3	96.0	64.0
	SSECae	51.4	6.1	41.2	<0.3	142.0	69.6
	HHUMse	49.5	5.9	43.8	<0.3	108.0	64.0
	HHUMae	49.0	5.8	43.7	0.3	133.4	67.3
	SHUMse	51.9	6.2	41.3	<0.3	96.0	64.0
Granulés	Granulés	50.0	6.4	42.9	<0.3	73.0	77.0

Tableau 2-1 : Caractérisation des combustibles

Durant les essais, le calibre des combustibles utilisés était toujours le même. Une charge était toujours composée de deux bûches de masse équivalente. La raison pour laquelle l'influence du calibre n'a pas été étudiée dans ce travail provient des résultats du projet QUALICOMB [110], qui démontre que le calibre n'influence que faiblement les résultats d'émissions.

2.1.2 Appareils de chauffage domestique au bois utilisés

Différents appareils de chauffage domestique au bois ont été testés afin de ne pas se limiter aux mécanismes de formations des particules liées à une technologie spécifique. Pour les appareils à bûches, trois différents appareils ont été utilisés :

- Le foyer *SUNFLAM* de chez *Seguin Duteriez* (Figure 2-1) ;
- Un foyer fermé prototype issue d'une collaboration entre trois fabricants (*AXIS*, *CHAZELLES* et *SUPRA*) et un laboratoire (*LERMAB*) (Figure 2-2) ;
- Le poêle *WABI* de chez *D2I Invicta* (Figure 2-3).



Figure 2-1 : Foyer *SUNFLAM* (2000)

Le foyer *SUNFLAM* est un appareil de 12 kW d'avant les années 2000. Le rendement annoncé de ce foyer en fonte est de 73,2%. La seule arrivée d'air est sous la grille. Aucune arrivée d'air secondaire n'est présente sur cet appareil d'ancienne technologie. La chambre de combustion ne possède aucune isolation et la flamme n'est pas déviée dans l'appareil.



Figure 2-2 : Foyer prototype *AXIS/SUPRA/LERMAB* (2006)

Le foyer prototype de 12 kW date de 2006. Sa chambre de combustion est équipée de briques réfractaires. L'appareil présente une arrivée d'air sous grille, et trois entrées pour l'air secondaire : de chaque côté et au fond. Au-dessus de la chambre de combustion, un déflecteur oblige la flamme à ne pas s'engouffrer directement dans le conduit de fumées. Cette plaque laisse les fumées s'échapper dans toutes les directions. Cet appareil est le seul que nous avons équipé de système de prélèvement interne : dans la chambre de combustion.



Figure 2-3 : Poêle *WABI* de chez *D2I Invicta* (2012)

Le poêle *WABI* (6 kW) a été commercialisé en 2012. Ce poêle étanche comprend une arrivée d'air primaire sous grille ainsi qu'une arrivée d'air secondaire répartie en trois niveaux à l'arrière de la chambre de combustion. La voûte inclinée permet à la flamme de s'allonger un maximum, minimisant le temps de chauffe de l'appareil.

En ce qui concerne les poêles à granulés, un seul appareil a été testé : Le poêle à granulés *LEIOS GALET* de chez *SUPRA* également (Figure 2-4).



Figure 2-4 : Poêle à granulés *LEIOS GALET* de chez *SUPRA*

Le poêle *LEIOS GALET* de 8 kW a été commercialisé en 2006. Sa chambre de combustion comprend une arrivée d'air sous le bac, jouant le rôle d'air primaire et secondaire. Une partie de l'air est conduit sur la vitre, permettant un nettoyage constant de celle-ci. Le bac de réception des granulés est éloigné de la sortie de la vis sans fin (environ 15 cm). Ce point implique une chute assez haute des granulés et permet de mieux briser les cendres pour les conduire au bac à cendres.

2.1.3 La plateforme expérimentale

Tous les essais furent réalisés sur la même plateforme expérimentale. Cette plateforme schématisée en Figure 2-5 respecte les recommandations des normes de test de ce type d'appareils (EN NF 13 229 [48] [49] [50], NF EN 13 240 [51] [52] et EN NF 14785 [53]). Les différents appareils de chauffage domestique testés étaient placés sur une balance. Un joint à eau permettait de séparer l'appareil du conduit de cheminée. Cela permettait un suivi de la consommation de bois de l'appareil. Toute la tuyauterie utilisée était isolée et à simple flux. Après un premier coude à 90° se trouvait un extracteur de fumées. Cet élément pouvait être activé ou non (tirage forcé à 12 Pa, tirage naturel). Ensuite, après avoir traversé le mur et

un second coude à 90° (dû à un T), le conduit menait à la cheminée. Un thermocouple placé dans la salle expérimentale permettait un suivi de la température intérieure.

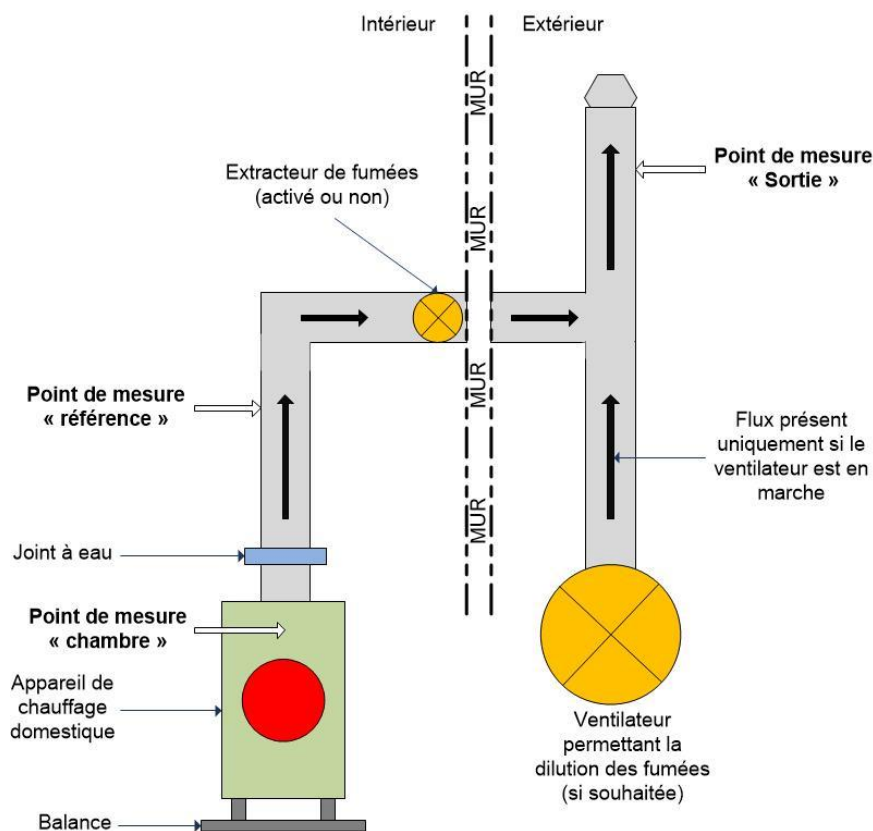


Figure 2-5 : Schéma de la plateforme d'essai

Un ventilateur placé à l'extérieur permettait de pulser de l'air dans le conduit via le T placé à la sortie du mur. Les fumées pouvaient donc être diluées environ onze fois si le ventilateur était en marche. Cette installation comportait trois points de mesures :

- Point de mesure « chambre » : placé juste après la chambre de combustion, dans le corps même de l'appareil de chauffage (uniquement sur l'appareil à bûche prototype) ;
- Point de mesure « référence » : à une distance précise de l'évacuation de l'appareil (1,78 m) et respectait la norme NF EN 13229 [48] ;
- Point de mesure « sortie » : avant l'évacuation des fumées dans l'air ambiant.

Pour chaque campagne d'essai, des prélèvements étaient réalisés au point de mesure « référence ». Les autres points de prélèvements n'ont été utilisés que lors de campagnes spécifiques (décrites en 2.5.6). Différents prélèvements/analyses pouvaient être réalisés sur chacun de ces points de mesures :

- Mesure de la température du milieu gazeux ;
- Analyse des gaz classiques de combustion (O_2 , CO, NO_x , ... ; décrit en 2.2.1) ;
- Mesure de la concentration en COV (décrit en 2.2.2) ;
- Prélèvements des TSP et des HAP (décrit en 2.3.2) ;
- Mesure de la granulométrie des particules (décrit en 2.3.3) ;
- Prélèvement des particules pour analyser leur composition en OC/EC (décrit en 2.4.2) ;
- Prélèvement des particules pour la microscopie (décrit en 2.4.3).

2.2 Les mesures directes des émissions de gaz

L'objectif de cette partie est de décrire de manière exhaustive les différents systèmes d'analyses des émissions gazeuses mis en place pour réaliser ce travail.

2.2.1 O₂, CO, NO_x,

Les gaz classiques de combustion étaient analysés en continu à l'aide de deux appareils de mesures. Cela permettait d'obtenir une robustesse des résultats mais aussi d'éviter une erreur de mesure systématique. Ces deux appareils mettaient en œuvre différentes technologies d'analyses. Le *TESTO 350XL* analyse la composition des fumées (O₂, CO, NO_x, SO_x) via des cellules photochimiques. Le CO₂ n'est pas mesuré, mais calculé à partir de la valeur d'O₂ et de la nature du combustible. Pour ce qui est du *PG350* de chez *HORIBA*, différentes méthodes de quantification étaient appliquées selon les gaz analysés :

- O₂ : détecteur paramagnétique ;
- NO : détecteur basé sur le principe de chimiluminescence ;
- CO, CO₂ et SO_x : infra-rouge non dispersif.

Pour le *TESTO*, le prélèvement était réalisé directement dans le conduit de fumées via une ligne non-chauffée. Une cartouche de dessiccant permettait de protéger plus efficacement l'appareil de l'humidité, ainsi qu'un système Peltier. Les fumées étaient diluées 10 fois pour les appareils à granulés et 20 fois pour les appareils à bûches. Cette dilution permettait d'éviter une saturation des cellules, et donc une perte en précision de mesure.

Le circuit de prélèvement pour le second analyseur était plus complexe. Une buse de prélèvement (*PSP 4000*) munie d'une cartouche limitant le passage des résidus solides de combustion (fibre de quartz) était placée sur le conduit et régulée en température à 160°C. Ensuite une ligne chauffée, régulée elle aussi à 160°C, conduisait les gaz à une station d'épuration. Cette station d'épuration (*PSS 5*) était équipée d'un système Peltier pour sécher les fumées puis d'un élément filtrant les derniers résidus solides. Ensuite, une fois les fumées sèches et propres, elles étaient conduites à l'analyseur sans aucune dilution. Ainsi, l'appareil permettait d'obtenir une grande précision de mesure. La Figure 2-6 présente la courbe d'évolution du CO et de l'O₂ selon les deux systèmes d'analyses effectués sur un essai de vérification des systèmes de mesure sur un appareil à granulés. Le *PG 350* présente des pics plus importants de CO que le *TESTO 350XL* pour les concentrations basses (inférieur à 2000ppm), et inversement pour les concentrations plus élevées (supérieur à 2000ppm). Néanmoins, les moyennes sur l'essai sont similaires (442,9 et 443,7ppm pour le *TESTO 350XL* et le *PG 350*) et les courbes se suivent parfaitement. Pour ce qui est de l'O₂, le *TESTO 350XL* semble avoir un temps de réponse légèrement plus rapide. Les valeurs restent néanmoins très proches, conduisant les moyennes sur l'essai à des niveaux semblables (13,48 et 13,46% pour le *TESTO 350XL* et le *PG 350*). La comparaison entre les résultats d'analyses pour le CO et l'O₂ de ces deux appareils est donc validée.

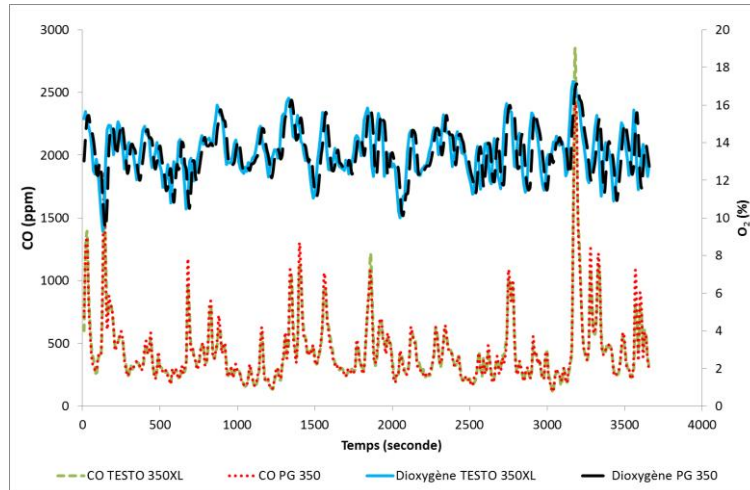


Figure 2-6 : Suivi de l'évolution de la concentration en CO et en O₂ dans les fumées par les deux appareils d'analyses sur un essai de calibrage

En ce qui concerne le NO, les deux appareils présentent des résultats légèrement différents. La Figure 2-7 présente les résultats de suivi du NO. Le *TESTO 350XL* a tendance à surestimer la concentration de NO dans les fumées, mais les deux courbes suivent les mêmes évolutions. La mesure de l'analyseur *PG 350* sera considérée comme la plus juste à la vue des technologies utilisées. Ainsi, pour connaître la concentration de NO en un point, celle du *PG 350* sera gardée. En revanche, pour effectuer une comparaison cohérente entre deux points de mesures, les concentrations données par les deux *TESTO 350XL* (calibrés et vérifiés avant la mesure) seront observées.

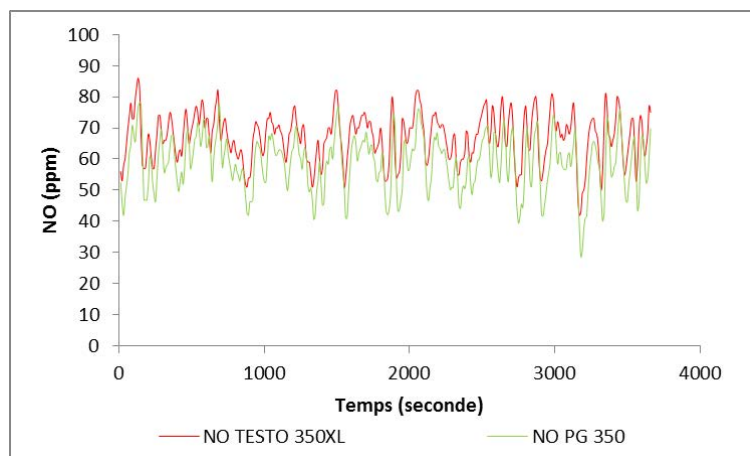


Figure 2-7 : Suivi de l'évolution de la concentration en NO dans les fumées par les deux appareils d'analyses sur un essai de calibrage

Lors de campagne d'essais avec différents points de mesure en simultanée, l'analyseur *PG 350* était toujours placé au point de référence. Deux *TESTO 350XL* étaient alors utilisés. Un premier était placé au point de référence et un second à un autre point de mesure (dépendant du but de la campagne d'essai). Ainsi, la comparaison entre les valeurs de chacun des *TESTO* permettait de mettre en évidence l'évolution des composés gazeux présents dans les fumées, et le *PG 350* apportait une robustesse des mesures au point de référence.

2.2.2 Les COV

Les COV étaient mesurés à l'aide d'un analyseur *Graphite 52 M* de chez *Environnement SA*. Deux fours équipés de Détecteur à Ionisation de Flamme (FID) permettent de déterminer la concentration en CH₄ et en HCT des fumées. Les gaz étaient prélevés dans le conduit à l'aide d'une buse *PSP 4000* (identique à celle utilisée pour l'analyseur *PG 350*). Globalement, les analyseurs COV présents sur le marché analysent les gaz à 160°C. Ainsi, le pistolet et la ligne de prélèvement étaient réglés à cette même température. L'appareil était calibré à l'aide d'un mélange de méthane et de propane concentré respectivement à 204,3 et 205,3 ppm. Ainsi, les deux fours devaient donner une réponse de :

- 204,3 ppm Equivalent CH₄ pour le four CH₄ ;
- 820,2 ppm Equivalent CH₄ pour le four HCT (204,3 + 3*205,3).

Avant chaque essai, un zéro était réalisé via un groupe de pompage *HC51M/VOC71FID*, nommé plus simplement « pompe air zéro ». Le choix de réaliser le zéro via cette pompe plutôt que dans la pièce est justifié par le fait que les COV présents dans la pièce proviennent majoritairement de la combustion.

Lorsque des prélèvements étaient réalisés en deux points de mesure de manière simultanée, un système particulier était mis en œuvre, résumé schématiquement dans la Figure 2-8. Deux électrovannes placées avant l'entrée de l'appareil permettaient de passer d'un point de mesure à l'autre, selon une temporisation définie.

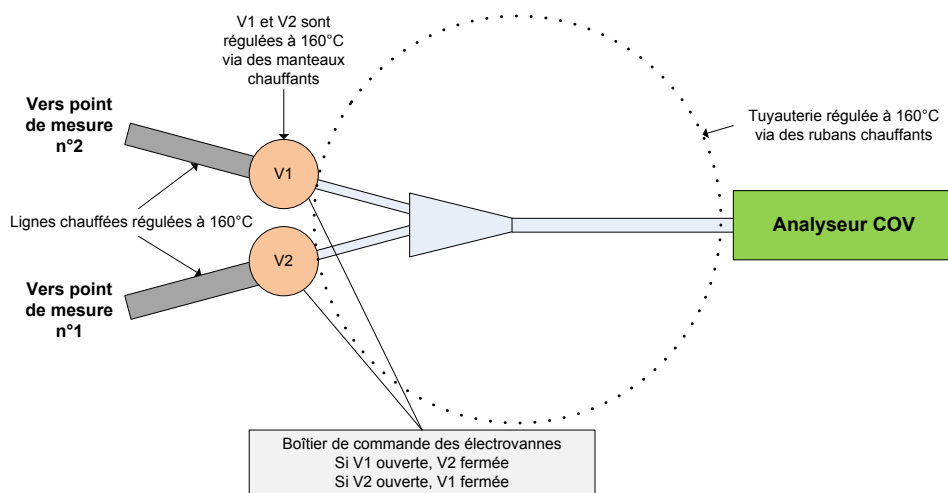


Figure 2-8 : Schéma du système permettant une mesure en deux points pour l'analyseur COV

La valeur de la temporisation était définie selon un protocole particulier. Une ligne était montée et placée dans le conduit de fumées, l'autre était montée mais laissée à l'air libre. Selon la longueur de la ligne, le temps de retour au zéro de la pièce variait. La temporisation était définie comme le temps de retour à une concentration en COVT de 2 ppm équivalent CH₄, car le temps de stabilisation de la valeur sur zéro est particulièrement longue dans cette typologie d'appareil (environ 5 minutes). Finalement, la temporisation appliquée à tous les essais avec deux points de mesure des COVT a été définie à 90 secondes.

2.3 Les mesures en direct des émissions de particules

Cette partie décrit l'intégralité des systèmes de prélèvements des particules qui ont été utilisés durant ces travaux.

2.3.1 Les caractéristiques communes

Comme présenté précédemment (1.2.2.2), les COV peuvent condenser pour reformer des particules solides. Les prélèvements de particules et de COV doivent donc être réalisés à une même température pour être précis. En effet, cela permet d'éviter deux phénomènes :

- si les COV sont prélevés à une température plus importante que les particules : une part des COV aura condensé et sera comptabilisée à la fois dans la mesure gazeuse (COV) et dans la fraction solide (TSP) conduisant à une surestimation des émissions ;
- si les COV sont prélevés à une température inférieure à celle des particules : une part des COV sera gazeuse pour la mesure de la fraction solide et aura condensé lors de la mesure gazeuse. Cette part ne serait pas comptabilisée par aucun des deux systèmes, conduisant à une sous-estimation des émissions.

L'analyseur COV fonctionne à une température fixe de 160°C. C'est pourquoi l'intégralité des analyses et des prélèvements sera réalisée à cette température.

Que ce soit dans le cas des prélèvements TSP, HAP ou l'utilisation de l'impacteur manuel (IM), des filtres en fibres de quartz sont utilisés. La norme PrEN 16510 [54] décrit une méthode de pesée des filtres quartz qui se déroule en sept étapes :

- mise à l'étuve à 180°C durant 1 h minimum ;
- mise au dessiccateur durant 4 h précisément ;
- pesée du filtre (obtention de « m₀»);
- réalisation de l'essai ;
- mise à l'étuve à 180°C durant 1 h minimum ;
- mise au dessiccateur durant 4 h précisément ;
- psée du filtre (obtention de « m₁»);

Cette méthode sera appliquée à tous les filtres quartz utilisés. Les pesées seront toujours réalisées sur la balance d'analyse XSE de chez METTLER TOLEDO avec une précision de pesée apparente de 10 µg. La Figure 2-9 présente le circuit suivi par les filtres.

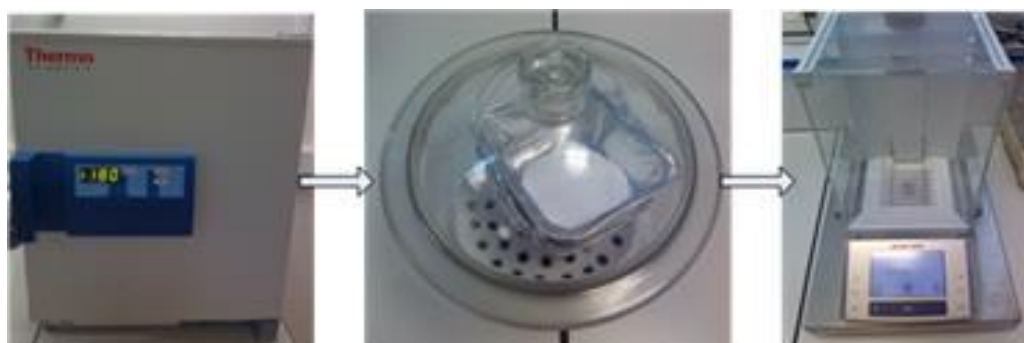


Figure 2-9 : Circuit de pesée des filtres quartz

Au vu de l'importance de cette mesure sur les facteurs d'émission calculés, il est particulièrement nécessaire d'effectuer une étude de la précision de notre système de pesée selon le diamètre du filtre (90 mm : TSP et HAP ; 47 et 25 mm : IM). Ainsi, douze filtres de chaque diamètre ont été pesés dix fois. Cela permet d'étudier la répétabilité de la pesée sur un même filtre, mais aussi la précision moyenne du protocole. Le principal élément difficile à maîtriser est la reprise en humidité du filtre une fois placé sur la balance. La précision de mesure sur les plus petits filtres devrait être bien meilleure que sur les plus grands. En effet, leur surface d'échange et donc d'absorption d'humidité est beaucoup plus faible, ce qui induit une reprise en masse moins rapide. Le Tableau 2-2 présente le listing des pesées pour les filtres d'un diamètre de 90 mm, et la Figure 2-10 représente ces résultats sous forme de boîte à moustaches.

Filtres	m1 (g)	m2 (g)	m3 (g)	m4 (g)	m5 (g)	m6 (g)	m7 (g)	m8 (g)	m9 (g)	m10 (g)
1	0,53241	0,53189	0,53245	0,52983	0,53068	0,53278	0,53337	0,53433	0,53318	0,53109
2	0,51815	0,5214	0,51766	0,52217	0,52188	0,51999	0,52214	0,52282	0,51796	0,52073
3	0,52865	0,52959	0,52932	0,52573	0,52979	0,52947	0,52768	0,52843	0,52849	0,52939
4	0,52515	0,5289	0,52639	0,524	0,52317	0,52703	0,52688	0,52798	0,52467	0,527
5	0,52842	0,52877	0,53018	0,52726	0,53088	0,53011	0,53155	0,52825	0,52745	0,52717
6	0,53052	0,5295	0,52935	0,52548	0,52893	0,52638	0,52714	0,52892	0,52971	0,52595
7	0,52921	0,52879	0,52831	0,52919	0,52945	0,52793	0,53042	0,52955	0,52867	0,52976
8	0,53041	0,5279	0,52518	0,52725	0,52929	0,52914	0,52685	0,52686	0,52679	0,52825
9	0,52362	0,52018	0,5232	0,52165	0,523	0,52551	0,5255	0,52481	0,52148	0,5231
10	0,51985	0,52136	0,52234	0,52293	0,51963	0,52271	0,51966	0,52279	0,52022	0,52225
11	0,5166	0,51815	0,51894	0,5169	0,52065	0,51902	0,51897	0,51934	0,52115	0,5187
12	0,5225	0,52224	0,5196	0,52322	0,52203	0,51987	0,52234	0,51971	0,51882	0,52164

Tableau 2-2 : Résultats des pesées successives des filtres quartz vierges de 90mm de diamètre

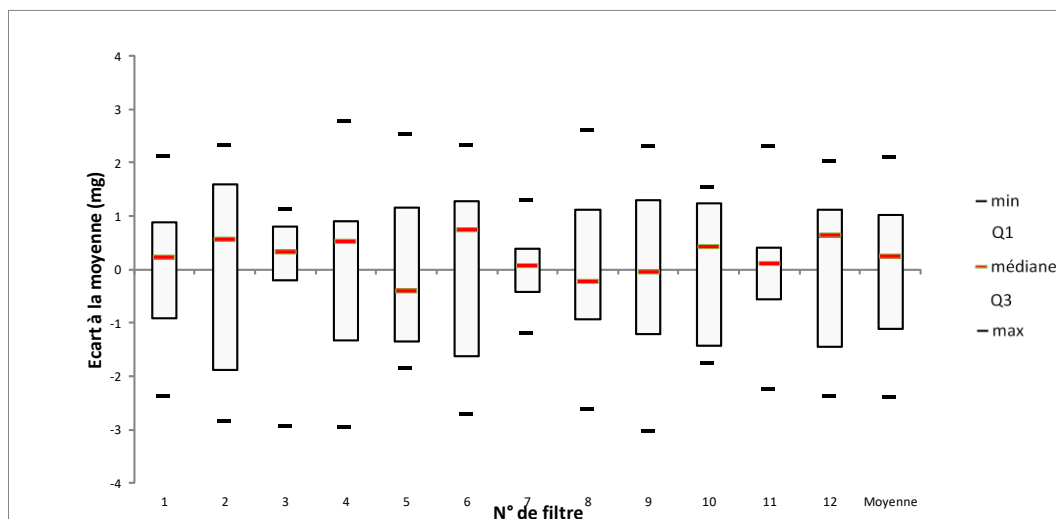


Figure 2-10 : Ecart à la moyenne des pesées pour chaque filtre quartz vierge de 90mm de diamètre

Les résultats globaux sont les suivants :

- filtre de 90 mm : précision à ± 1 mg;
- filtre de 47 mm : précision à $\pm 0,2$ mg;
- filtre de 25 mm : précision à $\pm 0,05$ mg.

Les résultats de l'étude de précision de la pesée semblent prouver que le paramètre nuisant est bel et bien la reprise en humidité du filtre. Ainsi, un diamètre de filtre élevé entraîne une surface d'échange élevée, et donc une reprise en humidité élevée. Pour vérifier de manière certaine cette théorie, l'erreur standard (Équation 9) de chacun des diamètres a été calculée puis mise en relation avec la surface du filtre. La Figure 2-11 présente la courbe d'évolution des erreurs standards en fonction de la surface du filtre. Malgré la présence d'uniquement trois points sur cette courbe, une droite de corrélation peut être tracée. Son coefficient de 0,99 prouve bien que l'erreur provient principalement du phénomène décrit précédemment.

$$\text{erreur standard} = \frac{\text{ecart type}}{\text{nbr d'essai}^{0,5}}$$

Équation 9 : Formule de calcul de l'erreur standard

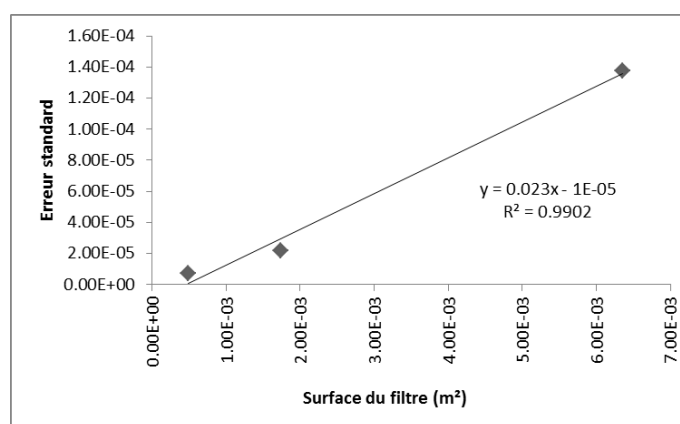


Figure 2-11 : Surface du filtre en fonction de l'erreur standard

Un autre point commun à tous les prélèvements de matière particulaire réalisés était l'isocinétisme (phénomène décrit en 1.3.4). Pour rappel, cette méthode de prélèvement permet d'éviter une ségrégation des particules et donc de bien prendre en compte dans l'analyse la totalité des particules.

Pour les mêmes raisons que l'isocinétisme, les buses de prélèvements étaient toutes orientées de la même manière. La Figure 2-12 détaille ce point.

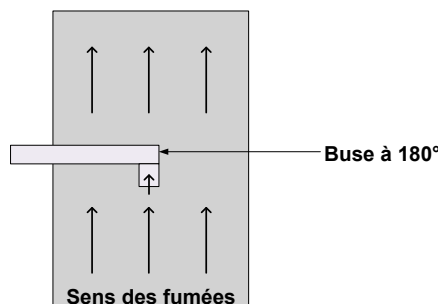


Figure 2-12 : Orientation de la buse dans les fumées

Ainsi, pour tous les prélèvements de la fraction solide des fumées, les buses étaient orientées à 180°C afin de prélever dans le sens du flux.

2.3.2 Les particules totales (TSP) et hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)

2.3.2.1 Les TSP

Pour le prélèvement des TSP, un ensemble de prélèvement isocinétique de chez *TECORA* était utilisé. L'ensemble était composé d'une canne régulée en température (Figure 2-13, a), d'un porte-filtre dans une enceinte régulée (Figure 2-13, b) ainsi que d'une pompe *ISO EF* (conforme aux normes EN 13284-2 [111], PrEN 16510 [54] et USEPA M5 [112], M17 [113]).



Figure 2-13 : Canne de prélèvement isocinétique (a), porte-filtre quartz (b) et porte-filtre démonté (c)

Le porte-filtre est composé d'un support (fritté en quartz) pour éviter que le filtre ne se déchire, ainsi que d'un thermocouple placé après le filtre. La Figure 2-13 (c) est une photographie du porte filtre démonté. L'unité de contrôle du débit *Isostack plus control unit and logger* permettait de régler le débit de gaz de manière précise. Une buse de 10mm de diamètre était utilisée. La température des fumées moyenne des essais sur des appareils à bûches et à granulés étant respectivement de 300 et 150°C, les débits de pompe étaient réglés à 14 et 10 L.min⁻¹ pour respecter l'isocinétisme.

2.3.2.2 Les HAP

Dans le cas des prélèvements HAP, un système de verrerie était ajouté (détaillé en Figure 2-14) à la canne de prélèvement TSP, conformément à la NF X 43-329 [114].

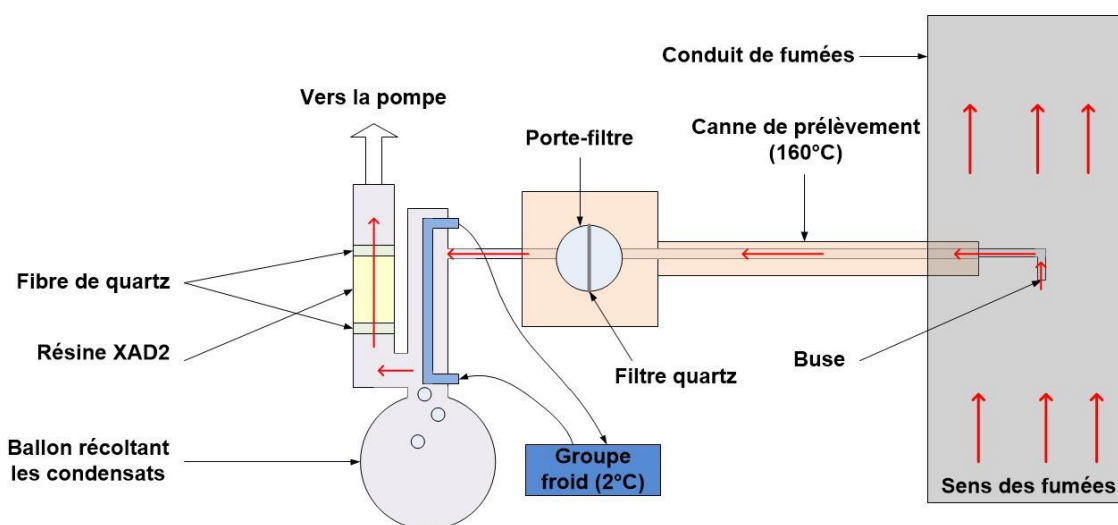


Figure 2-14 : Schéma du système de prélèvement des HAP

Dans un premier temps, les fumées traversaient le filtre en fibres de quartz. La fraction solide des particules étaient alors piégée, mais aussi une petite quantité de HAP par adsorption. Ensuite, les fumées passaient dans un condenseur maintenu à 2°C où une grande partie des HAP condensait avec l'eau. Les condensats étaient récupérés dans un ballon prévu à cet effet. Pour terminer, les fumées traversaient une colonne de résine XAD2. Cette résine a la particularité d'adsorber particulièrement efficacement les composés organiques et de rester stable lors de son analyse. Les débits de pompe étaient réglés de la même manière que pour les TSP (décrit en 2.3.2.1).

2.3.3 La granulométrie des particules

Deux appareils permettent de mesurer la granulométrie des particules : l'Impacteur Electrique Basse Pression (*ELPI*, Figure 2-15 a) et l'Impacteur Manuel (IM, Figure 2-15 b), tous deux produits par *DEKATI*. L'*ELPI* permet une mesure en continu en nombre sur une plage granulométrique de 30 nm à 10 µm. L'IM permet quant à lui une mesure globale en masse sur un essai avec une plage granulométrique comprenant les PM₁₀, les PM_{2,5} et les PM₁. L'*ELPI* a été utilisé sur l'intégralité des expérimentations réalisées, alors que l'impacteur manuel ne fut utilisé que quelques fois. En effet, les résultats obtenus via l'*ELPI* permettront de mieux répondre à la problématique de cette thèse. De plus, les résultats pourront être comparés à ceux obtenus via la microanalyse X (présentée en 2.4.3.4).



Figure 2-15 : Impacteur Electrique Basse Pression (*ELPI*, a, image issue du mode d'emploi) et Impacteur Manuel (IM, b, image issue du mode d'emploi)

L'*ELPI* a été conçu par l'Université de Tampere en Finlande. Toutes les particules contenues dans l'échantillon gazeux recueilli sont chargées électriquement et circulent dans un impacteur à étages, les séparant selon leurs diamètres au travers des douze niveaux. Lors de l'impact, les particules libèrent leurs charges électriques (de l'ordre du fA). Ces charges électriques sont mesurées en temps réel et permettent de compter les particules qui ont impactées dans les différents niveaux. Ces derniers sont composés de deux plateaux : plateaux de collection : dotés d'orifices par lesquels pénètrent les particules pour effectuer un virage serré et atteindre ainsi les plateaux inférieurs ; plateaux de collection : plateaux sur lesquels les particules terminent leurs courses. Ces diamètres de virages de coupure, appelés ajutages, permettent de séparer les particules selon leur diamètre aérodynamique. Cet appareil peut aussi estimer la granulométrie des particules en masse. Pour ce faire, l'appareil considère que l'aérosol prélevé avait une densité par défaut de 1 g.cm⁻³ (modifiable par l'utilisateur mais restant commune à toutes les granulométries). Ensuite, selon la concentration des particules, une masse leur est attribuée et un facteur d'émission est calculé pour chaque granulométrie.

De nombreuses études démontrent que la mesure en masse de l'*ELPI* n'est pas fiable [115]. En effet, l'aérosol prélevé ne possède pas une densité fixe. De plus, les plateaux de l'*ELPI* n'étant pas chauffés, une petite partie des COV peuvent condenser sur les plateaux. Dans cette étude, seule la réponse en nombre de l'*ELPI* sera considérée afin d'éviter de baser les résultats sur des hypothèses biaisées. En revanche, pour permettre de suivre la composition des fumées pendant une charge complète, l'aérosol prélevé était dilué dix fois. Cela permettait d'éviter une surcharge des plateaux et ainsi réduire le phénomène de rebond.

L'IM est un impacteur en cascade, comme l'*ELPI*. En revanche, les particules ne sont pas chargées électriquement et vont simplement impacter sur des filtres quartz dans les trois étages. Le delta de masse de ces filtres permet de connaître la granulométrie en masse des particules émises tout au long de l'essai. L'impacteur manuel est placé dans un manteau chauffant régulé à 160°C. Après une trentaine de minutes, l'appareil est intégralement à 160°C (même les plateaux, contrairement à l'*ELPI*), limitant ainsi une condensation dans le système. Pour que l'impacteur fonctionne de manière optimale, les fumées doivent circuler à un débit de 10 L.min⁻¹ dans le système.

2.4 Les analyses indirectes

Cette partie détaille l'intégralité des analyses réalisées sur les échantillons prélevés via les différentes méthodes décrites précédemment.

2.4.1 Les HAP

Après le prélèvement (décrit en 2.3.2.2), l'intégralité de la verrerie était rincée au dichlorométhane. Les rinçats étaient conservés, ainsi que les condensats et les résines. Une fois l'ensemble conditionné, ces éléments étaient envoyés en analyses à la société CARSO possédant le label COFRAC selon la norme NF X43-229 [114]. L'analyse des échantillons se fait sur la globalité du prélèvement (filtre + résine + condensat) :

- Filtre et résine en extraction soxhlet ;
- Condensat extraction liquide/liquide ;
- Les phases organiques sont réunies pour être concentrées en vue de l'analyse.

Le rendu du résultat de l'analyse du prélèvement est donné en quantité de molécules pour le prélèvement global. Les quantités de HAP16 pouvaient alors être déduites de ces analyses. Les HAP16 sont : Naphtalène, Acénaphtylène, Acénaphtène, Fluorène, Phénanthrène, Anthracène, Fluoranthène, Pyrène, Benzo (a) anthracène, Chrysène, Benzo (b) fluoranthène, Benzo (k) fluoranthène, Benzo (a) pyrène, Dibenzo (a,h) anthracène, Benzo (ghi) pérylène, Indéno (1,1,3 cd) pyrène.

La première étape d'analyse consiste à mesurer la transmittance et/ou l'absorbance du filtre à l'aide d'un laser pour obtenir un niveau initial. Ensuite, le filtre est chauffé jusqu'à une température de 870°C (selon le protocole de mesure EUSAAR2) sous un flux d'hélium. Le pic numéro 1 correspond au OC, qui soumis à cette élévation de température, se volatilise en partie et est capté par l'analyseur FID (DéTECTEUR à Ionisation de Flamme). Lors de l'émission de ce pic, la mesure de la transmittance est constante, prouvant le caractère incolore du OC.

De l'OC peut rester piégé dans le filtre. Durant l'augmentation de température, cet OC piégé va se transformer en PC. Le filtre noircit alors, d'où la diminution de la mesure de la transmittance durant cette phase. Une fois la température maximale atteinte, l'intégralité du OC piégé a été transformée. C'est aussi à cette température maximale que les Carbonates de Carbone (carbonates inorganiques, pic numéro 2) sont émis et analysés par le FID.

Une fois la transmittance stable, la température redescend jusqu'à 500°C, puis un flux oxydant passe sur l'échantillon. L'OC transformé en PC est oxydé puis mesuré par le FID (pic numéro 3) entraînant un éclaircissement du filtre. La transmittance croît donc au fur et à mesure de cette oxydation, jusqu'à son niveau de départ. Ce point s'appelle le Split Point. Il représente le moment où la totalité du OC a été oxydée. Une fois ce point dépassé, la totalité du Carbone restant sur le filtre (uniquement du EC) est oxydée (pic numéro 4).

La dernière phase correspond à une étape de calibration où l'appareil injecte une dose connue de CH₄ dans l'analyseur FID (pic numéro 5). Ensuite, via une intégration de la courbe du pic de calibration, les autres quantités des différents 'Carbone' peuvent être déduites.

2.4.2.2 Choix d'un standard

Trois standards d'analyses existent : EUSAAR 2 ; NIOSH 870 ; NIOSH 930. Cavalli et al. [116] ont démontré que le standard EUSAAR 2 améliorerait la pyrolyse durant l'analyse. Néanmoins, les deux autres standards chauffent le filtre à des températures plus élevées. Dans tous les cas, chaque protocole mesure la même quantité de TC. En revanche, le ratio d'OC varie [117] [118] [119]. Le Tableau 2-3 présente les résultats d'analyses des trois standards sur trois filtres typiques de la combustion de bois de couleur différente (prélèvement à 10L.min⁻¹ durant 10 min). Pour chacun de ces filtres, les analyses selon le standard NIOSH 870 semblent plus répétables. C'est pourquoi ce standard a été choisi, et sera utilisé tout au long de l'étude.

Standard	Répétition	Ecart maximum			
		OC ($\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$)	EC ($\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$)	OC ($\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$)	EC ($\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$)
Filtre brun clair					
Niosh 930	1	65.42	2.44		
	2	84.46	3.65	20.99	1.21
	3	86.41	3.42		
Niosh 870	1	67.53	2.64		
	2	79.53	3.12	20.8	0.51
	3	88.33	3.15		
EUSAAR 2	1	56.25	5.45		
	2	69.98	4.96	30.35	1.99
	3	86.6	3.46		
Filtre brun foncé					
Niosh 930	1	384.24	9.1		
	2	360.5	11.51	136.52	122.06
	3	247.72	131.16		
Niosh 870	1	394.6	8.7		
	2	305.05	7.55	89.55	8.75
	3	345.1	16.3		
EUSAAR 2	1	326.61	7.28		
	2	231.63	119.16	130.59	111.88
	3	362.22	28.93		
Filtre noir					
Niosh 930	1	59.3	27.42		
	2	54.79	42.29	8.87	14.87
	3	63.66	34.91		
Niosh 870	1	66.19	38.75		
	2	61.08	36.06	6.15	4.57
	3	60.04	40.63		
EUSAAR 2	1	51.95	34.06		
	2	58.76	42.02	9.51	19.05
	3	49.25	53.11		

OC : Carbone Organique
EC : Carbone Élémentaire

Tableau 2-3 : Résultats d'analyse OC/EC de filtre de combustion avec trois standards

La canne de prélèvement choisie pour les prélèvements OC/EC a été développée via le projet européen *EN PME TEST* dans lequel le LERMAB était impliqué. Cette canne de prélèvement possède la particularité de faire deux mètres de long mais aussi de servir de résistance chauffante. La Figure 2-17 présente le système.

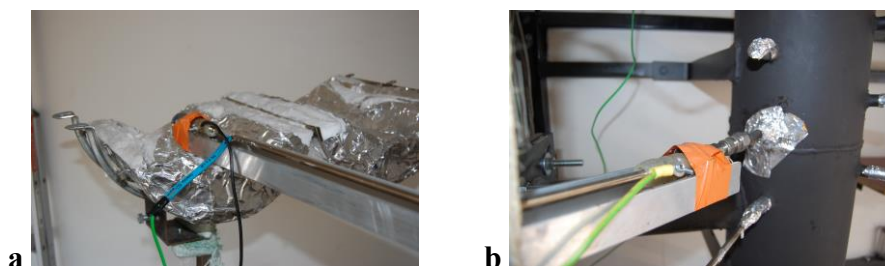


Figure 2-17 : Photographie de la canne de prélèvement OC/EC (a : thermocouple et électrode côté verrerie ; b : électrode côté conduit)

Cette canne est non-isolée et permet par sa longueur une stabilité de la température de prélèvement, qu'importe si celle-ci est inférieure ou supérieure à la température des fumées. La canne est composée d'une buse de prélèvement classique, séparée par un tube en TEFLON de la canne de deux mètres. Cette longue canne est ensuite séparée par un autre tube TEFLON du porte-filtre, puis est reliée à la pompe. Le porte filtre était placé dans une enceinte régulée à 160°C. Il s'agit du même porte-filtre que celui utilisé pour les prélèvements TSP ou HAP (Figure 2-13, b). Les températures de l'enceinte du porte filtre et de la canne sont régulées en

fonction du thermocouple placé en aval du filtre (qui doit donner une réponse de 160°C). En ce qui concerne la canne, un autre thermocouple et deux électrodes sont soudés sur sa surface. Etant isolée à chaque extrémité par des tubes TEFLON, elle peut être traversée par un courant et se comporte comme une résistance. Un boîtier de régulation permet de maîtriser la température de la canne via une régulation du courant envoyé.

2.4.2.3 Précision de détection du Carbone Organique

Avant chaque série de mesures, une vérification de la calibration de l'appareil est effectuée. Une solution de saccharose (concentration : 3,504 µgC/µL) permet de réaliser cette calibration. L'équation chimique du saccharose est C₁₂H₂₂O₁₁. Comme le Carbone du saccharose est du OC, cette solution va être utilisée pour vérifier la précision de détection du OC par l'analyseur. Une quantité connue (5 µL, 10 µL, 15 µL ou 20 µL) de cette solution est déposée sur un filtre en quartz préalablement chauffé à 870°C. Une fois l'eau évaporée, ce filtre est analysé. Dans un premier temps, la précision de la seringue doit être vérifiée pour éviter une erreur systématique non causée par l'analyseur. Pour ce faire, le saccharose injecté était pesé.

La Figure 2-18 présente les résultats, sous forme de boîte à moustaches, de cette première analyse. La seringue présente ainsi une constance de qualité de prélèvement (qu'importe la quantité de saccharose prélevée) montrant une très bonne précision. Comme aucune erreur systématique n'apparaît clairement et que la variation en masse du Carbone injecté varie extrêmement peu, l'erreur de la seringue peut être considérée comme nulle.

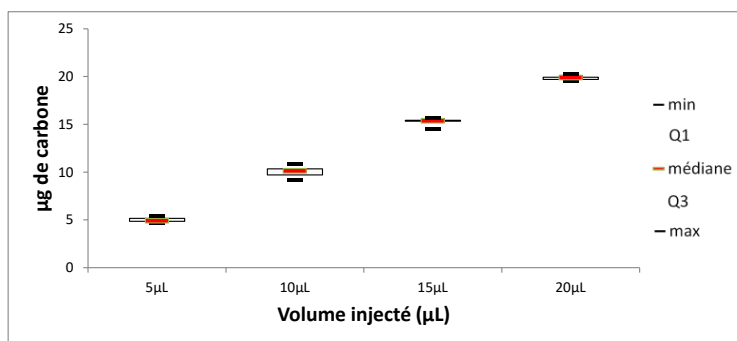


Figure 2-18 : Résultats de l'étude de précision de la seringue

Maintenant que la précision de la seringue est connue, la précision de réponse de l'analyseur peut être calculée. La Figure 2-19 représente les résultats d'analyses des filtres pesés précédemment.

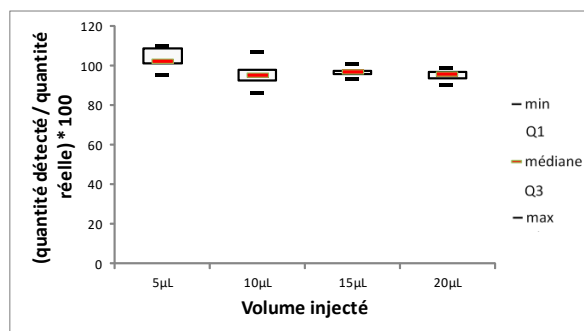


Figure 2-19 : Précision de réponse de l'analyseur OC/EC

A priori, une quantité très faible de saccharose induit une précision plus faible. Avec les niveaux d'émissions de la combustion de bois, cette incertitude ne se posera pas. L'appareil semble légèrement sous-détecter les concentrations plus élevées. La précision de mesure de l'appareil est en tout cas très bonne pour du OC seul, comprise entre 90% et 105%. Ces résultats sont cohérents avec le travail de Schauer et al. [120].

2.4.2.4 Précision de détection du Carbone Élémentaire et du ratio OC/EC

Un filtre de prélèvement issu de la combustion du bois contient un mélange d'OC et d'EC. De plus, les filtres sont plutôt sombres. La mesure de l'absorbance par voie laser devient alors impossible. Afin d'estimer la précision d'analyse sur des filtres sombres, 25 filtres sur lesquels du charbon (noir) en poudre avait été projeté ont été analysés. Cette poudre de charbon, après une analyse élémentaire, montre une composition de 95,4% (sec à l'air) de Carbone. Le filtre était pesé avant et après le soufflage de poudre carbonée afin de connaître la masse de Carbone déposée. Une fois cette masse multipliée par le pourcentage massique de Carbone de notre poudre, nous obtenons le TC déposé sur le filtre. Le taux de détection moyen du TC est de 106,6%. Cette surestimation ne peut pas être le résultat d'une adsorption parasite sur la poudre de Carbone. En effet, la quantité de gaz adsorbé dépend de la masse de poudre. Or, la surestimation est constante, quelle que soit la masse. Ainsi, ces 6,6% supplémentaires sont bel et bien dus à la mesure. Le ratio OC est en moyenne de 22% mais varie énormément (Figure 2-21, gauche). En revanche, rien à priori ne permet de conclure si la répartition OC/EC mesurée par l'appareil est juste. Pour résoudre ce problème, une deuxième série de mesure de 25 filtres sur lesquels étaient ajoutés de la poudre de Carbone et une masse connue de saccharose a été réalisée (10 µL). Via le même procédé que précédemment, la masse d'OC ajoutée sur le filtre est connue. Cette valeur peut être ensuite soustraite à la quantité totale d'OC, permettant ainsi un nouveau calcul du ratio OC.

La Figure 2-20 présente les taux de détection de TC des analyses des filtres avec de la poudre et des filtres avec de la poudre et du saccharose. Le taux de détection de TC sur le charbon pur semble donc être supérieur de 10% à la réalité. En revanche, si le taux d'OC augmente (ce qui est le cas en rajoutant du saccharose), le taux de détection semble se rapprocher de la réalité, soit 103% en moyenne.

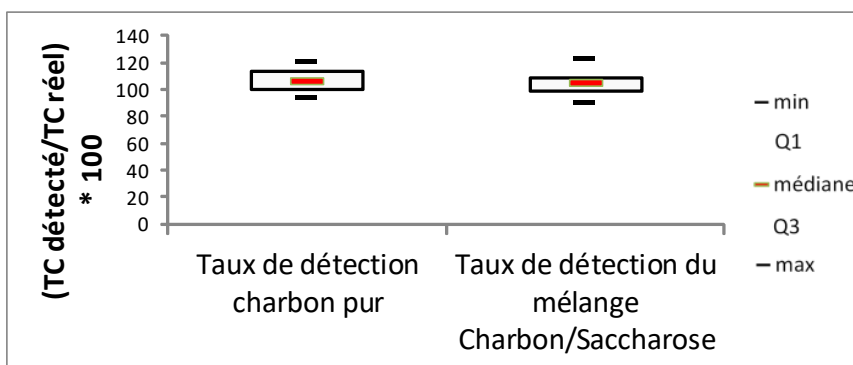


Figure 2-20 : Précision de l'analyseur OC/EC dans le cas de filtres sombres

La Figure 2-21 présente cette fois la précision de mesure du OC uniquement. Deux boîtes à moustaches figurent sur ce graphique : la première représente le taux d'OC mesuré sur les filtres n'ayant reçu que de la poudre de charbon ; la seconde représente le taux d'OC du charbon uniquement sur les filtres ayant reçu de la poudre de charbon et du saccharose.

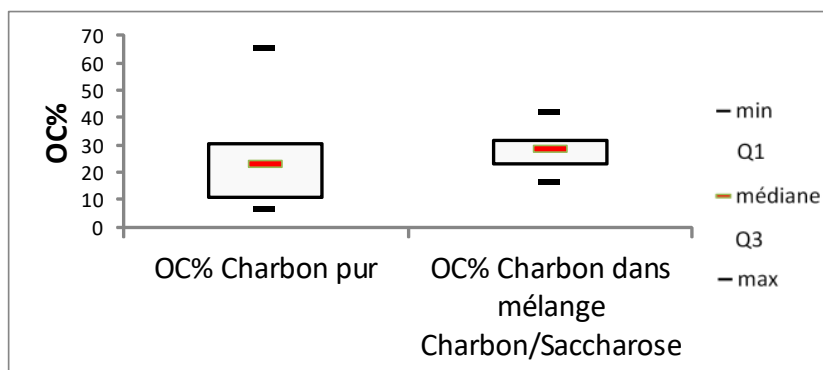


Figure 2-21 : Précision de mesure du ratio OC de l'analyseur OC/EC dans le cas de filtres sombres

Deux éléments importants sont visibles sur cette figure :

- l'appareil parvient à donner un taux d'OC sur les filtres sombres avec une précision de plus ou moins 10%. Cela est clairement vérifié puisque le taux de détection de l'OC du charbon dans le cas des filtres ayant reçu le mélange est dans la même gamme;
- l'appareil est plus précis si du saccharose est ajouté.

L'analyseur OC/EC parvient donc à analyser des filtres de combustion de bois en présentant une précision de mesure (avec un ajout de saccharose) équivalente à ceux de la littérature malgré une absence de mesure optique [121] [117].

2.4.2.5 Définition d'un protocole d'analyse

Pour permettre la comparaison des résultats obtenus sur l'analyseur OC/EC pour les différents échantillons analysés durant l'étude, une procédure doit être suivie. La Figure 2-22 récapitule cette procédure. Pour chaque filtre quartz de 90 mm, trois analyses seront réalisées :

- la première au centre du filtre ;
- la seconde comprise entre 23 et 32,5 mm du centre du filtre ;
- la dernière sur la bordure du filtre (entre 32,5 et 40 mm).

Ces trois différentes zones (de surfaces identiques) sont traversées par une quantité différente de gaz et ne présentent donc pas la même quantité de particules. En réalité, le filtre ne peut pas être découpé en trois surfaces réellement distinctes. Néanmoins, cela permet d'estimer les variations sur un même filtre. Etant donné que les trois parties ont une surface quasi-semblable, une moyenne des trois analyses peut être calculée pour obtenir la composition globale moyenne du filtre en OC et EC.

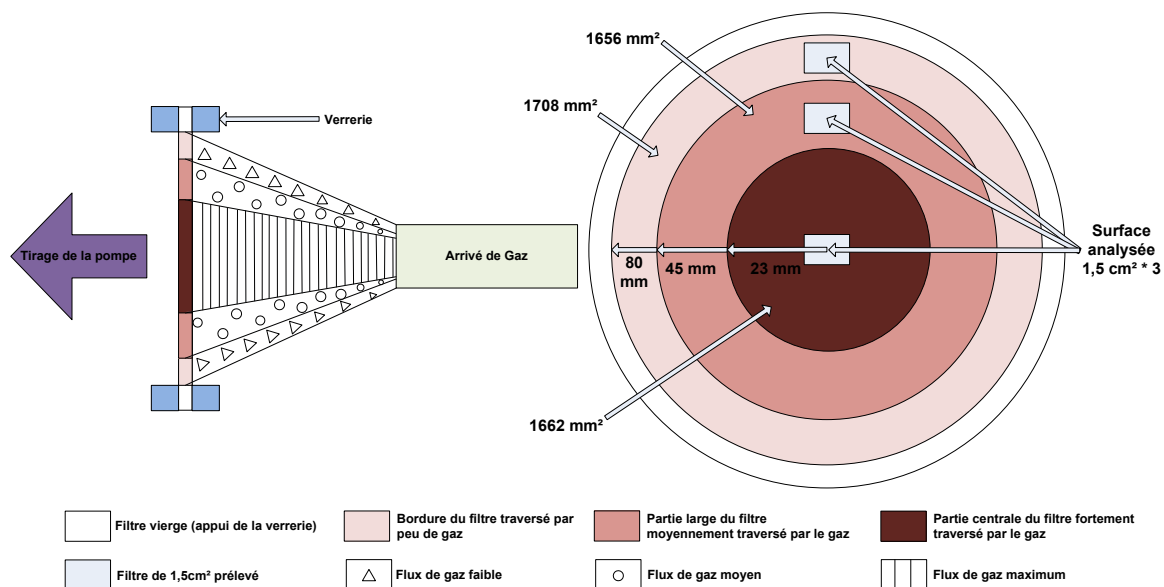


Figure 2-22 : Schéma des flux traversant le filtre

Afin de valider la procédure choisie, une analyse a été répétée trois fois sur un filtre brun clair, puis trois fois sur un filtre plus foncé. La Figure 2-23 présente les zones prélevées sur le filtre brun clair, et le Tableau 2-5 présente les résultats de ces analyses pour les deux filtres.

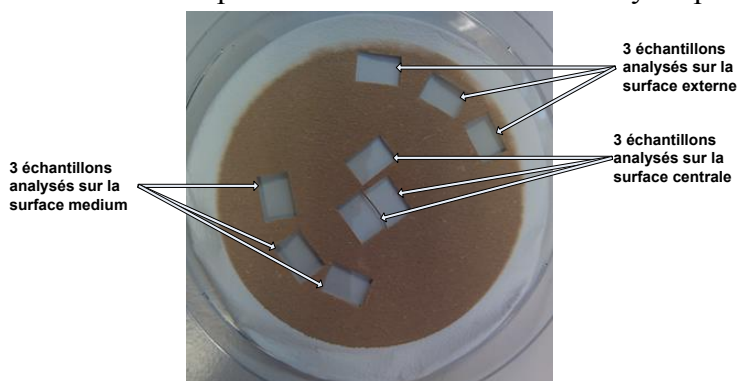


Figure 2-23 : Filtre brun clair de vérification de la procédure choisie

Les résultats du Tableau 2-4 prouvent bien que, dans le cas du filtre brun clair les trois surfaces décrites précédemment n'ont pas été traversées par la même quantité de gaz car elles ne présentent pas la même quantité de Carbone :

- la zone externe présente en moyenne 28% d'OC en moins et 34% d'EC en moins que la zone centrale, soit 28,5% de TC en moins ;
- la zone médium présente en moyenne 6% d'OC et 17% d'EC en moins que la zone centrale, soit 6,4% de TC en moins.

En revanche, la moyenne du rapport $OC/(OC+EC)$ semble constante, qu'importe la zone analysée. Cela signifie que la composition particulaire du filtre est constante à sa surface. Les résultats globaux pour le filtre sont quant à eux très répétables, avec de faibles variations :

- variation maximale de $3,84 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ pour OC ;
- variation maximale de $0,95 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ pour EC ;
- variation maximale de 0,94 pour le rapport $OC/(OC+EC)*100$.

Pour le filtre foncé, les trois zones sont aussi bien distinctes:

- la zone externe présente en moyenne 28,5% d'OC en moins et 52,6% d'EC en moins que la zone centrale, soit 33,2% de TC en moins ;
- la zone médium présente en moyenne 5,5% d'OC et 21,8% d'EC en moins que la zone centrale, soit 8,1% de TC en moins.

En revanche, le rapport $OC/(OC+EC)*100$ ne semble plus aussi constant comme lors de l'analyse du filtre brun clair. Dans le cas du filtre foncé, le rapport a tendance à diminuer au centre du filtre. Les résultats globaux restent très répétables avec de faibles variations :

- variation maximale de $3,59 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ pour OC ;
- variation maximale de $5,57 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ pour EC ;
- variation maximale de 3,84 pour le rapport $OC/(OC+EC)*100$.

La procédure choisie est donc validée pour tous les types de filtres et sera utilisée pour toutes les analyses OC/EC de l'étude. Le débit de prélèvement est fixé à $10 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ pour une durée maximale de 10 minutes. Cette méthode de prélèvement permet d'éviter une surcharge des filtres et ainsi une perte de précision lors de la mesure. Les ajouts de sucrose seront réalisés lorsque les filtres seront totalement noirs, ou quand une forte variation des résultats sera observée.

Filtre Brun Clair

	Externe			Medium			Centrale			Résultats globaux pour le filtre		
	OC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	EC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	(OC/(OC+EC)) * 100	OC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	EC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	(OC/(OC+EC)) * 100	OC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	EC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	(OC/(OC+EC)) * 100	OC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	EC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	(OC/(OC+EC)) * 100
1 ^{er} essai	82.29	2.26	97	104.44	2.53	98	114	2.92	98	100.24	2.57	97.49
2 nd essai	76.79	1.85	98	102.17	2.77	97	111.35	3.8	97	96.77	2.81	97.24
3 ^{ème} essai	81.78	1.67	98	109.12	1.92	98	110.94	1.98	98	100.61	1.86	98.17
Moyenne	80.29	1.93	97.66	105.24	2.41	97.76	112.10	2.90	97.48	99.21	2.41	97.63
Ecart-type	3.04	0.30	0.34	3.54	0.44	0.47	1.66	0.91	0.77	2.12	0.49	0.48
Moyenne TC	82.2			107.7			115.0					

Filtre Foncé

	Externe			Medium			Centrale			Résultats globaux pour le filtre		
	OC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	EC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	(OC/(OC+EC)) * 100	OC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	EC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	(OC/(OC+EC)) * 100	OC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	EC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	(OC/(OC+EC)) * 100	OC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	EC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	(OC/(OC+EC)) * 100
1 ^{er} essai	92.89	10.61	90	117.29	20.45	85	116.75	18.57	86	108.98	16.54	87.06
2 nd essai	83.53	10.03	89	114.74	14.38	89	125.69	20.23	86	107.99	14.88	88.09
3 ^{ème} essai	80.88	12.06	87	112.88	19.11	86	122.41	30.18	80	105.39	20.45	84.26
Moyenne	85.77	10.90	88.68	114.97	17.98	86.51	121.62	22.99	84.21	107.45	17.29	86.47
Ecart-type	6.31	1.05	1.46	2.21	3.19	2.04	4.52	6.28	3.46	1.85	2.86	1.99
Moyenne TC	96.7			133.0			144.6					

Tableau 2-5 : Résultats des analyses effectuées sur le filtre brun clair et sur le filtre foncé pour la vérification de la procédure

2.4.2.6 Adsorption des filtres vierges

Lors de la calibration de l'appareil, les filtres sont préalablement chauffés à 870°C. Ainsi, le Carbone (organique ou élémentaire) est dégradé et permet de réaliser la calibration sur un filtre totalement vierge en Carbone. Lors de prélèvements de particules dans les fumées, les filtres n'ont été chauffés qu'à 180°C en étuve (pour réaliser la pesée initiale). Cette température ne permet pas la dégradation des molécules carbonées présente. Ainsi, lors de l'analyse de filtres ayant prélevées des particules dans les fumées, le Carbone initial doit être retranché au TC pour connaître les émissions réelles. Pour évaluer cette valeur initiale, onze mesures ont été réalisées sur différents filtres. Le Tableau 2-6 présente les résultats de ces onze mesures.

Filtre n°	OC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)	EC ($\mu\text{g.cm}^{-2}$)
1	1.24	0.00
2	1.26	0.00
3	1.50	0.00
4	2.09	0.36
5	1.89	0.13
6	2.23	0.35
7	2.45	0.00
8	2.92	0.05
9	1.72	0.05
10	1.01	0.10
11	3.01	0.36
Moyenne	1.94	0.13
Ecart-type	0.67	0.15

Tableau 2-6 : Résultats obtenus lors de l'analyse de filtres quartz vierge

Les valeurs obtenues sont très proches les unes des autres, prouvant une homogénéité des filtres. Ainsi, aux résultats obtenus après analyses de filtres de prélèvements, 1,94 $\mu\text{g.cm}^{-2}$ d'OC et 0,13 $\mu\text{g.cm}^{-2}$ d'EC seront retirés.

2.4.3 La microscopie

2.4.3.1 Le prélèvement

Des prélèvements spécifiques ont été réalisés à chaque essai afin de réaliser de l'imagerie (2.4.3.3) et de la microanalyse X (2.4.3.4) sur les particules. Les filtres utilisés pour ce type de prélèvement devaient présenter quatre caractéristiques essentielles :

- tenue à une température de 160°C ;
- texture non-fibreuse ;
- composition neutre pour ne pas polluer les particules durant la microanalyse X ;
- porosité la plus fine possible pour prélever l'intégralité des particules.

Les filtres en polycarbonate d'un diamètre de 47 mm avec une porosité de 200 nm de la société *Fioroni Filter* répondent à ces critères et seront donc utilisés pour la microanalyse X et pour l'imagerie (ces méthodes étant non-destructives). Une canne de prélèvement a été développée et est présentée dans la Figure 2-24. Un thermocouple placé en aval du filtre permet de connaître précisément la température du flux gazeux qui a traversé le filtre.

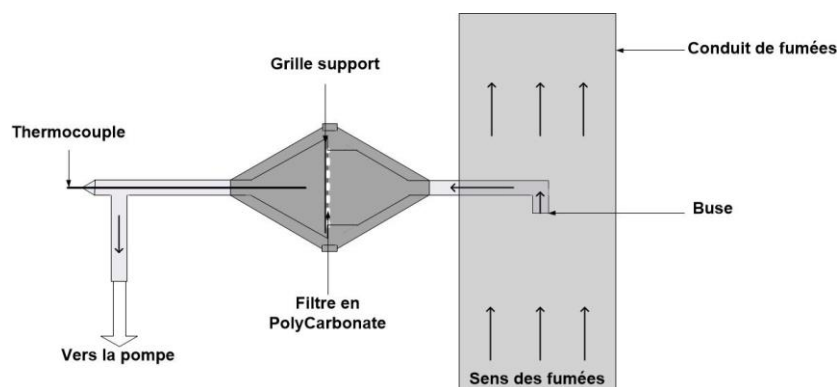


Figure 2-24 : Système de prélèvement sur filtre en polycarbonate pour microscopie (analyse et imagerie)

La grille de support permet d'éviter que le filtre ne se déchire, mais définit aussi une trame d'impaction identique à chaque prélèvement. En effet, la porosité de la grille oblige les fumées à traverser le filtre en certains points. Cette trame sera utilisée pour réaliser des automatismes dans les procédures. La Figure 2-25 est un schéma expliquant le phénomène.

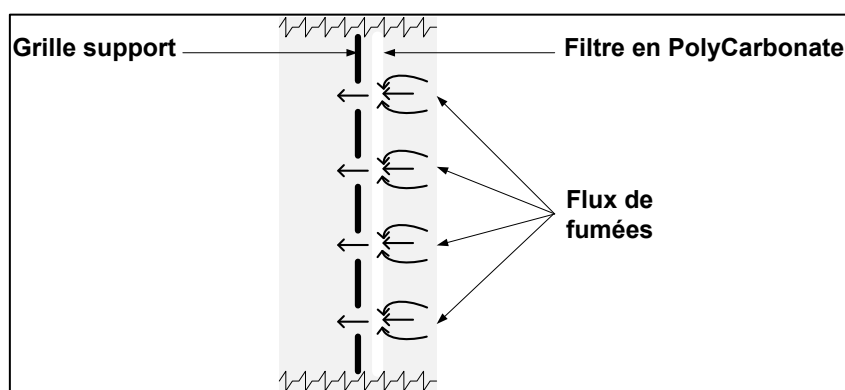


Figure 2-25 : Schéma des flux de fumées au travers du filtre forcées par la grille support

Durant le prélèvement, les filtres ne devaient pas être surchargés. En effet, un filtre surchargé présente deux principaux problèmes :

- la composition élémentaire d'une particule spécifique ne pourra être réalisée ;
- l'acquisition d'une image d'une particule spécifique sera complexe.

Le protocole suivant permet d'éviter ce phénomène de surcharge. Le débit de prélèvement a été fixé à $1 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. La durée de prélèvement dépend de l'appareil de chauffage testé :

- poêle à granulés ou appareil à bûches performant: 30 secondes ;
- appareil à bûches non performant (avant 2006): 20 secondes.

Le prélèvement étant d'une durée très courte, aucun système de régulation de température n'était installé, c'est pourquoi le système était placé en étuve à 160°C avant le prélèvement. En revanche, les prélèvements au point de mesure « sortie » avec une dilution active duraient quatre minutes et un manteau chauffant était alors installé autour du porte-filtre.

Pour éviter que des composés organiques s'adsorbent sur le filtre avant le prélèvement, ce dernier était placé en étuve à 180°C . Après le prélèvement, le filtre était placé dans une boîte de Petri fermée pour éviter tout dépôt de poussière et/ou adsorption de polluant.

2.4.3.2 Principe de la microscopie électronique

Ce paragraphe se réfère en grande partie à l'ouvrage «*Microscopie à Balayage et microAnalyses*» édité par le Groupement International de Microscopie Electronique à Balayage et microAnalyses [122].

Le principe de base d'un Microscope Electronique à Balayage (MEB) est de générer des images de la proche voire extrême surface d'un échantillon soumis à un faisceau électronique.

Deux grands types de source existent pour générer ce faisceau :

- les émissions thermoioniques ;
- l'émission par effet de champ.

Le Tableau 2-7 présente les différentes caractéristiques de chaque type de source.

Type de canon	W	LaB ₆	W-ZrO (Schottky)	W (tunnel)
Travail de sortie ϕ (eV)	4.5	2.7	2.8	4.5
Température de travail T (K)	2700	1900	1800	300
Densité du courant d'émission J_0 (A.cm ⁻²)	3	30	10 ⁴ - 10 ⁵	10 ⁴ - 10 ⁶
Diamètre du cross-over (μ m)	50	20	0.015	0.005 - 0.01
Brillance de la sonde à 20kV B (A.cm ⁻² .sr ⁻¹)	10 ⁵	10 ⁶	10 ⁷ - 5 10 ⁸	> 10 ⁹
Dispersion énergétique (eV)	1.5 - 2	1 - 2	0.7 - 1	0.2 - 0.4
Durée de vie émetteur (h)	100	1000	>>1000	>>1000
Pression au canon (Pa)	10 ⁻³ -10 ⁻⁴	10 ⁻⁵ -10 ⁻⁶	10 ⁻⁸	< 10 ⁻⁸

Tableau 2-7 : Caractéristiques des différentes sources [122]

Ainsi, les émissions thermoioniques sont produites par des filaments Tungstène ou des pointes de monocristaux (hexa borure de lanthane: LaB₆ ; hexa borure de cérium: CeB₆ ; ...). Les canons à émission de champ (Field Emission Gun : FEG) permettent d'obtenir des images avec une très haute résolution (1-5 nm) du fait en particulier de la forte densité du courant d'émission.

Les échantillons (ici, nos particules), sont soumis à ce faisceau électronique dont la source est accélérée et concentrée dans la colonne (jusqu'à 30 kV de tension d'accélération). La surface irradiée (plutôt un micro volume) des échantillons émet différents rayonnements qui vont être détectés, amplifiés et convertis en images ou en spectres sur des écrans, il s'agit :

- d'électrons secondaires ;
- d'électrons rétrodiffusés ;
- d'électrons Auger ;
- de photons (rayons X).

La Figure 2-26 permet de définir chacun de ces rayonnements.

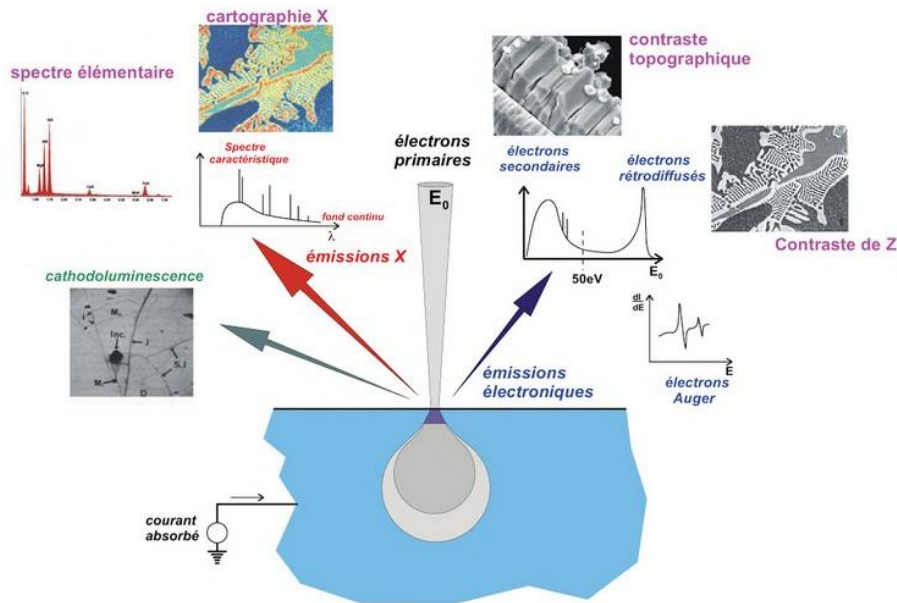


Figure 2-26 : Principales émissions électroniques et électromagnétiques due aux interactions d'un faisceau d'électrons avec un échantillon [122]

Les rayonnements d'électrons Auger n'ont pas été utilisés dans notre étude. La Figure 2-27 présente schématiquement les trois types d'émissions détectés et interprétés lors des sessions de microscopie électronique et utilisés dans notre cas.

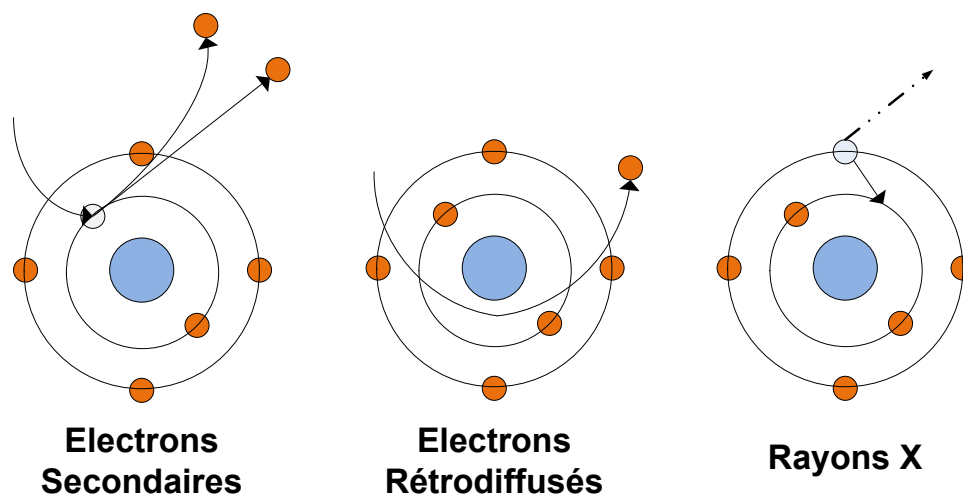


Figure 2-27 : Les différentes émissions dues à un bombardement d'électrons primaires

Les émissions d'électrons secondaires sont issues des couches électroniques externes composant l'échantillon irradié par le faisceau primaire. L'image obtenue par leur détection est une représentation de l'extrême surface de l'échantillon avec une très bonne résolution et profondeur de champ (3D). Dans notre étude, la détection et la numérisation d'images issus des électrons secondaires collectés par le détecteur dans la colonne 'inlens' ont permis de visualiser la surface de particules spécifiques jusqu'à une taille de 20 nm.

Les émissions d'électrons rétrodiffusés sont issus de l'interaction d'électrons émis par la source ayant traversés l'atome à proximité du noyau. Ce type d'émission permet l'acquisition

d'une image plus en « profondeur » dans l'échantillon mais avec une résolution limitée. Ces électrons sont sensibles à la densité de la matière puisque qu'ils sont en relation directe avec le noyau atomique composant l'échantillon, cette propriété particulière (information chimique) a été largement exploitée dans ce travail pour la détection des particules « plus lourdes chimiquement » par rapport à des filtres composés de Carbone.

Lors du balayage de la surface de l'échantillon (micro-volume irradié), les électrons du faisceau primaire peuvent interagir avec des électrons des couches proches (K, L) du noyau des atomes constitutifs de la matière en entraînant une éjection électronique et une excitation de ces atomes. Une désexcitation quasi immédiate des atomes se produit et se traduit par un transfert d'un électron d'une couche supérieure (L, M) vers une couche interne (K, L). Dans cette transition, l'électron perd de l'énergie en émettant un rayon X. Ces rayons X sont spécifiques en énergie et en longueur d'onde de chaque atome d'interaction et des transitions engendrées. Des spectromètres couplés au MEB permettent l'acquisition de spectres en énergie (EDS) ou de pics en longueur d'onde (WDS) qui sont spécifiques des atomes irradiés par le faisceau primaire (analyse qualitative). Dans certaines conditions d'état de préparation des échantillons, le comptage des photons par le spectromètre permet une quantification (titre massique en %) de la proportion de cet élément dans la surface analysée.

L'utilisation d'un spectromètre en sélection d'énergie (EDS) nous a permis, à l'aide d'un logiciel adapté de connaître la nature chimique des particules au sein des filtres.

2.4.3.3 Imagerie des particules

La majorité des images acquises dans notre étude a été réalisée à partir d'un MEB-FEG (SIGMA HD-VP. ZEISS) équipé d'un détecteur d'électrons secondaires placé dans la colonne (in-lens). Pour ces acquisitions effectuées sous vide secondaire (10^{-4} Pa), une évaporation (métallisation) de Platine sous plasma d'argon de deux minutes (environ 5 nm de Platine déposé) a été réalisée à l'aide d'un métalliseur (EM ACE 600 ; LEICA) pour éviter les effets de charge électronique du faisceau primaire sur nos échantillons.

Différents clichés ont été systématiquement réalisés :

- vue d'ensemble : milliers de particules ;
- zoom moyen : groupements de particules ou particules unitaires de tailles importantes (grandissement environ x10000) ;
- zoom important : particules de petite taille (grandissement de x40000 à x400000).

2.4.3.4 Détection et Microanalyse X automatique des particules

L'ensemble des microanalyses X de particules réalisées a été obtenu par l'utilisation d'un spectromètre à sélection d'énergie (EDS) couplé à un MEB à émission thermoioniques tungstène (1450VP ; LEO/ZEISS). La gestion automatisée de la détection des particules sur les filtres d'impaction (imagerie en électrons rétrodiffusés, Back Scattered Detection), de l'acquisition des données morphologiques des particules et de leur microanalyse qualitative ciblée (un spectre pour chaque particule) ainsi que l'ensemble des mouvements de la platine du MEB (déplacements filtres à filtres) a été programmée et gérée par le software INCA

FEATURE (Oxford-Instruments) en partie élaboré sur le modèle des ‘GSR Software’ (Gun Shot Residue) de la police scientifique. Différents paramètres du microscope ont été systématiquement appliqués :

- distance de travail (WD) de 15 mm pour la microanalyse (requête constructeur);
- diaphragme de 30 μm résolution optimale de la taille du faisceau primaire ;
- tension d’accélération à 20 kV suffisante pour la microanalyse des éléments lourds (Cu, Zn,...).

Un protocole a été élaboré afin d’apporter le plus de répétabilité possible à cette analyse. La première étape concerne la préparation des filtres. Plusieurs portions de filtre (8) ont été métallisées simultanément au Platine (métalliseur DESK4 ; DENTON VACCUM).

La seconde étape a consisté dans le paramétrage des conditions de détection des particules par le microscope en utilisant au mieux les propriétés ‘contrastantes’ des électrons rétrodiffusés et la microanalyse EDS. L’image du filtre obtenue à partir du détecteur BSD est un assemblage de pixels en niveau de gris. Un réglage des seuils du signal de niveaux de gris de l’image permet la sélection d’un spectre d’intérêt le plus représentatif contenant des particules étudiées. La Figure 2-28 présente le signal de niveaux de gris d’une image (b) et la détection des particules résultantes (a). Dans notre cas, en fixant systématiquement ces seuils à 218 et 255 (détermination et choix après de longs et nombreux essais) la majeure partie des particules d’intérêt impactées sur le filtre est détectée et distinguée par l’algorithme du logiciel et donc peut être analysée avec le spectromètre.

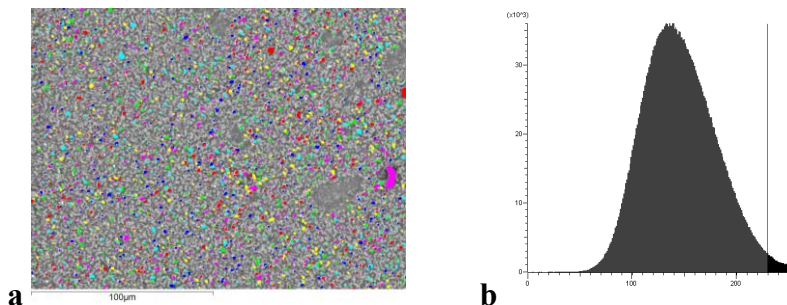


Figure 2-28 : Particules auto-détectées (a) selon des seuils de niveaux de gris définis (b)

Les fluctuations dans le temps de la taille (intensité) du faisceau électronique primaire nous ont conduits à développer une routine de réajustement de cette valeur à une valeur initiale choisie de 1.8 nA s’appliquant à chaque changement de zone d’analyse et avant la détection ‘seuillée’ des particules par l’algorithme. En effet, pour ces mesures souvent effectuées pendant de longues périodes (9 heures) et sans forcément d’opérateur à proximité (travail de nuit), de telles variations de l’intensité initiale du faisceau dues en grande partie ‘au temps de vie du filament de tungstène’ auraient considérablement altéré l’auto-détection des particules et/ou auraient demandé un ajustement de seuils de niveaux de gris (réglages contraste et brillance du détecteur) à chaque changement de zone d’analyse.

De la même manière, le paramétrage concernant la microanalyse X a été optimisé pour réaliser des analyses représentatives, répétables et cohérentes. Ainsi, pour chaque particule détectée, un temps de 3 secondes a été choisi pour effectuer chaque pointé de microanalyse X.

Enfin pour que les analyses automatisées soient les plus représentatives de l'ensemble des particules en présence sur le filtre sans engendrer d'analyses trop longues en temps, deux groupes de cercles d'impaction (Figure 2-29) ont été identifiés et programmés (positions) pour chaque filtre. Le grandissement a été fixé à x2600 (surface balayée de 8112 μm^2). Un tel grandissement a permis la détection et l'analyse de particules supérieure à 120 nm de diamètre. En raison de la durée évaluée des analyses la détection et la microanalyse X ont été limités à 1000 particules pour chaque cercle d'impaction (temps total pour un filtre : 3 heures en moyenne). La Figure 2-29 présente schématiquement les zones analysées.

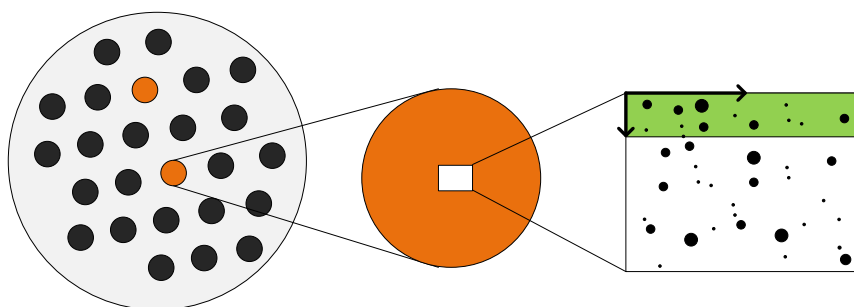


Figure 2-29 : Protocole schématique des champs de détection et d'analyses

En revanche, ce protocole présente des limites et des biais de détection et d'analyses, résumés de manière schématique dans la Figure 2-30.

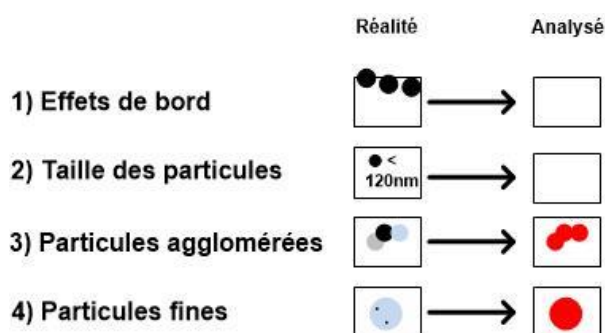


Figure 2-30 : Limites et biais

Pour éviter les effets de bord, nous avons choisi de ne pas analyser les particules au bord de la zone de détection (Figure 2-30, point 1). Les particules ayant un diamètre inférieur à 120 nm n'ont pas été détectées par l'appareil (Figure 2-30, point 2).

Lorsque plusieurs particules sont en contact les unes avec les autres, la détection automatique les considère comme une particule unique de taille plus importante (Figure 2-30, point 3).

Le biais d'analyse le plus fréquent se déroule lorsque de fines particules se sont agglomérées sur une particule plus grosse. Seule la particule la plus grosse sera détectée dans ce cas, et son analyse élémentaire sera faussée par la nature des particules en présence à la surface (Figure 2-30, point 4). La statistique d'occurrence de ces deux derniers biais est directement liée au chargement en particules du filtre lors du prélèvement dans la cheminée, d'où l'importance de réaliser les analyses sur des filtres non surchargés.

2.5 Les campagnes expérimentales

Cette partie définit les différentes campagnes expérimentales réalisées durant ce travail, ainsi que leurs objectifs respectifs.

2.5.1 Emissions d'un foyer fermés à bûches et d'un poêle à granulés

Le premier point concerne la caractérisation des émissions types d'un poêle à granulés et d'un foyer à bûches. En effet, les poêles à granulés sont de plus en plus présents sur le marché européen. De plus, leur technologie étant complètement différente, la caractérisation des émissions permet de mieux comprendre les mécanismes de formations des particules.

Ces essais ont été réalisés sur le poêle à granulés *LEIOS GALET* de 8 kW et sur le foyer fermé à bûche prototype de 12 kW. Tous les prélèvements étaient répétés un minimum de trois fois, avec l'appareil à température (c'est-à-dire quand les émissions de CO paraissent stables dans le temps) au point de référence. Les prélèvements TSP et HAP se déroulaient durant au moins une heure. Les prélèvements pour l'analyse OC/EC duraient une dizaine de minutes et ceux pour la microscopie 25 secondes (durées idéales issues de l'optimisation des méthodes d'analyses décrite en 2.4.2 et 2.4.3). Lors des essais sur le poêle à granulés, l'extracteur de la plateforme n'était pas actif puisque le poêle comporte un ventilateur régulant les flux dans la chambre de combustion. Les résultats de ces essais sont présentés en 3.1.1.

2.5.2 Etude des trois phases de combustion

Avant de pouvoir étudier l'influence de différents paramètres, les types d'émissions dues à la combustion d'une bûche doivent être définis. Comme la combustion d'une bûche est décomposée en trois phases, la première campagne expérimentale avait pour but de caractériser les types de particules émises en fonction de la période de combustion.

Pour réaliser cet objectif, des bûches de hêtre sèches et sans écorces (HSECse) ont été brûlées dans le poêle *WABI*. Les charges de bois (le calcul des masses était réalisé en accord avec la norme NF EN 13 229 [48] [49] [50]) étaient calibrées et composées de deux bûches de masse équivalente. Ces essais ont été répétés trois fois. Le tirage était régulé pour obtenir une dépression de 12 Pa dans la chambre de combustion afin de gagner en répétabilité. Les prélèvements étaient réalisés au point de référence. La mesure de répartition granulométrique des particules a été réalisée via l'*ELPI*, car ce dernier permettait, via le traitement des données, de remonter aux émissions de chaque phase contrairement à l'impacteur manuel. A chaque essai, les prélèvements de TSP, OC/EC et microscopie était répété trois fois : une fois sur chacune des phases caractéristiques de la combustion d'une bûche. Alors que les prélèvements OC/EC et TSP recouvraient la plage entière de chacune des phases, le prélèvement pour la microscopie ne durait que 25 secondes à des périodes précises :

- phase d'allumage : 30 secondes après l'apparition des flammes ;
- phase homogène : quand les émissions de CO était au plus bas ;
- phase hétérogène : 60 secondes après la disparition des flammes.

Les trois phases étaient délimitées en temps réel. En effet, quand le pic d'émission dû à la phase d'allumage redescendait et que les émissions de CO se stabilisaient, les filtres étaient changés le plus rapidement possible car la phase homogène débutait. Cette phase se terminait à partir du moment où les flammes disparaissaient et les filtres étaient changés à nouveau.

Ces essais ont permis de déterminer le moment idéal pour les prélèvements OC/EC et microscopie. Ceux-ci se dérouleront donc durant la phase homogène pour la majorité des autres essais. La raison précise de ce choix ainsi que les résultats de ces essais sont présentés dans la partie 3.1.2.

2.5.3 Evolution selon la génération de l'appareil

L'état de l'art réalisé dans le cadre de ce travail a permis de mettre en évidence que les émissions du chauffage domestique au bois avaient été considérablement réduites de manière concomitante avec l'évolution des technologies des appareils, notamment pour les TSP. En revanche, aucune information ne permet de définir de manière claire l'évolution physico-chimique des particules émises.

Ainsi, les émissions de trois appareils de générations différentes (SUNFLAM, 2000 ; foyer fermé prototype, 2006 ; WABI, 2012) ont été caractérisées. Le combustible utilisé était du HSECse. Tous les essais ont été réalisés avec un tirage régulé à 12 Pa et à la puissance nominale de l'appareil, une fois l'appareil en température (globalement après 3 heures d'utilisation). L'intégralité des analyses présentées précédemment ont été appliquées lors de ces séries d'essais (mis à part la granulométrie en masse). Afin d'évaluer l'impact de l'arrivée d'air secondaire sur les émissions, une partie des essais réalisée sur le foyer prototype a été menée en obstruant l'arrivée d'air secondaire.

Ces séries d'essais ont donc permis de définir l'impact sur les émissions de différentes caractéristiques de conception, comme :

- isolation de la chambre de combustion ;
- présence d'une arrivée d'air secondaire ;
- dimensionnement optimisé de la chambre de combustion.

De ces différents paramètres ont pu être définis les impacts sur les caractéristiques physico-chimiques des particules de la génération même de l'appareil, indépendamment de l'impact que pourrait avoir l'utilisateur sur les émissions. Les résultats de cette étude sont présentés en 3.1.3.

2.5.4 Influence du mode d'allumage

Comme les émissions sont plus importantes lors de l'allumage de l'appareil, une série d'essais a été réalisée afin de mieux les caractériser. Cette série d'essais a aussi permis de tester deux types d'allumage :

- Allumage traditionnel : du bas vers le haut (Figure 2-31, b);
- Allumage inversé (Top & Down) : du haut vers le bas (Figure 2-31, a).



Figure 2-31 : Allumage Top & Down (a) et traditionnel (b)

L'allumage Top & Down étant préconisé pour tous les propriétaires de poêles à bûches étanches, c'est dans le poêle *WABI* que ces essais se sont déroulés. Pour chaque allumage, trois répétitions ont été réalisées. Le bois utilisé était toujours du HSECse et deux feuilles de papier journal permettaient l'allumage. Les masses des charges étaient identiques quel que soit le mode d'allumage testé. Les essais ont tous été menés en tirage naturel pour mieux simuler un allumage d'appareil chez un particulier. En revanche, afin de gagner en répétabilité, les essais ont tous été fait le même jour, évitant ainsi les variations climatiques et donc de tirage. Ainsi, le tirage moyen mesuré sur l'intégralité des essais était de 11 Pa avec très peu de variabilité. Toujours dans le but de simuler les émissions réelles des particuliers, les essais étaient considérés comme terminés au moment où les flammes s'éteignaient. En effet, un particulier insérerait une nouvelle charge de bois dans son poêle à ce moment précis.

Pour ce qui est des prélèvements, ils étaient intégralement réalisés au point de référence. L'analyseur COV et l'ELPI prélevaient en continu dans les fumées. Les TSP étaient prélevées dès que la porte de l'appareil était fermée. Les prélèvements OC/EC et microscopie se déroulaient simultanément durant 60 secondes après la fermeture de la porte et duraient respectivement 10 minutes et 20 secondes. Le temps d'attente de 60 secondes a été défini via des essais préliminaires où seules les deux feuilles de papier journal brûlaient. Ces essais duraient en moyenne 60 secondes. Ainsi, ce temps d'attente permettait d'être certain de prélevés des particules issues de la combustion du bois et non pas du papier journal. Les différents résultats obtenus sont présentés en 3.2.1.

2.5.5 Influence de l'utilisateur

Les pratiques des utilisateurs d'appareils de chauffage domestique au bois sont variées. L'action première qu'ils réalisent est le choix du combustible et le réglage de l'appareil. L'impact de la nature du combustible sur les émissions est un point clé à évaluer.

Les essais réalisés sur ce sujet faisaient partie du projet QUALICOMB. Ce projet ADEME porté par le CERIC était réalisé en collaboration avec deux fabricants (*Seguin Duteriez* et *D2I Invicta*) et le LERMAB. Un plan d'expériences a été mis en place afin de vérifier l'impact de différents paramètres sur la combustion :

- le calibre des bûches ;
- l'essence de bois ;
- l'humidité des bûches ;
- la présence ou non d'écorces ;
- l'allumage et le tirage ;
- l'utilisation des réglages d'entrée d'air.

Dans le cadre de ces essais, l'utilisateur a été défini comme passif. C'est-à-dire qu'aucune action n'était réalisée une fois l'essai démarré, même si le feu s'éteignait, afin de ne pas fausser les résultats et l'interprétation du plan d'expérience. Des essais ont été réalisés chez les fabricants et au CERIC, puis des essais complémentaires ont été réalisés au LERMAB afin d'affiner les premiers résultats du plan d'expériences et de mener des caractérisations des émissions plus complètes. Le Tableau 2-8 présente les critères du plan d'expériences et le Tableau 2-9 présente le listing des essais réalisés au LERMAB. Tous les essais présentés ont été répétés deux fois.

DEFINITION DES PARAMETRES:

Paramètres	Humidité	Essence	Calibre	Ecorce	Allumage/Tirage	Utilisation	Appareil
1	H1	E1	C1	Non	AT1	Bonne	PBS
2	H2	E2	C2	Oui	AT2	Mauvaise	IV

Avec:

H1	Taux d'humidité du combustible définit à un niveau 1 (sèché à 10% par exemple)
H2	Taux d'humidité du combustible définit à un niveau 2 (humide à 40% par exemple)
E1	Correspond à l'essence voulue dans la norme: le hêtre
E2	Sapin
C1	Combustible calibré (petites bûches par exemple)
C2	Combustible calibré (grosses bûches par exemple)
Non	Absence d'écorce sur le combustible
Oui	Présence d'écorce sur le combustible
AT1	Allumage effectué à chaud en tirage régulé (12 Pa)
AT2	Allumage effectué à froid en tirage naturel
Bonne	Arrivé d'air suffisante pour avoir une combustion en excès d'air
Mauvaise	Arrivé d'air insuffisante
PBS	Appareil nouvelle génération avec cinq étoiles flamme verte
IV	Veil appareil de chauffage

Tableau 2-8 : Définition des critères

N° de l'essai	Appareil	Allumage/Tirage	Humidité	Calibre	Ecorce	Essence	Utilisation
1	1	1	1	1	1	1	1
2	2	2	2	2	2	2	2
3	1	1	2	1	1	1	1
4	1	1	1	2	1	1	2
5	1	1	2	2	1	1	2
6	1	1	2	1	1	1	2
7	1	1	2	1	2	1	1
8	2	1	2	2	2	1	1
9	2	1	2	2	1	1	2
10	2	2	1	1	1	1	2
Complément 1	2	1	1	1	1	1	1
Complément 2	1	1	1	1	1	1	1

Tableau 2-9 : Description des essais LERMAB dans le projet QUALICOMB

Les appareils utilisés étaient le foyer *SUNFLAM* et le poêle *WABI*. Tous les prélèvements étaient réalisés au point de référence. Les prélèvements pour l'analyse OC/EC et la microscopie ont été menés durant la phase homogène (10 minutes et 25 secondes). Tous les autres prélèvements débutaient dès la fermeture de la porte du foyer et étaient arrêtés lorsque 99% de la charge avaient brûlé. Les HAP ont été prélevés sur tous les essais, sauf sur les essais supplémentaires. La granulométrie de particules était mesurée via l'*ELPI* et l'impacteur manuel. Les résultats seront présentés en 3.2.2 et 3.2.3.

2.5.6 Evolution des particules dans le conduit

Pour pouvoir comprendre les mécanismes de formation et l'évolution des particules dans le conduit, une série d'essais spécifiques a été définie. Cette série d'essais peut être décomposée en trois parties :

- compréhension de la formation des particules ;
- estimation des particules émises ;
- estimation des particules dans le champ proche.

Chacune de ces parties sont liées à une série d'essais spécifiques. En revanche, tous les essais ont été réalisés avec l'appareil prototype de 12 kW de 2006 car celui-ci est équipé d'un système de prélèvement juste après la chambre de combustion. Le combustible était du HSECse et les charges de bois étaient comparables entre chacun des essais. Ces charges étaient composées de deux bûches de masse similaires (environ 1,9 kg par bûches pour obtenir une charge de 3,8 kg cohérente avec le calcul de la norme NF EN 13 229, [48] [49] [50]). Le tirage était réglé pour obtenir une dépression de 12 Pa dans la chambre de combustion. Le suivi de la granulométrie des particules a été réalisé uniquement via l'*ELPI*, positionné de manière alternative sur les différents points de prélèvement.

La compréhension de la formation des particules était réalisée via un prélèvement au point de mesure chambre en simultanément d'un prélèvement au point de mesure de référence (Figure 2-32, mode 1). L'estimation des particules émises était évalué via un prélèvement au point de référence en simultanément d'un prélèvement au point de mesure sortie (Figure 2-32, mode 2). L'estimation des émissions dans le champ proche était réalisée via un prélèvement au point de référence en même temps qu'un prélèvement au point de sortie, où les fumées étaient diluées 10 fois (Figure 2-32, mode 3).

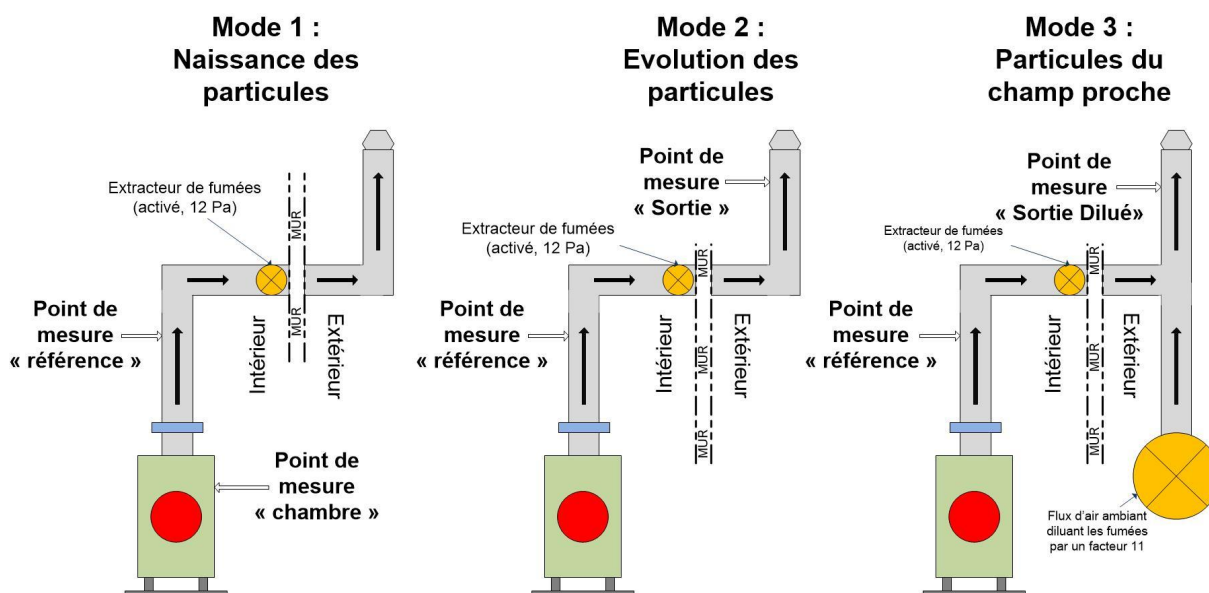


Figure 2-32 : Définition des 3 modes expérimentaux

Chaque mode comprenait un minimum de quatre essais. L'électrovanne, et donc la résolution de l'analyseur COV était réglée à 90 secondes. Cela signifie que toutes les 90 secondes,

l'analyseur COV changeait de point de mesure. Les lignes chauffées utilisées étant les mêmes pour chaque type d'essai, la résolution et le temps de retour à zéro de l'analyseur COV était toujours les mêmes. Les prélèvements TSP et HAP étaient réalisés en double de manière simultanée aux deux points de mesure. Les prélèvements commençaient à la fermeture de la porte et étaient stoppés quand 99% de la charge avaient été consommés. Les prélèvements pour l'analyse OC/EC et la microscopie étaient aussi réalisés en doublon.

Lors des essais avec les mesures au point de sortie avec une dilution par dix des fumées, un anémomètre mesurait en continu la vitesse de l'air soufflé par le ventilateur dans le conduit. Ainsi, comme la charge de bois avait une masse fixe variant aux alentours de 3,8 kg, le débit des fumées lié à la combustion de cette masse de bois pouvait être estimé via l'équation de combustion. Ensuite, ce débit était multiplié par dix et le débit que devait souffler le ventilateur était obtenu. En revanche sur ces essais, les prélèvements ont été limités. Les TSP, les HAP16, les COV et les filtres destinés à la microanalyse et à l'imagerie ont pu être réalisés. En revanche, l'analyse gazeuse des fumées (O₂, CO et NO), l'analyse en OC/EC ainsi que la granulométrie des particules en sortie diluée n'ont pu être réalisées. En effet, les précisions des appareils de mesures ne permettaient pas une dilution aussi importante.

Les résultats de cette étude sont traités dans le Chapitre 4.

2.6 Conclusion

La mesure des caractéristiques physico-chimiques des particules est une réelle problématique. De nouvelles méthodes de prélèvements et d'analyses ont dû être développées au cours de ces trois années. Dans un premier temps, un protocole d'analyse de l'OC et de l'EC adapté à la combustion de bois a dû être développé et validé de manière expérimentale. Ensuite, un travail important a été mené pour parvenir à déterminer un mode de prélèvement idéal pour l'imagerie, mais aussi pour la microanalyse. Une procédure de microanalyse précise a été fixée afin d'avoir une comparabilité maximale entre les différents résultats obtenus. Cette partie a mis en évidence la multitude des matériels et des méthodes déployés dans ce travail afin d'atteindre les objectifs fixés ainsi que la complexité de mener les prélèvements multiples en différents points du conduit des fumées.

Ce chapitre a aussi permis de définir précisément l'intégralité des objectifs de chacune des expériences menées ainsi que les méthodes et équipements mis en œuvre pour y arriver et les conclusions que l'on pouvait en tirer. Ainsi, toutes les problématiques initiales à ce travail de thèse seront étudiées, qu'il s'agisse de l'impact de différents paramètres sur les particules ou de l'évolution dans le conduit de celles-ci.

L'objet du 0 concerne la caractérisation des émissions et des facteurs impactant ces émissions. La Chapitre 4 traitera la problématique de l'évolution des particules dans le conduit. Le Chapitre 5 est quant à lui une analyse phénoménologique, permettant de lier les résultats obtenus dans le 0 et le Chapitre 4.

Chapitre 3. CARACTERISATION DES EMISSIONS

Ce chapitre a pour objectif principal de caractériser les particules émises par la combustion du bois. Pour ce faire, différentes campagnes expérimentales ont été menées. De multiples paramètres, comme la technologie de l'appareil ou encore la nature du combustible, ont été étudiés afin d'évaluer leur impact sur les émissions de particules. L'intégralité des résultats présentés dans ce chapitre est issue de prélèvements au point de référence.

3.1 Influence de la technologie de l'appareil

Cette première partie du chapitre 3 s'intéresse particulièrement à l'influence de la technologie de l'appareil sur les émissions. Dans un premier temps, une étude comparative entre les émissions typiques d'un poêle à granulés et d'un foyer fermé à bûches sera réalisée. Ensuite, les émissions de la combustion de bûches seront caractérisées plus précisément en différenciant les trois phases de combustion. Pour terminer, l'influence de la génération de l'appareil sur les émissions sera proposée.

3.1.1 Emissions d'un foyer fermé à bûches et d'un poêle à granulés

Dans cette étude comparative, les essais ont été réalisés sur le poêle à granulés et le foyer fermé de 2006. Ainsi, la comparaison sera basée sur des appareils qui correspondent aux premiers appareils améliorés et de façon globale à une bonne partie du parc existant. En effet, les années 2006 à 2008 ont été celles pendant lesquelles les ventes d'appareils ont été les plus importantes, avec près de 600 000 appareils par an. Les essais ont été répétés trois fois pour l'appareil à granulés, et quatre fois pour le foyer fermé. Cela provient du fait que la combustion de bûches, moins stable que celle de granulés, nécessite ainsi plus de répétition.

3.1.1.1 Les émissions gazeuses

L'intégralité des analyses des gaz pour le poêle à granulés et le foyer fermé est présentée dans le Tableau 3-1. Les essais sont très répétables dans le cas du poêle à granulés. Pour le foyer fermé, bien que la teneur en Dioxygène dans les fumées varie de plus de 1%, les émissions de CO, de NO et de SO_x sont très stables. En revanche, les émissions de COVT et de CH₄ sont variables. Néanmoins, le ratio CH₄/COVT est constant (45% en moyenne). La température des fumées est peu variable dans le cas du poêle à granulés (3°C maximum) contrairement au foyer fermé à bûches (45°C maximum). Les bûches étant un combustible non homogène sur divers aspects (taille, densité, ...) il apparaît normal d'obtenir une variabilité des résultats. Notons cependant que les résultats obtenus sont reproductibles et que la moyenne est ainsi représentative.

Type d'essai	Répétition	O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	SOx (mg.Nm ⁻³ Eq SO ₂ à 13% O ₂)	COVT (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂ Eq. CH ₄)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	Tfumée (°C)
Appareil à granulés 2006	1	15.2	5.2	228	71	2	22	0	116
	2	15.2	5.2	192	70	3	25	0	119
	3	15.1	5.3	208	70	2	18	0	116
	Moyenne	15.2	5.2	209	71	2	22	0	117
	Ecart-type	0.1	0.1	18	1	0	3	0	2
Foyer fermé (bûches) 2006	1	14.9	5.5	2128	64	11	168	82	337
	2	15.3	5.1	2372	60	11	186	80	328
	3	14.4	6.0	2406	54	11	66	27	348
	4	13.0	7.4	2205	54	6	78	33	373
	Moyenne	14.4	6.0	2278	58	10	124	56	346
	Ecart-type	1.0	1.0	133	5	2	61	30	19

Tableau 3-1 : Résultats globaux des émissions gazeuses du poêle à granulés et du foyer fermé

Ainsi, l'appareil à granulés émettrait onze fois moins de CO que le foyer fermé à bûches. Cet important écart est aussi constaté dans les émissions de COVT et de CH₄. En effet, le poêle à granulés émet en moyenne six fois moins de COVT que le foyer fermé. En outre, le poêle à granulés n'émet que très peu de CH₄ (0,03 mg.Nm⁻³ corrigé à 13% d'O₂). Ainsi, le rapport CH₄/COVT passe de presque 0% dans le cas du poêle à granulés à 45% pour le foyer fermé. Les SOx sont quant à eux émis quatre fois plus dans le foyer fermé, mais demeurent très bas. En revanche, le NO se démarque en étant le seul à être émis en plus faible quantité par le foyer fermé que par le poêle à granulés (58 et 71 mg.Nm⁻³ corrigé à 13% d'O₂).

Il apparaît ainsi que les émissions polluantes du foyer fermé à bûches sont différentes de celles de l'appareil à granulés. De la même façon, les variations sont beaucoup plus importantes pour l'appareil à bûches, ce qui conduit à des écarts d'émissions très élevés, notamment pour les COV : 68 à 186 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂.

3.1.1.2 Les émissions particulières

Le Tableau 3-2 présente l'intégralité des résultats obtenus sur les émissions solides.

Type d'essai	Répétition	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC/TC (%)	TC/TSP (%)	OC/TSP (%)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	PM 0.1 (%nombre)	PM 0.1-1.0 (%nombre)	PM 1.0-2.5 (%nombre)	PM 2.5-10 (%nombre)
Appareil à granulés 2006	1	20	62.1	55.3	34.3	4	7	72.9	27.1	0.03	0.01
	2	14	100.0	58.3	58.3	0	8	79.2	20.8	0.02	0.01
	3	23	61.0	56.3	34.4	5	8	71.6	28.4	0.03	0.01
	Moyenne	19	74.4	56.6	42.3	3	8	74.6	25.4	0.02	0.01
	Ecart-type	5	22.2	1.5	13.9	3	1	4.1	4.1	0.01	0.00
Foyer fermé (bûches) 2006	1	43	13.5	95.3	12.9	36	6	68.9	31.1	0.03	0.01
	2	44	22.0	75.8	16.6	26	7	75.7	24.3	0.02	0.01
	3	47	27.3	60.1	16.4	20	8	64.8	35.2	0.03	0.01
	4	42	26.2	100.0	26.2	31	11	73.9	26.1	0.02	0.01
	Moyenne	44	22.2	82.8	18.0	28	8	70.8	29.2	0.03	0.01
	Ecart-type	2	6.3	18.4	5.7	7	2	4.9	4.9	0.01	0.00

Tableau 3-2 : Résultats globaux des émissions de particules du poêle à granulés et du foyer fermé de 2006

Les résultats montrent que le poêle à granulés émet deux fois moins de TSP que le foyer fermé. Cependant, alors que les émissions d'EC sont divisées par dix par le poêle à granulés, les émissions d'OC sont équivalentes (environ 8 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂). Cela signifie que la composition des particules est différente pour ces deux appareils. Cela est dû à la température de la chambre de combustion : une température élevée (foyer fermé) induit un ratio EC/OC élevé, et l'inverse pour une température faible (poêle à granulés).

Au point de vue de la répartition granulométrique, bien que variable, elle semble être sensiblement différente. En effet, la fraction ultrafine représente en moyenne 74,6% des particules en nombre dans le cas du poêle à granulés, contre 70,8% dans le cas du foyer fermé.

3.1.1.3 La microscopie (microanalyse X et imagerie)

Comme dans le cas des prélèvements pour l'analyse OC/EC, ceux pour la microanalyse X et l'imagerie ont été réalisés durant la phase de combustion homogène pour l'appareil à bûches afin de se rapprocher du cas des granulés (stable au cours du temps). Le Tableau 3-3 présente les résultats de la microanalyse X. Ainsi, les particules émises par le poêle à granulés contiennent plus fréquemment d'autres éléments que le Carbone et l'Oxygène (environ deux fois plus), notamment du Soufre, du Potassium et du Zirconium. Ces modifications paraissent cohérentes avec les résultats de l'analyseur OC/EC présentés précédemment. En effet, le ratio TC/TSP est plus faible dans le cas du poêle à granulés.

	Fréquence autres que C et O (% _{en nombre})	Na (% _{en masse})		Mg (% _{en masse})		Al (% _{en masse})		Si (% _{en masse})		S (% _{en masse})	
		Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})
Poêle à granulés (2006)	8.5	0.2	0.7	0.2	0.8	0.5	0.3	0.4	0.8	2.8	0.3
Foyer fermé (2006)	4.7	0.2	0.5	0.0	0.0	0.5	0.5	0.3	0.5	0.2	1.4

	Cl (% _{en masse})		K (% _{en masse})		Ca (% _{en masse})		Zr (% _{en masse})	
	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})
Poêle à granulés (2006)	0.2	0.6	0.7	0.6	0.2	0.4	6.0	0.9
Foyer fermé (2006)	0.4	0.2	0.0	0.0	0.0	0.0	2.7	1.1

Tableau 3-3 : Bilan des résultats de microanalyse X pour le poêle à granulés de 2006 et le foyer fermé de 2006

L'imagerie a permis de mieux caractériser les particules émises par les deux types d'appareils. La Figure 3-1 présente trois clichés des particules-types du poêle à granulés. Quatre familles de particules ont alors été visualisées :

- du charbon présentant une structure quasi-graphitique (Figure 3-1, a) ;
- des mâchefers (Figure 3-1, b) ;
- du bois dégradé thermiquement (Figure 3-1, c) ;
- des nanoparticules (Figure 3-1, sur chacun des clichés).

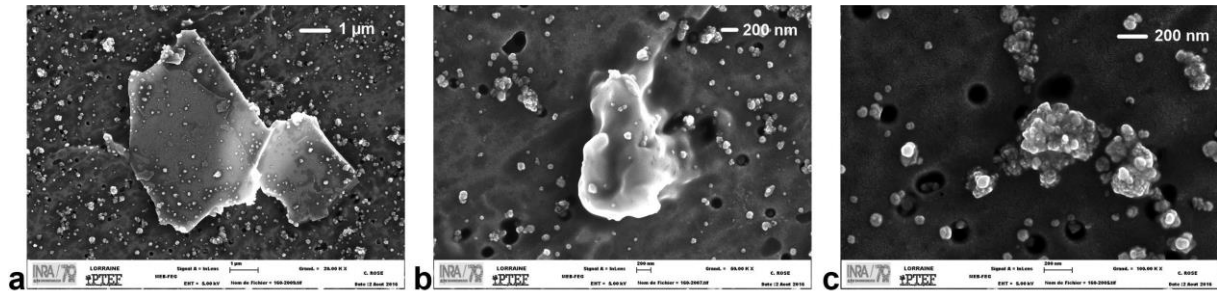


Figure 3-1 : Clichés de charbon (a, x20000), de mâchefer (b, x50000) et de bois thermiquement dégradé (c, x100000) tous accompagnés par des nanoparticules émises par les poêles à granulés

Le charbon émis par le poêle à granulés a une structure quasi-graphitique. Ce charbon est donc certainement composé majoritairement d'EC. Le bois dégradé thermiquement commence à former une structure particulière, composée d'excroissances circulaires. Les nanoparticules ont un diamètre apparent compris entre 20 et 150 nm.

La Figure 3-2 présente trois clichés des particules-types émises par la combustion de bûches dans le foyer fermé de 2006. Ainsi, trois familles ont été définies :

- des morceaux de charbons (Figure 3-2, a) ;
- des agglomérats de nanoparticules (Figure 3-2, b) ;
- des nanoparticules unitaires (Figure 3-2, c).

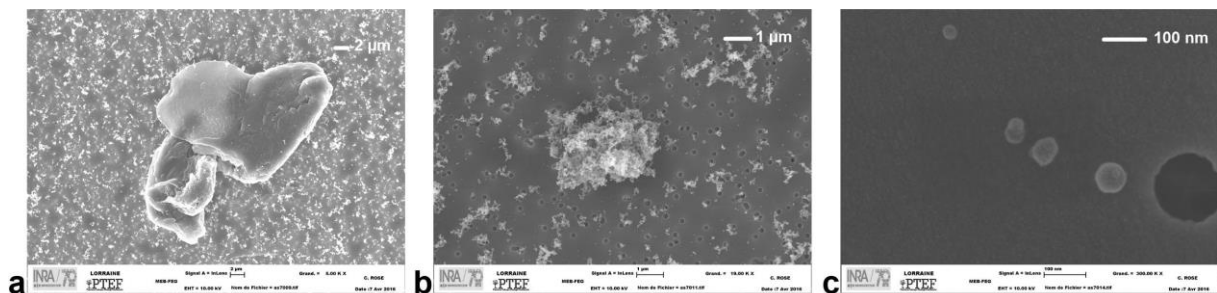


Figure 3-2 : Clichés de morceaux de charbon (a, x5000), nanoparticules agglomérées (b, x19000) et de nanoparticules isolées (c, x300000) émises par le foyer fermé de 2006

Les morceaux de charbon émis par le foyer fermé ne présentent pas la même structure que ceux du poêle à granulés. En effet, ils paraissent être amorphes. Les agglomérats de nanoparticules sont très représentés, et remplacent le bois thermiquement dégradé observé dans le cas du poêle à granulés. Les nanoparticules non agglomérées ont un diamètre apparent très stable, compris entre 20 et 50 nm, contre 20 à 150 pour celles émises par le poêle à granulés. Sippula et al. [123] avaient réalisés des clichés similaires de nanoparticules émises par la combustion de bûches avec un diamètre de 20 à 50 nm.

3.1.1.4 Conclusion

Les émissions d'un poêle à granulés et d'un foyer fermé sont donc différentes. Les émissions de CO, SO_x, COVT et CH₄ sont beaucoup plus importantes lors de la combustion de bûches que de granulés. Pour les émissions particulières, le même constat peut être dressé. En effet, le foyer fermé émet considérablement plus de particules en masse.

Les appareils à bûches représentent aujourd'hui la très grande majorité du parc installé, et même des ventes. De plus, les émissions de ces appareils ont montré une plus grande variabilité et un impact environnemental plus important. Nous avons donc choisi dans la suite de ce chapitre de travailler principalement sur les appareils à bûches.

3.1.2 Etude des trois phases de combustion

Afin de définir le plus précisément possible les particules émises par la combustion de bûches, les trois phases de la combustion d'une bûche ont été suivies. Les émissions sont sans aucun doute spécifiques à chacune des phases puisque la nature même de la bûche varie au cours du temps : l'humidité change, une couche de charbon se crée, etc. Cela influe par exemple sur le PCI qui varie énormément (faible en phase d'allumage, moyen en phase homogène, très élevé en phase hétérogène). Les essais ont été répétés trois fois sur le poêle WABI de 6 kW de 2012. Le combustible utilisé était du HSECse et les charges étaient composées de deux bûches. Les trois charges de combustibles pesaient 1,98 kg, 1,78 kg et 1,72 kg.

3.1.2.1 Répétabilité globale des essais

Le Tableau 3-4 présente les résultats sans différenciation des phases des trois essais. Globalement, les résultats sont très répétables. Concernant les émissions gazeuses, les écarts sont relativement faibles. La concentration de CO dans les fumées varie au maximum de 473 mg.Nm⁻³. Les concentrations de NO et de SO₂ étaient très stables. Les plus grandes variations en proportion concernent les COVT et le CH₄, avec 45 et 25 mg.Nm⁻³ respectivement. Au niveau des émissions solides, les émissions en EC et OC sont très stables. Les émissions de particules totales varient de plus de 11 mg.Nm⁻³ mais restent dans des niveaux très faibles. La répartition granulométrique semble aussi relativement stable, malgré un premier essai présentant des particules plus fines. Globalement, ces résultats sont cohérents avec de nombreuses autres études sur des appareils performants, notamment sur la domination de la fraction submicronique des particules [124].

Analyse des gaz								
Charges	O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	SO ₂ (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	Température des fumées (°C)	COVT (mg.Nm ⁻³ Eq CH ₄ à 13% d'O ₂)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)
1	9.2	10.9	1788	55	14	283	76.9	38.9
2	10.3	9.9	2261	55	11	270	111.4	63.7
3	10.4	9.9	1920	66	20	268	122.1	41.8
Analyse des solides								
	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	PM _{0.1} (%nombre)	PM _{0.1-1.0} (%nombre)	PM _{1.0-2.5} (%nombre)	PM _{2.5-10} (%nombre)	
1	3	0	2	9.1E+01	9.4E+00	0.01	0.01	
2	8	0	3	8.6E+01	1.3E+01	0.01	0.01	
3	15	1	4	8.9E+01	1.1E+01	0.01	0.01	

Tableau 3-4 : Résultats globaux sans différenciation des phases

Pour séparer de façon claire et répétable ces phases, nous nous sommes basés sur différents points :

- allumage : départ, introduction de la charge dans la chambre de combustion ; fin, stabilisation des émissions de CO à un palier (faible concentration) ;
- combustion homogène : départ, fin de la période d'allumage ; fin, disparition des flammes ;
- combustion hétérogène : départ, fin de la période homogène ; fin, lorsque que 98% de la masse a été consommée.

Les trois phases de combustions possèdent leurs propres caractéristiques physiques de combustion. Chaque phase est ensuite caractérisée par :

- la consommation de bois durant la phase ;
- le temps sur lequel cette phase existe.

Ainsi, sur le poêle WABI et avec du HSECse, les caractéristiques de chacune des phases de la combustion sont les suivantes (Tableau 3-5) :

- la phase d'allumage consomme 27,6% du bois durant 15,7% du temps, ce qui représente un débit de combustible moyen de 0,550 kg.h⁻¹ ;
- la phase de combustion homogène consomme 55,5% du bois durant 62% du temps, ce qui représente un débit de combustible moyen de 1,112 kg.h⁻¹ ;
- la phase de combustion hétérogène consomme 16,8% du bois durant 22,3% du temps, ce qui représente un débit de combustible moyen de 0,331 kg.h⁻¹.

Charges	Période	Consommation bois (% de la charge initiale)	Débit de bois (kg.h ⁻¹)	Durée (h)	% du temps	Masse de bois (kg)
1	Allumage	29.3	0.600	0.158	16.4	0.095
	Combustion Homogène	60.6	1.241	0.633	65.5	0.786
	Combustion Hétérogène	10.1	0.207	0.175	18.1	0.036
	Totale	100	2.048	0.967	100.0	1.980
2	Allumage	24.6	0.472	0.108	11.7	0.051
	Combustion Homogène	53.9	1.035	0.550	59.3	0.569
	Combustion Hétérogène	21.3	0.410	0.269	29.0	0.110
	Totale	100	1.919	0.928	100.0	1.780
3	Allumage	29	0.588	0.161	19.0	0.095
	Combustion Homogène	52	1.059	0.519	61.1	0.550
	Combustion Hétérogène	19	0.376	0.169	19.9	0.064
	Totale	100	2.024	0.850	100.0	1.720

Tableau 3-5 : Définition et caractérisation physique des trois phases de combustion

Les caractéristiques de ces phases semblent relativement constantes et stables. Les trois sous-parties suivantes (3.1.2.2 ; 3.1.2.3 ; 3.1.2.4) présentent les résultats des analyses gazeuses et solides pour chacune des trois phases, afin de vérifier si les émissions sont belles et bien caractéristiques et spécifiques à la phase de combustion.

3.1.2.2 Phase d'allumage

La phase d'allumage est caractérisée par un faible taux de Dioxygène. Ce faible taux de Dioxygène induit une formation importante de polluants dont la concentration indique une mauvaise qualité de combustion. Par exemple, pour le poêle WABI, les émissions de CO sont de 4161 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂ en moyenne et celles de COVT et de CH₄ sont respectivement de 208,9 et 65,7 mg.Nm⁻³ éq. CH₄ à 13% d'O₂. Durant cette phase d'allumage, les bûches ont une grande surface d'échange non protégée par une couche de charbon disponible. Cela implique un fort dégagement d'eau par le séchage et de gaz de pyrolyse. Mais, comme le taux de Dioxygène est relativement faible, la statistique de rencontre entre ces gaz et le Dioxygène est faible, conduisant à la formation d'imbrûlés. Le Tableau 3-6 présente les résultats d'émissions de la phase d'allumage.

Analyse des gaz (Allumage)								
Charges	O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	SO ₂ (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	Température des fumées (°C)	COVT (mg.Nm ⁻³ Eq CH ₄ à 13% d'O ₂)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)
1	6.7	12.9	2914	49	12	303	127	50
2	7.0	13.2	3786	50	7	315	101	58
3	9.6	10.3	5781	52	58	271	399	89
Moyenne	7.8	12.1	4161	50	25	297	209	66
Ecart-type	1.6	1.6	1469	1	28	23	165	21
Analyse des solides (Allumage)								
	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	PM _{0.1} (%nombre)	PM _{0.1-1.0} (%nombre)	PM _{1.0-2.5} (%nombre)	PM _{2.5-10} (%nombre)	
1	23	1	4	92.3	7.7	0.01	0.01	
2	38	2	7	78.2	21.8	0.02	0.01	
3	90	4	18	89.3	10.6	0.01	0.00	
Moyenne	50	3	10	86.6	13.4	0.01	0.01	
Ecart-type	35	1	8	7.4	7.4	0.01	0.00	

Tableau 3-6 : Résultats des émissions gazeuses et solides durant la phase d'allumage

L'essai n°3 semble particulier et se détache des deux autres. En effet, sa concentration en Dioxygène dans les fumées est plus élevée, ainsi que sa concentration en CO, COVT, CH₄ et SO₂. Il apparaît clairement pendant cet essai que le niveau de température est plus faible (270°C au lieu de 310°C pour les deux autres). Cette différence significative de température est certainement due à l'hétérogénéité du combustible ainsi qu'à un lit de braises plus faible au départ de l'essai (0,8 kg contre 1 kg pour les deux autres essais). Le ratio CH₄/COVT est plutôt stable de l'ordre de 35%. Pour les émissions solides, l'essai n°3 reste particulier. En effet, ses émissions en TSP (90,1 mg.Nm⁻³) et en OC (18,2 mg.Nm⁻³) sont trois fois plus importantes que pour les autres essais. Les émissions en EC sont aussi légèrement plus importantes mais restent très faibles. Quoiqu'il en soit, le taux de Carbone moyen mesuré par l'analyseur OC/EC des particules est de 24%. Même si cet appareil n'analyse que le Carbone, la masse d'Oxygène, d'Hydrogène et d'autres éléments complétant les molécules organiques ne permettent pas de retrouver les 75% en masse manquant. Cela implique une forte envolée de cendres ou de particules non-carbonées durant cette phase. La granulométrie reste cohérente avec les autres essais (90% d'ultrafines et 10% de fines en moyenne).

Ces résultats permettent de mettre en avant un autre point : l'impact de l'utilisateur sur les résultats. En effet, on voit très bien dans ces essais que le rechargement, réalisé lorsqu'il ne reste plus que des braises, induit de fortes émissions polluantes. Ainsi, un rechargement plus

tôt, avant la phase de la combustion hétérogène pourrait permettre de réduire considérablement les émissions.

Les résultats de la microanalyse X sont assez étonnants : la teneur moyenne en Carbone des particules (soit le TC) est de 76% en masse selon la microanalyse X et de 24% en masse selon l'analyseur OC/EC. Bien que la teneur moyenne en Carbone lors de la microanalyse X ne soit que qualitative et dépende de la métallisation (plus précisément, de la quantité de Platine évaporée), cet écart est très important. Il est, de plus, répétable. Cela signifie qu'un autre paramètre n'ayant pas été considéré précédemment impacte les résultats. Un point pouvant expliquer cet écart concerne la plage de mesure. En effet, le prélèvement pour l'analyseur OC/EC est maintenu durant l'intégralité de la phase d'allumage, alors que le prélèvement pour la microanalyse X était réalisé entre la troisième et la quatrième minutes (30 secondes après l'apparition des flammes) durant seulement une vingtaine de secondes. Ainsi, une émission importante de matière inorganique doit être captée par le prélèvement OC/EC, soit au début, soit vers la fin de la période, ce qui la rend invisible pour le prélèvement de la microanalyse X. Les deux explications les plus plausibles sont ainsi :

- le chargement de la bûche dans la chambre de combustion induit des envolées de cendres ;
- de la matière inorganique de la bûche est rapidement extraite puis émise, et non captée par le prélèvement pour la microanalyse X qui a lieu plus tard.

La première explication, bien que réelle, ne semble pas être la solution la plus plausible. En effet, les prélèvements pour l'OC/EC ne débutaient qu'une fois la porte du foyer fermée, ce qui laisse penser que la plupart des envolées de cendres ne pouvaient pas être captées par le filtre. La deuxième option paraît donc la plus plausible.

Afin de vérifier cette hypothèse, une expérimentation supplémentaire a été réalisée. Une bûche a été découpée en 6 morceaux. Sur les deux premiers échantillons, une simple mesure de l'humidité puis une analyse élémentaire ont été effectuées. La composition moyenne de ces deux échantillons permet d'estimer la composition initiale de la bûche. Pour les quatre autres, ils ont été placés chacun leur tour dans un four à moufle à 600°C sous air (température et conditions approximatives de la chambre de combustion). Un analyseur permettait de suivre les émissions de CO, et ainsi repérer les phases de combustion. Trois d'entre eux ont été sortis du four puis étouffés (chambre sans O₂) juste à la fin de la phase d'allumage (juste après le pic d'émission de CO), et le dernier au milieu de la combustion homogène. Aucune cendre n'a été produite par les échantillons. Ainsi, l'intégralité des pertes s'effectuait via des émissions gazeuses et/ou solides. Ensuite, des tranches ont été découpées puis pesées dans ces résidus plus ou moins carbonisés de manière à connaître leur composition globale. Une analyse élémentaire a ensuite été effectuée sur chacune de ces tranches. La différence entre la masse initiale de chaque élément et la masse finale permet de déterminer les éléments qui se volatilisent plus rapidement que la perte de masse globale de l'échantillon, et donc d'étudier les possibles variations de pertes de masse par élément.

Le Tableau 3-7 présente les résultats des pertes (en pourcentage massique) de chaque élément analysé pour les quatre échantillons. Ainsi, quatre groupes de composés apparaissent clairement :

- C, H, N, Ca, Mg, P et Na : ces éléments se volatilisent selon un pourcentage de perte proche de la perte de masse globale ;
- Ni : cet élément a un pourcentage de perte exactement similaire au pourcentage de perte de masse globale ;
- K, Zn et Mn : ces éléments présentent des pourcentages de pertes largement inférieurs à la perte de masse globale. Ils se concentrent donc dans le résidu carboné ;
- S, Cl et Fe : ces éléments présentent des pourcentages de perte largement supérieurs à la perte de masse globale de l'échantillon.

Ce quatrième et dernier groupe pourrait donc expliquer un pic de matière non-carbonée durant la phase d'allumage, comme le démontre la Figure 3-3. Ainsi, leur perte relative est majoritairement concentrée lors de la phase d'allumage. Simone C. Van Lith et al. [125] [126] ont aussi démontré que le Soufre et le Chlore étaient deux éléments qui se volatilisait rapidement de l'échantillon et que le Zinc était particulièrement peu émis. Le Chlore est émis sous forme de HCl après réaction avec un métal, comme le Potassium ou le Sodium (métal alcalin mou et métal mou). Le Soufre serait émis durant la phase de dévolatilisation à cause de la faible stabilité thermique des chaînes organiques [127] [128] [129].

Echantillons	Perte de masse globale (% _{massique})	Pourcentage de perte par rapport à la quantité initiale (% _{massique})													
		C	H	N	S	Cl	Ca	Fe	Mg	P	K	Na	Ni	Zn	Mn
Allumage 1	22.48	19.5	26.4	25.1	50.5	50.0	16.6	60.0	18.5	23.1	13.4	24.9	22.5	0.0	12.3
Allumage 2	29.67	25.4	34.4	19.3	48.0	50.7	13.6	53.6	18.3	21.0	14.6	33.4	29.7	8.4	13.5
Allumage 3	29.58	26.1	33.0	17.7	47.7	38.6	12.0	42.3	21.5	19.1	13.3	24.7	29.6	5.5	14.4
Homogène 1	59.87	56.3	63.3	55.6	69.3	59.2	45.5	73.6	46.7	53.3	48.4	53.2	59.9	42.4	43.5

- Perte de masse de l'élément supérieure à la perte de masse globale
- Perte de masse de l'élément inférieure à la perte de masse globale
- Perte de masse de l'élément identique à la perte de masse globale

Tableau 3-7 : Résultats des pertes pour chaque élément selon la perte de masse de l'échantillon

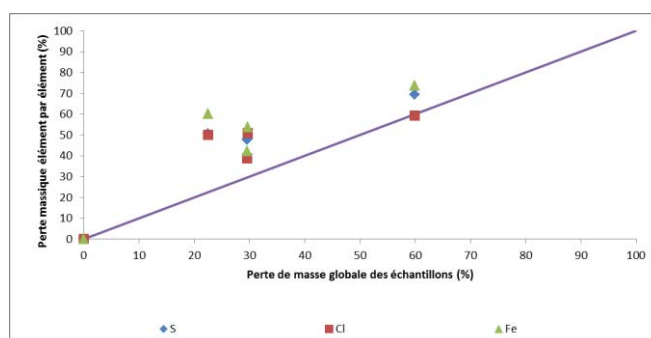


Figure 3-3 : Relation entre la perte de masse globale des échantillons et la perte relative de trois éléments (S, Cl et Fe)

Ainsi, la fraction non-carbonée des particules émises durant la phase d'allumage doit être majoritairement due aux émissions de Soufre, de Chlore et de Fer. La raison de la non-détection par la microanalyse X reste ouverte cependant. En revanche, Emil Vainio dans sa

thèse [130] démontre que les particules non-carbonées présentent deux fractions granulométriques majoritaires : la plus large est comprise entre 3 et 5 μm , la plus fine entre 0,1 et 0,2 μm . Ainsi, une fraction non négligeable des particules non carbonées n'étaient pas détectables par la microanalyse X (celles dont la taille est inférieure à 120 nm). Ce dernier point pourrait être une explication de nos résultats.

Trois autres points pertinents ressortent de la microanalyse X. Tout d'abord, en dehors du Carbone et de l'Oxygène, seuls quelques éléments se distinguent :

- Zirconium : 7% de fréquence, 0,6 à 1,4% massique dans les particules en contenant ;
- Soufre : 5% de fréquence, 0,4 à 0,8% massique dans les particules en contenant ;
- Aluminium : 1% de fréquence, 0,3 à 0,5% massique dans les particules en contenant ;
- Silice : <1% de fréquence, 0,4 à 0,5% massique dans les particules en contenant.

Néanmoins, ces résultats de microanalyse X ne signifient pas qu'il n'y a pas d'autres éléments dans la composition des particules, mais seulement que leur concentration est sous le seuil de détection de l'appareil. Pour aller plus loin sur la composition inorganique, la présence d'un élément inorganique n'est pas systématiquement liée à la présence d'un second élément. Ainsi, seulement 40% des particules contenant du Zirconium contiennent un autre élément, et cet élément est toujours le Soufre. Une particule contenant du Zirconium ne contient jamais d'Aluminium ni de Silice, et ces deux éléments ne sont pas liés non plus. Ensuite, ces particules contenant des éléments inorganiques ont une taille spécifique. Elles ont un diamètre en dessous de 0,6 μm , et pour plus de 90% d'entre elles en dessous de 0,2 μm .

Le troisième point particulièrement intéressant concerne l'évolution de la composition en Carbone et en Oxygène. La Figure 3-4 présente cette courbe d'évolution. Cette représentation permet de distinguer deux grandes familles de particules, répondant spécifiquement à ce critère.

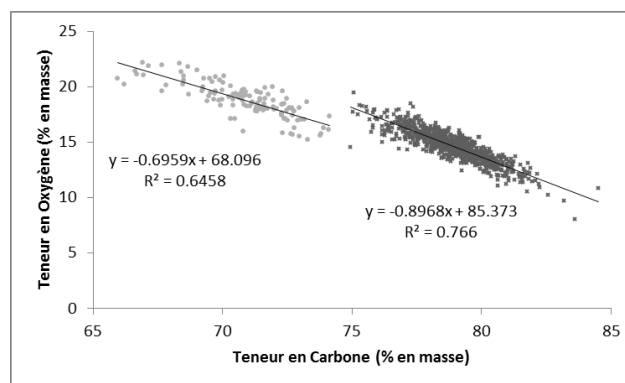


Figure 3-4 : Evolution de la composition en Carbone et en Oxygène pour les 6000 particules des trois phases d'allumage analysées

L'imagerie FEG a permis de confirmer ce point. La Figure 3-5 présente deux clichés de particules, émises durant la phase d'allumage, classiquement observées. Le cliché b est un zoom sur une particule de bois qui a subi une dégradation thermique. En arrière-plan, de nombreuses nanoparticules sont présentes. Les cercles noirs présents sur les clichés sont les pores du filtre, de 200 nm de diamètre. L'image de gauche (a) présente un morceau de bois non dégradé, avec toujours quelques nanoparticules en arrière-plan.

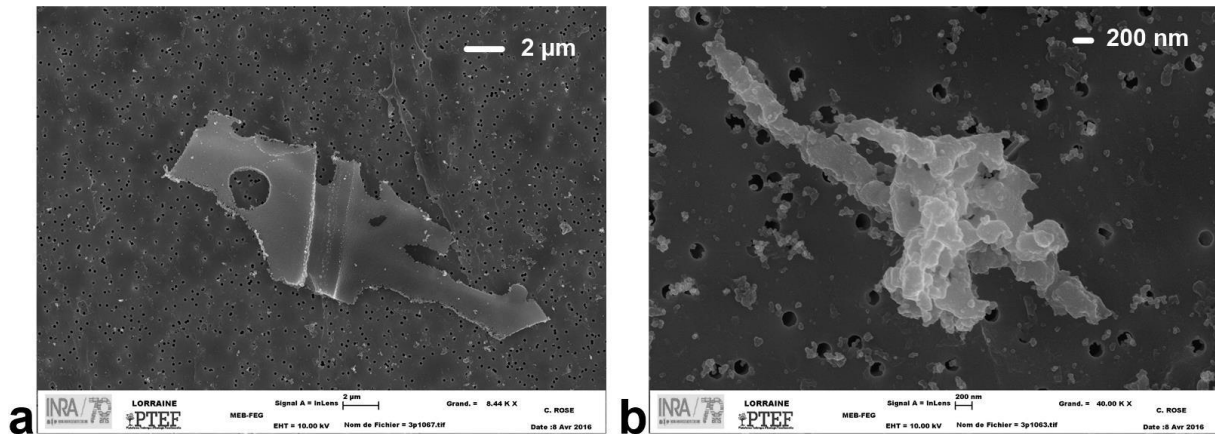


Figure 3-5 : Images de bois non dégradé (a, x8440) et thermiquement dégradé (b, x40000) et avec présence de nanoparticules (a et b) émis durant la phase d'allumage

Ainsi, les deux familles de particules que la microanalyse X décelait sont :

- les particules de bois à différents stades de dégradation thermique ;
- les nanoparticules plus ou moins agglomérées.

La présence de ces particules permet de conclure de manière certaine que la combustion durant la phase d'allumage est clairement incomplète.

3.1.2.3 Phase de combustion homogène

Les analyses des trois essais de phase homogène prouvent une grande répétabilité des résultats durant cette phase. Le Tableau 3-8 présente les résultats des émissions gazeuses et solides de cette phase. Au point de vue des émissions gazeuses, la phase de combustion homogène est la plus propre. Ses émissions de CO (autour de 1050 mg.Nm^{-3} à 13% d' O_2), de COVT ($33,6 \text{ mg.Nm}^{-3}$ éq. CH_4 à 13% d' O_2) et de CH_4 ($11,3 \text{ mg.Nm}^{-3}$ éq. CH_4 à 13% d' O_2) sont très faibles. Le ratio CH_4/COVT est stable et d'environ 33%. Ce ratio est similaire à celui de la phase d'allumage. En revanche durant cette phase les émissions de monoxyde d'Azote sont deux fois plus élevées que celles des autres phases (75 mg.Nm^{-3} à 13% d' O_2). Les émissions de SO_2 quant à elles sont toujours extrêmement faibles et stables. Les émissions de particules totales sont extrêmement faibles en masse (en moyenne $2,7 \text{ mg.Nm}^{-3}$ à 13% d' O_2 de TSP). Les particules sont composées à 85% de Carbone, et plus précisément à 80% par du OC et 5% par du EC. Ce résultat est indicatif. En effet, les particules n'étant que très peu présentes (en masse) sur le filtre puisque très peu émises (en masse), il est probable que cette fraction importante d'OC soit simplement due à l'adsorption de gaz par le filtre. Les nanoparticules peuvent être composées à 100% d'EC, leur masse est tellement faible qu'il est difficile de déterminer le réel ratio de composition. La granulométrie des particules est très stable avec 88% des particules avec un diamètre inférieur à 100 nm et 12% avec un diamètre compris entre 100 nm et 1 μm .

Analyse des gaz (Combustion Homogène)								
Charges	O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	SO ₂ (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	Température des fumées (°C)	COVT (mg.Nm ⁻³ Eq CH ₄ à 13% d'O ₂)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)
1	8.3	11.9	1336	92	22	293	60	20
2	9.3	10.9	999	60	15	282	19	9
3	9.2	11.2	804	73	11	281	23	5
Moyenne	8.9	11.3	1046	75	16	285	34	11
Ecart-type	0.5	0.5	269	16	6	7	23	8
Analyse des solides (Combustion Homogène)								
	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	PM _{0.1} (%nombre)	PM _{0.1-1.0} (%nombre)	PM _{1.0-2.5} (%nombre)	PM _{2.5-10} (%nombre)	
1	2	0	1	89.8	10.2	0.02	0.01	
2	3	0	3	86.8	13.2	0.01	0.01	
3	3	0	2	88.0	11.9	0.01	0.01	
Moyenne	3	0	2	88.2	11.8	0.01	0.01	
Ecart-type	1	0	1	1.5	1.5	0.00	0.00	

Tableau 3-8 : Résultats des émissions gazeuses et solides durant la phase homogène

La microanalyse X permet de déterminer un taux de Carbone moyen de 79%. Cette valeur est inférieure de 6 points à celle déterminée par l'analyseur OC/EC, mais reste cohérente à la vue des 7% en masse de Platine évaporé faussant ce pourcentage. Pour la composition, trois éléments de la phase d'allumage sont retrouvés :

- le Zirconium : 2% de fréquence, 0,5 à 2,8% (centré sur 1%) massique dans les particules en contenant ;
- le Soufre : 1% de fréquence, 0,2% massique dans les particules en contenant ;
- l'Aluminium : 0,2% de fréquence, 0,4% massique dans les particules en contenant.

A priori, aucune particule émise durant la phase de combustion homogène ne contenait de Silice. En revanche, contrairement à la phase d'allumage, toutes les particules contenant du Soufre contenaient du Zirconium. De plus la teneur en Soufre était constante à 0,4%. La granulométrie des particules contenant des éléments autres que C et O était toujours inférieure à 250 nm. L'évolution de la teneur en Carbone et en Oxygène des particules est présentée en Figure 3-6.

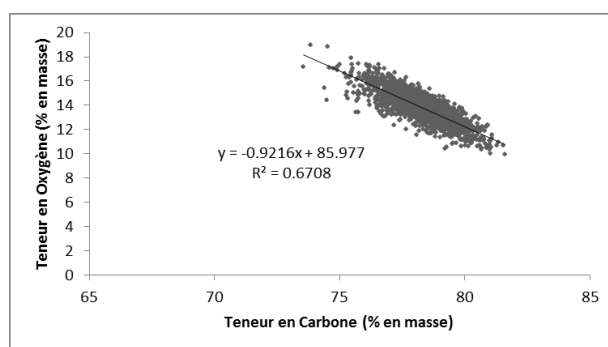


Figure 3-6 : Evolution de la composition en Carbone et en Oxygène pour les 6000 particules des trois phases de combustion homogène analysées

Une seule famille de particules apparaît sur cette courbe. L'équation de corrélation se rapproche fortement d'une des familles décrites dans la phase d'allumage. En effet, bien que l'ordonnée à l'origine de l'équation linéaire de corrélation dépende sans doute de la quantité de Platine déposée, le coefficient directeur doit être spécifique à des familles de particules. La Figure 3-7 présente les clichés de nanoparticules émises lors de la combustion homogène.

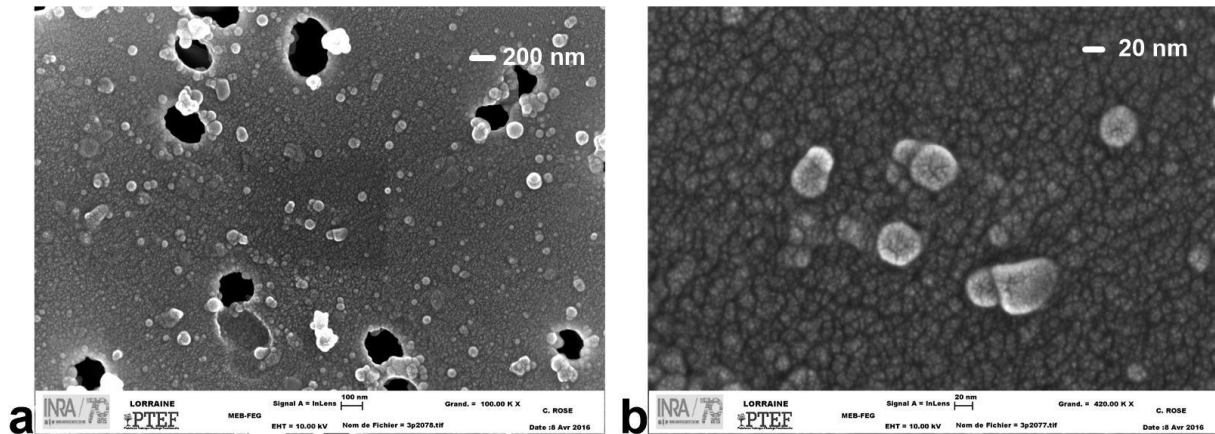


Figure 3-7 : Images de nanoparticules très peu agglomérées à x70000 (a) et x420000 (b) émises durant la combustion homogène

Sur le cliché 'a', la texture granuleuse du support est visible. Cette texture est due à l'évaporation de Platine et ne caractérise pas les particules. Aucun autre type de particule n'a été observé. Ces nanoparticules n'étaient peu ou pas agglomérées, avec des diamètres unitaires variant entre 20 et 50 nm. Schneider et al. [131] et Tissari et al. [132] ont réalisé des images similaires de nanoparticules, avec cette même plage de taille.

Ainsi, dans cette série d'essai spécifiquement, un coefficient directeur de la droite de corrélation de l'évolution de la teneur en Carbone et en Oxygène proche de 0,90 correspond aux nanoparticules et/ou aux agglomérats de nanoparticules (de compositions égales). En revanche, les nanoparticules (20 à 50 nm) ne peuvent être analysées durant la microanalyse X (poire d'interaction trop importante). Cela signifie donc que seuls les agglomérats ont été analysés par le microscope. Ce coefficient ne peut être généralisé à tous les essais réalisés ultérieurement (trop dépendant de l'étape de métallisation).

3.1.2.4 Phase de Combustion hétérogène

Le Tableau 3-9 présente les résultats d'émissions de la phase hétérogène. La combustion hétérogène est la phase la plus émettrice en CO (5500 mg.Nm^{-3} à 13% d' O_2), COVT (280 mg.Nm^{-3} éq. CH_4 à 13% d' O_2) et CH_4 ($192,5 \text{ mg.Nm}^{-3}$ éq. CH_4 à 13% d' O_2). Le ratio CH_4/COVT varie autour de $70\% \pm 10$. Ce ratio est très différent de celui des autres phases de la combustion. En revanche, les émissions de NO sont du même ordre de grandeur que durant l'allumage et le SO_2 reste stable. C'est dans cette phase que la teneur en O_2 est la plus élevée. En effet, comme il n'y a plus de flamme dans la chambre de combustion et que le combustible restant n'est que du charbon de bois, l'air primaire est le seul à oxyder le charbon. L'air secondaire n'apporte rien durant cette phase et est donc émis dans l'atmosphère. En revanche, cette phase est la moins émettrice en particules en masse. Le taux de Carbone des particules avoisine 95% dont la grande majorité est du OC. La granulométrie des particules est centrée à 90% sur les ultrafines et les 10% restant sont des particules fines ($0,1 \mu\text{m} < x < 1 \mu\text{m}$).

Analyse des gaz (Combustion Hétérogène)								
Charges	O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	SO ₂ (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	Température des fumées (°C)	COVT (mg.Nm ⁻³ Eq CH ₄ à 13% d'O ₂)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)
1	14.4	5.7	5063	34	23	226	207	165
2	13.8	6.3	4986	43	25	229	429	251
3	14.3	5.7	6479	42	14	227	204	162
Moyenne	14.2	5.9	5509	40	21	227	280	193
Ecart-type	0.3	0.4	841	5	6	1	129	51

Analyse des solides (Combustion Hétérogène)							
	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	PM _{0.1} (% _{nombre})	PM _{0.1-1.0} (% _{nombre})	PM _{1.0-2.5} (% _{nombre})	PM _{2.5-10} (% _{nombre})
1	2	0	2	94.5	5.5	0.04	0.01
2	1	0	1	90.0	10.0	0.01	0.01
3	1	0	1	91.1	8.9	0.04	0.01
Moyenne	1	0	1	91.8	8.1	0.03	0.01
Ecart-type	1	0	1	2.3	2.4	0.02	0.00

Tableau 3-9 : Résultats des émissions gazeuses et solides durant la phase hétérogène

La microanalyse X donne un taux de Carbone moyen de 80%, soit 15 points en dessous de l'analyseur OC/EC. Cette valeur reste cohérente au vue de l'évaporation de Platine, mais l'écart est tout de même plus important que lors de la phase homogène. Les mêmes éléments inorganiques sont retrouvés plus du Sodium, mais leur fréquence d'apparition est très faible :

- Zirconium : entre 0,5 et 5% de fréquence, 1,2% massique dans les particules en contenant ;
- Soufre : 0,75% de fréquence, entre 0,2 et 0,5% massique dans les particules en contenant ;
- Silice : 0,2% de fréquence, 0,3% massique dans les particules en contenant ;
- Sodium : 0,1% de fréquence, entre 0,7 et 1,3% massique dans les particules en contenant.

Seulement 10% des particules contenant du Zirconium contiennent du Soufre, et réciproquement. Le Sodium est toujours isolé des autres éléments (mis à part C et O). La Figure 3-8 présente l'évolution de composition en Carbone et en Oxygène.

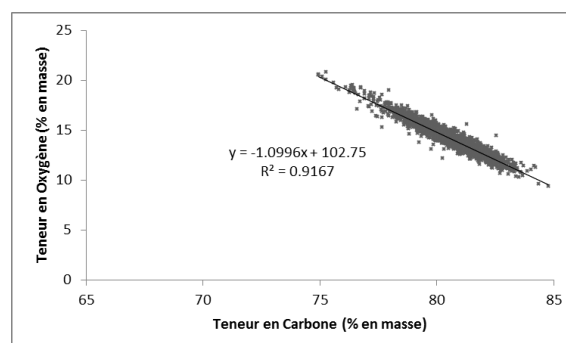


Figure 3-8 : Evolution de la composition en Carbone et en Oxygène pour les 6000 particules des trois phases de combustion hétérogène analysées

Une seule famille de composition apparait, et le coefficient directeur de la droite de corrélation ne correspond pas à ceux déterminés pour les autres phases. La Figure 3-9 présente deux images de charbons.

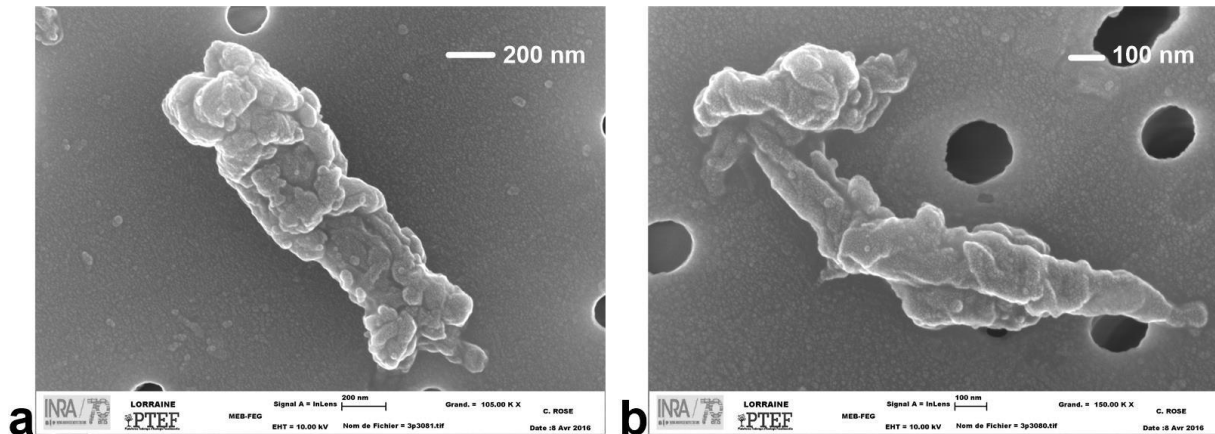


Figure 3-9 : Images de deux envolées de charbons avec quelques nanoparticules en fond à x105000 (a) et x150000 (b) émises durant la combustion hétérogène

Ces envolées de charbon semblent être les seules émissions solides de cette phase, même si quelques nanoparticules apparaissent en arrière-plan. Ces nanoparticules sont sans doute des morceaux de charbon brisés. Ainsi, dans cette série d'essais, un coefficient directeur supérieur à 1 doit correspondre aux particules de charbon. Néanmoins, ce coefficient peut varier drastiquement puisque les particules de charbon émises peuvent avoir été plus ou moins affectées par la température.

3.1.2.5 Conclusion

Trois principaux résultats peuvent être établis par cette étude :

- la phase de combustion homogène est la moins émissive en polluants gazeux ;
- la phase d'allumage est la plus émissive en particules en masse ainsi qu'en EC et OC ;
- la phase de combustion hétérogène est la plus émissive en polluants gazeux, mais la moins émissive en particules en masse.

L'allumage et la combustion homogène présentent des émissions de particules des mêmes familles. Cela est cohérent puisque dans les deux cas, les réactions sont de l'ordre gaz-gaz, même si durant la phase d'allumage, le PCI du combustible est beaucoup plus faible et l'humidité des fumées beaucoup plus importante que dans le cas de la combustion homogène. La combustion hétérogène ne brûle pas le même combustible (charbon, donc gaz-solide) et présente ainsi ses propres lois d'émissions. Trois grandes familles de particules solides ont été définies :

- nanoparticules : allumage et phase homogène ;
- morceaux de bois plus ou moins dégradé thermiquement : allumage ;
- morceaux de charbon : phase hétérogène.

La Figure 3-10 permet de résumer les caractéristiques physiques des particules des trois phases de combustion. Les résultats clés concernant les émissions TSP présentés dans cette figure sont issus de la multiplication du facteur d'émission de la phase par la masse de bois consommés durant cette phase et le débit de fumée humide en $\text{Nm}^3 \cdot \text{kg}^{-1}_{\text{bois}}$ spécifique à chaque phase.

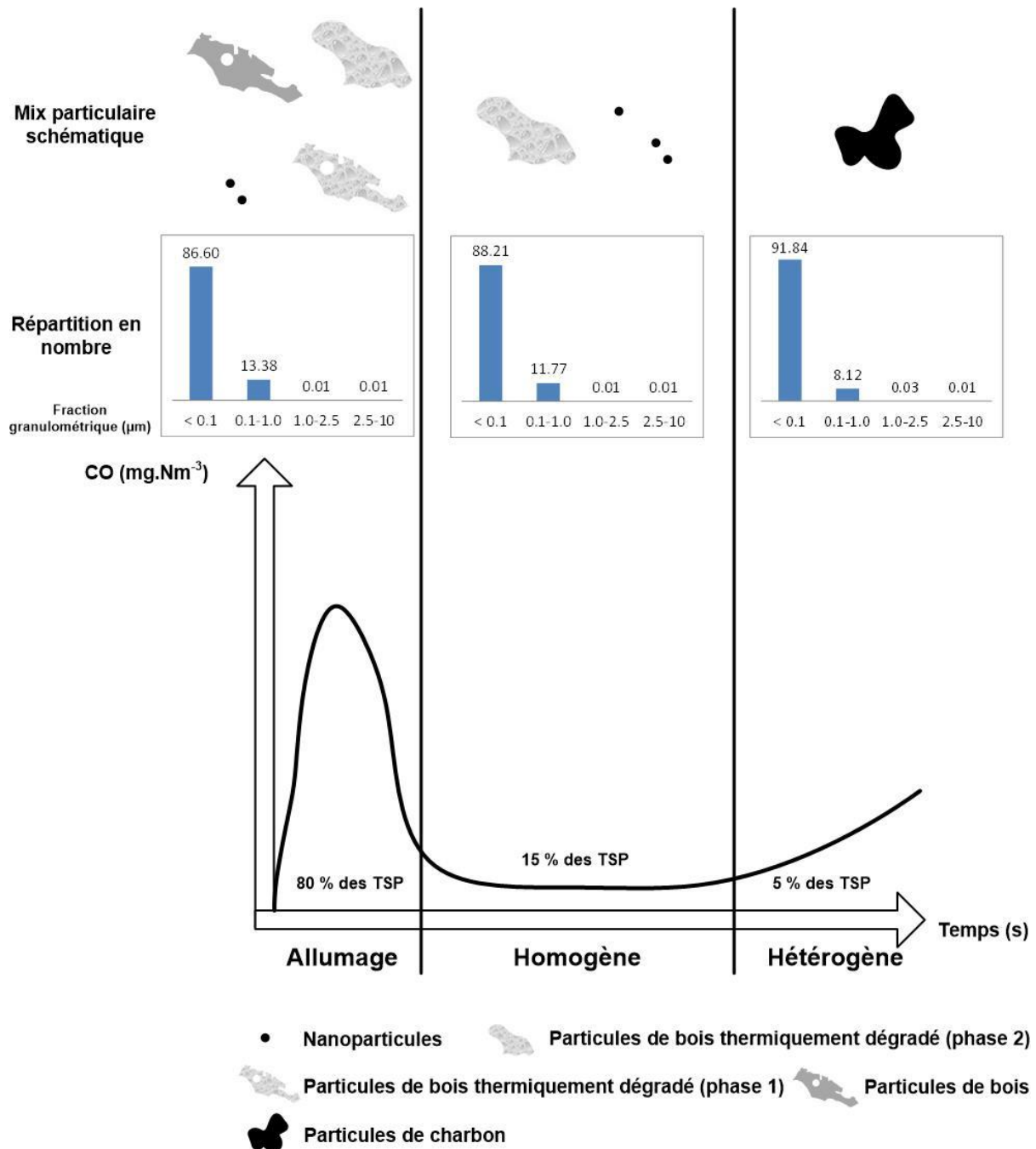


Figure 3-10 : Résumé des caractéristiques physiques des particules aux trois phases de combustion

Pour le reste de l'étude, les prélèvements dédiés à l'analyse OC/EC, à la microscopie et à la microanalyse X seront réalisés durant la phase homogène. Trois éléments justifient ce choix :

- la plus grande consommation du bois se déroule durant cette phase ;
- elle suit les mêmes lois que la phase d'allumage et donc représente une grande partie du cycle de combustion ;
- les niveaux d'émissions sont plus faibles et plus répétables, facilitant le prélèvement et l'analyse.

3.1.3 Evolution selon la génération de l'appareil

Afin d'évaluer l'impact de l'évolution des appareils de chauffage domestique à bûches, des essais sur trois appareils différents ont été réalisés : foyer SUNFLAM de 12 kW de 2000 ; foyer prototype de 12 kW de 2006 ; poêle WABI de 6 kW de 2012. Ces essais étaient inscrits pour une part dans le projet QUALICOMB. Ainsi, trois générations d'appareils ont été testées. Pour l'appareil de 2006, une partie des essais a été réalisée en obstruant l'arrivée d'air secondaire pour en évaluer l'impact. Les prélèvements classiques étaient effectués.

3.1.3.1 Les émissions des appareils

Les résultats d'émissions sont présentés dans le Tableau 3-10. Dans ce tableau, les émissions de NO et de SO₂ ne sont pas détaillées car elles sont toujours identiques, qu'importe l'appareil. Ceci est logique puisque ces émissions dépendent principalement du combustible. Ce dernier étant commun à tous les essais, il n'y a aucune raison d'observer des variations importantes.

Le premier point intéressant de ces résultats concerne l'évolution de la répétabilité des essais en fonction de la génération. Un appareil plus moderne présente des résultats plus répétables en termes d'émissions. Ainsi, l'écart maximal des émissions de CO pour l'appareil de 2000 est de 2987 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂ contre seulement 569 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂ pour les appareils modernes. Cette stabilité est valable pour l'intégralité des émissions.

Globalement, les appareils modernes sont drastiquement moins émissifs que ceux des années 2000. L'appareil moderne émet 30% de moins de CO, 45% de moins de COVT, 55% de moins de CH₄ et 92% de moins de TSP que l'appareil ancienne génération. Cette diminution significative est due à une meilleure maîtrise de la combustion dans les nouvelles technologies. L'isolation de la chambre de combustion, l'arrivée d'air secondaire et le volume de la chambre sont autant d'éléments de traitement primaire des fumées très efficaces. La gestion des arrivées d'air semble être un point particulièrement important car la concentration en Dioxygène dans les fumées ne cesse de chuter avec l'évolution des technologies.

L'appareil de 2006 avec air secondaire présente des résultats se rapprochant de l'appareil moderne au niveau des émissions gazeuses, mais reste beaucoup plus émissif au niveau des particules en masse. L'impact de l'arrivée d'air secondaire, ciblé sur les différents essais réalisés sur l'appareil de 2006, est clair. La présence d'une arrivée d'air secondaire permet une réduction des émissions de tous les polluants.

En revanche, cette étude permet de visualiser un autre point extrêmement intéressant. Lorsque les appareils présentent une combustion mieux maîtrisée, le taux de Carbone dans les émissions solides est plus important. Ceci entraîne dans un premier temps une augmentation des émissions d'EC jusqu'à 2006, puis enfin une réduction globale des émissions OC/EC. Ce phénomène est principalement lié à la réduction des émissions non carbonées, c'est-à-dire les envolées de cendres. La Figure 3-11 schématise cette évolution sous forme d'histogramme. En 1989, Rau et al. [133] avaient déjà démontré que les particules émises par la combustion de bois (dans des appareils de 1989 donc) présentaient un ratio OC/TSP d'environ 26%.

Ainsi, seule la technologie de 2012 permet de véritablement changer ce ratio et d'inverser la tendance de proportion entre les émissions d'EC et d'OC en réduisant drastiquement les émissions d'EC. Ainsi, la proportion de ces éléments est principalement due au dimensionnement de la chambre, et sans doute à la répartition air primaire/air secondaire. Johansson et al. [47] ont déterminé les mêmes évolutions des émissions sur des chaudières.

Test n°	O ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	COVT (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂ Eq. CH ₄)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC/TC (%)	TC/TSP (%)	OC/TSP (%)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	
Génération 2000	1*	12.9	2009	155	50	65.5	33.5	35.8	12.0	16	8
	2*	14.5	4996	280	98	60.0	50.4	17.8	9.0	5	5
	3*	15.8	1883	101	32	124.1	75.4	33.9	25.6	10	32
	4*	15.2	2900	160	49	71.5	76.8	31.5	24.2	5	17
	5*	14.1	2735	149	52	78.4	72.8	20.9	15.2	4	12
	Moyenne	14.5	2905	169	56	79.9	61.8	28.0	17.2	8	15
Ecart-type	1.1	1250	66	25	25.6	19.1	8.1	7.4	5	10	
Génération 2006 Sans air secondaire	1	12.0	4329	166	83	74.2	12.1	54.9	6.6	36	5
	2	12.6	3106	165	94	51.2	25.1	80.1	20.1	31	10
	3	12.2	2583	138	58	67.3	41.5	29.5	12.2	12	8
	Moyenne	12.3	3339	156	78	64.2	26.3	54.8	13.0	26	8
Ecart-type	0.3	896	16	18	11.8	14.7	25.3	6.8	13	3	
Génération 2006 Avec air secondaire	1**	14.9	2128	168	82	43.3	13.5	95.3	12.9	36	6
	2**	15.3	2372	186	80	44.3	22.0	75.8	16.6	26	7
	3**	14.4	2406	66	27	46.5	27.3	60.1	16.4	20	8
	4**	13.0	2205	78	33	42.0	26.2	100.0	26.2	31	11
	Moyenne	14.4	2278	124	56	44.0	22.2	82.8	18.0	28	8
Ecart-type	1.0	133	61	30	1.9	6.3	18.4	5.7	7	2	
Génération 2012	1*	9.7	2329	62	11	1.2	96.8	89.1	86.0	0	1
	2*	8.2	1760	94	13	2.5	92.6	94.0	86.4	0	2
	3***	10.4	1920	122	39	14.8	91.6	83.0	77.3	1	11
	4***	9.2	1788	77	64	3.2	90.0	90.4	83.2	0	3
	5***	10.3	2261	111	42	8.4	98.2	83.0	81.7	0	7
	Moyenne	9.6	2012	93	34	6.0	93.8	87.9	82.9	0	5
Ecart-type	0.9	267	24	22	5.6	3.5	4.8	3.7	0	4	

*: Essais issus du projet Quallcomb.

** : Essais réalisés pour l'étude des particules types émises par la combustion de bûches et de granulés.

***: Essais réalisés pour l'étude des trois phases de la combustion.

Tableau 3-10 : Résultats globaux des émissions de trois générations différentes de chauffage domestique au bois

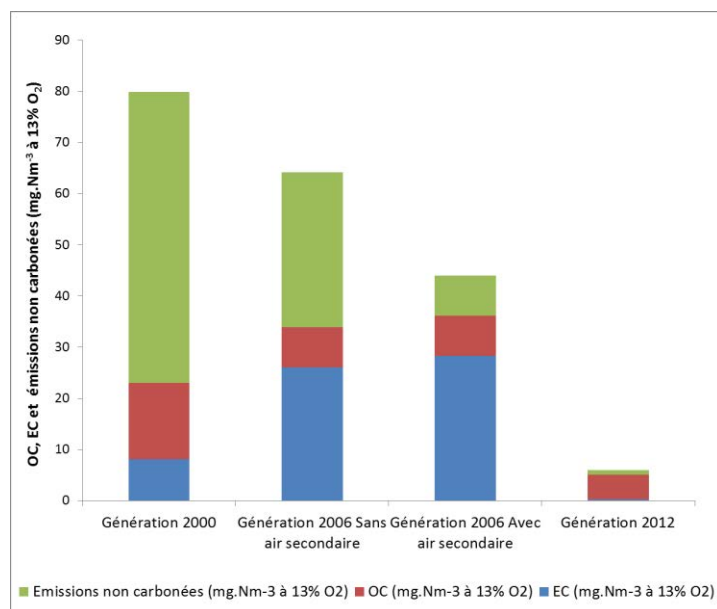


Figure 3-11 : Evolution des émissions OC, EC et non carbonées selon la génération de l'appareil

Au point de vue de leur répartition granulométrique, les résultats sont présentés dans le Tableau 3-11. Globalement, l'appareil de 2000 présente une répartition granulométrique de ses émissions la moins fine.

La présence d'air secondaire réduit considérablement la masse de particules (en réduisant les envolées de cendres) qui sont globalement plus petites. Cela peut être dû à deux raisons majeures :

- l'air secondaire permet un meilleur mélange dans la chambre de combustion ;
- l'air secondaire est un obstacle aux envolées de cendres.

L'appareil de 2012 présente une chambre mieux dimensionnée. Ceci augmente considérablement la fraction ultrafine (ce qui ne signifie en rien que plus de $PM_{0,1}$ sont émises).

Génération d'appareil	$PM_{0,1}$ (%nombre)	$PM_{0,1-1,0}$ (%nombre)	$PM_{1,0-2,5}$ (%nombre)	$PM_{2,5-10}$ (%nombre)
2000	67.4	29.1	3.4	0.1
2006 sans air secondaire	60.5	39.5	0.0	0.0
2006 avec air secondaire	70.2	29.8	0.0	0.0
2012	90.2	9.8	0.0	0.0

Tableau 3-11 : Moyenne des résultats obtenus via l'ELPI

De tous ces résultats, quelques tendances peuvent être dégagées. En premier lieu, les émissions de TC semblent caractéristiques pour chaque type de technologie, comme les émissions d'EC et de TSP. Pour confirmer ce point, la Figure 3-12 illustre les résultats d'évolution des émissions de TC en fonction des émissions d'EC et de TSP de manière conjointe pour tous les appareils présentant à la fois une arrivée d'air secondaire et une chambre de combustion isolée.

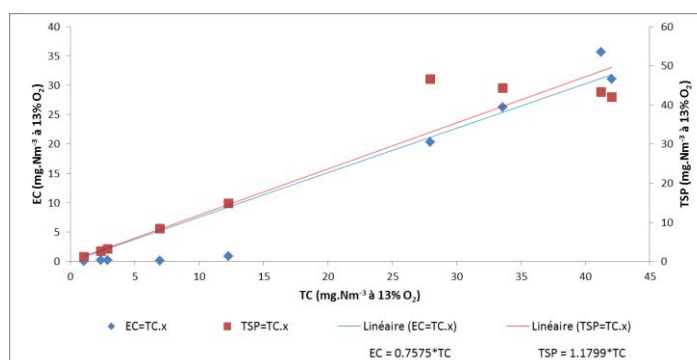


Figure 3-12 : Lien entre les émissions de TC avec les émissions d'EC et de TSP pour les appareils présentant à la fois une arrivée d'air secondaire et une chambre de combustion isolée

Sur cette figure, il apparaît clairement que les lois d'évolution de ces polluants sont communes à ces deux technologies. La Figure 3-13 présente ces mêmes courbes pour l'appareil de 2000.

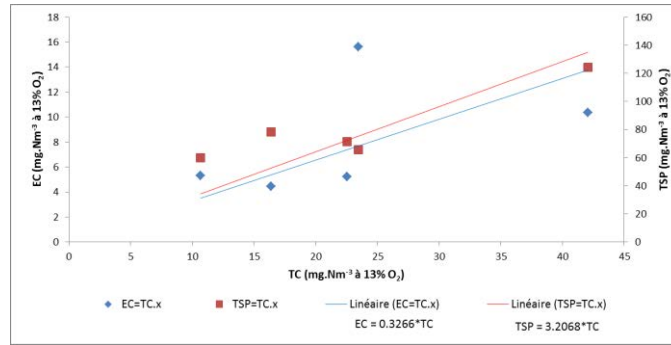


Figure 3-13 : Lien entre les émissions de TC avec les émissions d'EC et de TSP pour les appareils ne présentant ni entrée d'air secondaire ni isolation de la chambre de combustion

Malgré une instabilité de la combustion dans cet appareil, les points restent tout de même groupés. Les tendances sont cependant confirmées, et les équations sont complètement différentes selon la technologie de l'appareil. Les points provenant de l'appareil de 2006 avec l'arrivée d'air secondaire obstruée ne sont pas placés sur ces graphiques. La raison de cette absence provient du fait que l'ajout de ces points dégrade les deux courbes, dans les deux cas. Ainsi, la caractérisation de ces émissions est impactée par la combinaison de l'air secondaire et d'une chambre isolée, et non pas par un seul de ces critères. Les courbes de cet appareil dans ces conditions n'ont pas été tracées car elles n'auraient été basées que sur trois points, et aucune conclusion n'aurait pu en être tirée.

En revanche, les lois d'émissions du OC dépendent du design même de l'appareil et non pas seulement de la technologie utilisée comme c'était le cas pour les émissions de TC, EC et TSP. La Figure 3-14 présente l'évolution du ratio OC/TC pour chaque génération d'appareil.

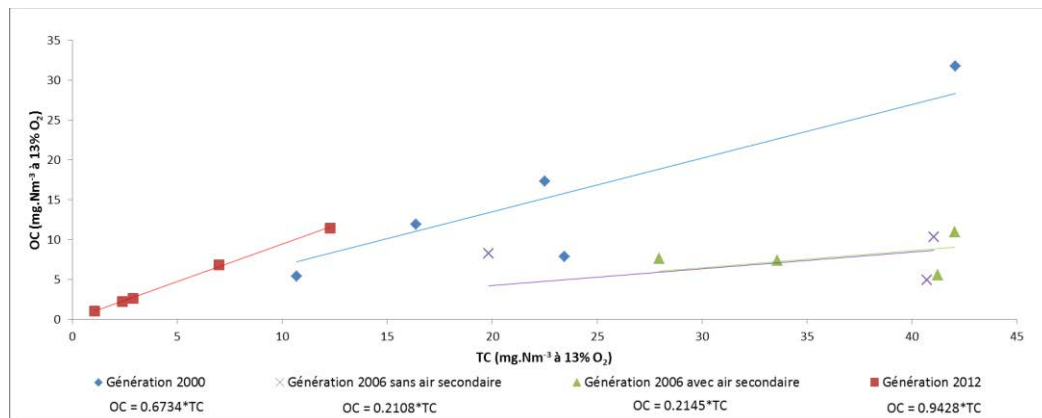


Figure 3-14 : Evolution de ratio OC/TC pour chaque génération d'appareil

Trois éléments majeurs ressortent de cette figure. D'une part, cette figure confirme que chaque appareil possède sa propre loi d'évolution du ratio OC/TC. D'autre part, la présence ou non d'air secondaire ne modifie en rien cette loi. En effet, les points issus des essais sur l'appareil de 2006 avec de l'air secondaire sont confondus avec les points du même appareil mais sans air secondaire. Ces deux groupes de points occupent le même espace et sont bien distincts des autres groupes.

Un point particulier est à relever sur l'évolution du rapport OC/TC dans le cas de l'appareil de 2000. Malgré des essais peu répétables, les points suivent une tendance claire. Ainsi, ce ratio est plus dépendant de la technologie que de la qualité même de la combustion. La qualité de la combustion va influencer sur la quantité émise, mais la nature de la composition en OC des particules restera inchangée. L'alignement parfait des points de l'appareil nouvelle génération prouve ce phénomène.

3.1.3.2 Les HAP

Les HAP16 ont quant à eux été observés uniquement sur l'appareil de 2006 et l'appareil récent. Cela se justifie par le fait que les essais sur l'appareil ancien étaient inscrits dans le projet QUALICOMB, et qu'aucun prélèvement de HAP n'a été réalisé avec ces conditions (plan d'expériences). Les résultats sont particulièrement intéressants. La présence d'air secondaire permet une réduction de 80% des émissions de HAP16. L'appareil de 2012 émet 70% de moins de HAP16 que la génération 2006 avec air secondaire.

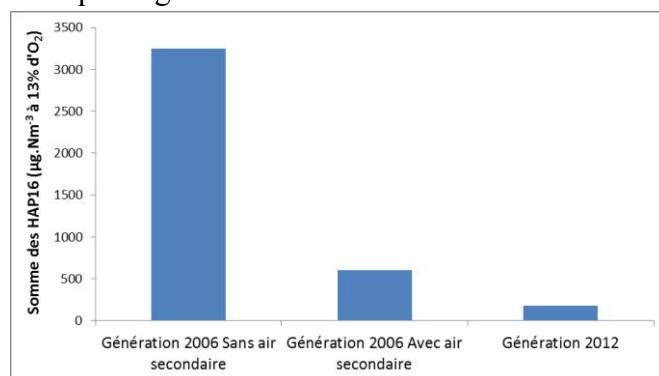


Figure 3-15 : Moyenne des émissions de HAP16 pour chaque appareil

En revanche, la répartition de ces HAP16 semble constante, comme le montre la Figure 3-16.

Les cinq composés principaux sont :

- le Naphtalène, environ 65% des HAP16 ;
- le Phénanthrène, environ 13% des HAP16 ;
- le Fluoranthène, environ 6% des HAP16 ;
- le Pyrène, environ 5% des HAP16 ;
- l'Acénaphylène, environ 5% des HAP16.

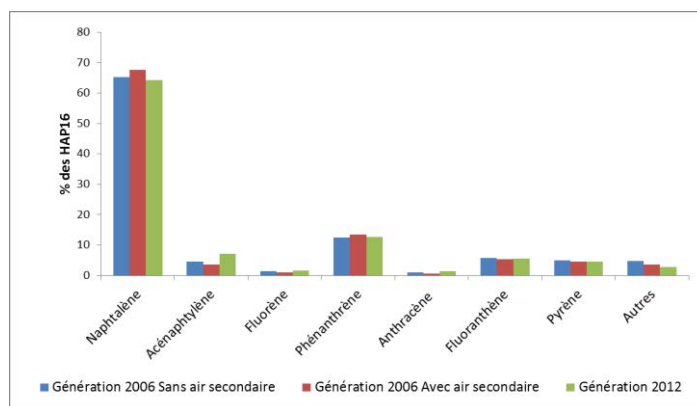


Figure 3-16 : Répartition des HAP pour chaque appareil

Ainsi, la présence d'air secondaire, la répartition air primaire/air secondaire et le dimensionnement de la chambre de combustion permettent une réduction drastique des émissions de HAP16, mais n'en changent pas la nature.

3.1.3.3 Microanalyse X des particules

Le Tableau 3-12 présente les moyennes par génération d'appareils des résultats de microanalyse X. Une incohérence se pose au vu des résultats. En effet, qu'importe la génération de l'appareil, le taux de Carbone avoisine 78% en masse. Or, les analyses OC/EC montraient un écart significatif entre chaque génération d'appareils. La seule réponse envisageable serait que les émissions de particules non-carbonées ne sont pas analysées par le microscope. Plusieurs raisons pourraient expliquer ce phénomène :

- pour une partie des particules non-carbonées, leur taille est inférieure à la limite de détection du microscope avec nos réglages ;
- les particules sont très peu solides. Cela implique que lors de l'impaction sur le filtre, la fraction de taille détectable peut se briser, produisant à nouveaux des particules indétectables avec nos réglages ;
- pour la dernière portion de particules restantes, ce sont sans doute les réglages des différents paramètres (seuillage, tension d'accélération, métallisation, ...) qui ne permettent pas l'auto-détection et/ou la microanalyse X de ces particules.

Globalement, la raison exacte de cette absence d'analyse doit être un mix de ces trois propositions. Hasler et al. [134] ont caractérisé en 1998 la granulométrie des envolées de cendres. Ces envolées sont largement dominées par la fraction fine de leur impacteur, à savoir 0,21 μm . Si le phénomène de turbulence et de l'impact dû au prélèvement sont rajoutés à ces valeurs, la granulométrie ne peut qu'être encore plus fine. Dans ce cas, l'auto-détection de particules (avec nos réglages) ne pourrait pas les repérer.

En revanche, la microanalyse X parvient tout de même à détecter des éléments inorganiques. Finalement, seuls les éléments non carbonés piégés dans des particules carbonées sont analysés. Ainsi, la fréquence de présence d'éléments non-carbonés dans les particules n'exprime pas la quantité de matière non-carbonée émise, mais uniquement la composition précise des particules carbonées. Pour aller plus loin, cette fraction permet de revenir à la réactivité des particules émises. En effet, si les particules sont majoritairement composées d'EC, la réactivité est faible et peu d'éléments peuvent réagir avec. A l'inverse, une grande émission d'OC induit une forte réactivité des particules, donc une statistique de réaction avec d'autres éléments plus importantes. La Figure 3-17 présente l'évolution de la fréquence de particules contenant des éléments autres que le C et l'O en fonction des émissions d'OC (données issues des essais : appareil de 2012 et 2006 avec l'air secondaire ouvert).

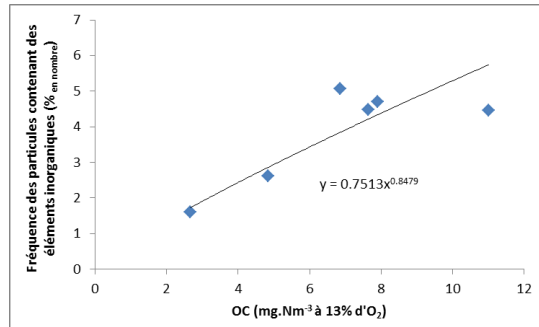


Figure 3-17 : Evolution de la fréquence de particules contenant des éléments autres que le Carbone et l'Oxygène en fonction des émissions d'OC

La tendance est claire : des émissions d'OC croissantes induisent une fréquence de présence d'éléments autres que le Carbone et l'Oxygène plus importante. Cette courbe ne peut être tracée que par type de technologie et n'est valable que pour des faibles niveaux d'émissions a priori. La raison de cette limite pourrait provenir de la réactivité induite par l'appareil (niveaux de température, etc...) mais aussi par l'importance des émissions d'EC qui pourraient inhiber la réactivité due à l'OC. Un autre élément de vérification de cette hypothèse serait de regarder si l'écart entre le taux de Carbone mesuré par l'analyseur OC/EC et celui mesuré par la microanalyse X est corrélé aux émissions de matières non-carbonées. La Figure 3-18 présente cette évolution. Pour réaliser cette figure, seuls les essais métallisés simultanément ont été placés sur le graphique (2000 : essai 5 ; 2006 sans air secondaire : essais 2 et 3 ; 2006 avec air secondaire : essais 3 et 4 ; 2012 : essais 3, 4 et 5). Les points dont l'écart était négatif ont été remplacés à une valeur standard de 0.

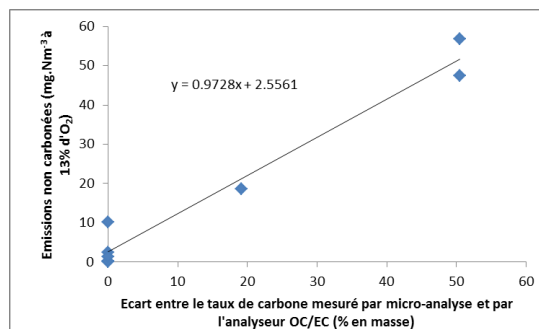


Figure 3-18 : Evolution des émissions non carbonées en fonction de l'écart entre le taux de Carbone mesuré par microanalyse X et par l'analyseur OC/EC

La relation semble correcte malgré une concentration de points au départ et à la fin de la courbe de tendance. Néanmoins, un point central permet tout de même d'apporter de la consistance à cette tendance. Apparemment, cette tendance ne dépend pas de la technologie d'appareils, ce qui paraît plutôt logique. Ainsi, l'hypothèse semble vérifiée.

Tous ces éléments de réponse et la visualisation de cette nouvelle limite de la microanalyse X permettent aussi une meilleure compréhension des résultats obtenus lors de la caractérisation des émissions de la phase d'allumage. Finalement, la fraction non-carbonée émise en quantité importante durant la phase d'allumage (comme démontré en 3.1.2.2), n'était pas détectée lors

de l'étape d'auto-détection de la microanalyse X ou tout simplement pas analysée. Le questionnement ouvert précédemment a donc trouvé une réponse.

Quoiqu'il en soit, ces résultats permettent tout de même de mieux comprendre différents phénomènes. Bien que ce point ait déjà été décrit, l'appareil de 2012 ne contient que peu de particules contenant d'autres éléments que C et O. Cette nouvelle compréhension de la microanalyse X permet de clarifier la problématique de mesure rencontrée lors de l'étude des trois phases de combustion. Ainsi, les nanoparticules, dont la composition en OC/EC n'avait pas vraiment été mesurée (trop faible quantité, l'adsorption du filtre était majoritairement mesurée) seraient donc peu composées d'OC puisque la microanalyse X les décrit comme peu réactives. Finalement, ces nanoparticules sont majoritairement composées d'EC. L'appareil de 2000 émettrait lui aussi des particules relativement peu réactives (5,3% de fréquence d'éléments autres que C et O). L'élément inorganique majeur est le Zirconium. Seules quelques traces de Soufre et d'Aluminium ont été analysées. L'air secondaire semble diminuer la réactivité des particules puisque la fréquence d'inorganiques est presque divisée par deux. De plus, la Silice est fortement concentrée dans le cas de la combustion sans air secondaire mais disparaît une fois l'air secondaire rétabli, alors que la composition moyenne reste stable. L'élément majeur reste le Zirconium, suivi de la Silice et du Soufre si l'air secondaire est obstrué, et seulement du Soufre s'il est ouvert.

	O = a*C + b			Généralités		Na		Al		Si		S		Cl		Cu		Zr	
	a	b	r ²	C moyen (% en masse)	Fréquence d'éléments autres que C et O (% en nombre)	Fréquence (% en nombre)	Composition moyenne (% en masse)	Fréquence (% en nombre)	Composition moyenne (% en masse)	Fréquence (% en nombre)	Composition moyenne (% en masse)	Fréquence (% en nombre)	Composition moyenne (% en masse)	Fréquence (% en nombre)	Composition moyenne (% en masse)	Fréquence (% en nombre)	Composition moyenne (% en masse)	Fréquence (% en nombre)	Composition moyenne (% en masse)
2000	-1.13	100.17	0.72	78.4	5.3	0.0	0.0	0.4	0.4	0.0	0.0	0.8	0.3	0.0	0.0	0.0	0.0	4.8	1.7
2006 sans air secondaire	-0.74	73.04	0.54	78.7	10.0	0.0	0.0	0.4	0.3	4.4	0.2	2.0	0.3	0.0	0.0	0.0	0.0	5.0	0.9
2006 avec air secondaire	-0.66	65.22	0.53	79.1	4.7	0.2	0.5	0.5	0.3	0.5	0.2	1.4	0.4	0.2	0.2	0.0	0.4	2.7	1.1
2012	-1.04	94.39	0.76	78.5	2.6	0.0	0.2	0.2	1.1	0.0	0.0	1.4	1.4	0.0	0.0	0.0	0.0	1.9	1.0

Tableau 3-12 : Bilan des résultats de microanalyse X sur les différents appareils

3.1.3.4 Imagerie des particules

L'imagerie a permis de valider ces différentes hypothèses, et de mieux caractériser physiquement les émissions de chaque génération. La Figure 3-19 présente les émissions types de l'appareil de 2000. Aucune nanoparticule n'a été visualisée. En revanche, des envolées de charbons, et sans doute de cendres sont présentes.

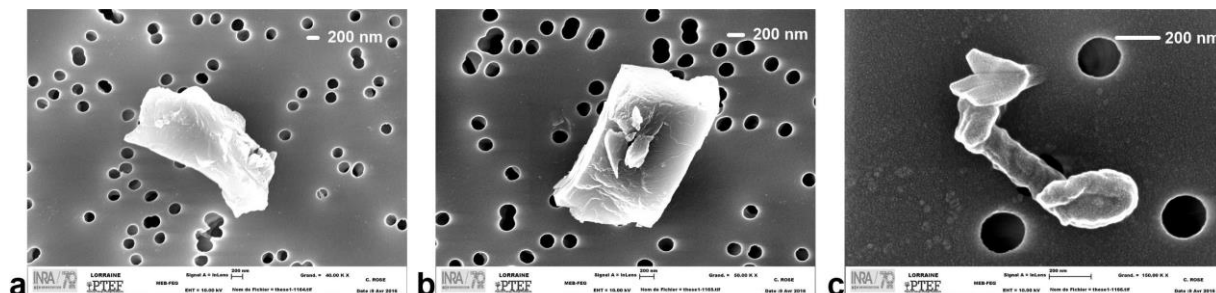


Figure 3-19 : Clichés de morceaux de charbon (a, x40000 ; b, x50000) et d'envolées de cendres (c x50000) émis par le foyer fermé de 2000

Pour l'appareil de 2006, l'air secondaire fermé implique une agglomération importante des nanoparticules (Figure 3-20). Cela provient sans doute du fait que leur concentration est élevée dans le milieu gazeux, facilitant ainsi leur agglomération. Des morceaux de charbon et/ou de bois thermiquement dégradé sont aussi émis dans ces conditions.

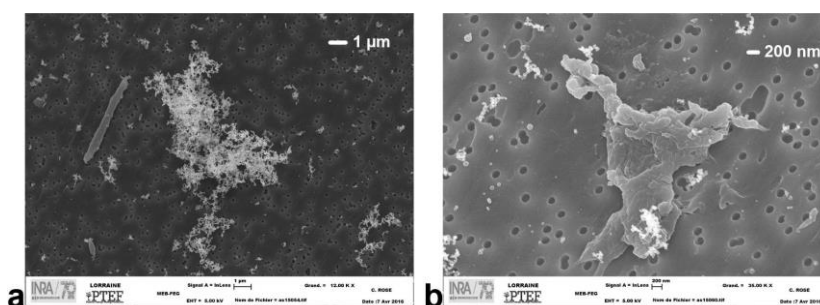


Figure 3-20 : Clichés d'agglomérats de nanoparticules et de morceaux de charbon (a, x12000 ; b, x35000) émis par le foyer fermé de 2006 avec l'air secondaire fermé

La Figure 3-21 présente les émissions de l'appareil de 2006 avec de l'air secondaire.

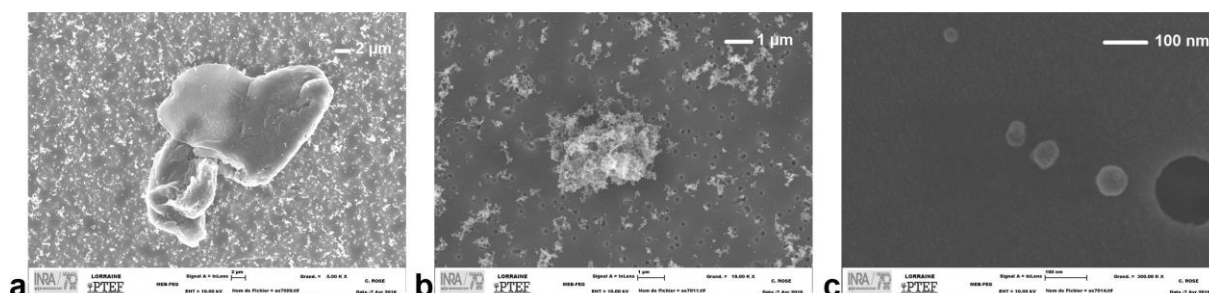


Figure 3-21 : Clichés de morceaux de charbon (a, x5000), nanoparticules agglomérées (b, x19000) et de nanoparticules isolées (c, x300000) émis par le foyer fermé de 2006 avec l'air secondaire ouvert

Ainsi, de nombreuses nanoparticules peu ou pas agglomérées et des morceaux de charbons sont émis. Dans le cas de l'appareil de 2012, les clichés ont déjà été placés dans la partie 3.1.2.3, et montrent que seules des nanoparticules peu ou pas agglomérés sont émises.

3.1.3.5 Conclusion

Pour résumer, cette partie de l'étude a permis de mettre en évidence de nombreux phénomènes dont les majeurs sont rappelés ici :

- l'air secondaire influe sur la quantité de polluants émis (gazeux et solides) ainsi que sur la répartition granulométrique des particules ;
- l'air secondaire n'influe ni sur la nature chimique des particules émises (notamment le ratio OC/TSP) ni sur les proportions relatives des différents HAP ;
- le ratio OC/TC ne dépend aucunement de la qualité de la combustion ;
- le design de l'appareil est le principal facteur impactant le ratio OC/TC des particules émises ;
- la technologie de l'appareil, qu'importe son design, influe sur les lois d'évolution des ratios EC/TC et TC/TSP.

Le dernier point important qui a été démontré dans cette partie est la non-analyse des envolées de cendres et autres particules non-carbonées lors de la microanalyse X. Les envolées de cendres sont soit trop fines, soit trop peu denses pour être analysées par le microscope. La seule fraction d'éléments autres que le C et l'O analysables par cette méthodologie est celle qui compose les particules carbonées. Ainsi, la composition en éléments inorganiques a été directement reliée aux émissions d'OC, autrement dit à la réactivité des particules émises.

3.2 Influences de divers paramètres sur les émissions

Cette partie a pour objectif de caractériser l'impact de différents paramètres d'utilisation sur les émissions polluantes d'un appareil à bûches :

- impact de la méthode d'allumage de l'appareil ;
- impact de la nature du combustible utilisé (humidité, écorces, essence) ;
- impact des réglages de l'appareil (arrivée d'air).

3.2.1 Méthode d'allumage

Deux techniques classiques d'allumage des appareils existent :

- La technique traditionnelle avec du petit bois sec posé sur du papier ;
- La technique de l'allumage inversé pour laquelle le papier est placé au-dessus de petit bois sec. Cette seconde méthode, aussi appelée « Top&Down » est notamment préconisée dans certains pays comme la Suisse.

La Figure 3-22 présente une photographie de chaque type d'allumage, et donc de positionnement du combustible.



Figure 3-22 : Allumage Top&Down (a) et allumage traditionnel (b)

3.2.1.1 Définition des charges et des temps de prélèvement

Afin d'évaluer l'impact de la méthode d'allumage, six essais ont été réalisés. Le bois utilisé était toujours du HSECse. Pour l'allumage inversé, les charges étaient toujours composées de sept étages. Le Tableau 3-13 présente le détail des charges de combustible utilisées pour chaque essai. Nous avons veillé à ce que les charges en bois soient identiques dans les deux cas.

Essai	Etage 1 (g)	Etage 2 (g)	Etage 3 (g)	Etage 4 (g)	Etage 5 (g)	Etage 6 (g)	Etage 7 (g)	Total (g)
Top&Down 1	418.8	348.7	117.8	116.8	97.7	82.5	57.2	1239.5
Top&Down 2	399.8	335.5	147.1	109.7	92.2	77.2	68.7	1230.2
Top&Down 3	524.1	246.2	156.5	128	96.2	49.7	33.1	1233.8
	Bois larges (g)	Bois moyens (g)	Petits bois (g)	Total (g)				
Traditionnel 1	777.4	123.5	258	1158.9				
Traditionnel 2	710.7	240.5	272	1223.2				
Traditionnel 3	633.6	284.7	316.6	1234.9				

Tableau 3-13 : Description des charges de combustible de la série d'essais sur l'influence du mode d'allumage

Les essais simulant le démarrage de l'appareil étaient arrêtés aussitôt que les flammes disparaissaient. En effet, la majorité des utilisateurs questionnés lors de l'enquête de Wöhler et al. [135] dans le cadre du projet européen « BeReal » recharge l'appareil à ce moment, c'est-à-dire quand seules de petites flammes restent dans la chambre de combustion ou quand celles-ci ont totalement disparues.

3.2.1.2 Les émissions des deux modes d'allumage

Les résultats sur les analyses de gaz sont présentés en Tableau 3-14.

Type d'allumage	n° d'essai	Consommation bois (% de $m_{initiale}$)	O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	SO ₂ (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	COVT (mg.Nm ⁻³ Eq CH ₄ à 13% d'O ₂)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	Fumées (°C)
Top-Down	1	84	13.2	7.4	2131	72	6	210	46	241
	2	76	12.5	8.1	2266	73	5	111	30	231
	3	70	11.2	9.2	2183	65	5	134	30	249
	Moyenne	77	12.3	8.2	2193	70	5	152	35	240
	Ecart-Type	7	1.0	0.9	68	4	1	52	9	9
Traditionnel	1	86	11.3	9.0	4893	73	25	356	113	254
	2	83	10.0	10.2	4151	64	27	276	111	270
	3	87	10.8	9.5	5044	56	37	347	104	271
	Moyenne	86	10.7	9.5	4696	64	30	326	109	265
	Ecart-Type	2	0.7	0.6	478	9	6	44	5	10

Tableau 3-14 : Résultats des émissions gazeuses

Le premier élément témoignant de la réussite de ces essais est leur grande répétabilité. Sur tous les polluants mesurés, les variations sont très faibles. Les résultats sont sans appel quant à l'efficacité de l'allumage inversé. En effet, les émissions de CO passent d'un niveau moyen pour l'allumage traditionnel de 4696 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂ à 2193 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂ pour l'allumage « Top&Down », soit plus de deux fois moins. Pour les COVT, le même écart est constaté en passant de 326 mg.Nm⁻³ eq. CH₄ à 13% d'O₂ à 152 mg.Nm⁻³ eq. CH₄ à 13% d'O₂. Le CH₄ et le SO₂ suivent cette même tendance, mais en étant divisé par 3 pour le CH₄ (109 à 35 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂) et par 6 pour le SO₂ (30 à 5 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂). En revanche, aucun effet significatif n'est visible sur les émissions de NO bien que la température des fumées soit en moyenne de 25°C plus faible lors de l'allumage « Top&Down ». Vicente et al. [136] avaient trouvé un écart en température équivalent entre les deux modes d'allumage. Tous ces phénomènes sont sûrement dus à la non-obstruction des passages d'air dans le cas de l'allumage inversé, ce qui facilite la combustion.

Concernant les émissions solides, les essais ont été très répétables pour les mesures en TSP mais plus variables lors des mesures ELPI. Le Tableau 3-15 présente l'intégralité des résultats d'émissions solides.

Type d'allumage	n° d'essai	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	PM 0.1µm (%nombre)	PM 0.1-1.0 µm (%nombre)	PM 1.0-2.5 µm (%nombre)	PM 2.5-10 µm (%nombre)
Top-Down	1	49	80.1	19.9	0.02	0.01
	2	47	84.1	15.9	0.01	0.00
	3	50	77.8	22.1	0.02	0.01
	Moyenne	49	80.7	19.3	0.02	0.01
	Ecart-type	1	3.2	3.2	0.01	0.00
Traditionnel	1	78	72.6	27.4	0.01	0.01
	2	66	67.7	32.3	0.02	0.01
	3	73	66.5	33.5	0.02	0.01
	Moyenne	72	68.9	31.1	0.02	0.01
	Ecart-type	6	3.2	3.2	0.00	0.00

Tableau 3-15 : Résultats des émissions de particules en masse et en nombre

L'allumage inversé diminue de plus de 30% les émissions TSP (49 contre 72 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂). Miljevic et al. [137] avaient quant à eux déterminé une réduction des émissions TSP comprises entre 50 et 80%. Néanmoins, Vicente et al. [138] avaient établi une légère augmentation du nombre de particules émises. La répartition granulométrique est répétable. Ainsi, les particules émises lors de l'allumage traditionnel sont composées à environ 70% d'ultrafines (<0,1 µm) contre 80% dans le cas de l'allumage inversé. Pettersson et al. [139] ainsi que Båfver et al. [140] avaient caractérisé les émissions de l'allumage traditionnel et trouvaient une distribution semblable.

Le Tableau 3-16 présente les résultats d'analyses OC/EC.

Type d'allumage	n° d'essai	OC Ratio (%)	TC Ratio (%)	OC Global Ratio (%)	TC (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂)
Top-Down	1	27.4	95.9	26.3	47	13	34
	2	19.8	96.6	19.1	46	9	37
	3	12.1	93.7	11.3	47	6	41
	Moyenne	19.8	95.4	18.9	47	9	37
	Ecart-type	7.6	1.6	7.5	1	4	4
Traditionnel	1	59.9	77.4	46.4	60	36	24
	2	68.2	64.5	44.0	42	29	13
	3	64.5	77.6	50.1	56	36	20
	Moyenne	64.2	73.2	46.8	53	34	19
	Ecart-type	4.2	7.5	3.1	9	4	5

$$OC\ ratio = (OC/TC)*100$$

$$OC\ Global\ Ratio = (OC/TSP)*100$$

$$TC\ ratio = (TC/TSP)*100$$

Tableau 3-16 : Résultats des analyses OC/EC

L'allumage inversé conduit à deux caractéristiques :

- une légère diminution des émissions de TC (46,5 contre 53 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂) malgré un taux de Carbone 20% plus important (95% contre 73%) ;
- une forte diminution des émissions d'OC (9,2 contre 33,8 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂) ;
- une augmentation des émissions d'EC (37,3 contre 19,2 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂).

L'augmentation des émissions d'EC est certainement due à une combustion plus efficace (d'où la réduction des émissions de CO, de COV et de TSP) conduisant à une température de flamme sans doute plus importante.

D'après tous les résultats obtenus jusqu'à maintenant, une diminution des émissions d'OC semble être liée à la diminution des émissions TSP.

3.2.1.3 Microanalyse X et imagerie des particules

Dans les particules émises, le Zirconium a une fréquence d'apparition de 5% dans le cas de l'allumage inversé contre 3% avec l'allumage classique. Le Soufre est également plus présent avec le « Top&Down » avec 3% contre 0,6%. La présence des autres éléments n'est qu'anecdotique. En ce qui concerne l'évolution de la composition en Carbone et en Oxygène, la Figure 3-23 présente les courbes d'évolution des deux types d'allumage.

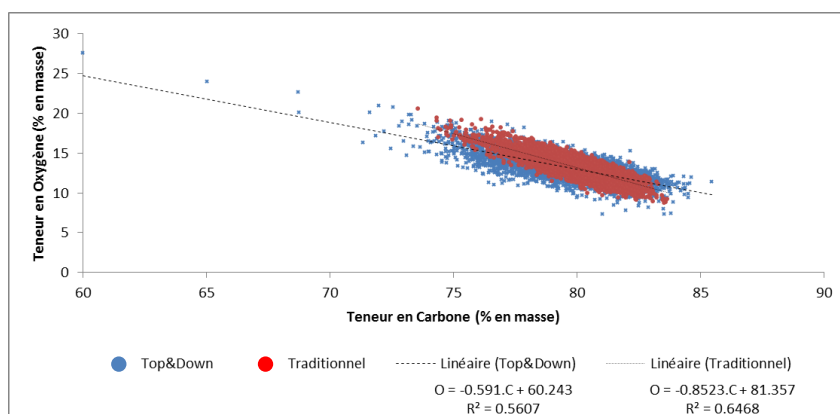


Figure 3-23 : Evolution de la composition en Carbone et en Oxygène pour 6000 particules de chaque type d'allumage

Les points correspondant à l'allumage inversé sont sans doute un mélange de deux groupes de particules (nuages étalés), mais la distinction est difficile à réaliser. Les deux équations semblent différentes, et ne semblent pas correspondre à celles établies dans l'étude des trois phases de combustion (pourtant réalisés sur le même appareil de chauffage). Cependant, l'imagerie dévoile que l'allumage « Top&Down » émet principalement des nanoparticules et des morceaux de charbon, comme le montre la Figure 3-24.

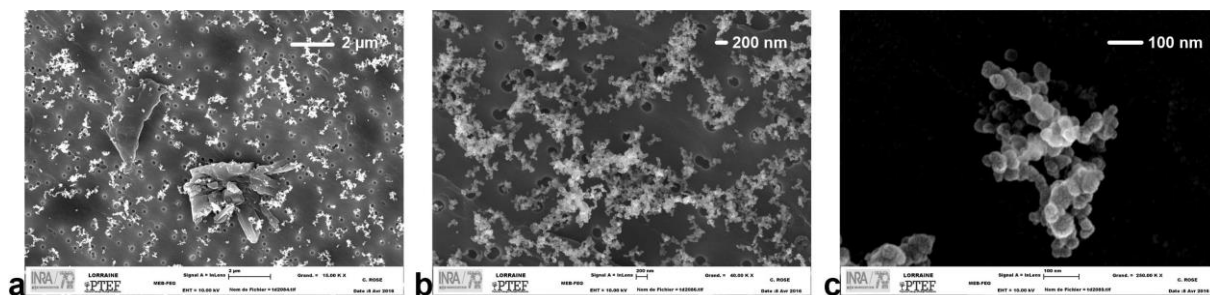


Figure 3-24 : Clichés de morceaux de charbon (a, x15000) et de nanoparticules (b, x40000 et c, x250000)

Cela signifie donc que le coefficient directeur de l'équation linéaire de corrélation dépend d'un autre paramètre que le type de particules uniquement. La principale différence entre cette série d'essais et celle sur l'étude des trois phases est que l'appareil était froid. La température jouerait donc un rôle primordial sur la composition en Carbone des particules.

L'allumage traditionnel émet de nombreux types de particules différentes :

- des nanoparticules agglomérées, Figure 3-25 a ;
- des morceaux de bois très dégradé, Figure 3-25 b ;
- des morceaux de charbon, Figure 3-26 ;
- des condensats sphériques de toutes tailles, Figure 3-27.

Chakrabarty et al. [141] décrivent cette dernière famille comme étant des HAP condensés. Les morceaux de charbon émis ont une taille généralement comprise entre 2 et 4 μm . Hueglin et al. [26] avaient caractérisé des envolées de charbon présentant la même granulométrie.

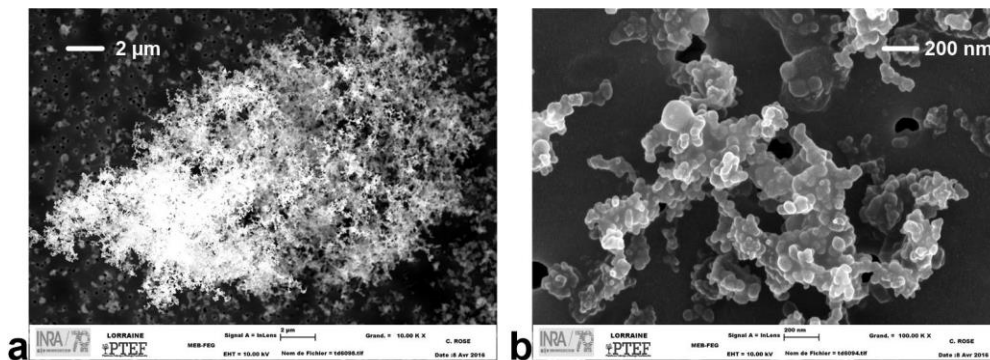


Figure 3-25 : Agglomérats de nanoparticules (a, x10000) et bois thermiquement très dégradé (b, x100000)

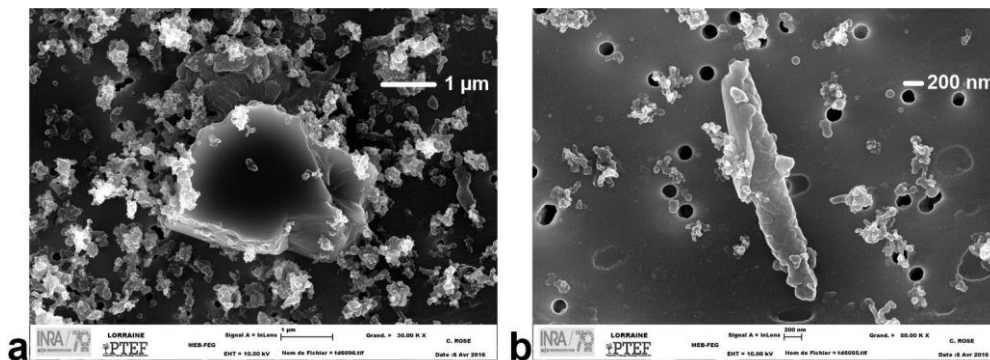


Figure 3-26 : Morceaux de charbons (a, x30000 et b, x50000)

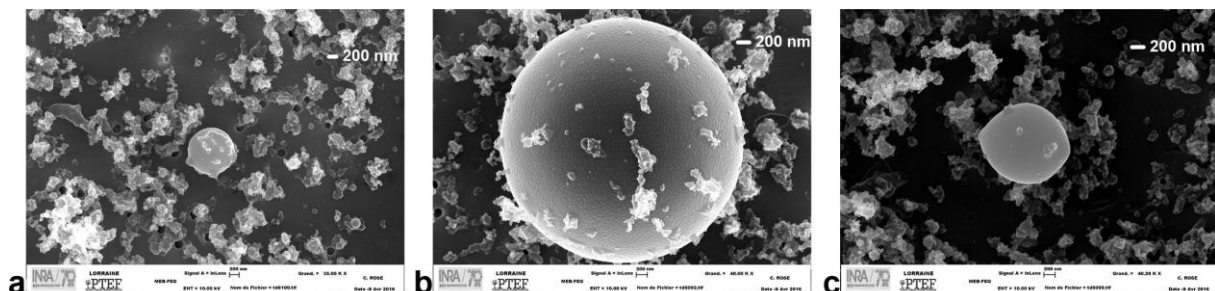


Figure 3-27 : Condensats sphériques (a, x35000 ; b, x40000 ; c, x40280)

Reichert et al. [142] ont démontré dans une enquête que 80% des utilisateurs d'appareils de chauffage au bois bûches utilisaient l'allumage traditionnel, et Wöhler et al. [135] confirment ces résultats dans leur enquête contenant 2000 participants à travers l'Europe. Ainsi, un scénario d'émissions a été élaboré afin d'évaluer l'impact de l'allumage inversé sur une semaine de chauffe classique afin d'évaluer la réduction potentielle des émissions polluantes si l'allumage inversé se généralisait. Les résultats, présentés en annexe A, sont très convaincants. Ainsi, la pratique de l'allumage inversé sur une semaine dans le poêle WABI permet de :

- réduire les émissions de CO de plus de 10% ;
- réduire les émissions de COVT, CH₄, TSP et TC de plus de 12% ;
- réduire les émissions d'OC de plus de 40%.

En revanche, les émissions d'EC augmenteraient de 65%.

3.2.1.4 Conclusion

A charge de bois équivalente, l'allumage inversé permet de réduire de manière significative les émissions polluantes. Seules les émissions d'EC sont plus élevées lors d'un allumage inversé. Ces deux phénomènes sont le résultat d'une amélioration de la combustion via l'application de l'allumage inversé. En effet, l'air circule mieux dans la chambre. De ce fait, le taux de Dioxygène présent est plus élevé, permettant une oxydation plus complète des gaz de pyrolyse.

L'allumage inversé émet principalement des agglomérats de nanoparticules et des morceaux de charbon. L'allumage traditionnel émet quant à lui :

- des nanoparticules (agglomérées ou non) ;
- des morceaux de charbon ;
- des morceaux de bois (dégradé thermiquement ou non) ;
- des COSV condensés.

Ainsi, l'optimisation de la combustion permet de limiter les émissions de morceaux de bois (dégradé thermiquement ou non) et des COSV condensés.

3.2.2 Caractéristiques des Combustible

Cette partie de l'étude est basée partiellement sur les essais réalisés lors du projet QUALICOMB [110]. Ces essais ont soit été réalisés en interne au LERMAB, soit chez des fabricants d'appareils par le CERIC, soit directement au CERIC. Les caractéristiques des combustibles qui ont variées sont :

- l'humidité ;
- la présence d'écorces ;
- l'essence (seulement deux essences testées).

Le critère de calibre du combustible n'est pas détaillé ici puisque le projet QUALICOMB démontre que son impact est négligeable au point de vue des émissions. De plus, d'autres études, comme celle de Shen et al. [143] sur une cuisinière, démontrent la même chose.

3.2.2.1 Impact de l'humidité

Pour pouvoir évaluer l'impact de l'humidité sur les émissions, deux séries d'essais issus du projet QUALICOMB [110] réalisés en interne au LERMAB peuvent être comparés. Le Tableau 3-17 récapitule les caractéristiques de ces deux essais. Pour faciliter la lecture de ces tableaux, voici une traduction des niveaux des paramètres :

- appareil : 1, poêle WABI ; 2, foyer SUNFLAM ;
- allumage / tirage : 1, départ à chaud / tirage régulé ; 2, départ à froid / tirage naturel ;
- humidité : 1, bûche sèche (12%, HSEC) ; 2, bûche humide (28%, HHUM) ;
- calibre : 1, deux bûches de masse équivalente ; 2, une seule bûche ;
- écorce : 1, absence d'écorces ; 2, présence d'écorces ;
- essence : 1, hêtre ; 2, sapin ;
- utilisation : 1, en accord avec le manuel d'utilisation ; 2, arrivée d'air réduite.

Type d'essai	Appareil	Allumage/ Tirage	Humidité	Calibre	Ecorce	Essence	Utilisation
Essai 1	1	1	1	1	1	1	1
Essai 3	1	1	2	1	1	1	1

Tableau 3-17 : Rappel des caractéristiques des essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB

Ainsi, l'essai 1 et l'essai 3 ont été réalisés dans les mêmes conditions, seul le combustible utilisé variait : du HSECse pour l'essai 1 et du HHUMse pour l'essai 3. Les humidités sur brut respectives de ces combustibles étaient de 12 et 28%.

Au niveau des émissions gazeuses, l'influence de l'humidité de la bûche est claire. Le Tableau 3-18 récapitule les émissions gazeuses pour chacun des essais.

Type d'essai	Répétition	O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	SOx (mg.Nm ⁻³ Eq SO ₂ à 13% O ₂)	COVT (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂ Eq. CH ₄)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	Tfumée (°C)
Essai 1	1	9.7	11.3	2329	39	1	62	11	240
	2	8.2	12.8	1760	65	1	94	13	258
	Moyenne	8.9	12.1	2044	52	1	78	12	249
Essai 3	1	12.0	9.0	5015	114	0	293	37	221
	2	14.4	6.6	10164	233	0	849	142	155
	Moyenne	13.2	7.8	7590	174	0	571	90	188

Tableau 3-18 : Bilan des émissions gazeuses des essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB

Le premier point à relever est que la stabilité des émissions est bonne dans le cas d'une bûche sèche, mais beaucoup plus aléatoire dans le cas d'une bûche humide. La température des fumées est beaucoup moins élevée avec des bûches humides. A l'opposé, les fumées présentent un taux de Dioxygène plus élevé lorsque les bûches sont humides. Ces deux phénomènes sont liés. En effet, si l'humidité du combustible augmente, l'énergie nécessaire à l'évaporation de l'eau du combustible sera plus importante. La température sera donc plus faible. Cette faible température induit une vitesse de pyrolyse plus faible, et donc une quantité plus faible de gaz de pyrolyse seront produits. Comme la quantité de gaz à oxyder est plus faible, la concentration en Dioxygène va augmenter, diminuant alors la température, etc.

Les émissions de NO sont plus importantes malgré une température plus faible. Les émissions de SOx sont faibles avec une bûche sèche et totalement indétectable avec une bûche humide. Au niveau des émissions solides, le Tableau 3-19 présente les résultats d'émissions.

Type d'essai	Répétition	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC/TC (%)	TC/TSP (%)	OC/TSP (%)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)
Essai 1	1	1	96.8	89.1	86.0	0	1
	2	3	92.6	94.0	86.4	0	2
	Moyenne	2	94.7	91.6	86.2	0	2
Essai 3	1	72	92.9	64.7	60.1	3	43
	2	83	91.6	72.4	66.3	5	55
	Moyenne	77	92.3	68.6	63.2	4	49

Tableau 3-19 : Bilan des émissions solides des essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB

Contrairement aux émissions gazeuses, les émissions TSP semblent très répétables, même avec des bûches humides. Les émissions TSP sont environ 35 fois plus importantes avec une bûche humide. Le ratio OC/TC est similaire dans les deux cas, et compris entre 90 et 95%. En revanche, le ratio TC/TSP varie drastiquement. En effet, ce ratio est compris entre 90 et 95% avec des bûches sèches contre 64 à 73% avec des bûches humides. Ainsi, l'humidité des bûches est un facteur très impactant sur les émissions de particules non-carbonées. Les émissions d'EC et d'OC varient donc aussi énormément, en passant d'une moyenne respective de 0,12 et 1,61 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂ avec du bois sec à 4,17 et 49,09 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂ avec des bûches humides. Shen et al. [143] avaient démontré que toutes les émissions, mises à part les émissions d'EC, d'une cuisinières étaient augmentées si l'humidité du combustible augmentait. Dans notre cas, les émissions d'EC augmentent aussi. Cette différence provient certainement du type d'appareil étudié.

Ces différences d'émissions influent sur la répartition granulométrique des particules. Le Tableau 3-20 présente les résultats obtenus via l'IM et l'ELPI. Globalement, les résultats sont plus répétables lors de la combustion de bûches humides. La fraction granulométrique inférieure à 1µm est dominante en masse. Mais, les bûches sèches présentent tout de même 13% de PM comprises entre 1 et 2,5 µm et 9% de PM comprises entre 2,5 et 10 µm contre seulement 1 et 0% avec des bûches humides (pourcentage en masse). En nombre, les conclusions varient. Les bûches sèches présentent 87% de particules en dessous de 0,1 µm, et 13% entre 0,1 et 1 µm, alors que les bûches humides en émettent respectivement 69% dans la classe ultrafine et 31% dans la classe fine. L'humidité du combustible influencerait donc sur la répartition des particules submicroniques.

Type d'essai	Répétition	PM > 10 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)		2,5 > PM > 10 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)		1 > PM > 2,5 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)		PM < 1 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)		PM 0.1	PM 0.1-1.0	PM 1.0-2.5	PM 2.5-10
										(% _{en nombre})	(% _{en nombre})	(% _{en nombre})	(% _{en nombre})
Essai 1	1	0	10.2 %	0	6.8 %	1	20.5 %	2	62.5 %	90.1	9.9	0.01	0.00
	2	0	0.0 %	0	11.9 %	0	4.8 %	3	83.3 %	84.5	15.5	0.01	0.01
	Moyenne	0	5.1 %	0	9.4 %	0	12.6 %	3	72.9 %	87.3	12.7	0.01	0.01
Essai 3	1	0	0.6 %	1	2.5 %	0	0.9 %	25	96.1 %	63.2	36.8	0.02	0.01
	2	0	0.2 %	0	0.0 %	2	1.1 %	141	98.7 %	73.9	26.0	0.02	0.01
	Moyenne	0	0.4 %	0	1.2 %	1	1.0 %	83	97.4 %	68.6	31.4	0.02	0.01

Tableau 3-20 : Bilan de la répartition granulométrique en masse et en nombre des essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB

	O = a*C + b			Généralités		Na (% _{en masse})		Al (% _{en masse})		Si (% _{en masse})		S (% _{en masse})		Zr (% _{en masse})	
	a	b	r ²	C moyen (% _{en masse})	Fréquence d'éléments autres que C et O (% _{en nombre})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})
Essai 1	-1.04	94.39	0.76	78.5	2.6	0.0	0.2	0.2	1.1	0.0	0.0	1.4	1.4	1.9	1.0
Essai 3	-1.16	106.09	0.94	77.6	4.1	0.0	0.0	0.1	0.3	0.8	0.4	0.8	0.3	3.0	1.2

Tableau 3-21 : Résultats globaux de microanalyse X des particules sur les essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB

L'humidité impacte fortement les émissions de HAP, qu'il s'agisse de la quantité émise ou des proportions de chaque type de HAP. La Figure 3-28 illustre ces propos. Ainsi, la quantité de HAP16 émis est multipliée par deux lorsque le combustible présente un taux d'humidité important. Avec des bûches humides, les proportions de Naphtalène, de Fluoranthène et de Pyrène diminuent au profit de l'Acénaphthylène, du Fluorène, du Phénanthrène et de l'Anthracène.

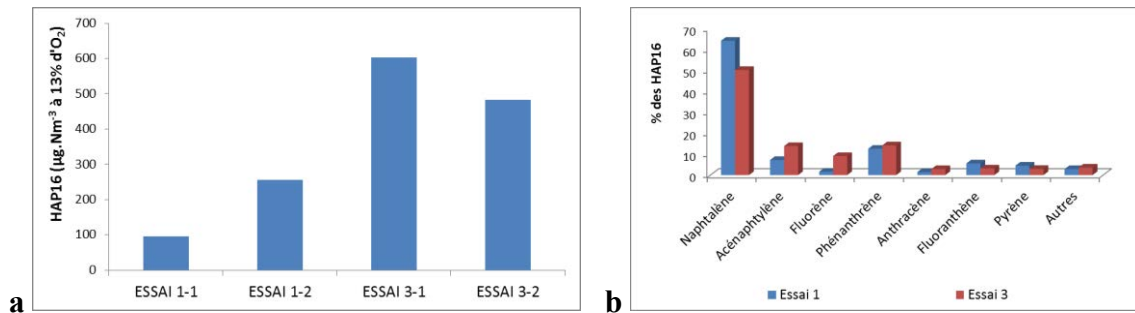


Figure 3-28 : Bilan des émissions de HAP16 pour chaque essai (a) et répartition des HAP majoritaires (b)

Les résultats de la microanalyse X sont présentés (en moyenne pour chaque configuration) dans le Tableau 3-21. Les courbes d'évolution entre la teneur en C et la teneur en O des particules sont relativement proches. En revanche, l'humidité provoque une plus grande homogénéité des particules émises (coefficient de corrélation très élevé). La fréquence d'apparition d'éléments autres que C et O est presque deux fois plus importante lorsque le combustible est humide. Cela paraît cohérent avec les démonstrations précédentes, à savoir que les émissions d'OC sont plus importantes avec un combustible humide. Le fait que la teneur moyenne en Carbone des particules carbonées soit plus faible dans le cas de la combustion de HHUMse est un effet combiné à celui décrit précédemment. En effet, les particules qui seront davantage composées d'autres éléments que le Carbone et l'Oxygène présenteront un taux de Carbone moyen moins élevé. Le Na reste un élément anecdotique dans la composition des particules carbonées. En revanche, l'humidité semble favoriser la fixation de la Silice et du Zirconium dans les particules.

La combustion de bûches sèches dans cet appareil récent conduit à des émissions de nanoparticules (entre 20 et 50 nm de diamètre) faiblement agglomérées (3.1.2.3). Les bûches humides modifient ces résultats. En effet, la Figure 3-29 présente les clichés MEB des particules types émises lors de la combustion de HHUMse.

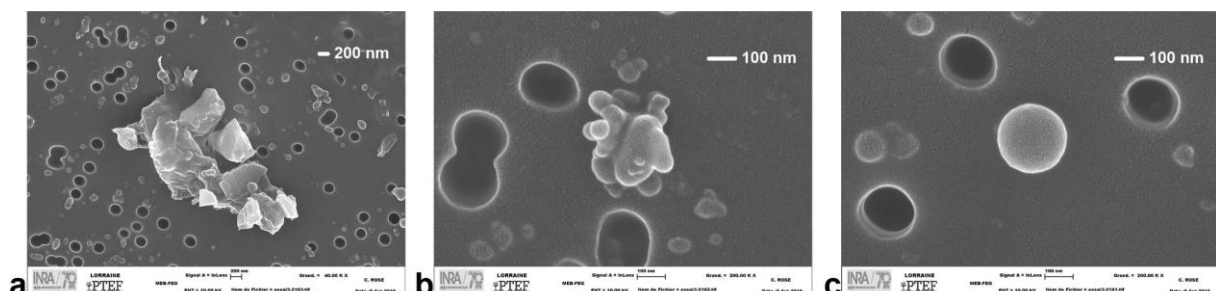


Figure 3-29 : Clichés de morceaux de charbon (a, x40000), de bois thermiquement dégradé (b, x200000) et de nanoparticules (c, x200000) émis par la combustion de bûches humides

Des morceaux de charbons émis prouvent que la combustion est incomplète. Le cliché ‘b’ montre une particule de bois dégradé thermiquement. Un point particulièrement étonnant concerne les résultats sur les nanoparticules. Bien qu’une partie de ces nanoparticules présente un diamètre entre 20 et 50 nm, une grande fraction de nanoparticules atteint un diamètre de 200 nm environ (Figure 3-29, c). Cela permet d’expliquer la variation de la distribution des particules en nombre dans les fractions granulométriques ultrafines (< à 0,1 µm) et fines (comprise entre 0,1 et 1 µm). Ce grossissement des nanoparticules dû à l’humidité du combustible diminue donc la fraction de particules ultrafines et augmente la proportion de particules fines.

Contrairement aux nanoparticules émises par la combustion de HSECse dans le poêle WABI, celles émises via la combustion de bûches humides ne sont pas du tout agglomérées. Cela permet d’expliquer la variation de la granulométrie en masse présentée précédemment. En effet, la fraction massique comprise entre 1 et 10 µm est composée majoritairement de nanoparticules agglomérées. Or, comme la combustion de bûches humides paraît défavorable à l’agglomération, ces fractions granulométriques massiques sont nulles.

3.2.2.2 Impact de la présence d’écorces

L’étude de l’impact de l’écorce sur les émissions est réalisée via la comparaison des résultats de deux séries d’essais du projet QUALICOMB menés en interne au LERMAB. Le Tableau 3-22 présente les caractéristiques des deux essais sélectionnés, les essais 3 et 7.

Type d'essai	Appareil	Allumage / Tirage	Humidité	Calibre	Ecorce	Essence	Utilisation
Essai 3	1	1	2	1	1	1	1
Essai 7	1	1	2	1	2	1	1

Tableau 3-22 : Rappel des caractéristiques des essais 3 et 7 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB

Dans les deux cas, le combustible était humide, c’est donc du HHUMse qui fut le combustible de l’essai 3 et du HHUMae pour l’essai 7. Les bûches avec écorces étaient des rondins. L’écorce représentait seulement 10% sur masse sèche de la bûche. Les niveaux d’humidité pour les bûches étaient similaires, avec une humidité sur brut de 28%. Un essai complémentaire a été réalisé, où seule de l’écorce sèche à 12% a été brûlée. Le Tableau 3-23 présente les résultats concernant les émissions gazeuses.

Type d'essai	Répétition	O2 (%)	CO2 (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	SOx (mg.Nm ⁻³ Eq SO ₂ à 13% O ₂)	COVT (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂ Eq. CH ₄)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	Tfumée (°C)
Essai 3	1	12.0	9.0	5015	114	0	293	37	221
	2	14.4	6.6	10164	233	0	849	142	155
	Moyenne	13.2	7.8	7590	174	0	571	90	188
Essai 7	1	15.8	5.3	8112	116	119	73	13	168
	2	15.1	5.9	5453	76	51	83	15	187
	Moyenne	15.4	5.6	6782	96	85	78	14	177
Ecorce	1	10.2	10.8	4196	75	35	307	84	226
	2	11.2	9.8	8863	113	33	368	192	230
	Moyenne	10.7	10.3	6529	94	34	337	138	228

Tableau 3-23 : Bilan des émissions gazeuses des essais 3 et 7 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB et des écorces

Aucune conclusion claire ne peut être faite sur les émissions de CO au vu de la variabilité des résultats. En revanche, la présence d'écorces a tendance à augmenter le taux de Dioxygène dans la chambre de combustion. Les émissions de NO, de COVT et de CH₄ sont beaucoup plus faibles que sans écorces. Ce point est particulièrement surprenant. Mais cela peut s'expliquer par la durée de l'essai. L'écorce a tendance à augmenter la durée de l'essai. L'essai 3 a duré 42 minutes en moyenne quand l'essai 7 a duré 51 minutes. Les gaz de pyrolyse sont donc émis plus lentement lorsqu'il y a présence d'écorces, et permettent donc une combustion légèrement plus complète. En revanche, les émissions de SO_x paraissent clairement liées à la présence d'écorces. Cela paraît plutôt cohérent étant donné qu'il a été démontré précédemment que le Soufre était rapidement volatilisé du combustible, et que l'analyse élémentaire montre que le Soufre est très présent dans l'écorce. Les températures de fumées semblent équivalentes dans les deux cas, ce qui est surprenant au vu de la teneur en O₂ qui est largement plus élevée lorsque le combustible contient de l'écorce.

Le Tableau 3-24 présente le bilan des émissions solides.

Type d'essai	Répétition	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC/TC (%)	TC/TSP (%)	OC/TSP (%)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)
Essai 3	1	72	92.9	64.7	60.1	3	43
	2	83	91.6	72.4	66.3	5	55
	Moyenne	77	92.3	68.6	63.2	4	49
Essai 7	1	259	92.2	14.0	12.9	3	33
	2	137	96.0	18.5	17.8	1	24
	Moyenne	198	94.1	16.2	15.3	2	29
Ecorce	1	446	83.3	55.2	46.0	41	205
	2	659	69.8	22.6	15.8	45	104
	Moyenne	552	76.6	38.9	30.9	43	155

Tableau 3-24 : Bilan des émissions solides des essais 1 et 3 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB et des écorces

L'écorce augmente clairement les émissions de TSP. Les particules carbonées de l'essai 7 présentent un ratio OC moyen équivalent à ceux de l'essai 3. Pourtant, lors de la combustion d'écorces seules, ce ratio chute de 20%. La quantité d'écorces présente dans l'essai 7 n'est a priori pas suffisante pour influencer suffisamment les résultats pour que cet effet soit visible. En revanche, le taux de Carbone moyen dans les TSP chute si le combustible possède de l'écorce. Cela est probablement dû à la forte concentration en éléments non-carbonés dans l'écorce. Les émissions d'EC et d'OC semblent diminuer en présence d'écorces. Finalement, l'écorce joue un rôle majeur dans les émissions particulières. En effet, elle émet de nombreuses particules non-carbonées, et en revanche limite les émissions d'EC et d'OC. Ce phénomène pourrait être dû à la forte concentration en éléments non carbonés de l'écorce. Durant la combustion, une part des minéraux et des métaux serait émise sous forme particulières, et une autre part serait piégée dans le charbon entourant la bûche que forme l'écorce. Les minéraux et les métaux étant des catalyseurs de l'oxydation, les gaz de pyrolyse et les émissions particulières seraient oxydés lors de leur traversée de l'écorce. Ce phénomène pourrait aussi expliquer la chute des émissions de COVT et de CH₄.

Le Tableau 3-25 présente les résultats des distributions granulométriques des particules en masse et en nombre.

Type d'essai	Répétition	PM > 10 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)	2,5 > PM > 10 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)	1 > PM > 2,5 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)	PM < 1 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)	PM 0.1 (%en nombre)	PM 0.1-1.0 (%en nombre)	PM 1.0-2.5 (%en nombre)	PM 2.5-10 (%en nombre)				
Essai 3	1	0	0.6 %	1	2.5 %	0	0.9 %	25	96.1 %	63.2	36.8	0.02	0.01
	2	0	0.2 %	0	0.0 %	2	1.1 %	141	98.7 %	73.9	26.0	0.02	0.01
	Moyenne	0	0.4 %	0	1.2 %	1	1.0 %	83	97.4 %	68.6	31.4	0.02	0.01
Essai 7	1	2	0.4 %	4	0.9 %	34	8.1 %	379	90.7 %	76.4	23.6	0.02	0.01
	2	0	0.0 %	0	0.3 %	3	2.9 %	115	96.7 %	65.1	32.2	0.70	0.00
	Moyenne	1	0.2 %	2	0.6 %	19	5.5 %	247	93.7 %	70.7	27.9	0.36	0.01
Ecorce	1	2	0.4 %	7	1.7 %	35	8.7 %	356	89.2 %	74.4	25.5	0.04	0.01
	2	3	0.4 %	10	1.3 %	70	9.0 %	694	89.2 %	78.8	21.1	0.09	0.03
	Moyenne	2	0.4 %	9	1.5 %	52	8.9 %	525	89.2 %	76.6	23.3	0.06	0.02

Tableau 3-25 : Bilan de la répartition granulométrique en masse et en nombre des essais 3 et 7 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB et des écorces

L'écorce ne semble pas affecter fortement la distribution des particules. Deux points sont tout de même visibles :

- la présence d'écorces semble diminuer la fraction de PM₁ en masse au profit des PM comprises entre 1 et 2.5 µm;
- la combustion d'un combustible avec de l'écorce semble augmenter la fraction ultrafine en nombre au dépend de la fraction fine.

Ces deux éléments sont compatibles avec les conclusions précédentes concernant la granulométrie des particules non carbonées. L'écorce, de par sa composition riche en minéraux et métaux, accentue ce phénomène.

La présence d'écorces influe drastiquement la quantité (Figure 3-30, a) et la composition des HAP16 (Figure 3-30, b)

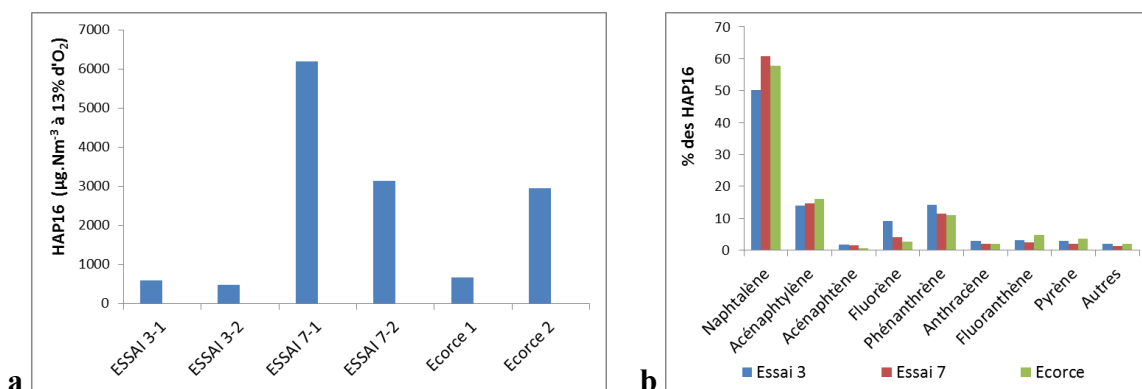


Figure 3-30 : Bilan des émissions de HAP16 pour chaque type d'essai (a) et répartitions des différentes molécules (b) émises par les essais 3 et 7 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB et des écorces

Ainsi, la quantité de HAP16 émis est au minimum multipliée par trois en présence d'écorces. L'écorce induit aussi une composition des HAP16 spécifique avec 60% de Naphtalène, 15% d'Acénaphthylène et 10% Phénanthrène. Cette composition est identique à celle déterminée lors de la combustion d'écorces seules. La proportion de Fluorène diminue de 5% lorsque le combustible n'est pas écorcé. Tous les autres HAP restent dans des proportions mineures.

Le Tableau 3-26 résume les résultats obtenus via la microanalyse X. La présence d'écorces sur le combustible induit une forte fréquence d'éléments autres que le Carbone et l'Oxygène dans les particules carbonées. La microanalyse X sur les émissions de la combustion d'écorces seules confirme bien ce résultat. L'écorce induit une forte fixation de Sodium, de la Silice et du Chlore. En revanche, l'Aluminium reste très peu fréquent, tout comme le Cuivre.

La Figure 3-31 et la Figure 3-32 présente les clichés MEB des particules types émises durant l'essai 7 et la combustion d'écorces seules. Les clichés MEB de l'essai 3 ne sont pas rappelés ici (voir Figure 3-29).

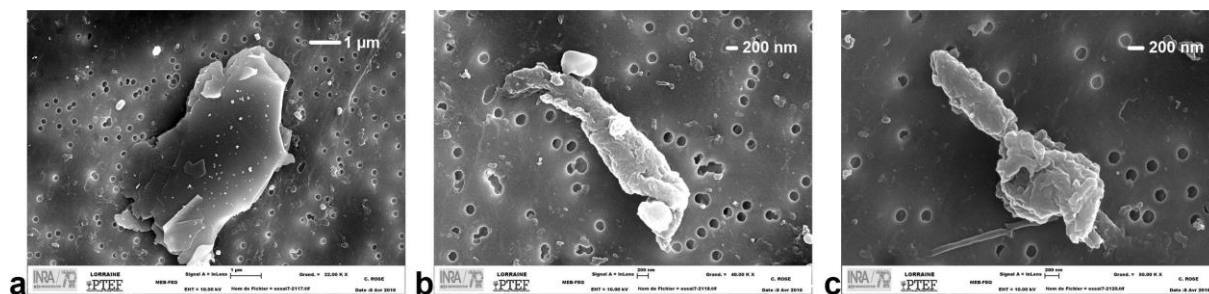


Figure 3-31 : Clichés MEB de cendres d'écorces (a, x22000), de charbons (b, x40000 ; c x50000) et de nano-cristaux de Silice et/ou de Sodium (a, particules brillantes en haut à gauche ; b, particules brillantes sur le haut du clichés ainsi qu'en bas à droite) émis par la combustion de HHUMae

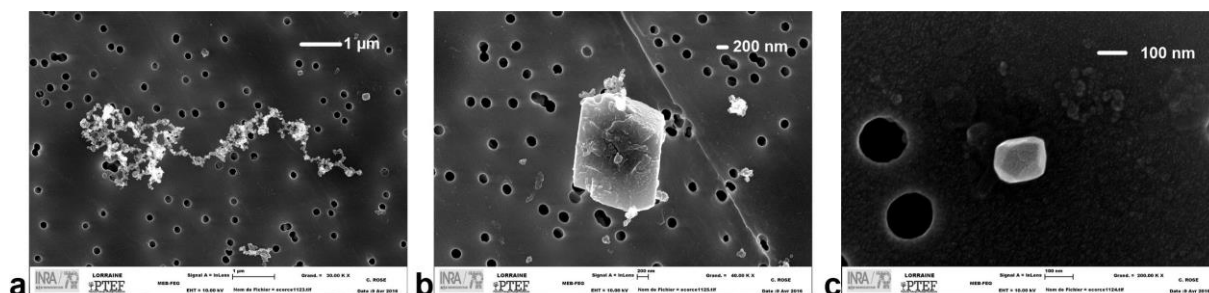


Figure 3-32 : Clichés MEB d'agglomérats de nanoparticules (a, x30000) de cendres d'écorces (b, x40000) et de nano-cristal de Silice (c, x200000) émis par la combustion d'écorces seules

La combustion d'écorces émet un nouveau type de particules, jusqu'alors non définis dans cette étude : des nano-cristaux, principalement de Silice (quelques nano-cristaux de Sodium, mais très rares). Ces nano-cristaux ont une granulométrie comprise entre 200 nm et 500 nm. Cet ordre de grandeur est valide avec plusieurs études sur les émissions non-carbonées [130] [134]. La présence d'écorces induit aussi une émission de cendres très particulière. Les effets de l'humidité, à savoir le grossissement d'une fraction des nanoparticules et leur non-agglomération, paraissent complètement inhibés par la présence d'écorces. Les morceaux de charbon émis restent quant à eux sous la forme classique.

	O = a*C + b			Généralités		Na (% _{en masse})		Al (% _{en masse})		Si (% _{en masse})		S (% _{en masse})		Cl (% _{en masse})		Cu (% _{en masse})		Zr (% _{en masse})	
	a	b	r ²	C moyen (% _{en masse})	Fréquence d'éléments autres que C et O (% _{en nombre})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})
Essai 3	-1.16	106.09	0.94	77.6	4.1	0.0	0.0	0.1	0.3	0.8	0.4	0.8	0.3	0.0	0.0	0.0	0.0	3.0	1.2
Essai 7	-1.07	97.15	0.82	76.8	13.0	2.5	0.9	0.3	0.5	8.4	0.4	0.5	0.3	2.9	0.7	0.0	0.0	1.5	1.1
Ecorce	-1.13	102.80	0.79	79.1	18.0	0.4	0.9	0.4	0.3	15.3	0.4	0.3	0.2	0.6	0.6	0.1	1.2	2.7	1.4

Tableau 3-26 : Bilan des résultats de la microanalyse X des particules émises par les essais 3 et 7 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB et des écorces

3.2.2.3 Impact de l'essence

Ce paragraphe a pour objectif d'observer les variations des émissions de polluants classiquement mesurés sur deux essences totalement différentes afin d'évaluer dans quelle mesure l'essence peut impacter les émissions. La comparaison entre un feuillu et un résineux permet sans doute d'accentuer l'impact. Ainsi, du HSECse et du SSECse ont été utilisés comme combustible. Afin d'éviter de limiter cette étude à une technologie d'appareil, deux appareils ont été utilisés : le poêle WABI ainsi que le foyer SUNFLAM, tous deux préalablement présentés. La moitié des essais a été réalisée en interne avec au minimum deux répétitions (essai 3 et essai thèse 1), et l'autre moitié a été menée par le CERIC (essai CERIC 19 au CERIC, essai Seguin Duteriez 20 chez l'industriel par le CERIC). Le Tableau 3-27 récapitule les caractéristiques de chacun des essais.

	Type d'essai	Appareil	Allumage / Tirage	Humidité	Calibre	Ecorce	Essence	Utilisation
Comparaison sur appareil de 2012	Essai 3	1	1	1	1	1	1	1
	Essai CERIC (19)	1	1	1	1	1	2	1
Comparaison sur appareil de 2000	Essai thèse 1	2	1	1	1	1	1	1
	Essai Seguin Duteriez 20	2	1	1	1	1	2	1

Tableau 3-27 : Caractéristiques des essais 3, CERIC 19, thèse 1 et Seguin Duteriez 20 réalisés par le LERMAB et le CERIC pour le projet QUALICOMB

Le Tableau 3-28 présente les résultats en moyenne des émissions pour chaque type d'essai. L'impact de l'essence est bel et bien différent selon la technologie de l'appareil. L'appareil d'ancienne génération paraît mieux supporter le changement d'essence. Ses émissions de CO sont même diminuées en moyenne de 23%, alors que celles de l'appareil nouvelle génération augmentent de 22%. En revanche, les émissions TSP augmentent dans tous les cas, ainsi que les émissions d'OC. Les émissions d'EC demeurent quasi nulles dans l'appareil récent malgré l'augmentation de la valeur moyenne, alors que la combustion de résineux semble diminuer les émissions d'EC dans l'appareil de 2000.

		O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC/TC (%)	TC/TSP (%)	OC/TSP (%)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)
Comparaison sur appareil de 2012	Essai 3	9.6	11.3	2012	6	93.8	87.9	82.9	0	5
	Essai CERIC (19)	10.9	10.0	2453	14	95.3	92.3	88.0	1	12
Comparaison sur appareil de 2000	Essai thèse 1	14.5	6.3	2905	80	61.8	28.0	17.2	8	15
	Essai Seguin Duteriez 20	15.0	5.9	2220	102	89.9	30.3	27.8	3	28

Tableau 3-28 : Bilan des émissions pour la visualisation de l'impact de l'essence du combustible sur deux générations d'appareils

En ce qui concerne la composition moyenne des particules, la combustion de résineux semble augmenter le ratio OC/TC et le ratio TC/TSP. La raison des augmentations de CO dans l'appareil moderne provient sans doute de son étanchéité. En effet, le résineux ne se consume pas de la même manière que le feuillu. Or ces appareils très performants sont développés pour la combustion de feuillus. Ainsi, les arrivées d'air secondaire et la répartition air primaire / air secondaire sont très précises et optimisées pour la combustion spécifique de feuillus. Leur

efficacité peut diminuer dans le cas de la combustion de résineux, et ainsi expliquer ces écarts. L'appareil de 2000 n'étant pas étanche, les fuites d'air sont importantes. Ce phénomène est la principale raison du taux de Dioxygène élevé dans les fumées. L'air « de fuite » peut aussi compléter la combustion primaire. Le PCI élevé du SSECse est sans doute plus approprié à la combustion dans des appareils dont la chambre de combustion est généralement surdimensionnée.

3.2.2.4 Conclusion

La nature du combustible influe significativement les émissions gazeuses et particulaires. Le Tableau 3-29 résume les différences d'émissions observées durant ces campagnes expérimentales.

Combustible	CO	NO	SO _x	COVT	TSP	OC	EC	HAP16	PM _{0.1} (nombre)
Humide	+++	+++	-	+++	+++	+++	++	++	---
Avec écorce	=	--	+++	---	+++	--	=	+++	+
Résineux	++	non-évalué	non-évalué	non-évalué	+	++	+	non-évalué	non-évalué

Résultats comparatif avec des essais dans un poêle récent avec du HSECse

Tableau 3-29 : Bilan de l'impact de la nature du combustible sur les émissions

Il apparaît clairement sur ce tableau que le choix du combustible est particulièrement important. C'est donc un paramètre clé qui doit être connu des utilisateurs, afin de réduire les émissions du chauffage domestique au bois. Néanmoins, l'utilisateur d'appareil domestique réalise d'autres choix qui influencent aussi le déroulement de la combustion, et donc ses émissions. C'est notamment le cas du réglage d'air de l'appareil.

3.2.3 Ouverture de l'air de l'appareil

Pour rappel, le paramètre « utilisation » du projet QUALICOMB correspond à deux réglages possibles :

- en 1 : l'arrivée d'air est ouverte de manière à suivre les consignes du manuel d'utilisation fourni avec l'appareil ;
- en 2 : l'arrivée d'air est fermée. L'utilisateur s'interdit toute intervention, même en présence évidente d'une combustion dégradée.

Une série d'essais sur l'appareil de 2012 a été réalisée en interne au LERMAB, dont une moitié faisait partie du projet QUALICOMB. Pour les mêmes raisons que l'étude sur l'impact de l'essence, une série d'essais (avec des prélèvements moins exhaustifs) a été réalisée sur l'appareil de 2000. La moitié de ces essais a été réalisée en interne au LERMAB, et l'autre moitié par le CERIC chez l'industriel Seguin Duteriez. Le Tableau 3-30 récapitule les caractéristiques de chaque essai.

		Appareil	Allumage / Tirage	Humidité	Calibre	Ecorce	Essence	Utilisation
Comparaison sur appareil de 2012	Essai 1	1	1	1	1	1	1	1
	Essai Thèse 2	1	1	1	1	1	1	2
Comparaison sur appareil de 2000	Essai Thèse 1	2	1	1	1	1	1	1
	Essai Seguin Duteriez 26	2	1	1	1	1	1	2

Tableau 3-30 : Caractéristiques des essais 1, thèse 2, thèse 1 et Seguin Duteriez 26 réalisés par le LERMAB et le CERIC pour le projet QUALICOMB

Le but de ce type d'expérience est d'évaluer l'impact maximal lié à une mauvaise utilisation de l'appareil.

3.2.3.1 Résultats d'émissions de l'appareil récent

Dans un premier temps, les résultats liés à une mauvaise utilisation de l'appareil récent vont être observés. Ensuite, les effets déterminés pourront être vérifiés sur l'appareil ancienne génération. Le Tableau 3-31 présente les résultats des émissions gazeuses pour l'appareil moderne.

		Type d'essai	Répétition	O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	SOx (mg.Nm ⁻³ Eq SO ₂ à 13% O ₂)	COVT (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂ Eq. CH ₄)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	Tfumée (°C)
Comparaison sur appareil de 2012	Essai 1	1	1	9.7	11.3	2329	39	1	62	11	240
		2	2	8.2	12.8	1760	65	1	94	13	258
		Moyenne	3	8.9	12.1	2044	52	1	78	12	249
	Essai Thèse 2	1	1	14.3	5.5	13626	126	92	1235	432	141
		2	2	13.9	7.2	9785	127	63	995	349	145
		Moyenne	3	14.1	6.3	11706	127	77	1115	390	143

Tableau 3-31 : Résultats des émissions gazeuses pour l'étude de l'impact de l'utilisation sur l'appareil récent

L'effet de la fermeture de l'arrivée d'air est très important. En effet, les émissions de CO sont en moyenne multipliées par 5. Le taux de Dioxygène est donc plus élevé de 5% puisque moins consommé. Les émissions de NOx sont multipliées par deux alors que la température

des fumées perd 100°C. Les émissions de SO_x, à l'origine quasi nulles, atteignent des niveaux élevés, avoisinant les 80 mg.Nm⁻³ éq. SO₂ à 13% d'O₂. Les émissions de COVT et de CH₄ sont multipliées respectivement par 13 et 30. Ceci induit que le ratio CH₄/COVT évolue, passant de 15% à 35%.

Finalement, la fermeture de l'arrivée d'air entraîne une chute durant la phase d'allumage du Dioxygène et conduit à une forte émission d'imbrûlés gazeux. Comme de nombreuses réactions exothermiques ne sont pas réalisées, la température chute. Le taux de Dioxygène augmente alors, mais les réactions d'oxydation ne peuvent pas se dérouler car leur énergie d'activation est plus importante que l'énergie en présence dans la chambre de combustion. La fermeture de l'arrivée d'air conduit donc globalement à une très forte augmentation des émissions gazeuses, à une chute de la température des fumées et à une augmentation du taux moyen de Dioxygène dans les fumées.

La fermeture de l'arrivée d'air paraît aussi impacter drastiquement les émissions solides. Le Tableau 3-32 en présente les résultats.

	Type d'essai	Répétition	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC/TC (%)	TC/TSP (%)	OC/TSP (%)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)
Comparaison sur appareil de 2012	Essai 1	1	1	96.8	89.1	86.0	0	1
		2	3	92.6	94.0	86.4	0	2
		Moyenne	2	94.7	91.6	86.2	0	2
	Essai Thèse 2	1	86	35.5	73.1	25.9	41	22
		2	46	43.5	78.8	34.3	21	16
		Moyenne	66	39.5	76.0	30.1	31	19

Tableau 3-32 : Résultats des émissions solides pour l'étude de l'impact de l'utilisation sur l'appareil récent

Ainsi, les émissions TSP sont multipliées par un facteur supérieur à 30. L'équilibre entre l'OC et l'EC est aussi complètement modifié. Quand l'arrivée d'air est ouverte, l'appareil récent émet peu d'OC et pas d'EC. En revanche, si l'arrivée d'air est fermée, les émissions d'OC sont augmentées d'un facteur 10 et les émissions d'EC dépassent celles d'OC. Le dernier point important concerne le taux de Carbone moyen des particules. La fermeture de l'arrivée d'air entraîne une chute de 15% du taux de Carbone moyen. Ainsi, la fermeture de l'arrivée d'air induit une nouvelle émission de matière non-carbonée.

La granulométrie des particules est aussi impactée. Le Tableau 3-33 présente les résultats. Tout d'abord, les facteurs d'émissions (en masse) augmentent de manière significative si l'arrivée d'air est fermée, qu'importe la granulométrie, atteignant une moyenne de 436 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂ pour les PM₁. La distribution est aussi impactée. La fermeture de l'air secondaire entraîne une diminution en pourcentage de la fraction PM₁ en masse au profit de la fraction comprise entre 1 et 2,5 µm, atteignant jusqu'à 34% des PM. La distribution granulométrique en nombre est aussi très impactée. En effet, la fraction ultrafine passe de 87% à 39% en moyenne. La fraction fine augmente donc considérablement, atteignant 61%. La fermeture impacte donc autant la distribution en masse qu'en nombre.

	Type d'essai	Répétition	PM > 10 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)		2,5 > PM > 10 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)		1 > PM > 2,5 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)		PM < 1 µm (mg.Nm ⁻³ à 13% d'O ₂ , % en masse des PM)		Nombre PM<10µm	PM 0.1 (% _{en nombre})	PM 0.1-1.0 (% _{en nombre})	PM 1.0-2.5 (% _{en nombre})	PM 2.5-10 (% _{en nombre})
Comparaison sur appareil de 2012	Essai 1	1	0	10.2 %	0	6.8 %	1	20.5 %	2	62.5 %	4.2E+13	90.1	9.9	0.01	0.00
		2	0	0.0 %	0	11.9 %	0	4.8 %	3	83.3 %	1.0E+12	84.5	15.5	0.01	0.01
		Moyenne	0	5.1 %	0	9.4 %	0	12.6 %	3	72.9 %	2.1E+13	87.3	12.7	0.01	0.01
	Essai Thèse 2	1	0	0.0 %	8	0.7 %	346	33.9 %	667	65.3 %	6.1E+13	32.8	67.1	0.08	0.02
		2	0	0.0 %	2	0.6 %	108	34.2 %	205	65.1 %	7.0E+13	44.6	55.3	0.08	0.01
		Moyenne	0	0.0 %	5	0.7 %	227	34.1 %	436	65.2 %	6.5E+13	38.7	61.2	0.08	0.02

Tableau 3-33 : Résultats des mesures granulométriques pour l'étude de l'impact de l'utilisation sur l'appareil récent

Etant donné l'impact conséquent de la fermeture de l'arrivée d'air sur les émissions d'imbrûlés gazeux, ce paramètre doit aussi influencer les émissions de HAP. La Figure 3-33 présente les résultats d'émissions de HAP16 (a) et la répartition des molécules pour chaque type d'essai (b).

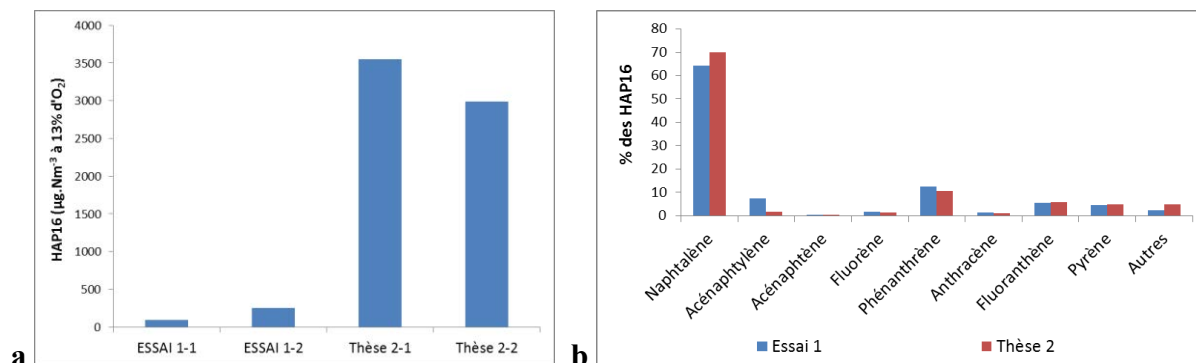


Figure 3-33 : Bilan des émissions de HAP16 pour chaque type d'essai (a) et répartition des différentes molécules (b) émises par les essais 1 et thèse 2

Ainsi, la fermeture de l'arrivée d'air entraîne une augmentation conséquente des émissions de HAP16, passant d'un niveau moyen de l'ordre de 175 à 3200 $\mu\text{g}\cdot\text{Nm}^{-3}$ à 13% d' O_2 . La répartition est elle aussi légèrement impactée. En effet, cette mauvaise utilisation de l'appareil entraîne une augmentation de la proportion de Naphtalène et une quasi-disparition des Acénaphthylène.

3.2.3.2 Microanalyse X et imagerie des particules de l'appareil récent

Les résultats de la microanalyse X sont présentés dans le Tableau 3-34.

	O = a*C + b			Généralités		Al (% en masse)		Si (% en masse)		S (% en masse)		Zr (% en masse)	
	a	b	r ²	C moyen (% en masse)	Fréquence d'éléments autres que C et O (% en nombre)	Fréquence (% en nombre)	Composition moyenne (% en masse)	Fréquence (% en nombre)	Composition moyenne (% en masse)	Fréquence (% en nombre)	Composition moyenne (% en masse)	Fréquence (% en nombre)	Composition moyenne (% en masse)
Essai 1	-1.04	94.39	0.76	78.5	2.6	0.2	1.1	0.0	0.0	1.4	1.4	1.9	1.0
Essai Thèse 2	-0.83	62.31	0.64	76.8	4.1	0.0	0.0	1.3	0.5	2.5	1.3	3.6	0.8

Tableau 3-34 : Résultats globaux de microanalyse X des particules sur les essais 1 et thèse 2 (appareil de 2012)

Le taux de Carbone moyen diminue lorsque l'arrivée d'air est fermée, et donc la fréquence d'éléments autres que C et O augmentent. La Silice, jusqu'alors non présente dans les émissions carbonées, atteint 1,3% de fréquence moyenne pendant que le Soufre et le Zirconium doublent leur valeur, atteignant respectivement 2,5% et 3,6%.

Les résultats de l'imagerie confirment les précédents résultats. La Figure 3-34 présente les clichés des particules les plus communes émises par l'appareil récent lors d'une mauvaise utilisation.

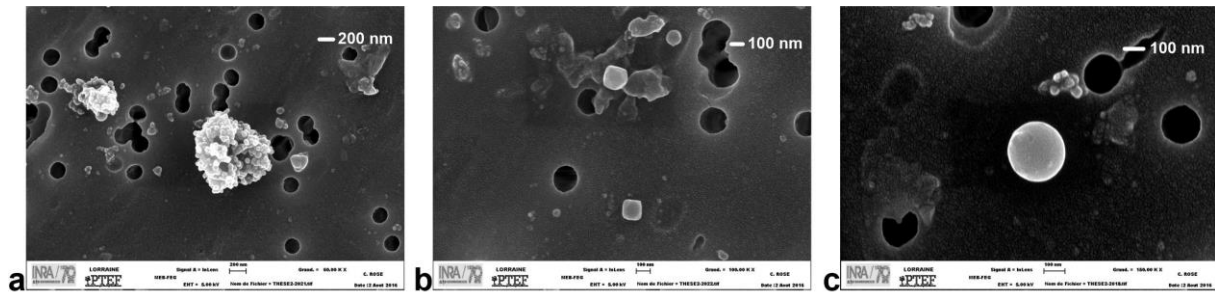


Figure 3-34 : Clichés de nanoparticules agglomérées et unitaires (a, x60000) de nano-cristaux de Silice (b, x100000) et de COSV condensé (c, x150000) émis par l'appareil récent lors d'une mauvaise utilisation

Ainsi, quatre groupes de particules sont émis dans ces conditions :

- des nano-cristaux de Silice ;
- des COSV condensés ;
- des nanoparticules non agglomérées (20-50 nm) ;
- des agglomérats de nanoparticules.

Une mauvaise utilisation provoque l'émission de nano-cristaux de Silice et de COSV condensés. Le manque de Dioxygène et le mauvais déroulement de la combustion induisent donc l'obtention de ces émissions polluantes.

3.2.3.3 Résultats sur l'appareil ancienne génération

L'impact de la fermeture de l'arrivée d'air ne présente pas du tout les mêmes conséquences sur l'appareil nouvelle génération et sur l'appareil de 2000. Le Tableau 3-35 présente les résultats globaux d'émissions sur ce dernier.

		O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC/TC (%)	TC/TSP (%)	OC/TSP (%)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)
Comparaison sur appareil de 2000	Essai Thèse 1	14.5	6.5	2905	80	61.8	28.0	17.2	8	15
	Essai Seguin Duteriez 26	14.6	6.5	1518	82	96.6	17.8	17.2	0	14

Tableau 3-35 : Bilan des émissions pour la visualisation de l'impact de l'utilisation sur l'appareil de 2000

La fermeture de l'arrivée d'air améliorerait considérablement la qualité de combustion dans les appareils anciens. En effet, les émissions de CO sont presque divisées par 2. Le niveau d'émissions de particules reste équivalent, mais leur composition varie. Les particules carbonées contiennent beaucoup plus d'OC et leur taux de Carbone moyen chute de 10%. Les émissions d'EC deviennent presque nulles.

Ces phénomènes sont principalement dus au fait que ces types d'appareils n'étaient pas étanches et fonctionnaient avec un excès d'air beaucoup trop important, pour pouvoir être fortement chargé en bois. Le fait de fermer l'arrivée d'air induit que seules les fuites de l'appareil vont alimenter la combustion, ce qui semble représenter un débit quasi idéal. Bien entendu, ces résultats ne sont absolument pas généralisables à l'intégralité des appareils anciens, puisqu'ils dépendent énormément des fuites qui sont très variables.

3.2.3.4 Conclusion

Cette partie a mis en évidence que le réglage de l'arrivée d'air par l'utilisateur impacte de manière significative les émissions. Le Tableau 3-36 en résume les différents points.

	CO	NO	SOx	COVT	TSP	OC	EC	HAP16	PM _{0.1} (nombre)
Air fermé (appareil récent)	+++	+++	+++	+++	+++	+++	+++	+++	---
Air fermé (appareil ancien)	---	non-évalué	non-évalué	non-évalué	=	=	---	non-évalué	non-évalué

Résultats comparatif avec des essais avec des réglages d'arrivée d'air conforme au guide d'utilisation des appareils et avec du HSECse

Tableau 3-36 : Bilan de l'impact de la fermeture de l'arrivée d'air

Ainsi, la fermeture de l'arrivée d'air sur un appareil étanche induit une augmentation considérable de l'intégralité des polluants. De plus, il apparaît clairement que la fermeture de l'air, ce qui implique une combustion en manque de Dioxygène, produit des particules de taille considérablement plus importante.

3.2.4 Conclusion

Cette partie a permis de déterminer l'influence sur les émissions de plusieurs paramètres :

- mode d'allumage ;
- nature du combustible ;
- réglage des arrivées d'air.

Ainsi, un allumage inversé réduit considérablement les émissions polluantes, sauf les émissions d'EC qui sont plus importantes. La nature du combustible et le réglage des arrivées d'air sont aussi des facteurs très importants. De par leurs émissions spécifiques, on a vu notamment que la qualité de la combustion était liée à :

- la température ;
- le facteur d'air ;
- la composition du combustible.

En effet, un combustible humide diminuera la température de la chambre de combustion et induira des émissions spécifiques. Les émissions sont beaucoup plus importantes lorsque le combustible est humide. De plus, la fraction ultrafine des particules diminue significativement au profit de la fraction fine.

La fermeture de l'arrivée d'air induit une combustion en manque de Dioxygène. Ce manque de Dioxygène provoque de fortes émissions d'imbrûlés gazeux ou solides, mais aussi une augmentation considérable de la taille des particules.

La composition du combustible (essence, écorces) génère aussi des émissions spécifiques. La répartition de l'air dans les appareils récent a été dimensionnée pour des combustibles feuillus et sans écorces. C'est pour cette raison que le changement de la composition du combustible induit systématiquement une augmentation des émissions.

L'utilisateur peut donc réduire considérablement ses émissions en appliquant des bonnes pratiques de combustion. Néanmoins, les émissions resteront toujours variables. Existe-t-il des liens entre les polluants permettant de mieux comprendre ces variations ?

3.3 Relations entre les différents polluants

De nombreux polluants peuvent être émis par la combustion du bois dans des appareils domestiques. Ainsi, des liens existent entre certains de ces polluants, et doivent être définis afin de mieux comprendre leur condition de formation et de destruction.

3.3.1 Corrélation « température / imbrûlés gazeux »

Les émissions de CO, polluant issu de la combustion incomplète, sont directement liées à la qualité de la combustion. Le niveau de température est aussi lié à cette qualité. Ainsi, les émissions de CO et le niveau de température doivent être liés. La Figure 3-35 (a) présente l'évolution commune entre les émissions moyennes de CO et la température des fumées pour tous les essais de l'appareil de 2012 réalisés par le LERMAB dans le projet QUALICOMB et la Figure 3-35 (b) illustre de nouveau cette évolution en mélangeant plusieurs technologies d'appareil (données résultantes de l'étude sur l'évolution des émissions selon la génération d'appareils).

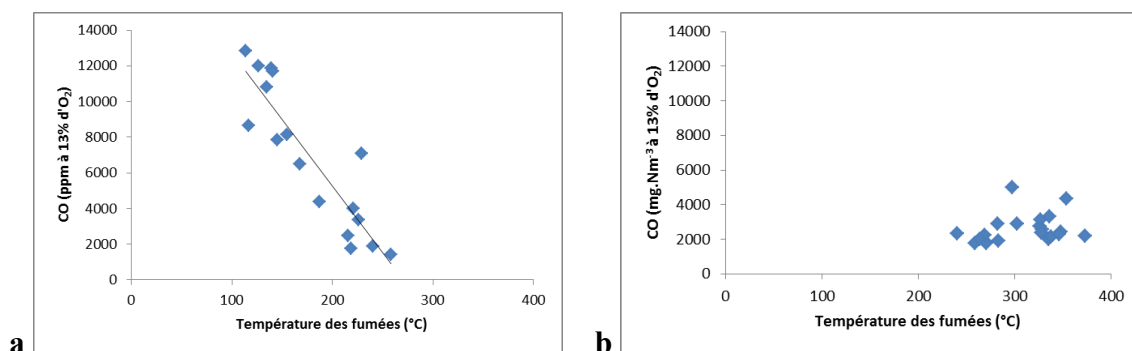


Figure 3-35 : Evolution des émissions de CO en fonction de la température des fumées pour l'intégralité des essais sur l'appareil de 2012 réalisés par le LERMAB pour le projet QUALICOMB (a) et pour l'intégralité des essais utilisés à l'étude de l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil (b)

Si un seul appareil est considéré, les données corrélaient particulièrement bien, révélant un lien clair entre ces deux paramètres. De plus, cette loi d'évolution fonctionne quelques soient les caractéristiques du combustible et l'utilisation de l'appareil. En effet, les essais QUALICOMB étaient de nature variée, tant dans leurs caractéristiques d'utilisation que dans le combustible utilisé. En revanche, si des points issus d'essais sur différents appareils sont représentés, la corrélation ne semble pas claire. Il semble donc que la loi reliant ces deux résultats est liée à l'appareil lui-même. Chaque appareil possède donc une température idéale, c'est-à-dire limitant les émissions de CO sans trop perdre de chaleur pour ne pas faire chuter le rendement de l'installation.

Les COVT et les HAP étant aussi issus d'une combustion incomplète, leurs émissions pourraient également être liées intimement à la température. Or, aucune corrélation n'est visible entre les COVT et la température (si les mêmes plages de données que celles utilisées dans la Figure 3-35 sont utilisées). En revanche, dans le cas d'une série d'essais réalisés la même journée sur l'appareil étanche (WABI, 2012) et avec des conditions identiques, les corrélations fonctionnent. La Figure 3-36 présente ces deux évolutions.

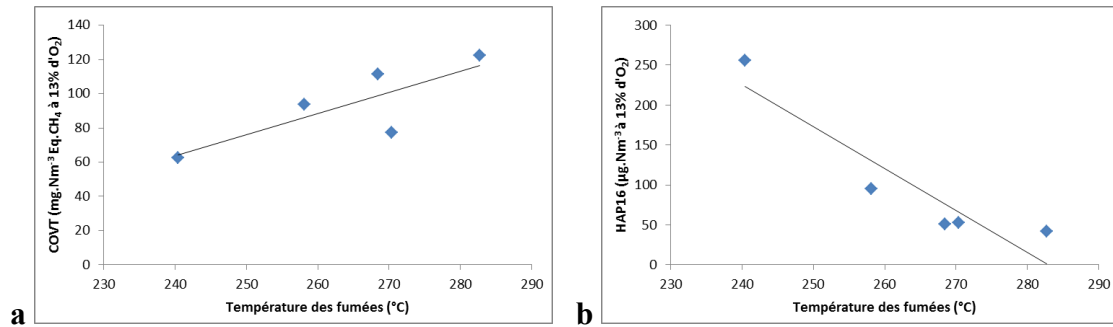


Figure 3-36 : Evolution des émissions de COVT (a) et de HAP16 (b) en fonction de la température des fumées sur une série d'essais de répétitions sur le poêle étanche (WABI, 2012)

Il est important de bien observer ces deux courbes. En effet, il ne faut pas avoir comme seule conclusion qu'une augmentation de la température augmente les émissions de COVT. L'augmentation de la température permet l'oxydation partielle des HAP. Une oxydation partielle des HAP produit principalement des COVT. Ainsi, sur une série d'essais, se déroulant dans des conditions similaires, les émissions de COVT et de HAP16 peuvent varier considérablement, sur une plage de température restreinte (40°C environ). Un équilibre, très sensible à la température, existe donc entre les émissions de COVT et de HAP16.

Bien que la température ne permette pas d'expliquer toutes les variations dans les émissions d'imbrûlés gazeux, son influence est très importante et déterminante.

3.3.2 Corrélation « CO / imbrûlés gazeux »

Les COVT, les HAP et le CO sont trois polluants issus d'une combustion incomplète. Les émissions de ces polluants doivent alors être liées. La Figure 3-37 présente les résultats obtenus sur les essais liés à l'étude de l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil (appareil variable mais condition de combustion identique).

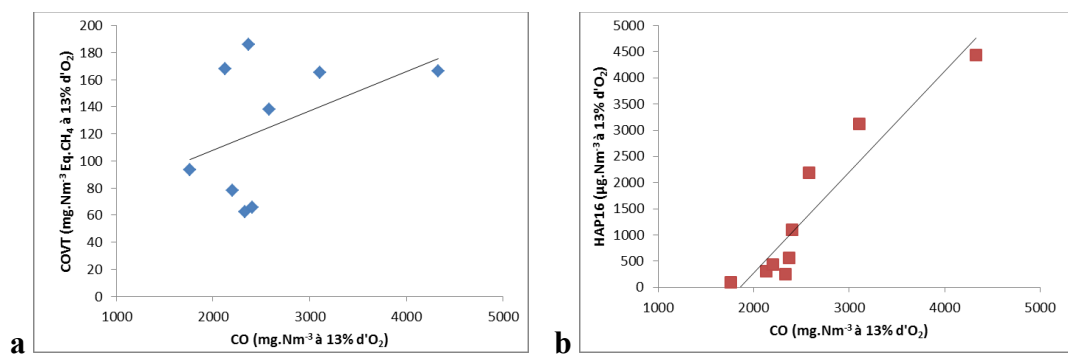


Figure 3-37 : Evolution des émissions de COVT (a) et de HAP16 (b) en fonction des émissions de CO pour l'intégralité des essais utilisés à l'étude de l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil

Les émissions de HAP16 semblent relativement bien liées aux émissions de CO alors que les émissions de COVT ne paraissent que très faiblement corrélées aux émissions de CO. En revanche, si cette évolution est tracée avec les essais issus du projet QUALICOMB, aucune tendance n'apparaît. Ainsi, les émissions de HAP16 ne sont liées qu'à la qualité de la combustion (illustrée par les émissions de CO), alors que les COVT sont aussi impactés par la

technologie de l'appareil. C'est sur ce dernier point que les lois d'évolution des émissions de HAP16 se distinguent de celles des COVT. En effet, les émissions de COVT dépendent (en plus de la qualité de la combustion) de la technologie utilisée et donc, de la génération de l'appareil. La Figure 3-38 démontre bel et bien que des lois d'évolution existent entre CO et COVT, mais ne peuvent être obtenues que sur une série d'essais sur un même appareil dans les mêmes conditions. Bäfver et al. [140] avaient obtenus des résultats similaires liant les émissions de COVT et de CO.

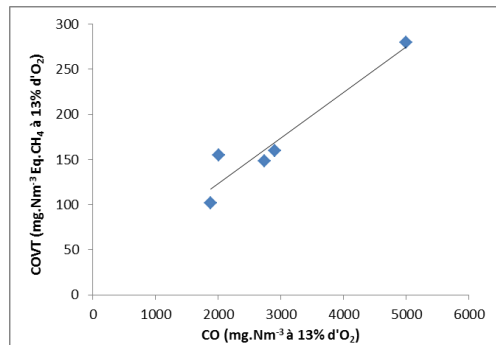


Figure 3-38 : Evolution des émissions de COVT en fonction des émissions de CO pour l'intégralité des essais sur l'appareil ancienne génération utilisé dans l'étude de l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil

En revanche, les lois liant les émissions de COVT à celles de CO ne sont visibles que sur des appareils relativement émetteurs. Cette limite n'est en revanche pas valable dans le cas des HAP16.

3.3.3 Corrélation « TSP / nature des particules »

Dans un premier temps, les parties précédentes (3.1.2 notamment) semblaient démontrer qu'une émission faible en TSP induisait une faible émission d'OC. La Figure 3-39 présente les résultats obtenus lors de l'étude de l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil.

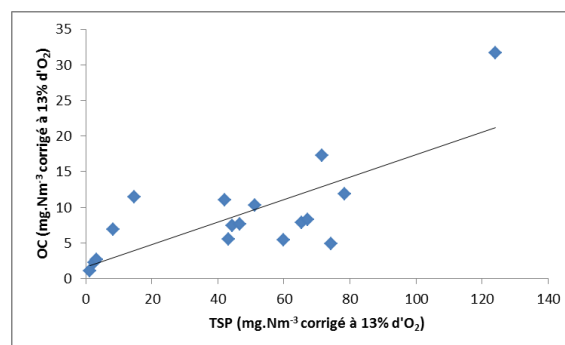


Figure 3-39 : Evolution des émissions d'OC en fonction des émissions de TSP pour l'intégralité des essais de l'étude de l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil

Les émissions d'OC semblent donc être fonction des émissions de TSP. Ceci pourrait s'expliquer par le fait qu'une combustion émettant peu de TSP est une combustion maîtrisée. Une combustion maîtrisée induit une température élevée. Cette température élevée permet la volatilisation de l'OC présent dans les particules. Ce point permettrait aussi d'expliquer

pourquoi le ratio EC/OC augmente lorsque les émissions en TSP diminuent. Cela ne vient donc pas du fait d'une augmentation des émissions d'EC, mais bel et bien d'une réduction des émissions d'OC.

Il a été aussi défini précédemment qu'une combustion maîtrisée induisait une forte proportion en nombre de particules ultrafines. Ainsi, les particules ultrafines contiendraient très peu d'OC.

Bien que peu de répétitions aient été réalisées, nous pouvons aussi constaté que dans le cas du poêle étanche (WABI, 2012), lors de la combustion dans des conditions idéales (arrivée d'air réglée, combustible sec sans écorces, ...) les émissions en nombre semblent corrélées aux émissions en masses. Ceci est principalement dû au fait que cet appareil performant n'émet, pour la grande majorité, que des nanoparticules. Si le nombre de nanoparticules varie, alors la masse varie. En revanche, ce phénomène n'est pas visible sur des appareils moins performants. En effet, le mix particulaire est trop important pour voir le phénomène.

De la même manière, comme les PM_{10} représentent en masse entre 70 et 90% des PM totales, un lien peut être établi entre les émissions TSP et les émissions de PM_{10} en masse. La Figure 3-40 présente deux courbes d'évolutions simultanées de ces deux facteurs d'émissions. La première (Figure 3-40, a) est basée sur l'intégralité des essais réalisés en interne au LERMAB pour le projet QUALICOMB. Aucune corrélation n'apparaît à travers ce nuage de points. En revanche, si les répétitions d'un essai performant sont isolées des autres points, alors la corrélation fonctionne (Figure 3-40, b).

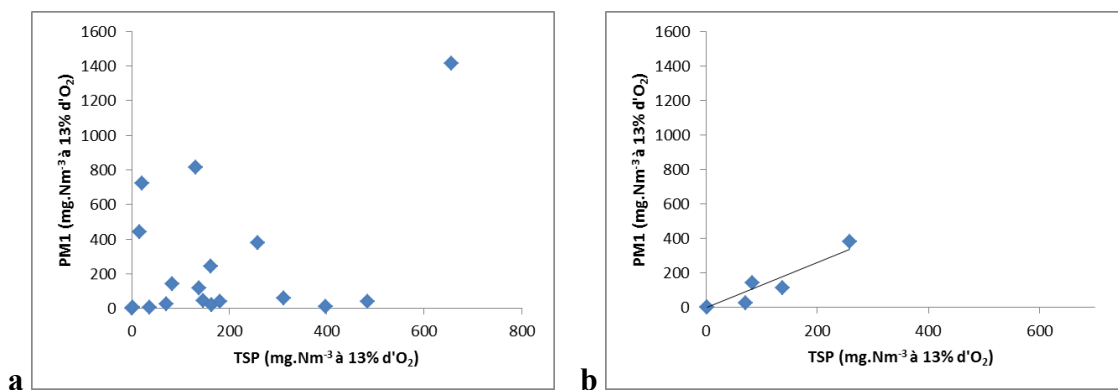


Figure 3-40 : Evolution des émissions de PM_{10} en fonction des émissions TSP sur l'intégralité des essais réalisés en interne au LERMAB pour le projet QUALICOMB (a) et sur seulement les essais sur l'appareil récent avec une bonne utilisation (b)

Ainsi, la loi d'évolution des émissions TSP et PM_{10} (en masse) ne dépend pas de la nature du combustible, mais est fortement impactée par l'utilisation et la technologie de l'appareil.

En revanche, nous savons aussi que les COVT et les HAP sont des précurseurs à la formation de particules dans l'air ambiant. Il faut maintenant vérifier si des liens existent entre ces précurseurs et les TSP, afin de mieux estimer les émissions.

3.3.4 Corrélation « TSP / précurseurs »

Comme les prélèvements réalisés dans ce chapitre étaient réalisés au point de référence, les HAP et les COVT n'étaient pas comptabilisés lors des prélèvements TSP. Or, ces polluants formeront de nouvelles particules une fois émis dans l'air ambiant. C'est pourquoi nous avons observé si des liens existaient entre les émissions de TSP et les émissions de HAP16 et de COVT. La Figure 3-41 présente les résultats obtenus.

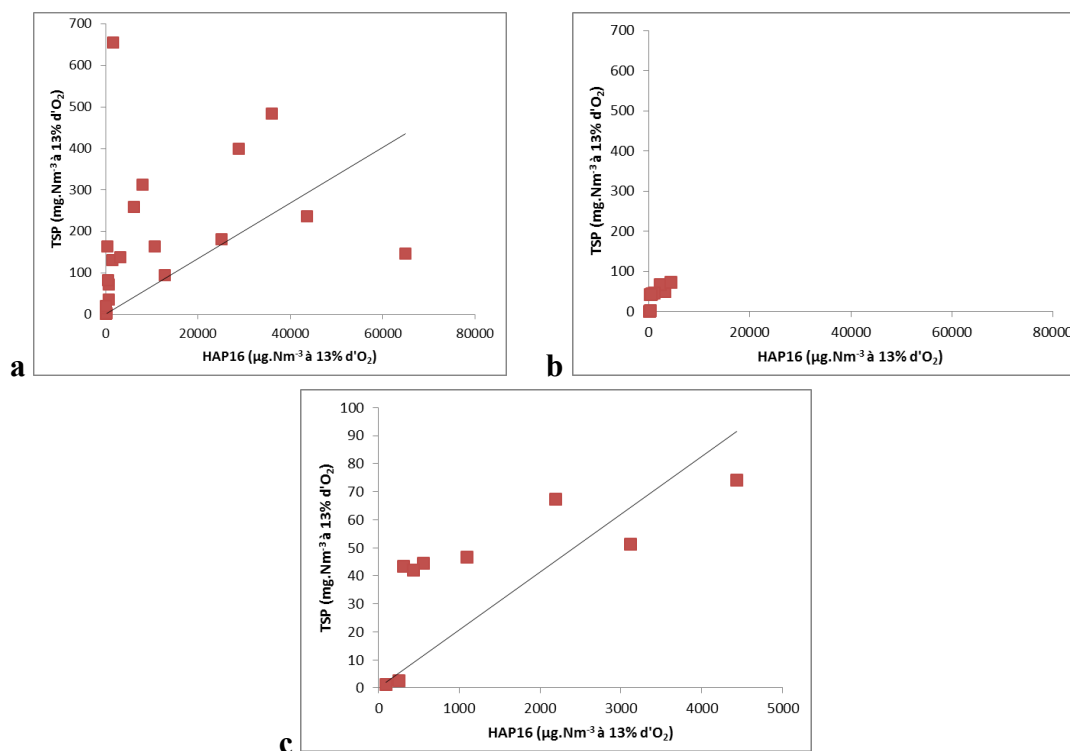


Figure 3-41 : Evolution des émissions de TSP en fonction des émissions de HAP16 sur l'intégralité des essais réalisés en interne au LERMAB pour le projet QUALICOMB (a) et sur la série d'essais sur l'évolution des émissions selon la génération de l'appareil (b) (zoom en c)

Dans le premier cas, des tendances se dessinent légèrement, mais les corrélations restent mauvaises. A l'inverse, si l'on zoome sur le second cas, celui-ci présente des tendances claires. Ceci implique trois choses :

- la tendance globale est qu'une forte production de HAP signifie que des TSP ont été produites en grande quantité aussi ;
- la nature du combustible et les conditions d'utilisation impactent clairement ces lois d'évolution ;
- la technologie de l'appareil ne modifie en rien ces lois d'évolution.

Les mêmes types de courbes sont obtenus si les HAP16 sont remplacés par les COVT, mais les tendances sont plus discrètes.

3.3.5 Corrélation « couleur des filtres / type de carbone »

Sur l'intégralité des essais du projet QUALICOMB, des filtres destinés à l'analyse OC/EC ont été prélevés. Ces nombreux filtres (88) ont subi deux analyses :

- analyse de la répartition OC/EC ;
- mesure de la couleur du filtre à l'aide d'un colorimètre (KONICA MINOLTA CR-400 et CR-410).

Le but de ces deux analyses était de vérifier si la détermination du ratio OC/EC pouvait être estimée avec une simple mesure de couleur (L, représentant la clarté ; a et b, représentant l'écart de la couleur par rapport à celle d'une surface grise de même clarté), et ainsi développer un protocole permettant cette mesure avec le plus de précision possible. Chaque filtre, dont le prélèvement était standardisé, a subi deux mesures de couleurs : au centre et sur un bord. La moyenne de ces deux mesures permettait d'obtenir une estimation de la couleur globale du filtre.

La première étape fut de déterminer s'il existait des corrélations directes entre L, a ou b et la teneur en OC ou EC. La Figure 3-42 présente la corrélation entre la mesure d'EC présent sur le filtre (en $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$) et le paramètre L de la mesure de la couleur.

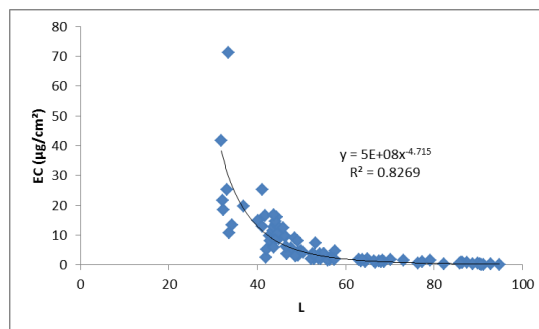


Figure 3-42 : Evolution entre le taux d'EC présent par cm^2 de filtre et le paramètre L de la mesure de la couleur

En découle l'Équation 3-1, qui permet de déterminer avec une précision globale de 18% la teneur en EC.

$$EC_{\text{calculé}} = 5 * 10^8 * L^{-4,715}$$

Avec :

- $EC_{\text{calculé}}$: Taux d'EC sur le filtre en $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$;
- L : Valeur issue de la mesure de la couleur en L, a, b.

Équation 3-1 : Equation d'estimation de la teneur en EC d'un filtre via le paramètre L

Cette corrélation paraît plutôt logique puisque le paramètre L mesure l'obscurité du filtre et que l'EC a pour propriété d'être noir. Ainsi, seule la valeur d'OC manque encore pour une détermination du rapport OC/EC via la couleur.

Malheureusement, aucune mesure ne corrèle directement avec la teneur en OC du filtre. Mais, un assemblage spécifique de ces paramètres permet de trouver une équation avec un coefficient de corrélation acceptable. La Figure 3-43 présente cette corrélation. Le paramètre E est égal à la racine carrée de la somme des paramètres au carré L, a et b.

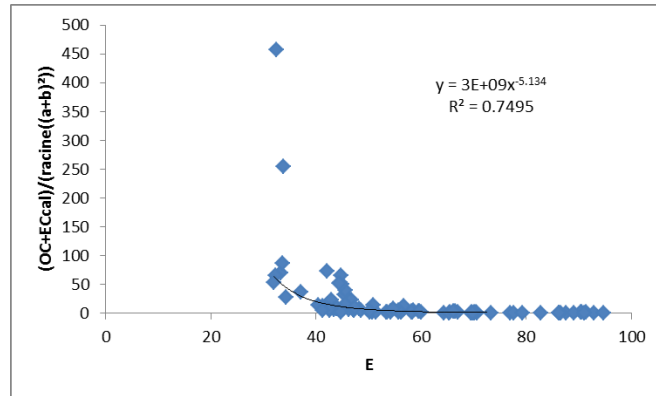


Figure 3-43 : Evolution du rapport entre la somme OC et EC et la racine carrée de a et b en fonction du paramètre E

Ainsi, l'Équation 3-2 a pu être définie et permet d'estimer la teneur en OC du filtre (en $\mu\text{g.cm}^{-2}$).

$$OC_{\text{calculé}} = W * \sqrt{(a + b)^2} - EC_{\text{calculé}}$$

Avec :

- $OC_{\text{calculé}}$: Taux d'OC sur le filtre ;
- $EC_{\text{calculé}}$: Valeur calculé de la teneur en EC du filtre selon l'Équation 3-1 en $\mu\text{g.cm}^{-2}$;
- a et b : Valeur issue de la mesure de la couleur en L, a , b ;
- $W = (OC + EC_{\text{calculé}}) / (\text{racine}((a+b)^2)) = 3 * 10^9 * E^{-5.134}$ (équation issue de la corrélation présentée en Figure 3-43).

Équation 3-2 : Equation d'estimation de la teneur en OC du filtre via un rapport de paramètre

Le rapport entre l'OC calculé et la somme de l'OC et de l'EC calculé permet donc d'obtenir un ratio estimé d'OC. Mais, certaines couleurs de filtre paraissent être plus variables que d'autres. Ainsi, une Analyse en Composantes Principales (ACP, méthode statistique permettant de réduire le nombre de variables) a été réalisée sur cet échantillon de filtres afin d'obtenir plusieurs familles de filtres (selon leur couleur). La Figure 3-44 présente le schéma selon les trois dimensions les plus caractéristiques des groupes de filtres. Ainsi, cinq familles bien distinctes apparaissent, ainsi que quelques points isolés formant une sixième famille (points bleus foncés).

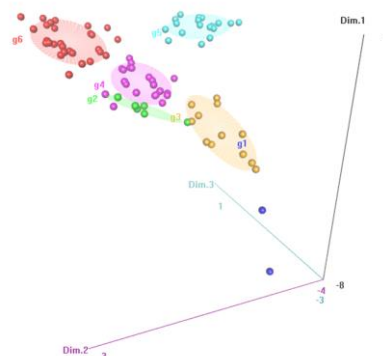


Figure 3-44 : Résultats de l'ACP sous forme de schéma selon les trois dimensions les plus caractéristiques des filtres

Ainsi, une étude de précision basée sur l'écart entre le ratio OC/TC calculé et le ratio OC/TC mesuré sur chaque famille a pu être réalisée. La Figure 3-45 présente les résultats de cette étude de la précision sous forme de boîte à moustaches. Le premier point important qui ressort de cette figure est que l'erreur est centrée : cela permet d'être certain qu'aucune erreur systématique ne pollue les résultats. Au global, sur le total des échantillons, la précision est de plus ou moins 6%.

En revanche, chaque famille de filtres ne présente pas la même précision. Ainsi, les familles 4, 5 et 6 paraissent très précises, contrairement aux familles 1, 2 et 3. Pour apporter une réalité physique à ces familles, la famille 1 représente les filtres presque blancs. Etant donné que ces filtres ne contiennent presque pas d'OC et d'EC, la moindre erreur devient très importante. Au contraire, la famille 2 est plutôt composée de filtres noirs. Ils sont bien souvent surchargés. Le taux d'EC est facile à déterminer, mais cette surcharge camoufle l'OC. De plus, s'ajoute à l'erreur de l'estimation l'erreur de mesure elle-même. En effet, le chapitre 2 met en garde sur le fait qu'un filtre surchargé sera mal analysé. La famille 3 est quasi similaire à la famille 2, mais des tâches bleuâtres sont apparues sur le filtre. C'est donc pour les mêmes raisons que la famille 2 que l'estimation est mauvaise. Les trois autres familles représentent des filtres dont le prélèvement a été mieux maîtrisée et sont définies ainsi :

- famille 4 : brun clair ;
- famille 5 : brun foncé ;
- famille 6 ; gris.

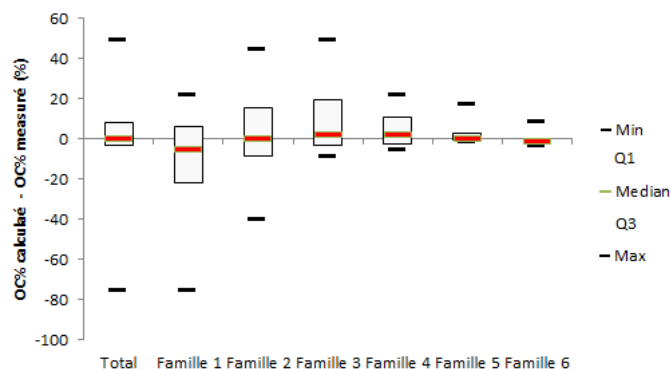


Figure 3-45 : Précision de l'estimation selon les 6 familles de filtres

Ainsi, pour obtenir une estimation plus précise, le prélèvement doit être optimisé. Un système de pesée du filtre durant le prélèvement pourrait éviter les trois premières familles (sous charge et surcharge). Une évolution de ce moyen d'estimation pourrait être réalisée en créant des formules d'estimation pour chacune des familles de filtres. Ceci n'a pas été réalisé dans ce travail de thèse car le nombre de filtres est trop peu significatif (88 filtres répartis en 6 familles, soit en moyenne seulement 14 filtres par famille).

Cependant, cette technique semble prometteuse et pourrait être développée pour une estimation rapide de la composition en OC et en EC des particules.

3.3.6 Corrélation « qualité de combustion / teneur en Carbone des particules (mesurés par microanalyse X) »

L'objectif est ici de déterminer le paramètre qui influe sur l'évolution de la composition en O et en C des particules. En effet, dans plusieurs études présentées précédemment, même si les particules produites étaient équivalentes, les équations de corrélations entre la teneur en O et en C des particules (définies par microanalyse X) différaient. La teneur en O₂ des fumées était toujours suffisante pour oxyder les particules : la composition des particules ne doit donc pas être liée à ce phénomène. En revanche, la température des fumées peut varier énormément. La Figure 3-46 présente l'évolution des coefficients directeurs et ordonnées à l'origine issus de l'équation $O\% = a \cdot C\% + b$ pour la série d'essais sur l'étude de l'impact du mode d'allumage.

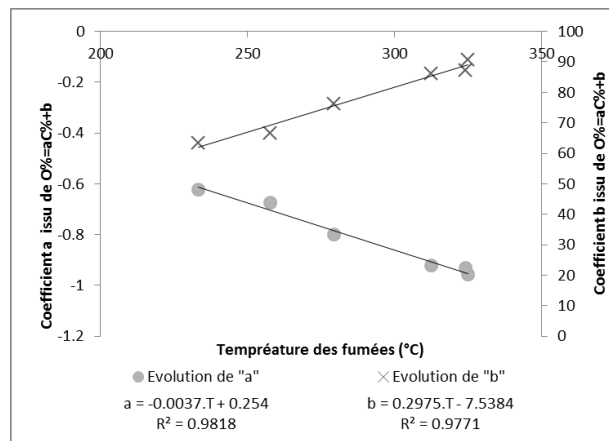


Figure 3-46 : Evolution des coefficients directeur et ordonnés à l'origine issus de l'équation $O\% = a \cdot C\% + b$ en fonction de la température des fumées durant le prélèvement pour les essais issus de l'étude du mode d'allumage

Le premier point remarquable est la forte corrélation obtenue pour les essais sur l'allumage, que ce soit le coefficient a ou b. Cela démontre bien que le coefficient b ne dépend pas, comme dit précédemment, uniquement de l'étape de métallisation. Ainsi, la température est bel et bien le paramètre le plus influent sur la répartition massique du Carbone et de l'Oxygène dans les particules.

3.4 Conclusion

Ce chapitre a permis de définir différents points :

- Les caractéristiques des particules types émises par un appareil à bûches durant les trois phases de la combustion ;
- les caractéristiques des particules types émises par un poêle à granulés ;
- l'impact de la génération des appareils à bûches sur les émissions ;
- l'impact de la nature du combustible sur les émissions ;
- l'impact de deux critères d'utilisation (mode d'allumage et réglage des arrivées d'air) sur les émissions.

Les émissions gazeuses sont totalement différentes entre la combustion de granulés ou de bûches. Les niveaux d'émissions sont beaucoup plus faibles dans le cas de la combustion de granulés. De plus, la nature des particules émises par un appareil indépendant à bûches est différente de celles émises par un poêle à granulés :

- les nanoparticules émises par la combustion de bûches ont un diamètre de 20 à 50 nm contre 20 à 150 nm pour les granulés ;
- les morceaux de charbon émis par la combustion de granulés présentent une structure organisée alors que ceux émis par la combustion de bûches sont amorphes.

La combustion d'une bûche peut être divisée en trois phases : la phase d'allumage, la combustion homogène et la combustion hétérogène. Ces trois phases de combustion présentent des émissions gazeuses et particulaires spécifiques. Au niveau des particules, les principales caractéristiques sont les suivantes :

- phase d'allumage : nanoparticules très peu agglomérées et morceaux de bois plus ou moins dégradé, fortes émissions de TSP, d'EC et d'OC ;
- combustion homogène : nanoparticules peu ou pas agglomérées ;
- combustion hétérogène : morceaux de charbon amorphe, faibles émissions de particules en masse.

Les prélèvements OC/EC et MEB ont été menés par la suite durant la phase homogène.

La génération de l'appareil influe aussi de manière significative sur les émissions. Ainsi, le poêle WABI (2012) émet en moyenne dix fois moins de particules en masse et de HAP16 que le foyer SUNFLAM (2000). Outre les niveaux d'émissions, cette étude a permis de mettre en évidence de nombreux phénomènes dont les majeurs sont rappelés ici :

- l'air secondaire réduit la quantité de polluants émis (gazeux et solides, en masse) et augmente la fraction ultrafine des particules ;
- l'air secondaire n'influe ni sur la nature chimique des particules émises (notamment le ratio OC/TSP) ni sur les proportions relatives des différents HAP ;
- le ratio OC/TC ne dépend pas de la qualité de la combustion ;
- le design de l'appareil est le principal facteur impactant le ratio OC/TC des particules ;
- la technologie de l'appareil, qu'importe son design, influe sur les lois d'évolution des ratios EC/TC et TC/TSP.

Naturellement, la nature du combustible influe sur les émissions. Deux paramètres ont été étudiés dans ce chapitre : l'influence de l'humidité et l'influence de l'écorce. Ainsi, un combustible humide conduira à une combustion mal maîtrisée et très émettrice d'imbrûlés (CO, COVT et CH₄, HAP16, TSP, EC et OC). De plus, la répartition granulométrique est plus concentrée sur la fraction ultrafine lorsque le combustible est humide. Ainsi, l'humidité est un paramètre influant aussi sur le phénomène d'agglomération des nanoparticules. Les particules émises par la combustion de bûches humides sont les suivantes :

- nanoparticules très faiblement agglomérées avec un diamètre compris entre 20 et 200 nm ;
- des morceaux de bois thermiquement dégradé ;
- des morceaux de charbon.

La présence d'écorces augmente la durée de la combustion. De ce fait, les émissions de CO, NO et COVT sont globalement réduites. En revanche, les émissions de SO_x sont beaucoup plus importantes si le combustible possède une écorce. Les émissions particulaires sont aussi impactées par la présence d'écorces. Les émissions de TSP sont plus importantes. Comme les émissions d'OC et d'EC ne varient que faiblement, cela signifie que la présence d'écorces implique une émission de cendres très importantes. La microscopie a permis de constater que la présence d'écorces induisait des émissions de nano-cristaux de Silice et de Sodium.

Concernant l'utilisation de l'appareil, le mode d'allumage influence drastiquement les niveaux d'émissions de la totalité des polluants. Ainsi, l'allumage inversé réduit la globalité des polluants, mais augmente les émissions d'EC. Dans un poêle étanche, la réduction de l'arrivée d'air augmente significativement les émissions de la globalité des polluants. De plus, une arrivée d'air fermée induit une condensation rapide des HAP.

L'évolution des particules dans le conduit est maintenant un point clé à définir afin de mieux comprendre les émissions particulaires dans l'air ambiant des appareils de chauffage domestique au bois.

Des tendances ont aussi été clairement observées. En voici les principales :

- une combustion en manque d'Oxygène produit des particules de plus grosses tailles ;
- les émissions de CO sont directement liées à la température ;
- dans un appareil performant, les émissions de COVT et de HAP présentent un équilibre très sensible à la température ;
- une faible émission d'OC indique une faible émission de TSP ;
- La teneur en C et en O des particules est directement liée à la température.

De plus, une méthode rapide de détermination du ratio d'OC a été mise au point. Cette méthode est basée sur la mesure de la couleur des filtres. Une optimisation future de cette méthode pourrait permettre une mesure rapide sans matériel coûteux de la composition en OC/EC.

Maintenant que l'influence sur les émissions au point de prélèvement de référence de nombreux paramètres, il est important d'observer l'évolution des particules dans le conduit d'évacuation des fumées.

Chapitre 4. DE LA FLAMME AU CHAMP PROCHE

Dans ce chapitre, l'évolution des caractéristiques des particules depuis leur formation dans la chambre de combustion jusqu'au champ proche lors de l'émission à la sortie du conduit de cheminée a été caractérisée. Pour se faire, plusieurs séries d'essais ont été réalisées afin de suivre les modifications dans le conduit. Pour obtenir des résultats permettant d'établir une évolution complète, les essais ont été répétés plusieurs fois.

4.1 Etude comparative des résultats d'essais

L'étude de l'évolution des particules dans le conduit de cheminée comprend trois séries d'essais, préalablement décrites en 2.5.6. La Figure 4-1 est un rappel des caractéristiques des trois séries d'essais. Cette figure est aussi placée en annexe C dépliant en tant qu'illustration continue.

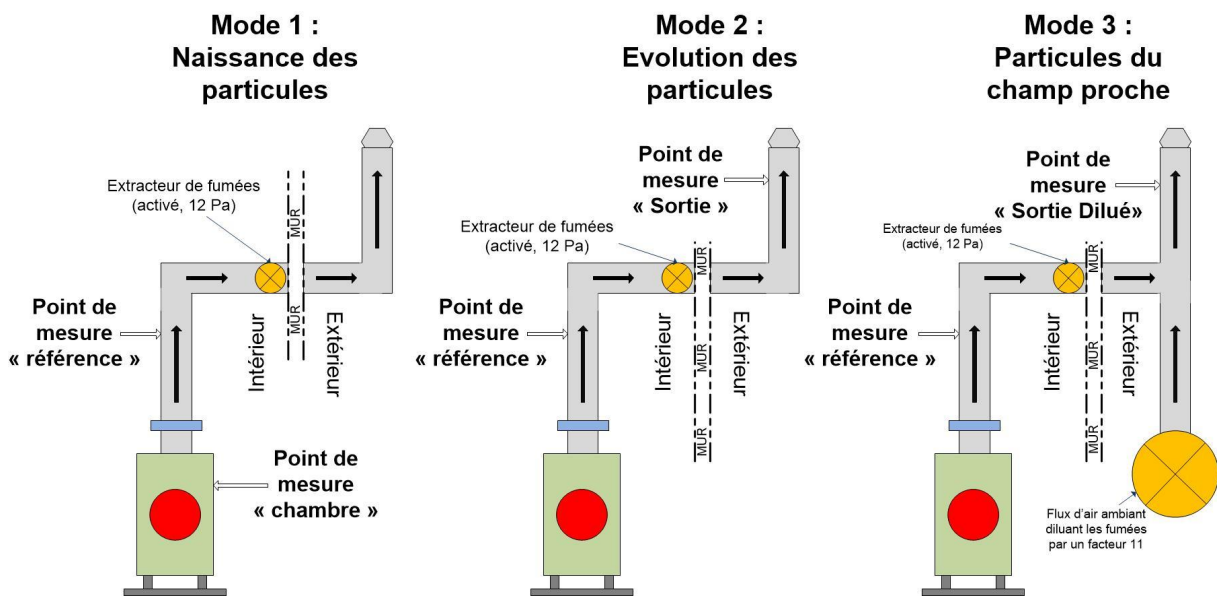


Figure 4-1 : Rappel des points de prélèvements de chaque série d'essais

Ainsi, à chaque série d'essais, des prélèvements étaient réalisés au point de référence. Afin d'obtenir une bonne répétabilité pour chaque typologie d'essai, les charges de combustible (du HSECse) étaient identiques. Une charge était composée de deux bûches de masses équivalentes. Le Tableau 4-1 présente l'intégralité des charges utilisées. Ainsi, seuls les essais « Prélèvement sortie diluée » ont été réalisés avec des charges de combustibles en moyenne plus élevées de 200 g que les autres types d'essai, soit une différence de 5%.

Type d'essai	Répétition	Bûches 1 (kg)	Bûches 2 (kg)	Masse totale (kg)	Moyenne (kg)
Prélèvement "chambre"	1	1.71	2.03	3.74	3.73
	2	1.93	1.78	3.71	
	3	1.8	1.89	3.69	
	4	2.02	1.75	3.77	
Prélèvement "sortie"	1	1.73	1.95	3.68	3.71
	2	1.73	1.96	3.69	
	3	1.8	1.89	3.69	
	4	2.05	1.72	3.77	
Prélèvement "sortie diluée"	1	1.83	2.06	3.89	3.95
	2	1.89	2.1	3.99	
	3	1.92	2.05	3.97	
	4	1.91	2.02	3.93	

Tableau 4-1 : Description des charges

Le Tableau 4-2 présente les résultats caractéristiques de la qualité de la combustion (O_2 , température des fumées, CO) mesurée **au point de référence** pour chaque essai des trois séries. Les résultats sont très proches les uns des autres, avec une répétabilité très satisfaisante. Cela signifie donc que les résultats aux autres points de prélèvements pourront être comparés.

Type d'essai	Répétition	O_2 (%)	CO_2 (%)	CO ($mg.Nm^{-3}$ à 13% O_2)	T fumée ($^{\circ}C$)
Prélèvement "chambre"	1	14.9	6.0	2128	337
	2	15.7	5.2	1760	300
	3	14.4	6.5	2406	348
	4	13.0	7.9	2205	373
	Moyenne	14.5	6.4	2125	340
	Ecart-type	1.1	1.1	270	30
Prélèvement "sortie"	1	15.5	5.7	2447	332
	2	14.7	5.9	2183	356
	3	14.0	6.2	3283	361
	4	14.4	6.4	2245	357
	Moyenne	14.6	6.0	2539	351
	Ecart-type	0.6	0.3	509	13
Prélèvement "sortie diluée"	1	14.3	6.7	2221	336
	2	13.3	7.4	1835	351
	3	14.0	6.3	2047	322
	4	12.8	7.1	2419	341
	Moyenne	13.6	6.8	2130	337
	Ecart-type	0.7	0.5	249	12

Tableau 4-2 : Répétabilité des mesures classiques au point de référence pour les trois séries d'essais

Le Dioxygène est plus bas de en moyenne de 1% dans la troisième série. Cela est dû à l'action de la dilution, qui perturbait l'extracteur de fumée. Ce dernier régulait à 12 Pa dans les deux premières séries d'essais, mais peinait à obtenir 10 Pa lorsque la dilution était activée. Comme les débits d'air de combustion sont liés directement au tirage, il apparaît normal que le dernier cas conduise à un débit d'air plus faible et donc à une teneur en O_2 plus faible. Ce phénomène

de concurrence entre l'extracteur de combustion qui régule un tirage à 12 Pa et le ventilateur de dilution qui crée une surpression, bien que présent, n'impacte que légèrement les conditions de combustion. En effet, pour une concentration en O₂ plus faible, les émissions de CO et la température des fumées sont équivalentes. Ainsi, les résultats obtenus à chaque point de prélèvement pourront être comparés entre eux en dépit de prélèvements réalisés au cours d'essais différents. Les résultats seront présentés de la manière suivante :

- 1 : caractérisation globale au point de référence ;
- 2 : pour chaque point de prélèvement :
 - o résultats à ce point ;
 - o comparaison à la référence ;
- 3 : conclusion sur les évolutions.

Ce format de présentation des résultats permettra à la fois la caractérisation des émissions en un point et la compréhension de l'évolution de ces caractéristiques.

Dans cette étude, les caractéristiques physico-chimiques des particules ont été particulièrement observées. De plus, les HAP16 et les COVT ont aussi été ciblés, puisqu'ils sont des précurseurs à la formation de nouvelles particules dans l'air ambiant. Bien que les COVT soient toujours traités de manière séparée, les HAP16 seront traités en même temps que les émissions de TSP. Ces séries d'essais permettront donc de répondre à deux objectifs principaux, à savoir :

- déterminer les mécanismes de formation des différentes particules ;
- déterminer l'évolution des caractéristiques des particules dans le conduit.

4.2 Les émissions au point de référence

Dans cette partie, les résultats obtenus au point de référence lors des trois séries d'essais différentes seront présentés afin de définir les caractéristiques des fumées en moyenne à ce point de référence qui servira ensuite pour comparer et suivre les évolutions.

4.2.1 Les émissions gazeuses

Afin de mieux comprendre l'évolution des caractéristiques des particules, le milieu dans lequel elles évoluent doit être défini. Les résultats des analyses gazeuses au point de référence sont présentés dans le Tableau 4-3. Les résultats de ce tableau sont basés sur les 12 essais décrits en 2.5.6.

	O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	COVT (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂ Eq. CH ₄)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	Tfumée (°C)
Moyenne	14.2	6.4	2265	68	125	50	343
Ecart-type	0.9	0.7	385	9	42	22	19

Tableau 4-3 : Bilan des analyses gazeuses réalisées au point de référence

La teneur en O₂ en moyenne de 14,2% est très stable avec un écart-type de moins de 1%. Il en va de même pour les émissions de CO, avec une moyenne à 2265 mg.Nm⁻³ corrigés à 13% d'O₂ et avec un écart-type inférieur à 17%, ce qui est faible pour ce type d'émissions. Les émissions de NO, en moyenne à 68 mg.Nm⁻³ corrigé à 13% d'O₂ sont relativement stables, avec un écart-type inférieur à 14%. Les émissions de COVT et de CH₄ sont plus variables, mais le ratio CH₄/COVT est constant à 40%. La température des fumées est elle aussi très stable, à 340°C en moyenne, malgré des essais ayant eu lieu sur une semaine complète.

4.2.2 Les émissions particulières

Les prélèvements et les analyses de particules présentent aussi une très bonne répétabilité, comme en témoigne le Tableau 4-4.

	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC/TC (%)	TC/TSP (%)	OC/TSP (%)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)
Moyenne	72	18.9	61.7	11.5	35	7
Ecart-type	25	7.5	25.1	6.9	15	2

Tableau 4-4 : Bilan des émissions solides au point de référence

Ainsi, le niveau moyen de concentration de TSP dans les fumées au point de référence est de l'ordre de 70 mg.Nm⁻³ corrigé à 13% d'O₂, ce qui est plutôt faible pour un appareil de cette génération. Les concentrations d'EC et d'OC dans les particules étaient aussi relativement fixes, respectivement d'environ 50 et 10% en masse.

Ces particules avaient une granulométrie spécifique, présentée dans le Tableau 4-5.

	PM _{0.1} (%nombre)	PM _{0.1-1.0} (%nombre)	PM _{1.0-2.5} (%nombre)	PM _{2.5-10} (%nombre)
Moyenne	72.7	27.3	0.02	0.01
Ecart-type	5.9	5.9	0.01	0.00

Tableau 4-5 : Bilan de la répartition granulométrique en nombre des particules du point de référence

La fraction majoritaire était donc composée de PM_{0,1}, avec plus de 72% des particules en nombre. Ensuite, la fraction PM_{0,1-1} comprenait les particules restantes. Les autres classes granulométriques sont très anecdotiques.

Le suivi des HAP au sein du conduit de cheminée est un point clé pour caractériser l'évolution de la teneur et des caractéristiques des particules le long du cheminement des fumées. La Figure 4-2 présente la concentration en HAP16 au point de référence pour l'intégralité des analyses effectuées en ce point de prélèvement.

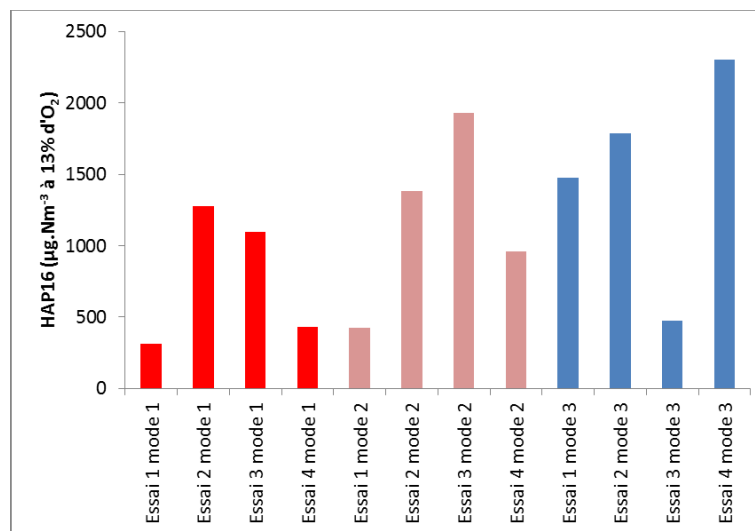


Figure 4-2 : Bilan des émissions de HAP16 au point de référence

Les analyses sont globalement répétables, avec des niveaux de concentration plutôt faibles. En effet, les fumées du point de référence contenaient en moyenne 1154 µg.Nm⁻³ corrigé à 13% d'O₂ de HAP16. Ces HAP étaient répartis d'une manière répétable. Le Tableau 4-6 présente les proportions de chacun des HAP16 au point de référence.

Une fois de plus, les proportions sont typiques et très peu variables. Le Naphtalène est l'espèce majoritaire (environ 65%), suivi du Phénanthrène (environ 15%), du Fluoranthène (environ 6%) et du Pyrène (environ 5%).

	Naphtalène (%)	Acénaphthylène (%)	Acénaphthène (%)	Fluorène (%)	Phénanthrène (%)	Anthracène (%)	Fluoranthène (%)	Pyrène (%)	Benzo (a) anthracène (%)	Chrysène (%)	Benzo (b) fluoranthène (%)	Benzo (k) fluoranthène (%)	Benzo (a) pyrène (%)	Dibenzo (a,h) anthracène (%)	Benzo (ghi) pérylène (%)	Indéno (123, cd) pyrène (%)
Proportion moyenne	65.2	3.5	0.0	0.9	14.5	0.6	6.2	5.0	0.6	0.9	0.9	0.3	0.3	0.0	0.6	0.5
Ecart-Type	4.2	1.4	0.0	0.2	1.3	0.2	0.9	1.2	0.2	0.2	0.2	0.1	0.2	0.0	0.2	0.2

Tableau 4-6 : Bilan des proportions de chaque HAP16 du point de référence

4.2.3 Microanalyse X et imagerie des particules

En ce qui concerne la microscopie, seuls les résultats d'imagerie des particules seront présentés ici. En effet, les résultats de la microanalyse X apportent beaucoup plus d'informations lorsqu'ils sont étudiés de manière comparative. C'est cette méthode de lecture qui sera appliquée dans les trois parties suivantes.

Trois familles majoritaires de particules sont présentes au point de référence :

- des morceaux de bois thermiquement dégradé (Figure 4-3, a) ;
- des agglomérats de nanoparticules (Figure 4-3, b) ;
- des nanoparticules non agglomérées (Figure 4-3, c).

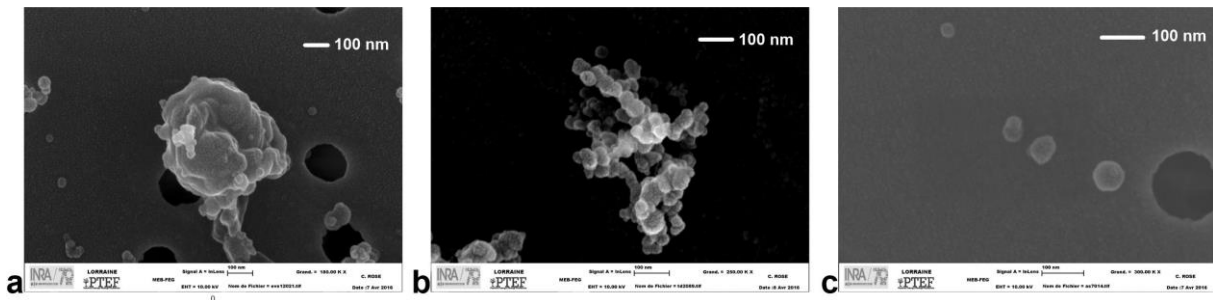


Figure 4-3 : Clichés de morceaux de bois dégradé (a, x180000), d'agglomérats de nanoparticules (b, x 180000) et de nanoparticules non agglomérées (c, x300000) prélevés au point de référence

Les morceaux de bois thermiquement dégradé sont de tailles très variables. En effet, ils vont de 100 nm jusqu'à quelques micromètres. Quelques morceaux de charbon peuvent aussi être détectés, mais leur présence au point de référence paraît anecdotique (en nombre de particules observées). Les agglomérats de nanoparticules sont composés généralement de 2 à 50 nanoparticules. Ils peuvent être composés de plusieurs brins, mais peuvent aussi ne comporter qu'un seul brin d'agglomération. Les nanoparticules ont une taille pouvant varier, mais toujours comprise entre 20 et 50 nm.

4.2.4 Conclusion

Cette partie a permis de décrire de manière concise les caractéristiques principales des fumées et des particules au point de référence qui sert de base de mesures. Ainsi, avec une température de 350°C, le point de référence contient trois types de particules : des morceaux de bois dégradé thermiquement, des agglomérats de nanoparticules et des nanoparticules non agglomérées. Les agglomérats ne contiennent que peu de nanoparticules, et sont donc de tailles assez fines (50 à 300 nm). Les nanoparticules représentent la grande majorité des particules en présence. Ceci permet d'expliquer que la fraction granulométrique majoritaire est celle des $PM_{0,1}$. Les HAP sont relativement peu concentrés, et sont majoritairement composés de Naphtalène, de Phénanthrène et de Fluoranthène (plus de 86% avec ces 3 composés). Ces proportions sont répétables, bien que la température des fumées corresponde à la plage des températures d'ébullitions des HAP. Le ratio $CH_4/COVT$ paraît fixe avec une valeur constante de 40%.

4.3 Les émissions au niveau de la chambre de combustion

Ce premier point a pour objectif d'observer la « naissance » des particules via des prélèvements directement dans la chambre de combustion, juste avant le conduit de cheminée. Les résultats présentés sont donc issus de la série d'essais en mode 1.

4.3.1 Les émissions gazeuses

Afin de mieux comprendre les conditions de création de ces particules, le mélange gazeux dans lequel ces dernières évoluent doit aussi être défini. Le Tableau 4-7 présente l'intégralité des émissions gazeuses aux deux points de mesure : Chambre et Référence. Pour rappel, les concentrations en CO₂ sont obtenus par calcul, non pas par mesure.

Répétition	Position	O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	SOx (mg.Nm ⁻³ Eq SO ₂ à 13% O ₂)	COVT (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂ Eq. CH ₄)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	Tfumée (°C)
1	Référence	14.9	6.0	2128	64	11	168	82	337
	Chambre	14.1	6.8	3268	81	5	127	68	496
2	Référence	15.7	5.2	1760	71	16	91	36	300
	Chambre	14.0	6.9	2844	58	6	79	26	468
3	Référence	14.4	6.5	2406	54	9	66	27	348
	Chambre	14.2	6.7	2702	74	4	75	33	482
4	Référence	13.0	7.9	2205	54	8	78	33	373
	Chambre	12.9	8.0	1955	75	3	60	26	512
Global	Moyenne de Référence	14.5	6.4	2125	61	11	101	45	340
	Ecart-Type de Référence	1.1	1.1	270	8	3	46	25	30
	Moyenne de Chambre	13.8	7.1	2692	72	4	85	38	489
	Ecart-Type de Chambre	0.6	0.6	547	10	1	29	20	19
	Moyenne des écarts (Chambre - Référence)	-0.7	0.7	568	11	-7	-16	-6	150
	(1 - (Référence / Chambre) *100	-5%	10%	21%	16%	-162%	-18%	-16%	31%

Tableau 4-7 : Bilan des émissions gazeuses aux points de mesure Chambre et Référence

Les émissions sont relativement répétables aux deux points malgré une variation importante du taux d'O₂. Ce phénomène pourrait être dû à quatre paramètres :

- un défaut d'étanchéité du raccordement entre l'appareil et le conduit de fumées ;
- une erreur systématique de mesure sur l'un des deux points ;
- un mélange gazeux hétérogène dans la chambre de combustion ;
- les réactions de combustion se déroulent encore.

Les deux premiers paramètres ne sont pas plausibles étant donné que le raccordement a été vérifié (aucune fuite n'était présente) et que les appareils de mesure des gaz étaient vérifiés avant leur utilisation (pas d'erreur systématique).

Le troisième paramètre est probablement vrai puisque le point de prélèvement est dans la chambre de combustion, présentant un mélange peu homogène. En revanche ce point ne peut être vérifié.

Le paramètre le plus plausible est donc que des réactions de combustion se déroulaient entre le point de prélèvement dans la chambre et celui de référence. Cette explication paraît cohérente, d'autant que les flammes atteignaient régulièrement les buses de prélèvements. De

plus, la concentration en CO est plus élevée dans la chambre de combustion qu'au point de référence. Il y a donc des réactions d'oxydation et donc de combustion entre ces deux points.

Ainsi, la température des fumées varie considérablement. La Figure 4-4 présente l'évolution de cette température en fonction de la concentration en Dioxygène aux deux points de mesures.

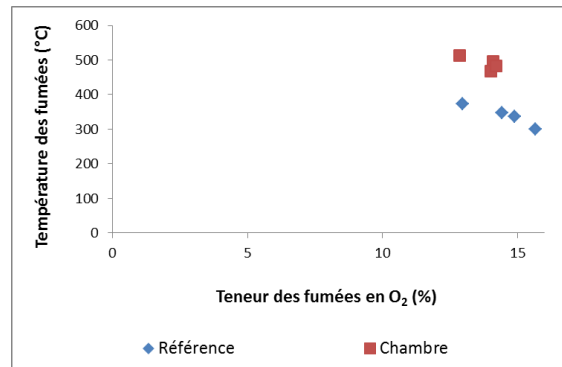


Figure 4-4 : Evolution de la teneur en O₂ et de la température des fumées aux deux points de mesure Chambre et Référence

En moyenne, la température des fumées chute de 150°C entre le point de mesure dans la chambre de combustion et celui au point de référence. Les émissions de CO diminuent légèrement entre la chambre de combustion et le point de référence. Ce résultat prévisible s'explique par le fait que la température étant plus élevée dans la chambre de combustion (quasiment 500°C), le CO est plus facilement oxydé en CO₂.

Les émissions de COVT et de CH₄ sont légèrement plus importantes au point de référence et évoluent de manière conjointe. Le ratio CH₄/COVT semble être constant entre les deux points de mesures. La Figure 4-5 présente l'évolution des émissions de CH₄ en fonction des émissions de COVT aux deux points, sans distinction.

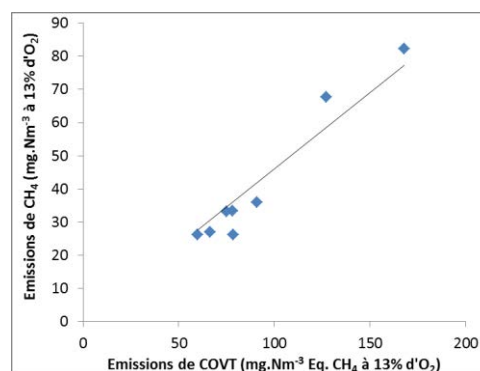


Figure 4-5 : Evolution des émissions de CH₄ en fonction des émissions de COVT

Les points sont bien alignés, indiquant un ratio constant. Ceci signifie que même si le niveau d'émission peut évoluer entre ces deux points (ce qui n'est pas certain, dû à l'hétérogénéité du milieu de prélèvement dans la chambre), les caractéristiques des émissions sont les mêmes.

4.3.2 Les émissions particulières

Le Tableau 4-8 présente les résultats d'émissions TSP et leur composition en OC et EC pour l'intégralité des essais aux deux points de prélèvement.

Répétition	Position	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC/TC (%)	TC/TSP (%)	OC/TSP (%)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)
1	Référence	43	13.5	95.3	12.9	36	6
	Chambre	77	1.3	100.0	1.3	76	1
2	Référence	50	29.8	22.3	6.6	8	3
	Chambre	94	28.2	82.2	23.2	56	22
3	Référence	47	27.3	60.1	16.4	20	8
	Chambre	72	3.1	52.0	1.6	36	1
4	Référence	42	26.2	100.0	26.2	31	11
	Chambre	89	19.8	71.9	14.2	51	13
Global	Moyenne de Référence	45	24.2	69.4	15.5	24	7
	Ecart-Type de Référence	4	7.3	36.1	8.2	12	3
	Moyenne de Chambre	83	13.1	76.5	10.1	55	9
	Ecart-Type de Chambre	10	13.0	20.1	10.6	16	10
	Moyenne des écarts (Chambre - Référence)	38	-11.1	7.1	-5.4	31	2
	(1 - (Référence / Chambre) *100	45%	-84%	9%	-54%	57%	25%

Tableau 4-8 : Bilan des émissions solides aux points de mesure Chambre et Référence

Les variations d'émissions TSP en un point de prélèvement sont très faibles. Un écart de plus de 35 mg.Nm⁻³ corrigé à 13% d'O₂ est observé entre la chambre et le point de référence. Cela signifie que la concentration en masse des particules est réduite si le point de prélèvement s'éloigne de la chambre de combustion. Cela pourrait s'expliquer de différentes manières :

- comme la température est encore suffisamment élevée au point de référence, la matière organique contenue dans les particules continue de se volatiliser selon le degré de volatilité de ces molécules ;
- comme la température est encore élevée au point de référence et que le milieu contient suffisamment de Dioxygène, les morceaux de charbon et morceaux de bois partiellement dégradé poursuivent leur oxydation.

La première hypothèse induirait une augmentation de la concentration de COVT et de CH₄ au point de référence. La partie précédente sur les émissions gazeuses (4.3.1) confirme bien ce phénomène. En revanche, si la matière organique présente dans les particules continue à se volatiliser, la part d'OC devrait diminuer. Ce point est difficile à valider. En effet, le ratio OC/TC est plus élevé au point de référence, tout comme le ratio OC/TSP. En revanche, le ratio TC/TSP a tendance à diminuer. Cela prouve bien que du Carbone issu des particules a été consommé. De plus, en moyenne, la concentration en OC diminue de 25% quand celle d'EC diminue de plus de 56%. Cela signifie que la proportion de matière carbonée diminue. Au final, cet argumentaire valide la coexistence des deux hypothèses. En effet, les particules émises continuent de volatiliser leurs composés volatils, émettant donc des COV, pendant que les particules de carbone fixe continuent d'être oxydées. Ces deux phénomènes expliquent la diminution constatée (même si l'oxydation du carbone fixe paraît être une réaction dominante) et contribuent à la réduction de la concentration en masse des particules (TSP).

En ce qui concerne la concentration en nombre et la répartition granulométrique des particules, les résultats, récapitulés dans le Tableau 4-9, sont aussi très concluants. S'agissant

du nombre total de particules, la valeur donnée est une estimation des PM₁₀ totales en nombre émises sur le cycle de la combustion. La différence entre les deux points de prélèvement est très faible et ne permet pas de conclure même si une légère tendance à l'augmentation du nombre de particules au point de référence existe.

		Nombre PM<10µm	PM 0.1 (%nombre)	PM 0.1-1.0 (%nombre)	PM 1.0-2.5 (%nombre)	PM 2.5-10 (%nombre)
Global	Moyenne de Référence	9.9E+14	69.3	30.6	0.03	0.01
	Ecart-Type de Référence	3.1E+12	6.5	6.4	0.01	0.00
	Moyenne de Chambre	9.8E+14	76.0	24.0	0.02	0.01
	Ecart-Type de Chambre	1.8E+14	3.2	3.2	0.01	0.00
	Moyenne des écarts (Chambre - Référence)	-1.7E+13	6.6	-6.6	0.00	0.00
	(1 - (Référence / Chambre) *100	-2%	9%	-28%	-9%	-17%

Tableau 4-9 : Bilan de la concentration en nombre des particules et de leur répartition granulométrique aux deux points de mesure Chambre et Référence

En revanche, la répartition granulométrique des particules est caractéristique. En effet, la granulométrie dans la chambre de combustion paraît plus concentrée sur la fraction ultrafine qu'au point de référence. Cela pourrait être contradictoire avec les conclusions précédentes sur la réduction des TSP en masse. En effet, si une oxydation du carbone fixe se déroule de manière concomitante avec la volatilisation du OC, la taille des particules devrait diminuer. Mais, un autre phénomène se déroule en parallèle : l'agglomération des particules. En effet, le milieu est concentré en particules submicroniques. Ces particules sont très réactives du fait de leur concentration élevée en OC. La température du milieu élevée favorise également leur réactivité. Dans de telles conditions, les particules auront tendance à s'agglomérer pour être plus stables. Ce phénomène est connu pour les nanoparticules métalliques [144] [145]. Si les essais avaient été réalisés sur un foyer fermé récent, émettant très peu d'OC, ce phénomène serait sans doute moins important.

Concernant les concentrations en HAP16, la Figure 4-6 récapitule les résultats pour chacun des essais.

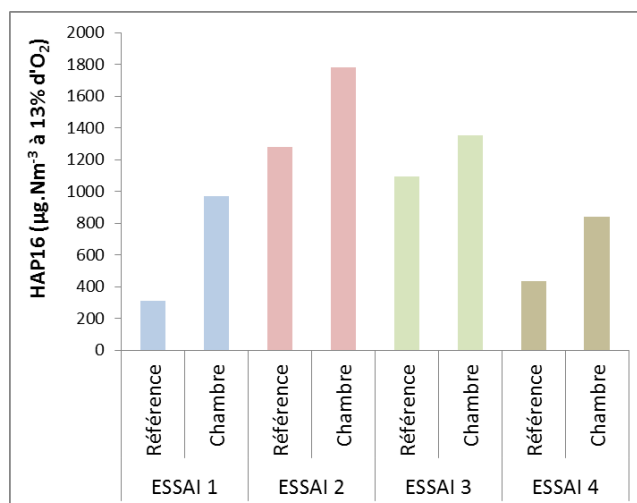


Figure 4-6 : Concentration en HAP16 aux deux points de mesures Chambre et Référence

Tout comme pour les autres polluants, les résultats sont très peu variables et reproductibles. En moyenne, les HAP16 sont 40% moins concentrés au point de référence. Ceci peut paraître surprenant puisque les HAP16 ont une évolution a priori opposée à celle des COVT qui sont quant à eux plus concentrés au point de référence. Cela peut cependant s'expliquer : la température moyenne au point de référence est suffisante pour oxyder les HAP en présence ou pour permettre le déroulement d'un craquage des liaisons faibles. En revanche, les radicaux libres ne sont que trop peu concentrés pour produire de nouveaux HAP (c'est pourquoi des COVT sont produits). Ainsi, la quantité de HAP peut diminuer entre ces deux points de prélèvement. L'oxydation de ces HAP est sans doute incomplète. Or, la dégradation de HAP produit soit d'autres HAP soit des COVT. Ainsi, ce phénomène de diminution de la concentration des HAP16 pourrait aussi expliquer l'augmentation de la concentration en COVT. Une autre explication de ce phénomène pourrait être la condensation des HAP. Mais, après observation des résultats, aucune tendance ne s'établit entre la température d'ébullition de chacun des HAP et leur perte de concentration respective. La dégradation des HAP est donc l'hypothèse la plus vraisemblable.

La répartition de ces HAP est aussi bien caractéristique à chaque point de prélèvement. Le Tableau 4-10 présente ces répartitions et la Figure 4-7 présente sous la forme de diagramme comparatif les proportions des HAP majeurs sur les HAP16 aux deux points de prélèvement.

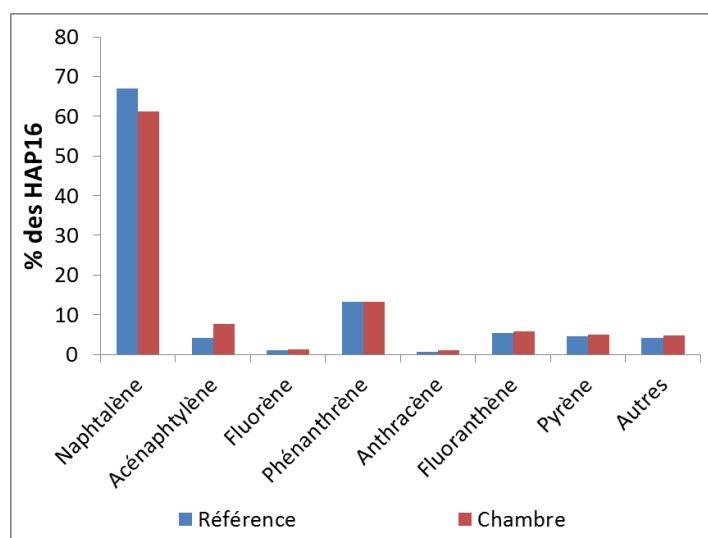


Figure 4-7 : Comparaison entre les répartitions en pourcentage de chaque HAP sur les HAP16 présents aux deux points de mesure Chambre et Référence

Quel que soit le point de prélèvement, les espèces majoritaires sont :

- Naphthalène ;
- Phénanthrène ;
- Acénaphthylène ;
- Fluoranthène ;
- Pyrène.

En revanche, l'Acénaphthène et le Dibenzo (a,h) Anthracène ne sont que très faiblement produits par la combustion.

Les résultats d'analyses sont répétables, et les écarts sont fixes. Cela implique que la composition des HAP dépend du point de prélèvement et pas de la quantité émise. Ce point est important pour la compréhension des émissions de particules.

Ainsi, la proportion d'Acénaphthylène diminue en moyenne de 5% entre la chambre de combustion et le point de référence quand la concentration en Naphtalène augmente elle de 5%. En termes de quantités totales émises, le Naphtalène connaît une augmentation de l'ordre de 33% quand l'Acénaphthylène diminue de 61%. Ce phénomène pourrait provenir de deux raisons :

- l'Acénaphthylène est particulièrement dégradé dans ces conditions ;
- l'Acénaphthylène produit du Naphtalène en se dégradant.

Différentes réactions chimiques sont effectivement possibles dans ce milieu et pourraient dégrader l'Acénaphthylène ($C_{12}H_8$) et produire du Naphtalène ($C_{10}H_8$), comme un craquage partiel, une addition d'eau après une première dégradation, ... Les proportions des autres HAP ne varient pas. Cela permet de valider que les HAP ne se recombinent pas en HAP plus gros, mais qu'au contraire, les chaînes longues sont dégradées en chaînes plus courtes (Acénaphthylène en Naphtalène par exemple).

		Naphtalène (%)	Acénaphthylène (%)	Acénaphthène (%)	Fluorène (%)	Phénanthrène (%)	Anthracène (%)	Fluoranthène (%)	Pyrène (%)	Benzo (a) anthracène (%)	Chrysène (%)	Benzo (b) fluoranthène (%)	Benzo (k) fluoranthène (%)	Benzo (a) pyrène (%)	Dibenzo (a,h) anthracène (%)	Benzo (ghi) pérylène (%)	Indéno (123, cd) pyrène (%)	
ESSAI 1	Référence	69.2	2.2	0.0	0.7	14.0	0.3	5.8	4.4	0.5	0.9	0.8	0.3	0.2	0.0	0.4	0.3	
	Chambre	56.0	10.7	0.0	1.3	13.5	1.3	6.3	5.4	0.8	1.0	1.0	0.4	0.7	0.0	0.8	0.7	
ESSAI 2	Référence	64.1	4.3	0.0	1.2	12.9	0.7	5.8	5.1	0.8	1.1	1.2	0.5	0.6	0.0	0.9	0.7	
	Chambre	60.6	6.5	0.0	1.4	13.8	1.1	6.1	5.4	0.8	1.0	1.0	0.4	0.6	0.0	0.7	0.6	
ESSAI 3	Référence	63.4	6.2	0.0	1.3	13.4	1.0	5.5	5.4	0.6	0.8	0.7	0.3	0.4	0.0	0.6	0.4	
	Chambre	62.6	7.1	0.0	1.2	12.9	1.0	5.5	4.9	0.7	0.9	0.9	0.3	0.6	0.0	0.6	0.6	
ESSAI 4	Référence	71.2	3.5	0.0	0.8	12.5	0.7	4.5	3.6	0.3	0.6	0.7	0.3	0.3	0.0	0.5	0.4	
	Chambre	65.5	6.7	0.0	1.2	12.5	1.0	5.0	4.1	0.6	0.8	0.8	0.3	0.5	0.0	0.6	0.5	
Global	Moyenne de Référence	67.0	4.1	0.0	1.0	13.2	0.7	5.4	4.6	0.6	0.8	0.8	0.3	0.4	0.0	0.6	0.5	
	Ecart-Type de Référence	3.8	1.7	0.0	0.3	0.6	0.3	0.6	0.8	0.2	0.2	0.2	0.1	0.2	0.0	0.2	0.2	
	Moyenne de Chambre	61.2	7.8	0.0	1.3	13.2	1.1	5.7	5.0	0.7	0.9	0.9	0.4	0.6	0.0	0.7	0.6	
	Ecart-Type de Chambre	4.0	2.0	0.0	0.1	0.6	0.1	0.6	0.6	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.0	0.1	0.1	
	Moyenne des écarts (Chambre - Référence)	-5.8	3.7	0.0	0.3	0.0	0.4	0.3	0.3	0.3	0.1	0.1	0.1	0.0	0.2	0.0	0.1	0.1
	(1 - (Référence / Chambre) *100	-9%	48%	-20%	23%	0%	40%	5%	7%	18%	11%	9%	9%	35%	1%	13%	21%	

Tableau 4-10 : Répartition en pourcentage des HAP16 aux deux points de mesure Chambre et Référence

4.3.3 La microscopie (microanalyse X et imagerie)

4.3.3.1 Microanalyse X des particules

La microanalyse X a permis de mettre en évidence de nouveaux phénomènes. Le Tableau 4-11 présente l'intégralité des résultats obtenus. Les résultats sont relativement variables, mais certaines tendances claires ressortent tout de même :

- la fréquence de présence d'éléments autres que le Carbone et l'Oxygène est toujours plus élevée dans la chambre qu'au point de référence (environ 2% en nombre) ;
- la fréquence de présence de Silice est toujours plus importante dans la chambre (environ 2.5% en nombre) ;
- les particules contenant de l'Aluminium ou de la Silice en ont toujours une teneur comprise entre 0,3 et 0,4% en masse ;
- les particules contenant du Soufre en ont toujours une teneur comprise entre 0,3 et 0,5% en masse.

Finalement, des particules riches en éléments (autres que C et O) sont formées dans la chambre de combustion, là où la concentration de ces divers éléments est élevée. Ensuite, ces éléments vont être oxydés et donc réémis par les particules. Cela explique le fait que les particules initiales dans la chambre de combustion sont plus chargées en éléments (autres que C et O) que celles du point de référence, mais aussi que la concentration de SO_x, par exemple, est plus élevée au point de référence.

Les concentrations moyennes des éléments sont impactées par l'étape de métallisation. Pourtant, ces variations sont légères. Cela implique que les particules contenant de la Silice, de l'Aluminium ou du Soufre en contiennent toujours dans des proportions identiques.

D'autres tendances, vraies pour trois essais sur quatre, apparaissent aussi, notamment :

- le coefficient directeur et l'ordonnée à l'origine de la droite de corrélation $O\% = aC\% + b$ sont plus élevés (en valeur absolue) dans la chambre qu'au point de référence ;
- la fréquence de présence de Zirconium dans les particules est plus importante de 3% en nombre dans la chambre ;
- la teneur moyenne en Carbone mesurée par la microanalyse X est légèrement plus élevée au point de référence que dans la chambre.

Cette dernière tendance est étonnante. En effet, elle est contradictoire avec les résultats de l'analyseur OC/EC. Mais, il a été démontré plus tôt que finalement, la microanalyse X ne mesure le taux de Carbone moyen que des particules carbonées. Ainsi, ce résultat n'est pas incohérent et apporte simplement une information supplémentaire : les particules carbonées au point de référence sont globalement plus concentrées en Carbone que celles de la chambre. Exprimé de cette manière, ce résultat devient cohérent. De plus, cette supposition est compatible avec l'hypothèse précédente, à savoir : les particules s'appauvrissent en éléments autres que C et O entre la chambre et le point de référence. L'appauvrissement en ces éléments tous plus lourds que le Carbone va conduire à l'augmentation de la teneur massique en Carbone.

		O = a*C + b			Généralités		Al		Si		S		Zr	
		a	b	r²	C moyen (%en masse)	Fréquence d'éléments autres que C et O (%en nombre)	Fréquence (%en nombre)	Composition moyenne (%en masse)	Fréquence (%en nombre)	Composition moyenne (%en masse)	Fréquence (%en nombre)	Composition moyenne (%en masse)	Fréquence (%en nombre)	Composition moyenne (%en masse)
ESSAI 1	Référence	-0.59	51.13	0.86	79.5	4.3	0.5	0.3	0.7	0.3	1.7	0.5	0.9	1.0
	Chambre	-0.73	67.20	0.61	79.3	6.3	0.1	0.3	2.2	0.5	1.3	0.4	4.4	1.5
ESSAI 2	Référence	-0.62	63.16	0.47	79.7	5.1	0.4	0.3	0.0	0.0	1.2	0.3	4.4	1.1
	Chambre	-0.69	66.36	0.56	77.4	6.9	0.3	0.4	3.9	0.4	0.4	0.4	0.6	1.5
ESSAI 3	Référence	-0.77	74.35	0.65	79.3	4.6	0.4	0.3	0.8	0.3	1.4	0.3	2.9	1.1
	Chambre	-0.51	54.85	0.46	79.6	6.1	0.1	0.3	3.8	0.3	1.8	0.3	5.7	0.8
ESSAI 4	Référence	-0.59	58.15	0.45	78.3	4.5	0.8	0.4	0.9	0.4	1.5	0.4	0.8	1.0
	Chambre	-0.72	70.19	0.61	78.0	6.8	0.2	0.3	2.2	0.4	1.4	0.3	4.4	1.3
Global	Moyenne de Référence	-0.64	61.70	0.61	79.2	4.6	0.5	0.3	0.6	0.3	1.5	0.4	2.2	1.1
	Ecart-Type de Référence	0.09	9.77	0.19	0.6	0.3	0.2	0.0	0.4	0.2	0.2	0.1	1.7	0.1
	Moyenne de Chambre	-0.66	64.65	0.56	78.5	6.5	0.2	0.3	3.0	0.4	1.2	0.3	3.8	1.3
	Ecart-Type de Chambre	0.10	6.74	0.07	1.0	0.4	0.1	0.0	1.0	0.1	0.6	0.1	2.2	0.3
	Moyenne des écarts (Chambre - Référence)	-0.02	2.95	-0.05	-0.7	1.9	-0.3	0.0	2.4	0.1	-0.2	0.0	1.5	0.2
	(1 - (Référence / Chambre) *100	3%	5%	-9%	-1%	29%	-208%	5%	81%	34%	-19%	-14%	41%	18%

Tableau 4-11 : Bilan des résultats de la microanalyse X aux deux points de mesure Chambre et Référence

L'hypothèse concernant les particules analysées par la microanalyse X peut être vérifiée une fois de plus avec ces résultats. En effet, la fréquence de présence d'éléments autres que le Carbone et l'Oxygène représenterait la réactivité potentielle des particules, c'est-à-dire la capacité des particules à réagir avec les différents éléments du milieu. Or, si le milieu ne contient que peu de particules, la statistique de rencontre entre ces dernières et les éléments est faible. La Figure 4-8 (a) présente donc l'évolution de cette fréquence de présence en fonction des émissions TSP associées. La tendance est claire. Lorsque peu de particules sont émises, la fréquence de présence d'éléments autres que le Carbone et l'Oxygène diminue.

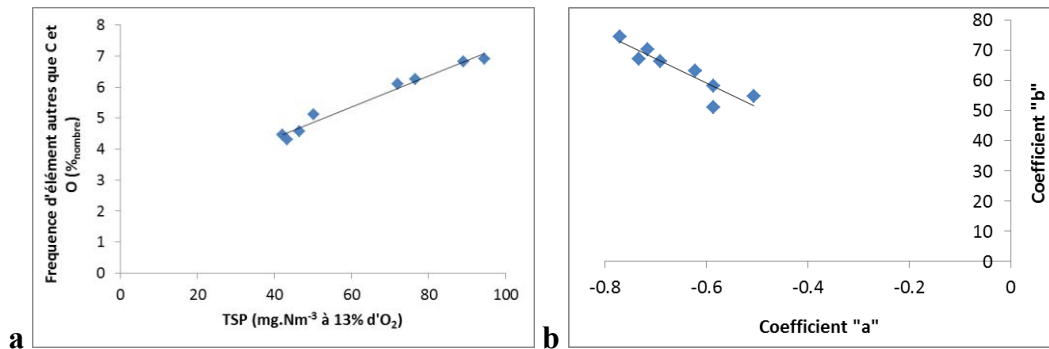


Figure 4-8 : Evolution de la fréquence de présence d'autres éléments que C et O en fonction des émissions TSP (a) ; Evolution de l'ordonnée à l'origine en fonction du coefficient directeur de la droite de corrélation de O en fonction de C (b)

Le coefficient directeur et l'ordonnée à l'origine de la droite de corrélation $O\% = a.C\% + b$ semblent évoluer de manière liée (Figure 4-8, b). Ce phénomène est sans doute dû au fait que la microanalyse X réalise dans ce cas d'expérience un suivi de la composition des particules. Les particules évoluent, mais ne peuvent pas changer drastiquement de configuration et donc bousculer leur équilibre. Ainsi, leur composition globale (en C et en O) suit une tendance claire.

4.3.3.2 Imagerie des particules

L'imagerie a permis de définir trois familles de particules dans la chambre de combustion :

- des morceaux de bois dégradé thermiquement (Figure 4-9, a) ;
- des agglomérats de nanoparticules (Figure 4-9, b) ;
- des nanoparticules (Figure 4-9, c).

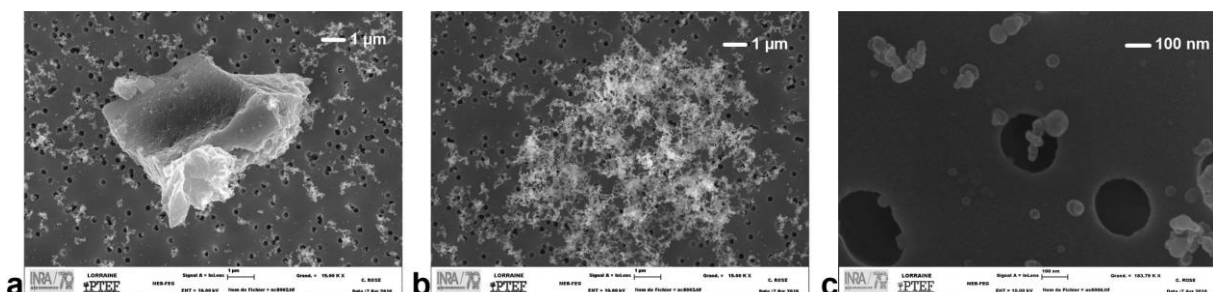


Figure 4-9 : Clichés de morceaux de bois dégradé thermiquement (a, x19000), d'agglomérats de nanoparticules (b, x 19000) et de nanoparticules peu/pas agglomérées (c, x183790) prélevés durant la combustion homogène dans la chambre de combustion

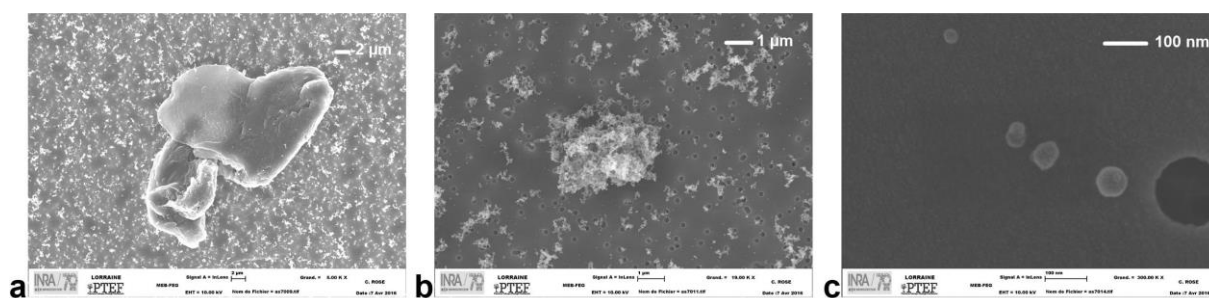


Figure 4-10 : Clichés de morceaux de charbon (a, x5000), d’agglomérats de nanoparticules (b, x19000) et de nanoparticules non-agglomérées (c, x300000) prélevés durant la combustion homogène au point de référence

Ces trois familles classiques sont visualisées sur la quasi-totalité des filtres collectés dans le cadre de cette thèse. En revanche, le point particulièrement intéressant concerne la taille et la fréquence de ces familles. Par exemple, dans la chambre, les particules de bois dégradé thermiquement sont très présentes alors qu’aucuns morceaux de charbon n’ont été visualisés, contrairement au point de référence (Figure 4-10, a). Cela signifie que les particules de bois plus ou moins dégradé sont émises, mais surtout, que leur dégradation continue dans le conduit, les transformant en morceaux de charbon. Ceci est tout à fait cohérent vis-à-vis des conclusions précédemment obtenues par l’observation des résultats des émissions gazeuses et particulaires.

Les agglomérats, quant à eux sont très rares dans la chambre. De plus, leur densité paraît très faible. En effet, les nanoparticules agglomérées forment des brins, et ces brins forment un agglomérat. Pour une taille donnée, le nombre de brins, et donc de nanoparticules peut énormément varier. Les agglomérats de la chambre de combustion, bien que parfois relativement grands (plusieurs micromètres) sont toujours très peu denses. Finalement, leur taille n’est pas significative puisque l’agglomérat peut se déformer très facilement, comme par exemple « s’étaler » sur le filtre. Les agglomérats au point de référence sont déjà beaucoup plus denses (Figure 4-10, b). Cela signifie que l’agglomération se poursuit, mais que celle-ci impacte plus la densité que la taille de ces agglomérats. Ce phénomène permet de mieux comprendre pourquoi les fractions $PM_{1-2.5}$ et $PM_{2.5-10}$ ne sont pas davantage représentées au point de référence qu’au point de prélèvement dans la chambre de combustion.

Les nanoparticules sont clairement la famille la plus représentée dans la chambre de combustion. Ce qui est intéressant, c’est que ces nanoparticules sont extrêmement peu agglomérées et sont souvent seules. Or, bien qu’au point de référence quelques nanoparticules seules peuvent être observées (Figure 4-10, c), la majorité de ces nanoparticules sont au moins légèrement agglomérées, formant des petits brins de quelques nanoparticules à une vingtaine en moyenne. Ceci permet d’expliquer les résultats obtenus via l’ELPI et confirme bien que l’agglomération est le principal facteur de la croissance de la taille des particules. En effet, une nanoparticule mesure en moyenne 40 nm, et donc un brin contenant entre 10 et 20 nanoparticules mesurera entre 400 et 800 nm. La fraction $PM_{0.1}$ diminuera donc au profit de la fraction $PM_{0.1-1}$.

4.3.4 Conclusion

Ainsi, les particules de la chambre de combustion sont de trois types principaux :

- morceaux de bois dégradé thermiquement ;
- agglomérats de nanoparticules peu denses ;
- nanoparticules non agglomérées.

Ces particules sont relativement chargées en éléments de type Silice, Zirconium et Soufre. Entre la chambre de combustion et le point de référence, ces particules vont évoluer. D'une part, la température restant élevée et le taux de Dioxygène étant suffisant, des réactions d'oxydation vont continuer de se dérouler. Ainsi, les particules de bois dégradé vont être transformées en charbon. D'autre part, les particules contenant des éléments de type Silice, Zirconium et Soufre vont aussi être oxydées. Ainsi, la proportion de ces éléments va diminuer, pendant que par exemple, dans le même temps, la concentration en SO_x va augmenter. Les HAP ne vont pas pouvoir condenser puisque la température est élevée et vont être oxydés partiellement. Leur concentration va donc diminuer entre la chambre de combustion et le point de référence, et les proportions de HAP légers, comme le Naphtalène, vont augmenter. En parallèle, la concentration en COVT augmente elle aussi. Elle est principalement due à l'oxydation des morceaux de bois et à l'oxydation partielle des HAP. Les nanoparticules vont s'agglomérer petit à petit, formant des brins d'une dizaine de nanoparticules. Cette agglomération va donc changer la répartition granulométrique des particules en diminuant la fraction PM_{0,1} au profit de la fraction PM_{0,1-1}. Les agglomérats vont aussi subir de nouvelles agglomérations et vont donc se densifier.

4.4 Les émissions avant l'évacuation dans l'air ambiant

La seconde étape de la caractérisation de l'évolution des particules dans le conduit de fumées consiste à définir les caractéristiques physico-chimiques des particules avant la sortie de cheminée. Les résultats présentés dans cette partie sont issus de la série d'essais en mode 2.

4.4.1 Les émissions gazeuses

Le suivi des émissions de SO_x n'a pas pu être réalisé sur cette série d'essais à cause d'une panne d'un analyseur de gaz. Ce polluant est malgré tout peu problématique pour le chauffage au bois, mais apporte des compléments d'explications à nos analyses. En revanche, tous les autres polluants ont été mesurés. Les émissions gazeuses aux deux points de mesures (référence et sortie) sont présentées dans le Tableau 4-12.

Répétition	Position	O ₂ (%)	CO ₂ (%)	CO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	NO (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	COVT (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂ Eq. CH ₄)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	Tfumée (°C)
1	Référence	15.5	5.7	2447	87	201	82	332
	Sortie	15.5	5.7	1929	21	213	77	244
2	Référence	14.7	5.9	2183	74	149	72	356
	Sortie	15.0	5.6	2046	29	132	60	242
3	Référence	14.0	6.2	3283	66	160	66	361
	Sortie	14.5	5.7	3110	32	169	72	257
4	Référence	14.4	6.4	2245	76	77	25	357
	Sortie	14.8	6.0	1952	32	63	21	248
Global	Moyenne de Référence	14.6	6.0	2539	76	147	61	351
	Ecart-Type de Référence	0.6	0.3	509	9	52	25	13
	Moyenne de Sortie	14.9	5.7	2259	29	145	58	248
	Ecart-Type de Sortie	0.4	0.2	569	5	63	25	7
	Moyenne des écarts (Sortie - Référence)	0.3	0	-280	-47	-2	-4	-104
	(1 - (Référence / Sortie) *100	2%	-6%	-12%	-165%	-1%	-6%	-42%

Tableau 4-12 : Bilan des émissions gazeuses aux points de mesure Référence et Sortie

Les résultats des émissions gazeuses aux deux points paraissent répétables et plutôt stables, malgré des variations parfois élevées des émissions de COVT et de CH₄. En revanche, l'évolution des émissions entre les deux points de mesures est répétable. Le premier résultat à observer est relatif à l'augmentation du taux de Dioxygène de 0,3% en moyenne entre le point de référence et la sortie. Cette variation peut être due à différentes raisons. D'une part, les prélèvements à la sortie étaient réalisés dans le conduit 30 cm avant l'évacuation des fumées dans l'air ambiant. Les essais se sont déroulés durant des journées pendant lesquelles un vent conséquent soufflait. Il est donc probable que lorsque des bourrasques importantes soufflaient, de l'air ambiant rentrait dans le conduit de fumées. D'autres part, des fuites dans le conduit de fumées, plus précisément aux différents points de prélèvement pourraient aussi expliquer cette variation. L'écart est cependant très faible. De plus, les émissions étant toutes corrigées à 13% d'O₂, l'effet d'une dilution possible est pris en compte dans l'analyse des résultats et ne les influence pas.

La température diminue de 100°C en moyenne entre les deux points de prélèvements. Les fumées libérées dans l'air ambiant atteignent donc une température moyenne de 250°C contre 350°C au point de référence. Environ cinq mètres de conduit isolé et deux coudes à 90° séparent ces deux points de prélèvements. La perte de température peut donc être estimée à environ 20°C.m⁻¹ sur ce tronçon de conduit. La Figure 4-11 présente l'évolution de la température en fonction du taux de Dioxygène aux deux points. Chaque point de prélèvement suit donc sa propre loi entre température et teneur en Dioxygène.

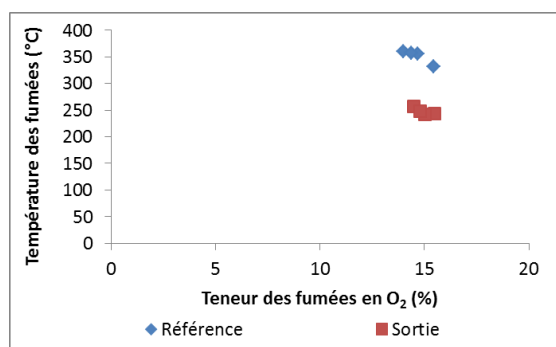


Figure 4-11 : Evolution de la teneur en O₂ en fonction de la température des fumées aux deux points de mesures Référence et Sortie

La concentration en CO varie légèrement elle aussi. En effet, à la sortie, la concentration en CO était plus faible de 280 mg.Nm⁻³ corrigé à 13% d'O₂. La température au point de référence est de 350°C et permet une oxydation du CO. Comme cette température diminue rapidement, l'effluent gazeux se retrouve rapidement dans des conditions ne permettant plus la réaction d'oxydation. C'est la raison pour laquelle seule une faible quantité de CO est oxydée.

La concentration en COVT et en CH₄ ne varie pas de manière significative entre les deux points. Cela est cohérent puisque, comme décrit dans le 1.2.2.2, l'oxydation des COV ne se déroule qu'à des températures supérieures à 450°C. Le ratio CH₄/COVT est donc constant (aux alentours de 40%) entre ces deux points de prélèvements. La Figure 4-12 présente la courbe d'évolution de la concentration des fumées en CH₄ en fonction de la concentration en COVT. La droite de corrélation présente un coefficient de corrélation très élevé, prouvant la stabilité de la proportion de CH₄/COVT dans les fumées.

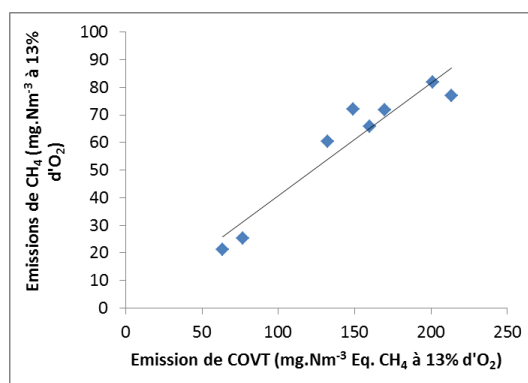


Figure 4-12 : Evolution de la concentration des fumées en CH₄ en fonction de la concentration en COVT

4.4.2 Les émissions particulières

Le Tableau 4-13 récapitule l'intégralité des résultats concernant les concentrations en TSP et leur composition en OC/EC. Les essais sont tous très répétables.

Répétition	Position	TSP (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC/TC (%)	TC/TSP (%)	OC/TSP (%)	EC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)	OC (mg.Nm ⁻³ à 13% O ₂)
1	Référence	108	11.8	53.4	6.3	51	7
	Sortie	73	18.0	41.9	7.6	25	6
2	Référence	91	14.0	58.2	8.2	45	7
	Sortie	58	13.0	75.6	9.8	38	6
3	Référence	98	12.6	51.4	6.5	44	6
	Sortie	71	5.7	71.6	4.1	48	3
4	Référence	96	16.5	53.0	8.7	43	8
	Sortie	34	3.6	44.0	1.6	14	1
Global	Moyenne de Référence	98	13.7	54.0	7.4	46	7
	Ecart-Type de Référence	7	2.1	2.9	1.2	4	1
	Moyenne de Sortie	59	10.1	58.2	5.8	31	4
	Ecart-Type de Sortie	18	6.7	17.8	3.6	15	2
	Moyenne des écarts (Sortie - Référence)	-39	-3.6	4.2	-1.7	-14	-4
	(1 - (Référence / Sortie) *100	-66%	-36%	7%	-29%	-45%	-97%

Tableau 4-13 : Bilan des émissions solides aux points de mesure Référence et Sortie

Contre toute attente, la concentration en TSP des fumées diminuerait considérablement (40%) entre le point de référence et la sortie. Ce phénomène répétable ne peut pas être lié à des réactions d'oxydation (niveau de température trop faible). En revanche, cela pourrait provenir de différents phénomènes, comme :

- dépôt de particules sur les parois du conduit ;
- dépôt de particules lié à deux coudes à 90° provoquant une impaction ;
- volatilisation de l'OC présent dans les particules.

Le dépôt des particules sur les parois du conduit est un phénomène connu. En effet, la nécessité de ramoner les conduits de fumées de manière régulière en découle directement. De plus, la concentration en EC à la sortie est plus faible qu'au point de référence (environ 30% plus faible). Cela prouve que du carbone s'est déposé. Les coudes présents sur la plateforme expérimentale augmentent sans doute cet effet. La troisième hypothèse est aussi vérifiée puisque la concentration en OC à la sortie est 50% plus faible qu'au point de référence.

Le dernier argument démontrant que le dépôt permet d'expliquer ces diminutions concerne le fait que la concentration en TSP ne paraît pas influencer spécialement sur les concentrations en EC et OC au point de référence contrairement à la sortie (Figure 4-13)

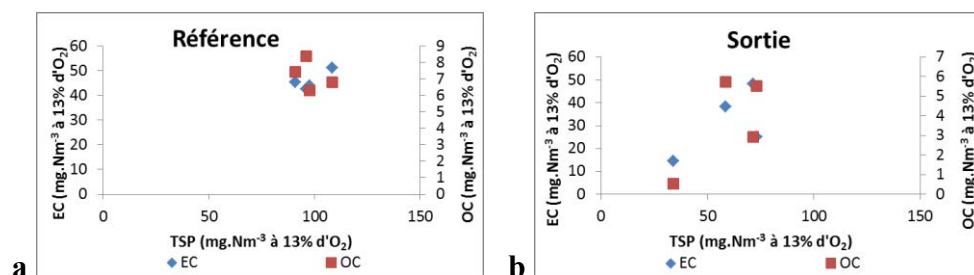


Figure 4-13 : Evolution de la concentration en EC et en OC en fonction de la concentration en TSP au point de référence (a) et en sortie (b)

Ainsi, dans un premier temps, au point de référence, les quantités d'EC et d'OC produites restent équivalentes, et donc, non dépendantes des envolées de cendres. Dans un deuxième temps, un dépôt des particules s'effectue entre le point de référence et la sortie. La fraction carbonée des TSP qui se déposent contient du OC et de l'EC. Pour rappel, la concentration en TSP est 40% plus faible à la sortie. Ces 40% de TSP qui se sont déposés contenaient de l'OC et de l'EC, ce qui explique la diminution respective de ces deux polluants de 50% (probablement 40% de dépôt et 10% de dévolatilisation) et de 30%.

Si la concentration en masse de particules est plus faible à la sortie qu'au point de référence, on ne peut pas conclure définitivement quant à la concentration en nombre. Le Tableau 4-14 présente les résultats obtenus via l'ELPI aux deux points de prélèvements.

		Nombre PM<10µm	PM 0.1 (%nombre)	PM 0.1-1.0 (%nombre)	PM 1.0-2.5 (%nombre)	PM 2.5-10 (%nombre)
Global	Moyenne de Référence	8.4E+14	76.0	23.9	0.02	0.01
	Ecart-Type de Référence	8.8E+13	4.1	4.1	0.00	0.00
	Moyenne de Sortie	8.0E+14	63.5	36.5	0.04	0.01
	Ecart-Type de Sortie	9.1E+13	0.2	0.2	0.01	0.00
	Moyenne des écarts (Sortie- Référence)	-4.3E+13	-12.6	12.6	0.02	0.01
	(1 - (Référence / Sortie) *100	-5%	-20%	34%	45%	46%

Tableau 4-14 : Bilan de la concentration en nombre des particules et de leur répartition granulométrique aux deux points de mesure Référence et Sortie

Les particules semblent moins concentrées en nombre à la sortie (5%). Cette faible diminution est le résultat des phénomènes d'agglomérations combinés aux phénomènes de dépôts. En revanche, ce résultat confirme qu'en sortie, les COV et les HAP ne se sont pas encore fortement condensés, auxquels cas la concentration en nombre en sortie aurait été plus importante qu'au point de référence. Le phénomène d'agglomération est bien visible car il impacte considérablement la répartition granulométrique des particules : les PM_{0,1} diminuent de 12,5% à la sortie quand les PM_{0,1-1} augmentent de 12,5% et que les PM_{1-2,5} sont doublées.

La Figure 4-14 présente les concentrations en HAP16 à chaque point de prélèvement pour l'intégralité des essais.

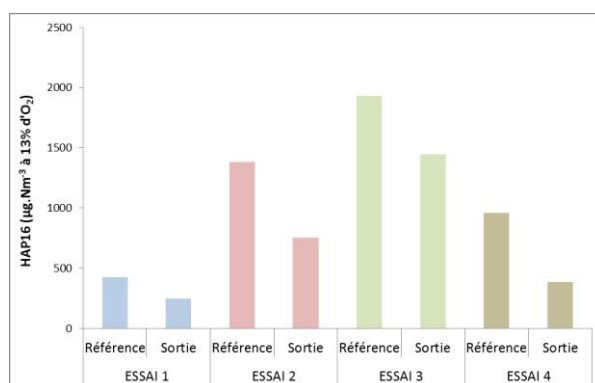


Figure 4-14 : Concentration des HAP16 aux deux points de mesure Référence et Sortie

Les HAP16 étaient moins concentrés à la sortie qu'au point de référence, avec une perte d'environ 40% entre ces deux points. Cette diminution conséquente ne semble pas être le fruit

d'une oxydation car les températures des fumées sont de 360°C au maximum au point de référence. Cette diminution est donc probablement due à un dépôt sur les parois du conduit. Cette hypothèse peut être vérifiée. En effet, les points d'ébullition des HAP sont connus. Pour vérifier ceci, le Tableau 4-15 présente la concentration massique de tous les HAP analysés aux deux points de mesure. Très clairement, les pertes ne sont pas constantes selon les espèces chimiques. Pour confirmer le phénomène, la perte moyenne en fonction du point d'ébullition de l'espèce est tracée en Figure 4-15.

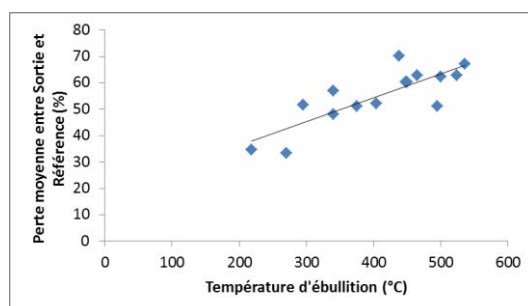


Figure 4-15 : Perte moyenne entre la sortie et le point de référence pour chaque HAP analysé en fonction de son point d'ébullition

Cette figure prouve clairement que la perte en masse de chaque espèce est directement liée au point d'ébullition de cette espèce, et donc que des HAP condensent sur les parois du conduit de fumées, d'où le phénomène de goudronnage des installations. Ainsi, les proportions de chaque HAP sont modifiées entre les deux points. La Figure 4-16 présente cette répartition aux deux points.

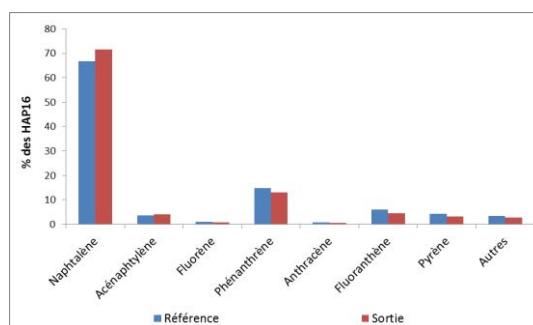


Figure 4-16 : Comparaison entre les répartitions en pourcentage de chaque HAP sur les HAP16 présents aux deux points de mesure Référence et Sortie

Ainsi, le Naphtalène est plus représenté de 5% à la sortie. Le Fluorène et l'Anthracène restent dans les mêmes proportions. Tous les autres HAP sont légèrement plus représentés au point de référence qu'à la sortie. Cette augmentation en proportion en Naphtalène, dont le point d'ébullition est le plus bas, est donc quasi-unique et valide ainsi l'argumentaire précédent.

		Naphtalène	Acénaphtylène	Acénaphtène	Fluorène	Phénanthrène	Anthracène	Fluoranthène	Pyrène	Benzo (a) anthracène	Chrysène	Benzo (b) fluoranthène	Benzo (k) fluoranthène	Benzo (a) pyrène	Dibenzo (a,h) anthracène	Benzo (ghi) pérylène	Indéno (123, cd) pyrène
ESSAI 1	Référence	306	12	0	2	59	2	22	14	1	3	2	0	0	0	1	1
	Sortie	179	6	0	1	36	1	10	6	1	2	2	0	0	0	2	1
ESSAI 2	Référence	872	49	0	16	218	10	87	67	9	12	12	5	6	1	8	8
	Sortie	519	32	0	7	101	5	38	28	3	5	5	2	3	0	3	3
ESSAI 3	Référence	1296	46	0	17	286	11	121	82	11	17	16	6	5	0	8	9
	Sortie	1039	47	0	10	182	6	80	55	3	8	6	2	2	0	2	2
ESSAI 4	Référence	618	54	0	9	137	9	58	41	5	9	8	3	3	0	4	4
	Sortie	282	23	0	3	46	2	13	9	1	2	2	1	1	0	1	1
Perte moyenne (%)		35	33	0	52	48	57	51	52	70	60	60	63	51	63	62	67

Toutes les valeurs de ce tableau sont exprimées en $\mu\text{g}\cdot\text{Nm}^{-3}$ corrigé à 13% d'O₂.

Tableau 4-15 : Concentration de chaque HAP aux deux points de mesure Référence et Sortie

4.4.3 La microscopie (microanalyse X et imagerie)

4.4.3.1 Microanalyse X des particules

L'intégralité des résultats obtenus par la microanalyse X est présentée dans le Tableau 4-16. Les résultats sont toujours relativement variables à cause de l'étape de métallisation des filtres, mais des tendances claires ressortent néanmoins :

- les coefficients directeurs et les ordonnées à l'origine des droites de corrélation de O en fonction de C sont toujours plus élevés en valeur absolue à la sortie qu'au point de référence ;
- la fréquence d'éléments autres que C et O est toujours plus importante au point de référence qu'à la sortie (2,4% plus élevée en moyenne) ;
- les fréquences de présence de l'Aluminium et du Zirconium sont toujours plus importantes au point de référence qu'à la sortie (respectivement 0,15 et 1,66% plus élevées en moyenne) ;
- les particules contenant de l'Aluminium en ont toujours une teneur comprise entre 0,25 et 0,36% en masse.

Le coefficient directeur et l'ordonnée à l'origine des droites de corrélation de O en fonction de C semblent à nouveau varier de manière conjointe comme en témoigne la Figure 4-17.

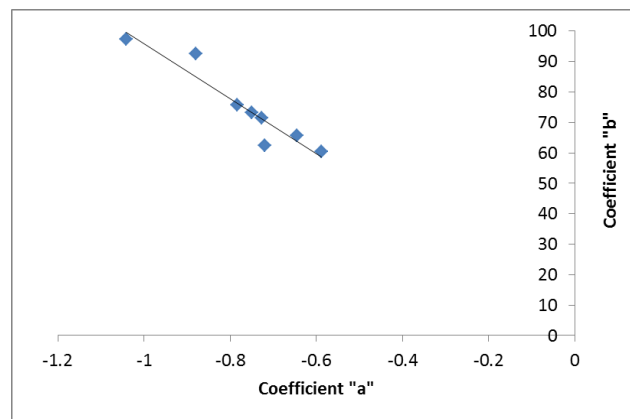


Figure 4-17 : Evolution de l'ordonnée à l'origine en fonction du coefficient directeur des droites de corrélation $O\% = aC\% + b$ des points de Référence et Sortie

Ce résultat paraît cohérent puisque les deux principales modifications subies par les particules sur ce tronçon seraient un phénomène d'agglomération combiné à un dépôt des particules et des COSV condensés sur les parois du conduit de fumées. Aucun de ces deux phénomènes ne peut modifier de manière significative la composition des particules.

La fréquence de présence d'éléments autres que C et O diminue significativement à la sortie. Faute d'analyse des SOx sur cette série d'essai, le lien ne peut être fait. Néanmoins, entre la chambre et le point de référence, la concentration en SOx évoluait de manière inverse à la concentration en NO. De plus, les concentrations de NO semblent suivre des évolutions similaires à la fréquence de présence d'éléments autres que C et O entre le point de référence et la sortie. La Figure 4-18 présente l'évolution de la concentration en NO en fonction de la fréquence de présence d'éléments autres que C et O.

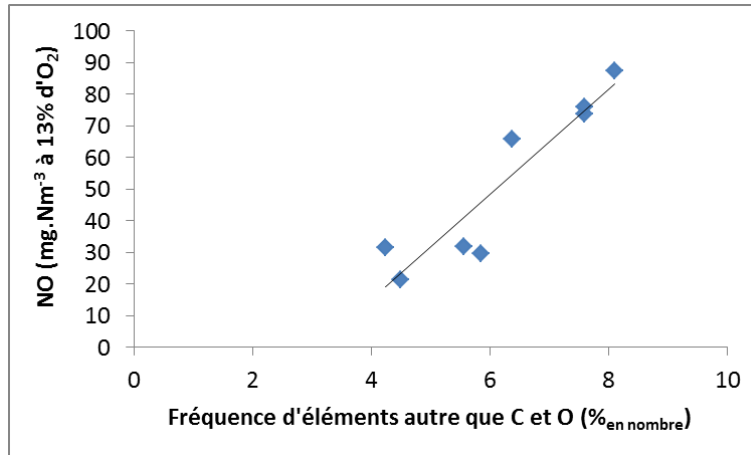


Figure 4-18 : Evolution des concentrations de NO en fonction des fréquences d'éléments autres que C et O

Ainsi, dans cette partie du tronçon, la concentration en NO suit les mêmes évolutions que la fréquence de présence d'éléments autres que C et O dans la composition chimique des particules.

Malgré la variabilité des résultats de la microanalyse X, d'autres tendances plus discrètes peuvent être observées :

- la Silice, bien que présente uniquement pour un seul essai, paraît suivre une évolution similaire à celle de l'Aluminium et du Zirconium ;
- la fréquence de présence en Soufre dans les particules ne semble pas être impactée par les modifications physico-chimiques que les particules subissent sur cette partie du tronçon ;
- la teneur en Carbone des particules ne semble pas non plus impactée.

Ce dernier point est cohérent et peut être comparé aux résultats obtenus via l'analyseur OC/EC. En effet, le ratio TC/TSP variait beaucoup entre le point de référence et la sortie, mais de manière irrégulière. Ainsi, aucune tendance nette ne pouvait être déterminée. Ici, malgré une fréquence de présence d'éléments autres que C et O variant de manière répétée, la teneur en Carbone reste plus ou moins stable. Cela signifie qu'une forte présence d'éléments autres que C et O n'induit pas une réduction de la teneur en Carbone. Ainsi, lorsque les éléments autres que C et O quittent la particule, ils sont remplacés par de l'Oxygène. Pour confirmer ce point, il suffit d'observer les variations de la teneur moyenne en O : celle-ci augmente entre le point de référence et la sortie.

		O = a*C + b			Généralités		Al (%_{en masse})		Si (%_{en masse})		S (%_{en masse})		Zr (%_{en masse})	
		a	b	r²	C moyen (%_{en masse})	Fréquence d'éléments autres que C et O (%_{en nombre})	Fréquence (%_{en nombre})	Composition moyenne (%_{en masse})	Fréquence (%_{en nombre})	Composition moyenne (%_{en masse})	Fréquence (%_{en nombre})	Composition moyenne (%_{en masse})	Fréquence (%_{en nombre})	Composition moyenne (%_{en masse})
ESSAI 1	Référence	-0.65	65.64	0.39	81.7	8.1	0.4	0.3	0.0	0.0	0.7	0.2	7.5	0.7
	Sortie	-0.73	71.39	0.55	81.6	4.5	0.2	0.3	0.0	0.0	1.2	0.3	4.0	1.0
ESSAI 2	Référence	-0.59	60.50	0.51	79.9	7.6	0.2	0.3	0.0	0.0	1.4	0.3	7.2	1.0
	Sortie	-1.04	97.28	0.84	81.0	5.9	0.2	0.3	0.0	0.0	1.2	0.2	5.3	1.0
ESSAI 3	Référence	-0.72	62.32	0.49	81.4	6.4	0.3	0.3	0.0	0.0	1.2	0.3	6.3	0.9
	Sortie	-0.88	92.47	0.69	81.0	4.2	0.2	0.3	0.0	0.0	1.1	0.6	5.3	1.0
ESSAI 4	Référence	-0.75	73.28	0.79	79.0	7.6	0.3	0.3	1.2	0.4	2.3	0.3	3.5	1.0
	Sortie	-0.78	75.77	0.62	78.1	5.6	0.1	0.4	0.4	0.4	2.8	0.7	3.3	1.1
Global	Moyenne de Référence	-0.68	65.43	0.55	80.5	7.4	0.3	0.3	0.3	0.1	1.4	0.3	6.2	0.9
	Ecart-Type de Référence	0.07	5.64	0.17	1.3	0.7	0.1	0.0	0.6	0.2	0.7	0.1	1.8	0.1
	Moyenne de Sortie	-0.86	84.23	0.67	80.4	5.0	0.2	0.3	0.1	0.1	1.6	0.4	4.5	1.1
	Ecart-Type de Sortie	0.14	12.58	0.13	1.5	0.8	0.1	0.0	0.2	0.2	0.8	0.2	1.0	0.0
	Moyenne des écarts (Sortie - Référence)	-0.18	18.80	0.13	-0.1	-2.4	-0.1	0.0	-0.2	0.0	0.2	0.2	-1.7	0.2
	(1 - (Référence / Sortie) *100	21%	22%	19%	0%	-47%	-85%	3%	-241%	0%	11%	41%	-37%	15%

Tableau 4-16 : Bilan des résultats de la microanalyse X aux deux points de mesure Référence et Sortie

4.4.3.2 Imagerie des particules

L'imagerie a permis de déterminer trois familles majoritaires à la sortie du conduit de fumées :

- des agglomérats importants de nanoparticules (Figure 4-19, a) ;
- des nanoparticules peu ou pas agglomérées (Figure 4-19, a, b et c) ;
- des morceaux de charbon (Figure 4-19, c).

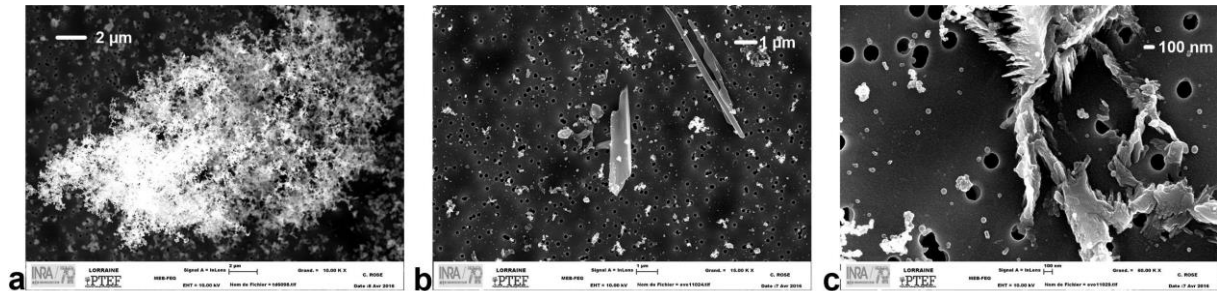


Figure 4-19 : Clichés d'agglomérats de nanoparticules (a, x12000) et de morceaux de charbon (b, x15000 ; c, x60000) prélevés durant la combustion homogène à la sortie de cheminée

Ainsi, aucun morceau de bois dégradé n'a été visualisé à la sortie, contrairement au point de référence (Figure 4-20, b). Cela signifie que les morceaux de bois se sont carbonisés et/ou déposés dans le conduit. D'après les résultats précédents, la carbonisation est sans doute le phénomène majoritaire. Les morceaux de charbon paraissent très purs, avec une structure bien organisée. Ces morceaux de charbon ont deux origines :

- morceaux de charbon « classique » : ils auraient subi durant cinq mètres les effets de la température (volatilisation de l'OC et de l'eau, s'ils en contenaient encore) qui les a « purifiés », leur procurant une structure proche de celle du graphite, contrairement à ceux du point de référence (Figure 4-20, a) ;
- morceaux de charbon décollés du conduit : Ces charbons ont un temps de séjour très élevés dans le conduit, et ont donc subi des cycles de montée en température. Ces cycles auraient permis d'acquiescer cette structure.

La réalité est certainement un mix de ces deux phénomènes. En revanche, il est possible d'associer le cliché 'b' de la Figure 4-19 à un charbon « classique » et le 'c' à un décollage de particules. En effet, la structure du cliché 'c' est vraiment très particulière et composée de nombreuses arêtes, prouvant une cristallisation plus importante.

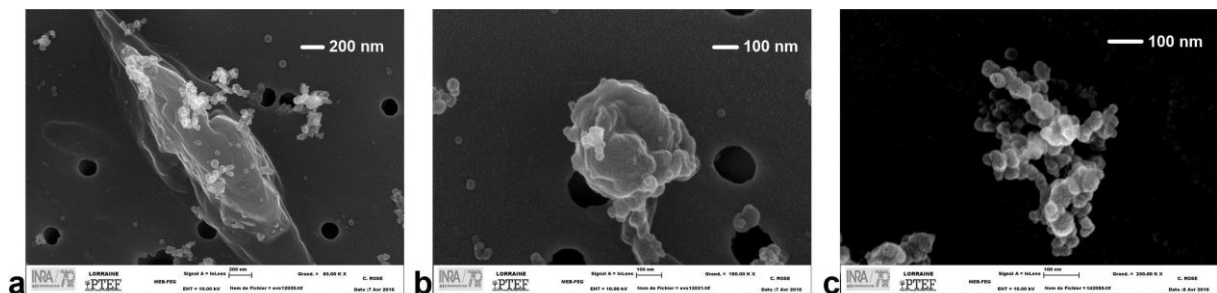


Figure 4-20 : Clichés de morceaux de charbon (a, x80000), de bois thermiquement dégradé (b, x18000) et d'agglomérats de nanoparticules (c, x180000) prélevés durant la combustion homogène au point de référence

En ce qui concerne les agglomérats de nanoparticules, le phénomène décrit en 4.3.3.2 est de nouveau présent. Ainsi, les agglomérats se densifient et grossissent entre le point de référence et la sortie. Les nanoparticules non-agglomérées deviennent rares, alors que les brins avec une vingtaine de nanoparticules deviennent majoritaires. Pour les agglomérats importants, le nombre de brins est très important. Au point de vue de la taille, ces agglomérats denses peuvent atteindre 4 μm de diamètre. Ce phénomène explique une fois de plus le déplacement de la fraction granulométrique entre le point de référence et la sortie.

4.4.4 Conclusion

Les particules au point de prélèvement précédant l'évacuation des fumées dans l'air ambiant sont de trois types :

- morceaux de charbon avec une structure légèrement ou très organisée ;
- agglomérats importants de nanoparticules ;
- nanoparticules non agglomérées.

Ces particules sont très peu chargées en éléments autres que C et O. Entre le point de référence et la sortie, les caractéristiques de ces particules ont évolué. En premier lieu, la température permet encore la volatilisation du OC dans les particules solides et de l'eau s'il y en avait, ainsi que la carbonisation des morceaux de bois pré-dégradé thermiquement. Ainsi, la concentration en masse de TSP diminue entre ces deux points, pendant que les morceaux de bois dégradé se transforment en charbon et que les particules de charbon s'appauvrissent légèrement en éléments autres que le Carbone et l'Oxygène. De plus, les particules se déposent tout au long du conduit de fumées, diminuant encore la concentration en masse des particules à la sortie. En revanche, d'autres particules de charbon déposées sur le conduit vont se détacher et suivre le flux des fumées. Ces particules possèdent une structure très organisée. En revanche, la température n'est plus suffisante pour maintenir les HAP sous forme gazeuse. Ainsi, selon leur point d'ébullition respectif et selon la température en sortie, une fraction importante de ces HAP condensera. En revanche, aucun COSV condensé n'a été visualisé à la sortie. Cela signifie que ces derniers ont condensés sur les parois du conduit, créant le phénomène de goudronnage des conduits. De plus, les particules contenant des éléments de type Silice, Zirconium et Soufre vont échanger ces éléments contre de l'Oxygène. Par conséquent, la teneur en ces éléments va diminuer. Le mécanisme d'agglomération des nanoparticules continue sur ce tronçon. Ainsi, les agglomérats importants étant déjà denses, leur taille évolue et peut alors atteindre 4 μm de diamètre. Les nanoparticules non agglomérées deviennent très rares, et sont largement remplacées par des brins d'agglomérats comptant environ 20 nanoparticules.

4.5 Les émissions au champ proche

La dernière étape de cette caractérisation de l'évolution des particules a pour but d'estimer les émissions dans le champ très proche. Pour ce faire, les fumées étaient diluées par un facteur 11. Cette série d'essais comprend moins d'analyses que les précédentes. Cela est principalement dû au fait que les appareils du laboratoire ne sont pas destinés à réaliser des prélèvements dans des milieux autant dilués. Les résultats présentés sont issus de la série d'essais en mode 3.

4.5.1 Les émissions particulières

Pour cette partie, les valeurs des concentrations ne seront pas ramenées à 13% d'O₂. En effet, la valeur d'O₂ mesurée en sortie diluée était stable, à environ 21%, et la formule permettant de revenir à 13%, pour rappel : $(21-O_{2ref})/(21-O_{2mesuré})$, n'a pas été appliquée pour une telle dilution. Elle aurait conduit à des valeurs très importantes et pas significatives. De plus, l'objectif étant de comparer les concentrations au point de référence et celles obtenues en sortie après dilution, les concentrations mesurées à la sortie diluée ont été ramenées à un volume de fumées équivalent, en multipliant les résultats par 11 (facteur 11 de dilution). Le Tableau 4-17 présente les résultats des mesures directes (COVT, CH₄ et température des fumées) ainsi que les concentrations en TSP aux deux points de mesure.

Répétition	Position	COVT (mg.Nm ⁻³ Eq. CH ₄)	CH ₄ (mg.Nm ⁻³)	TSP (mg.Nm ⁻³)	Tfumée (°C)
1	Référence	125	55	83	336
	Sortie Diluée	134	54	61	21
2	Référence	113	35	66	351
	Sortie Diluée	108	42	58	20
3	Référence	106	28	46	322
	Sortie Diluée	114	32	39	13
4	Référence	122	47	68	341
	Sortie Diluée	100	21	50	12
Global	Moyenne de Référence	117	41	66	337
	Ecart-Type de Référence	9	12	15	12
	Moyenne de Sortie Diluée	114	37	52	17
	Ecart-Type de Sortie Diluée	14	14	10	5
	Moyenne des écarts (Sortie Diluée - Référence)	-3	-4	-14	-320
	(1 - (Référence / Sortie Diluée) *100	-2%	-11%	-26%	-

Les valeurs des concentrations en Sortie Diluée ont été ramenées à un volume équivalent de fumée à celles du point de référence

Tableau 4-17 : Résultats des mesures de COVT, CH₄, TSP et température des fumées aux deux points de mesure Référence et Sortie Diluée

Ainsi, les TSP sont moins concentrées de 21% à la sortie diluée qu'au point de référence. Pourtant, les COVT et les CH₄ ne connaissent pas de variations claires. Ces résultats sont surprenants. En effet, le projet de norme Pr EN 16510 [54] indique que la mesure des TSP après dilution doit être égale à la mesure des TSP au point de référence plus 0,42 fois la

concentration de COVT en mg.Nm^{-3} Eq C_3H_8 . Cette différence significative pourrait être due à plusieurs raisons :

- dépôt de matières particulaires important dans notre configuration ;
- dilution par un facteur 11 au lieu de 13 en moyenne dans la norme ;
- température de la canne et du porte-filtre à 160°C contre 20°C minimum dans la norme.

Les deux premières raisons ne paraissent pas convaincantes. La dilution par un facteur 11 est tout de même décrite comme suffisante dans la norme, et le dépôt ne peut pas être plus important que lors des essais avec le prélèvement en sortie sans dilution (environ 40%) puisque la vitesse dans le conduit est beaucoup plus importante avec la dilution active. En revanche, la température de prélèvement est sans doute le point créant cette déviation. En effet, à 20°C , certains COV ont condensé ou été adsorbés par les particules. Comme notre canne était réglée à 160°C , les éléments adsorbés pouvaient être volatilisés à nouveau, et donc ne pas être pris en compte lors de mesures. Quoiqu'il en soit, l'objectif de cette thèse n'était pas de vérifier le coefficient de 0,42 donné par la norme, mais de caractériser la nature des particules. Ainsi, nous avons choisi de conserver une température de prélèvement constante à tous les points et pour toutes les mesures afin d'être répétable.

C'est aussi pour cette raison que les COV sont dans notre cas concentrés de manière similaire au point de référence et à la sortie diluée. En effet, la ligne chauffée était réglée à 160°C aussi. Ainsi, les COV qui étaient adsorbés dans les particules, et ne devraient pas être détectés par l'analyseur (puisque non gazeux), ont été détectés par notre analyseur puisqu'ils ont pu se volatiliser à nouveau dans la ligne chauffée. C'est pourquoi le ratio CH_4/COVT n'a pas évolué non plus, comme en témoigne la Figure 4-21.

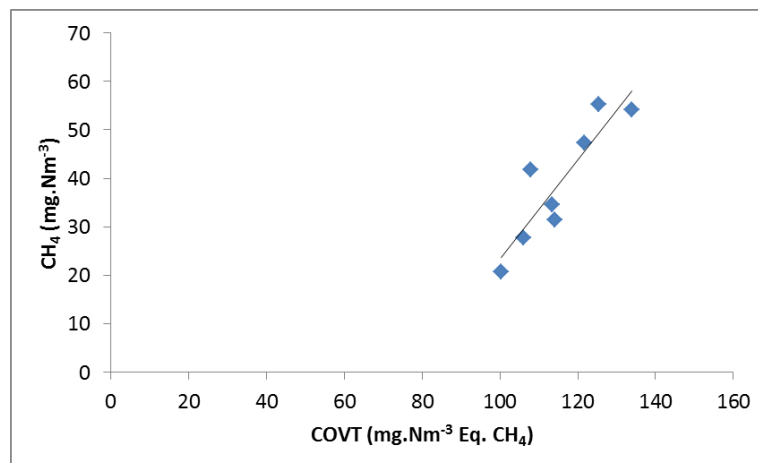


Figure 4-21 : Evolution de la concentration en CH_4 en fonction de la concentration en COVT aux deux points de mesure Référence et Sortie Diluée

Les HAP16 ont aussi été prélevés et analysés dans cette configuration. La Figure 4-22 présente les HAP16 à chacun des essais. Tout comme pour les émissions gazeuses, les résultats des concentrations en HAP16 à la sortie diluée ont été multipliés par 11 pour faciliter la comparaison.

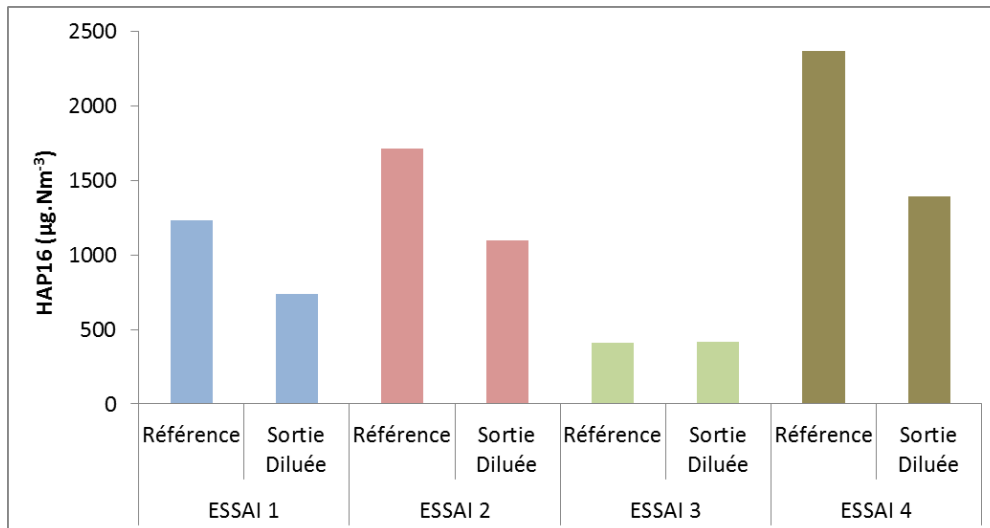


Figure 4-22 : Concentration des HAP16 aux deux points de mesure Référence et Sortie Diluée

Les résultats des essais sont plutôt répétables, même si l'essai numéro 3 est particulier. La raison du résultat particulier de cet essai vient principalement du fait de ne pas corriger les résultats en O₂. Sur tous les autres essais, la teneur en Dioxygène mesurée au point de référence était semblable à la moyenne des essais réalisés dans les différents modes. Mais, pour une raison inconnue, cet essai présente un taux de Dioxygène plus faible. Ainsi, les résultats de cet essai pour les analyses HAP sont sans doute robustes, mais non comparables s'ils ne sont pas ramenés à 13% d'O₂.

Si l'on omet cet essai, la sortie diluée est 40% moins concentrée en HAP16 que le point de référence. Ce facteur est exactement le même que celui déterminé lors des prélèvements à la sortie sans dilution.

Comme l'analyse de HAP mesure sans distinction les HAP condensés et adsorbés par les particules que ceux à l'état gazeux, ce résultat ne permet pas de connaître le taux de HAP qui a condensé. En revanche, ce résultat permet de valider un point important. Si la perte de masse de HAP est similaire avec ou sans dilution, cela signifie que c'est dans les quelques mètres après le point de référence que les dernières réactions de dégradation des HAP se déroulent. En effet, la température avec la dilution chute à 20°C. Cette température ne permet plus aucune réaction de ce genre. En revanche, l'effluent reste aux alentours de 350°C durant 2 mètres avant d'être dilué, puis refroidit considérablement, mettant fin à toute réaction de combustion.

Les pertes de chaque HAP, présentées dans le Tableau 4-18, sont donc semblables à celles observées lors des prélèvements sans dilution. Ainsi, la relation entre la perte moyenne et la température d'ébullition de chaque HAP peut être de nouveau représentée (Figure 4-23).

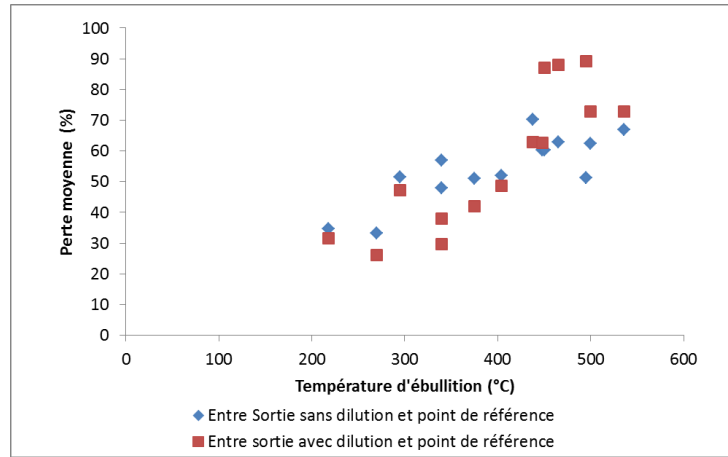


Figure 4-23 : Perte moyenne entre la sortie diluée et le point de référence pour chaque HAP en fonction de son point d'ébullition

Il semble que les HAP suivent des modifications similaires sur notre installation avec ou sans dilution. La répartition de ces HAP est donc aussi similaire, comme en témoigne la Figure 4-24.

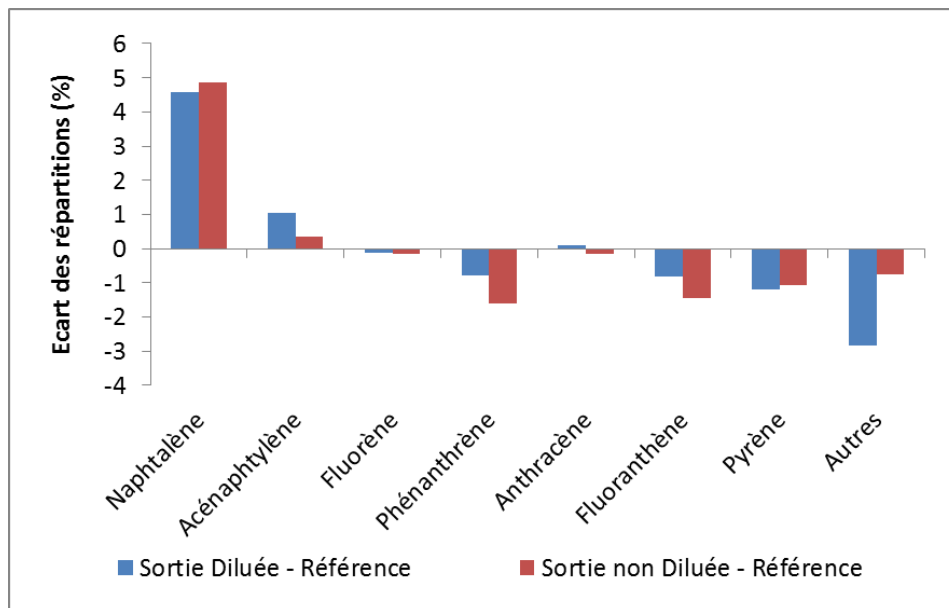


Figure 4-24 : Ecart des répartitions de chaque HAP sur les HAP16 présents entre la sortie diluée et le point de référence et entre la sortie non diluée et le point de référence

Tous les HAP ont donc subi exactement les mêmes réactions provoquant une répartition spécifique dans les essais du mode 2 (prélèvement à la sortie sans dilution) et ceux du mode 3 (prélèvement à la sortie avec dilution). En revanche, le temps de séjour des HAP dans ce milieu très dilué est très court. Ainsi, des recombinaisons supplémentaires auraient certainement pu avoir lieu si le temps de séjour avait été plus élevé, mais ne sont pas visibles dans notre cas.

		Naphtalène	Acénaphthylène	Acénaphthène	Fluorène	Phénanthrène	Anthracène	Fluoranthène	Pyrène	Benzo (a) anthracène	Chrysène	Benzo (b) fluoranthène	Benzo (k) fluoranthène	Benzo (a) pyrène	Dibenzo (a,h) anthracène	Benzo (ghi) pérylène	Indéno (123, cd) pyrène
ESSAI 1	Référence	817	23	0	9	181	6	79	64	7	12	12	5	4	0	8	8
	Sortie Diluée	489	30	0	6	108	5	47	36	1	3	1	0	1	0	3	3
ESSAI 2	Référence	1084	53	0	16	257	12	115	93	12	19	17	6	8	1	10	11
	Sortie Diluée	701	51	0	10	169	8	75	60	6	9	2	1	1	0	3	3
ESSAI 3	Référence	252	9	0	3	71	2	32	26	2	4	4	2	0	0	3	3
	Sortie Diluée	287	17	0	3	59	2	23	17	0	1	2	1	1	0	2	2
ESSAI 4	Référence	1368	105	0	27	354	25	177	179	21	30	25	9	14	1	19	16
	Sortie Diluée	931	43	0	11	200	16	89	74	8	12	3	1	1	0	3	3
Perte moyenne (%)		32	26	0	47	38	30	42	49	63	63	87	88	89	23	73	73

Toutes les valeurs de ce tableau sont exprimées en $\mu\text{g}\cdot\text{Nm}^{-3}$.

Tableau 4-18 : Concentration de chaque HAP aux deux points de mesure Référence et Sortie Diluée

4.5.2 La microscopie (microanalyse X et imagerie)

4.5.2.1 Microanalyse X des particules

Les résultats de la microanalyse X sont présentés dans le Tableau 4-19. Six éléments principaux ressortent de ces résultats :

- la teneur moyenne en Carbone des particules carbonées est légèrement plus importante (1%, mais répétable) à la sortie diluée qu'au point de référence ;
- la fréquence de présence d'éléments autres que le Carbone et l'Oxygène est toujours plus importante à la sortie diluée qu'au point de référence (environ 1% plus élevé) ;
- la fréquence de présence de Na est plus importante à la sortie diluée qu'au point de référence ;
- la fréquence de présence en Zr est toujours plus importante à la sortie diluée qu'au point de référence (1,26%) mais la teneur moyenne de celles en contenant est toujours comprise entre 0,95 et 1,3% ;
- les coefficients directeurs et les ordonnées à l'origine des droites de corrélations de O en fonction de C sont toujours plus élevés en valeur absolue à la sortie diluée qu'au point de référence ;
- les points de la courbe $O\% = aC\% + b$ sont toujours plus groupés à la sortie diluée qu'au point de référence.

Finalement, ces conclusions sont, pour la majorité, identiques à celles obtenues lors des essais en mode 2, c'est-à-dire sans dilution. La seule variation considérable concerne la fréquence d'éléments autres que le Carbone et l'Oxygène. En effet, le comportement est inversé lorsque la dilution est présente. Cela pourrait être le signe d'une condensation hétérogène, des différentes entités volatiles sur des particules existantes, piégeant ainsi les éléments contenus dans ces dernières. De plus, l'air de dilution n'était pas filtré. Les droites de corrélation réagissent toujours de manières similaires, comme en témoigne la Figure 4-25.

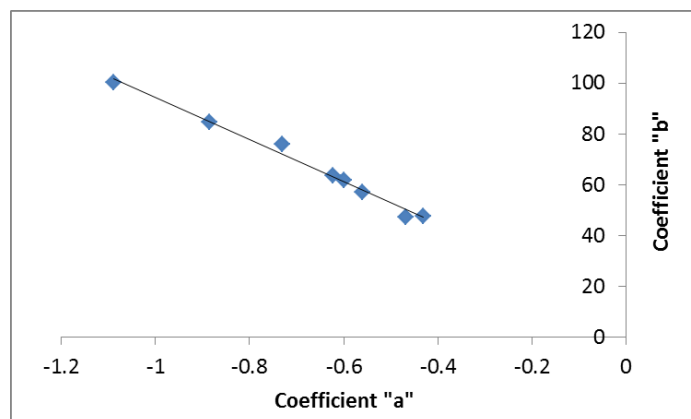


Figure 4-25 : Evolution de l'ordonnée à l'origine en fonction du coefficient directeur des droites de corrélation $O\% = aC\% + b$ des points de Référence et Sortie Diluée

Finalement, peu de différences ont pu être observées par la microanalyse X entre les prélèvements avec dilution ou sans dilution. Le temps de séjour des particules dans cette enceinte diluée était peut-être trop faible pour visualiser les effets, ou alors, aucun de ces paramètres n'est impacté par la dilution.

		O = a*C + b			Généralités		Na (% _{en masse})		Al (% _{en masse})		S (% _{en masse})		Ca (% _{en masse})		Zr (% _{en masse})	
		a	b	r ²	C moyen (% _{en masse})	Fréquence d'éléments autres que C et O (% _{en nombre})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})	Fréquence (% _{en nombre})	Composition moyenne (% _{en masse})
ESSAI 1	Référence	-0.60	61.76	0.40	78.5	4.8	0.1	0.8	0.2	0.3	0.8	0.3	0.4	0.4	2.5	0.9
	Sortie Diluée	-0.89	84.56	0.90	79.9	5.5	2.1	1.3	0.8	0.3	2.4	0.7	0.9	0.5	3.5	1.1
ESSAI 2	Référence	-0.56	56.98	0.48	77.8	4.4	0.0	0.7	0.6	0.3	0.5	0.3	0.1	0.4	2.0	1.0
	Sortie Diluée	-0.73	75.89	0.78	78.2	4.9	1.6	1.2	0.2	0.3	0.4	0.3	0.7	0.5	3.2	1.1
ESSAI 3	Référence	-0.47	47.31	0.25	76.5	2.2	0.0	0.0	0.5	0.4	0.6	0.4	0.0	0.0	1.2	1.2
	Sortie Diluée	-0.62	63.56	0.40	78.1	3.7	0.1	0.4	0.2	0.3	0.4	0.2	0.1	1.3	3.2	1.0
ESSAI 4	Référence	-0.43	47.55	0.34	79.8	3.3	0.0	0.0	0.4	0.3	0.6	0.2	0.0	0.0	2.6	1.1
	Sortie Diluée	-1.09	100.08	0.82	80.1	3.8	0.0	0.0	0.3	0.3	0.6	0.2	0.1	0.4	3.5	1.3
Global	Moyenne de Référence	-0.51	53.40	0.36	78.1	3.7	0.0	0.4	0.4	0.3	0.6	0.3	0.1	0.2	2.1	1.0
	Ecart-Type de Référence	0.08	7.16	0.10	1.4	1.2	0.0	0.4	0.2	0.1	0.1	0.1	0.2	0.2	0.7	0.1
	Moyenne de Sortie Diluée	-0.83	81.02	0.72	79.1	4.5	1.0	0.7	0.4	0.3	0.9	0.4	0.4	0.6	3.3	1.1
	Ecart-Type de Sortie Diluée	0.20	15.35	0.22	1.0	0.9	1.1	0.6	0.3	0.0	1.0	0.3	0.4	0.4	0.2	0.1
	Moyenne des écarts (Sortie Diluée - Référence)	-0.32	27.62	0.36	1.0	0.8	0.9	0.4	-0.1	0.0	0.4	0.0	0.3	0.4	1.3	0.1
	(1 - (Référence / Sortie Diluée) *100	38%	34%	50%	1%	18%	96%	49%	-23%	-8%	37%	6%	72%	67%	38%	8%

Tableau 4-19 : Bilan des résultats de la microanalyse X des particules aux deux points de mesure Référence et Sortie Diluée

4.5.2.2 Imagerie des particules

L'imagerie a permis de distinguer très clairement trois familles de particules présentes dans les fumées au point de prélèvement sortie avec la dilution active :

- des agglomérats de nanoparticules très importants (Figure 4-26, a) ;
- des petits agglomérats de nanoparticules (Figure 4-26, c) ;
- des particules de charbon organisé (Figure 4-26, b).

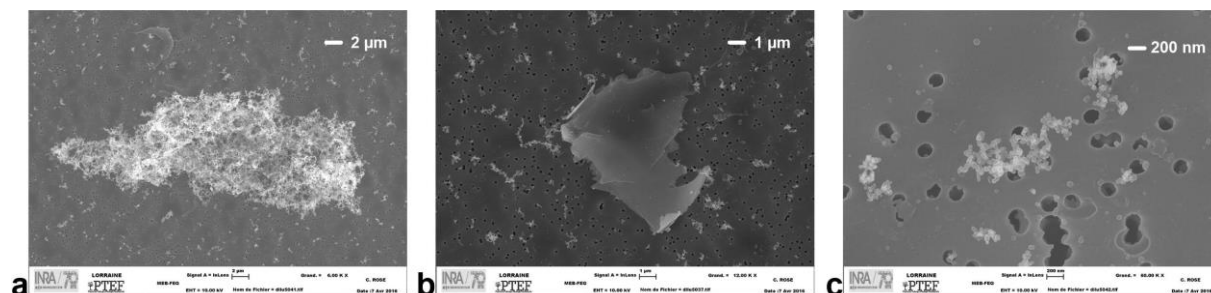


Figure 4-26 : Clichés d'importants agglomérats de nanoparticules (a, x6000), de charbons organisés (b, x12000) et de petits agglomérats de nanoparticules (c, x60000) prélevés à la sortie avec la dilution active

Les agglomérats du point de sortie avec la dilution peuvent être très denses et de taille très importante, allant jusqu'à 10 µm de diamètre. Cette taille est vraiment plus importante que les agglomérats du point de sortie sans dilution (4 µm maximum), et donc du point de référence (Figure 4-27, a). Le charbon émis en ce point est aussi très organisé, avec une structure très proche de celle du graphite. Sa composition est donc majoritairement de l'EC. De plus, à sa surface, se trouvent quelques nanoparticules qui ont impactées. Elles ne sont présentes que par impactions, et aucune liaison claire ne relie ces morceaux de charbons graphitiques à d'autres particules. Les nanoparticules unitaires, bien que très présentes au point de référence (Figure 4-27, b), sont globalement plus agglomérées à la sortie diluée.

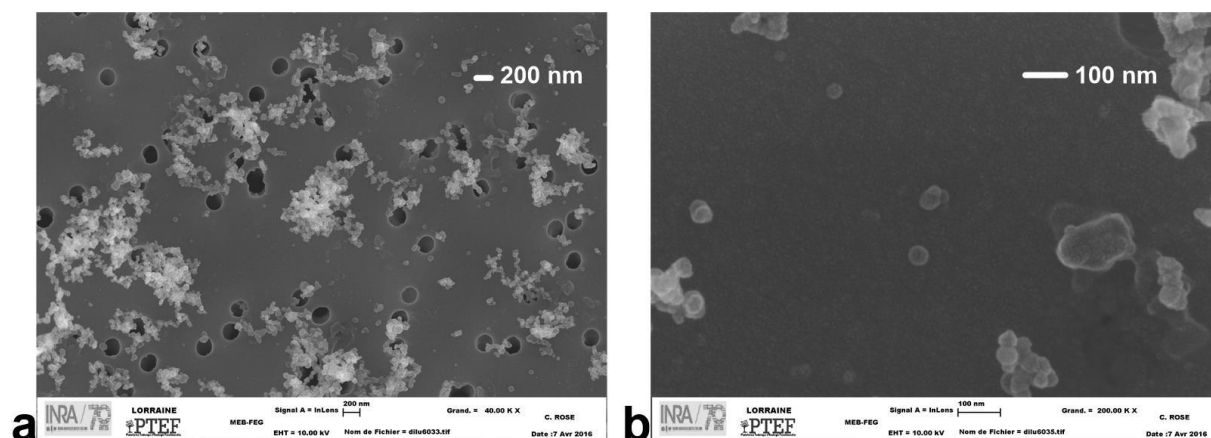


Figure 4-27 : Clichés d'agglomérats de nanoparticules (a, x40000) et de nanoparticules peu ou pas agglomérées (b, x200000) prélevés au point de référence

Les phénomènes d'agglomération sont donc favorisés par la dilution, même si quelques nanoparticules non-agglomérées sont présentes. La fraction granulométrique doit être très impactée.

4.5.3 Conclusion

Les particules dans le champ proche sont donc composées majoritairement de deux familles :

- des agglomérats de nanoparticules ;
- des charbons présentant une structure graphitique.

Les agglomérats de nanoparticules peuvent atteindre des tailles très importantes, d'environ 10 μm . Cela provient du phénomène d'agglomération qui est beaucoup plus important. En revanche, dans le champ proche, des nanoparticules peu agglomérées restent présentes, avec un diamètre moyen apparent de quelques centaines de nanomètres. Ces nanoparticules peu agglomérées peuvent être soit des nanoparticules initiales qui ne se sont pas agglomérées dans le conduit, soit de nouvelles nanoparticules produites par la condensation homogène de différentes espèces chimiques, comme des HAP ou des COV. Les charbons graphitiques sont majoritairement composés d'EC.

Au point de vue chimique, les particules du champ proche semblent être plutôt chargées en éléments de type Zirconium, Soufre, Sodium et Calcium. Les HAP16, sans doute condensés, sont majoritairement composés de Naphtalène et de Phénanthrène.

4.6 Conclusion

Les particules évoluent de manière significative entre le point de mesure dans la chambre de combustion et la sortie des fumées après dilution. Ces modifications proviennent aussi du fait que l'effluent gazeux qui contient ces particules évolue à une température décroissante entre la chambre de combustion et l'évacuation des fumées, toujours en présence suffisante de Dioxygène.

Les particules au sein de la chambre de combustion sont dans un effluent à plus de 500°C. De plus, leur temps de séjour dans le milieu est relativement court. Cela induit que le phénomène d'agglomération reste minime à ce stade de prélèvement. Ainsi, trois types de particules sont présents en ce point :

- morceaux de bois dégradé thermiquement ;
- agglomérats de nanoparticules peu denses ;
- nanoparticules non agglomérées.

Toutes ces particules sont encore très chargées en Silice, Zirconium et Soufre. Les morceaux de bois émis sont plus ou moins dégradés thermiquement. Quelques envolées de charbon peuvent aussi être perçues en ce point de prélèvement.

Ces particules vont subir différentes réactions entre la chambre de combustion et le point de référence. Tout d'abord, la température étant élevée (600°C à 350°C) et le taux de Dioxygène étant suffisant, des réactions d'oxydation vont se dérouler. C'est pourquoi au point de référence, les particules sont moins chargées en Soufre par exemple, alors que la concentration en SOx augmente. En revanche, la température élevée implique aussi que les morceaux de bois émis vont continuer de se dégrader. Ainsi, la concentration en COVT est plus importante au point de référence que dans la chambre de combustion. Les HAP vont

aussi être oxydés, et leur concentration diminuera légèrement. Les proportions de Naphtalène évoluent aussi, augmentant au point de référence. La fraction granulométrique des $PM_{0,1}$ reste majoritaire, mais la fraction $PM_{0,1-1}$ devient plus importante au point de référence. Cela est principalement dû au phénomène d'agglomération des nanoparticules. Ainsi, au point de référence, le même mix de particules est retrouvé, mais les proportions et les tailles des agglomérats sont considérablement modifiées. En revanche, bien que faiblement représentés, les morceaux de bois peu dégradés parfois visualisés dans la chambre n'ont jamais été perçus au point de référence.

A la sortie (dilution inactive), les particules sont encore différentes de celles relevées au point de référence. La température entre le point de référence et la sortie sans dilution est trop faible pour que des réactions d'oxydation puissent encore se dérouler. En revanche, cette faible température permet aux HAP de condenser sur les parois du conduit. Une proportion importante de TSP (40%) est aussi déposée sur les parois du conduit. Les particules voient donc leur composition se modifier.

Tout d'abord, leur composition en éléments tel que le Soufre, la Silice ou le Zirconium devient vraiment très faible. Ce phénomène additionné à une poursuite de la dévolatilisation de l'eau et des composés volatils induit une diminution de la concentration massique en particules. Les HAP vont être modifiés de manière significative, en quantité tout comme en composition. En revanche, les COVT restent stables, avec le même ratio $CH_4/COVT$. Quelques morceaux de charbon se détachent aussi du conduit et sont donc émis. Ces charbons présentent une structure assez organisée. La répartition granulométrique des particules poursuit son évolution vers les fractions granulométriques plus importantes. Cela est toujours dû au phénomène d'agglomération. Ainsi, les particules au point de prélèvement précédent l'évacuation des fumées dans l'air ambiant sont de trois types :

- morceaux de charbon avec une structure légèrement ou très organisée ;
- agglomérats importants de nanoparticules ;
- nanoparticules non agglomérées.

Si la dilution est activée, peu de changements sont observés. Le phénomène d'agglomération est tout de même plus important, et des particules de charbon quasi-graphitique sont identifiées. L'un des changements principal est l'augmentation de la concentration en Silice, Soufre et Zirconium. Cela pourrait être dû à une adsorption des gaz de type SO_x par les agglomérats de nanoparticules.

Chapitre 5. ANALYSE PHENOMENOLOGIQUE

Ce chapitre a pour objectif de synthétiser et de réaliser un bilan de tous les phénomènes décrits dans les parties précédentes. Ainsi, des schémas présentant les divers mécanismes de formation et d'évolution des particules présenteront une synthèse exhaustive du travail mené.

5.1 Mécanismes et conditions de formation des particules

Dans un premier temps, les mécanismes de formation des différentes particules doivent être définis. Ces mécanismes ne peuvent se dérouler que dans certaines conditions. Lorsque ces dernières auront été mises en évidence dans ce travail, elles seront précisées. Certains paramètres empêchent la formation des particules et seront précisés. Sept grands types de particules différents ont été recensés et seront présentés dans la suite de ce paragraphe :

- les envolées de cendres ;
- les particules de bois ;
- les particules de charbon ;
- les nano-cristaux ;
- les nanoparticules ;
- les agglomérats de nanoparticules ;
- les HAP et les COSV.

Bien entendu, les COSV (dont les HAP) ne sont pas des particules. Ils seront néanmoins considérés comme tel dans cette partie puisqu'ils formeront des particules dans le champ proche. Pour chaque type, les conditions de formation/destruction et d'évolution des caractéristiques seront présentées en fonction des paramètres de combustion.

5.1.1 Les envolées de cendres

Les cendres formées par la combustion de biomasse peuvent s'envoler et se joindre au mix particulaire émis par l'appareil. Elles peuvent être structurées ou complètement amorphes. Leur forme et leur taille n'est pas définie évolue dans le conduit.

Bien que ces cendres soient majoritairement émises durant la phase d'allumage, différents paramètres peuvent favoriser leur envol, comme :

- la technologie de l'appareil (bûches ou granulés) ;
- la génération de l'appareil ;
- le type d'allumage ;
- la nature du combustible ;
- les réglages de l'appareil.

Globalement, les caractéristiques modernes de génération et de technologie de l'appareil induisent un seuil bas d'émissions de cendres (provoqué par le dimensionnement même de l'appareil). Ensuite, tous les paramètres diminuant la qualité de la combustion (Allumage Traditionnel, combustible humide, présence d'écorces, mauvais réglage d'air, ...) augmentent les émissions de cendres.

5.1.2 Les particules de bois

Globalement, trois types de particules de bois peuvent être émis lors de la combustion dans un appareil de chauffage domestique au bois :

- particule de bois « sain » (Figure 5-1, a) ;
- particule de bois thermiquement dégradé en phase 1 : la particule est dégradée mais conserve une forme proche de celle du bois (Figure 5-1, b) ;
- particule de bois thermiquement dégradé en phase 2 : la particule est dégradée et a perdu sa forme (Figure 5-1, c), il ne reste que le squelette.

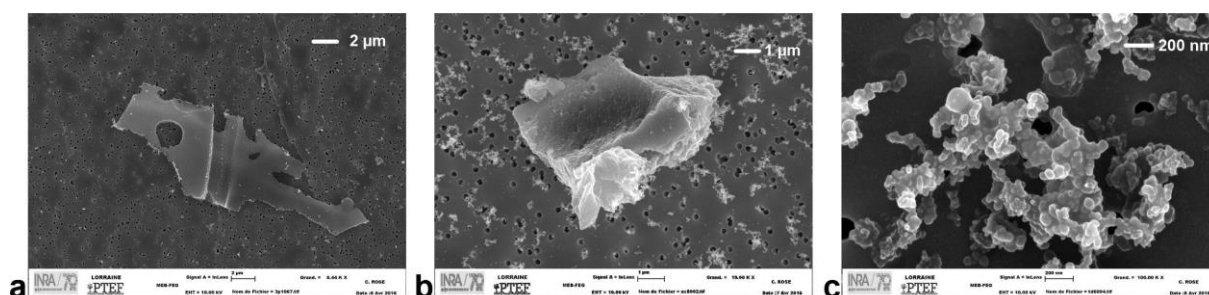


Figure 5-1 : Clichés de particules de bois « sain » (a, x8440), de bois dégradé thermiquement en phase 1 (b, x19000) et en phase 2 (c, x100000)

Les particules de bois sain ne peuvent provenir que d'envolées de morceaux de bois. Leur taille peut être très variable, mais ne dépasse jamais 10 µm de diamètre. Durant l'intégralité des essais réalisés, ce type de particules n'a été visualisé qu'une fois : au départ de la phase d'allumage (juste après la mise en place de la charge) dans les essais visant à déterminer les particules émises par chacune des phases. Ainsi, les conditions de formation pour ces particules de bois « sain » peuvent être résumées aux conditions suivantes :

- mise en place d'une charge de bois sain sur un lit de braises ;
- température de la chambre de combustion relativement basse.

Le second élément est totalement lié au premier. De plus, ces deux points induisent une concentration en Dioxygène suffisante. En revanche, deux conditions peuvent empêcher les envolées de ces particules de bois :

- la présence d'écorces qui empêche le détachement de morceaux de bois. D'autres particules peuvent cependant être émises, mais pas de particules de bois sain ;
- si le chargement de la chambre est effectué avant que la température de celle-ci ne soit trop basse (ne pas attendre qu'il n'y ait plus que des braises), ces particules seront sans doute oxydées.

Les particules de bois thermiquement dégradé en phase 1 et 2 ont les mêmes origines : la qualité de la combustion, en particulier la température de la chambre et des fumées ainsi que le taux de Dioxygène détermineront si les particules sont en phase 1 ou 2 (la phase 2 étant une

particule de bois plus dégradé que la phase 1). Ceci ne signifie pas qu'une bonne combustion produira des particules de bois thermiquement dégradé en phase 2.

En résumé : une très mauvaise combustion pourrait produire des particules de bois sain ; une combustion de mauvaise qualité produira des particules de bois en phase 1 ; une combustion de qualité moyenne produira des particules de bois en phase 2. Ces particules (phase 1 et phase 2) ont été visualisées de nombreuses fois :

- durant la phase d'allumage (rechargement) : la température est élevée mais la combustion se déroule en manque de Dioxygène, ce qui conduit à des émissions de particules de phases 1 et 2 ;
- durant l'allumage à froid du poêle à bûches : la température est plutôt faible et conduit à produire des particules de phase 1 majoritairement pour l'allumage Traditionnel et de phase 2 majoritairement pour l'allumage Top-Down ;
- lors de la combustion de bûches humides : la température est plutôt faible et produit des particules en phases 1 et 2.

Ces deux types de particules peuvent avoir des tailles extrêmement variables. Globalement, les particules de bois en phase 1 sont cependant plus grosses que celles en phase 2.

5.1.3 Les particules de charbon

Les particules de charbon peuvent avoir plusieurs origines :

- dégradation thermique sans Oxygène de particules de bois ;
- envolées de particules de charbon de la chambre de combustion ;
- décollement de charbon du conduit de fumées.

Ces particules de charbon ont une taille variable, mais toujours comprise entre 100 nm et 10 µm. Le principal paramètre impactant sur la taille de ces particules de charbon est la nature même de l'appareil.

Pour une dégradation plus importante, le charbon perd en plus grande proportion des éléments comme le Soufre, la Silice ou le Zirconium. De plus, une dégradation importante donne une structure quasi graphitique (Figure 5-3, a), alors qu'une dévolatilisation légère produit des charbons amorphes (Figure 5-3, b). Les particules qui se sont décollées du conduit ont subi de nombreux cycles de montée en température et présentent une structure très graphitique (Figure 5-3, c).

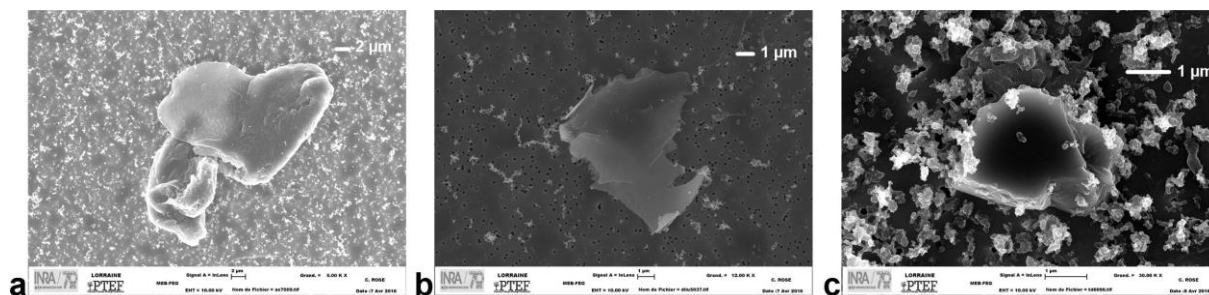


Figure 5-2 : Clichés de morceaux de charbons (a, x5000 ; b, x12000 ; c, x30000)

Ces particules de charbon peuvent être émises dans de nombreux cas, mais sont toujours issues d'une combustion incomplète et/ou d'un mauvais dimensionnement et d'une mauvaise répartition de l'air primaire et de l'air secondaire. Dans le cas des particules de charbon issues d'un décollement des parois du conduit, seul un ramonage peut éviter leur émission. D'autres types de particules peuvent se déposer sur les charbons, mais ne créent pas de liaisons.

5.1.4 Les nano-cristaux

Plusieurs types de nano-cristaux peuvent être émis par la combustion de bois. Cette étude a permis d'en mettre en évidence deux types principaux : les nano-cristaux de Silice (Figure 5-3, b, c, et nano-cristal en haut de l'image a) et les nano-cristaux de Sodium (Figure 5-3, a, nano-cristal au bas de l'image). Leur taille est toujours comprise entre 200 et 500 nm. Ces nano-cristaux ne peuvent provenir que d'envolées de cendres contenant ces nano-cristaux.

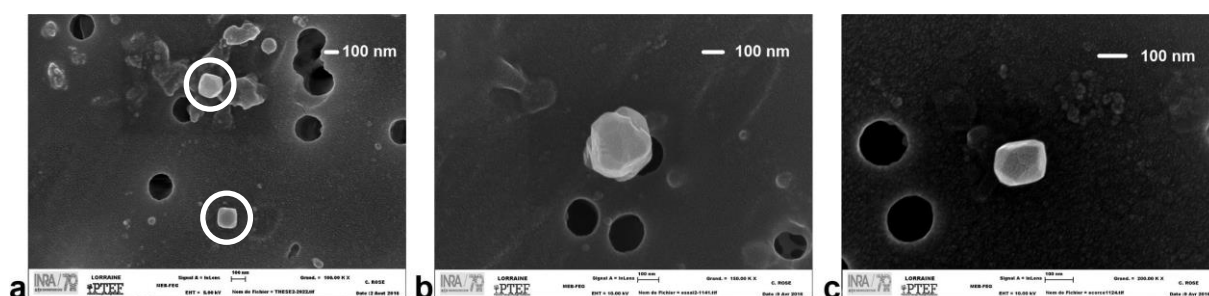


Figure 5-3 : Clichés de nano-cristaux de Silice et/ou Sodium (a, x100000) et de nano-cristaux de Silice (b, x150000 ; c, x200000)

Ces nano-cristaux n'ont été visualisés que dans deux cas précis :

- La présence d'écorces peut conduire à l'émission de nano-cristaux de Silice et de Sodium. Les tests réalisés sans écorces ont clairement montré l'absence totale de ces nano-cristaux, alors qu'avec écorces, la plupart des prélèvements ont montré leur présence. L'écorce étant riche en cendres et notamment en Silice et Sodium, ces résultats sont tout à fait logiques ;
- L'utilisation même de l'appareil peut conduire à des émissions plus ou moins importantes de nano-cristaux. Les essais ont clairement montré que lorsque l'appareil est utilisé en manque d'air (arrivée d'air très réduite sur un appareil étanche par exemple), ces nano-cristaux sont émis en quantité importante.

En revanche, ces deux conditions n'expliquent en rien le mécanisme de formation de ces nano-cristaux. Dans le cas d'un combustible avec de l'écorce, l'hypothèse la plus probable est que les cendres de l'écorce étant très riches en Silice et Sodium, des conditions de températures élevées (proche des braises par exemple) conduisent à la formation des nano-cristaux. Ensuite, les envolées de cendres provoqueraient leurs propres envolées. Dans le cas d'un manque d'air, le mécanisme est sans doute le même. Un manque d'air provoque une chute du ratio TC/TSP. Cela signifie que le manque d'air induit plus d'envolées de cendres et donc de nano-cristaux.

Ces nano-cristaux pourront servir comme support à la condensation hétérogène des HAP lors de l'évacuation des fumées dans l'air ambiant.

5.1.5 Les nanoparticules

Les nanoparticules proviennent de deux sources :

- la dégradation thermique du bois ;
- la condensation homogène de COSV (dont les HAP).

Dans cette partie, seules les nanoparticules issues de la dégradation thermique du bois seront discutées. Le comportement et le devenir des COSV seront présentés dans une partie spécifique, en 5.1.7.

Dans la première partie du conduit, des nanoparticules sont produites, puis, ces nanoparticules vont s'agglomérer tout au long du conduit. Les agglomérats de nanoparticules seront décrits en 5.1.6.

Les nanoparticules unitaires se présentent sous la forme de petites billes. Leur taille peut varier selon les conditions de combustion :

- pour une combustion réalisée avec des bûches sèches : nanoparticules de 20 à 50 nm ;
- pour une combustion réalisée avec des bûches humides : nanoparticules de 200 nm ;
- pour un poêle à granulés : nanoparticules de 20 à 150 nm.

Si les nanoparticules sont petites, cela signifie que la majorité du carbone organique s'est volatilisé puis a été oxydé, et donc que le carbone élémentaire est plus concentré. Cela permet d'expliquer pourquoi les nanoparticules issues de la combustion de bûches humides ont un diamètre moyen plus important. En effet, ce type de combustion entraîne une température de fumées plus faible, et donc une volatilisation du carbone organique plus faible. La température des fumées d'un poêle à granulés est relativement faible. Ceci pourrait expliquer aussi la variation de taille. Les essais sur l'impact de l'essence du combustible utilisé démontrent que l'essence n'influe pas sur la taille des nanoparticules émises.

Les nanoparticules ont été visualisées dans tous les essais réalisés. Cela signifie que cette entité est un élément de base des émissions lors de la combustion de biomasse.

La Figure 5-4 présente schématiquement la production de nanoparticules par dégradation thermique, dans le cas de la combustion de bûches sèches.

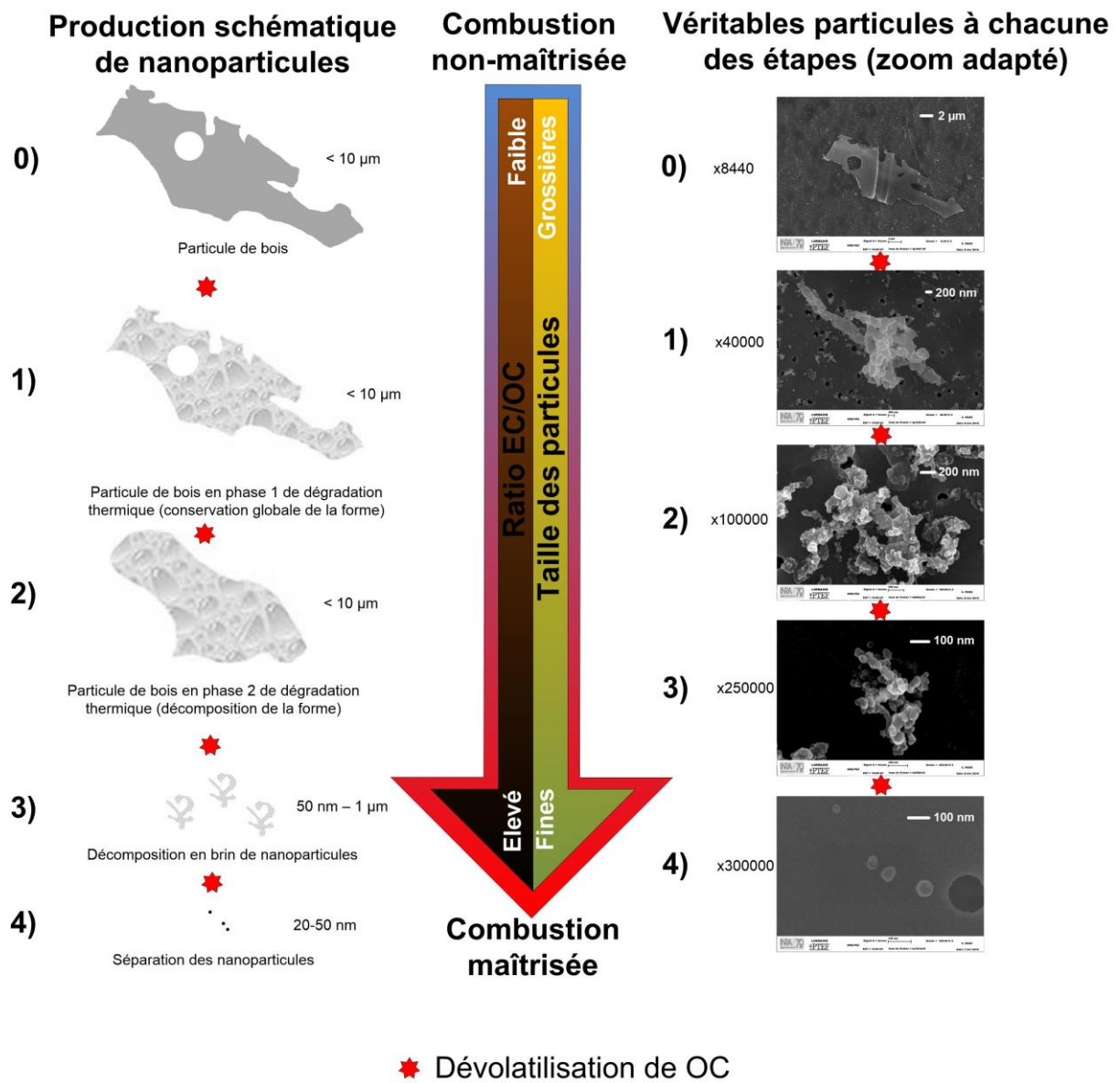


Figure 5-4 : Schéma de formation par dégradation thermique des nanoparticules

Ainsi, les nanoparticules sont produites par la dégradation thermique du bois. En revanche, une combustion maîtrisée induit une cinétique de production rapide. De plus, une combustion de bonne qualité émettra toujours des nanoparticules. C'est la raison pour laquelle dans certains essais présentant une combustion très performante, seules des nanoparticules étaient visualisées alors que dans d'autres essais (avec une combustion moins complète), des particules de bois dégradé thermiquement en phase 1 ou 2 étaient visualisées en plus des nanoparticules.

De plus, cette production de nanoparticules peut venir de particules de bois sain, mais aussi directement au contact de la bûche. Les différentes étapes se déroulent alors de manière très rapide à la surface de la bûche. Ensuite, ces nanoparticules, où bois thermiquement dégradé en phase 1 ou 2, évoluent dans le conduit. Tous ces types de particules peuvent coaguler ou s'agglomérer plus ou moins en fonction des conditions.

5.1.6 Les agglomérats de nanoparticules

Les agglomérats de nanoparticules ne doivent pas être confondus avec du bois thermiquement dégradé en phase 2, ou déjà décomposé en brins. La Figure 5-5 présente ces trois types de particules, afin de mieux comprendre leurs différences.

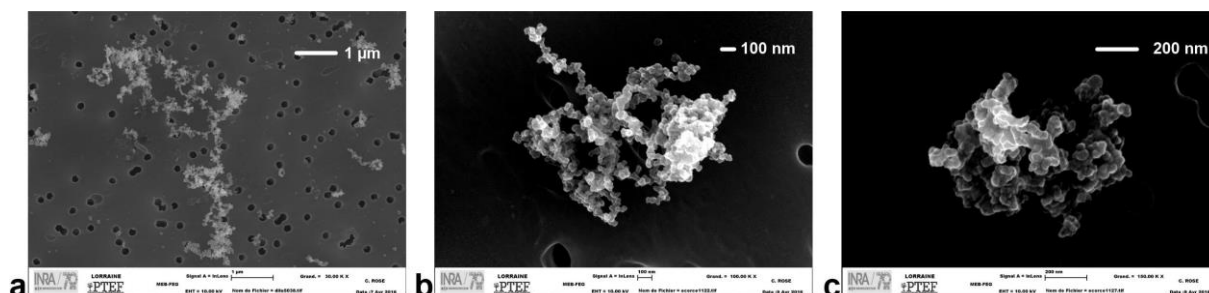


Figure 5-5 : Clichés d'agglomérats de nanoparticules (a, x30000), de bois dégradé thermiquement en fin de phase 2 avec des brins qui se séparent (b, x100000) et de bois dégradé en début de phase 2 (c, x150000)

La différence majeure entre ces trois types de particules est que dans le cas de l'agglomérat de nanoparticules, les nanoparticules sont liées les unes aux autres par des liaisons très faibles et très surfaciques. C'est pour cela qu'il est possible de visualiser distinctement sur ces agglomérats les nanoparticules unes à unes, à la manière d'un collier. Dans les deux autres cas, les nanoparticules sont en cours de formation, et l'intégralité de leur contour ne peut pas être distinguée.

Les agglomérats commencent à se former dès qu'il y a une production de nanoparticules. En revanche, aucun agglomérat important de nanoparticules n'a été visualisé dans la chambre de combustion, malgré une forte concentration en nanoparticules. Cela peut être dû à plusieurs phénomènes :

- les conditions de température (élevée) et de pression de la chambre de combustion sont défavorables à l'agglomération ;
- le temps de séjour des nanoparticules est trop court pour qu'elles agglomèrent.

Les résultats de ce travail ne permettent pas d'éliminer une de ces deux hypothèses. En revanche, la température joue très clairement un rôle important dans l'agglomération. En effet, lors des prélèvements à la sortie sans dilution (mode 2), les agglomérats étaient plus petits que lors des prélèvements à la sortie avec la dilution (mode 3). La température était beaucoup plus faible dans le second cas à cause de la dilution. En revanche, avec la dilution, le temps de séjour des nanoparticules étaient beaucoup plus court. L'impact de la température est donc certain. Ainsi, une faible température induit une agglomération des nanoparticules plus efficace. Le temps de séjour joue aussi sans doute un rôle, mais il n'a pu être mis en évidence dans notre cas.

Ainsi, le phénomène d'agglomération peut débuter dès la sortie de la chambre de combustion, puisque des agglomérats ont été visualisés au point de référence. Aucun agglomérat de nanoparticules ayant piégé d'autres particules comme des morceaux de bois en phase 1 ou 2 de dégradation thermique n'a été visualisé, mais il est difficile de discerner clairement l'intérieur d'un agglomérat.

Concernant la composition de ces agglomérats, elle est similaire à celles des nanoparticules. Ils sont donc composés majoritairement d'EC, et contiennent encore un peu d'OC. Leur taille est très variable et dépend de la position du prélèvement. La Figure 5-6 schématise le mécanisme de formation des agrégats de nanoparticules.

Les nanoparticules s'agglomèrent tout d'abord en formant des brins, puis forment d'autres brins sur le brin original. Ensuite, alors que des nanoparticules poursuivent leur agglomération, des brins s'agglomèrent aussi, et le phénomène perdure tant que les nanoparticules et les brins sont suffisamment concentrés. Au départ, la structure est fragile et peu dense. Une agglomération importante conduit à des agglomérats plus denses.

Production schématique
des agglomérats



De 20 à 50 nm

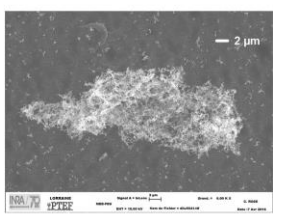
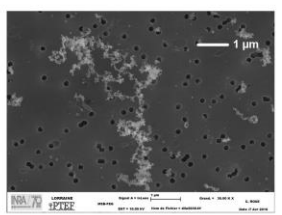
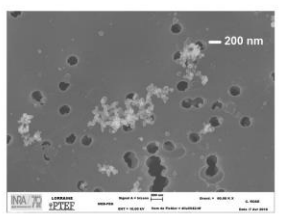
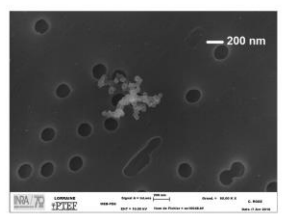
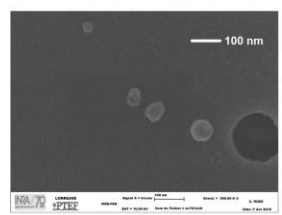
De 50 à 400 nm

De 0,4 à 1 μm

De 1 à 5 μm

Plus de 5 μm

Véritables particules à
chacune des étapes
(zoom adapté)



x300000

x80000

x60000

x30000

x6000

Figure 5-6 : Mécanisme d'agglomération des nanoparticules

5.1.7 Les COSV

Pour les COSV, et plus particulièrement les HAP, les mécanismes de formation sont déjà connus. Cette partie a pour objectif de rappeler les paramètres les plus influents sur la quantité et les caractéristiques des HAP16 émis.

5.1.7.1 Gazeux

La quantité de HAP16 émise dépend de plusieurs paramètres :

- le type d'appareil (bûches ou granulés) ;
- la présence ou l'absence d'air secondaire ;
- la génération de l'appareil ;
- l'humidité du combustible ;
- la présence d'écorces ou non ;
- l'utilisation de l'appareil.

En moyenne, le poêle à bûches de 2012 émet $0,2 \text{ mg.Nm}^{-3}$ corrigé à 13% d'O₂ de HAP16 (HSECse). Avec le même combustible, l'appareil de 2006 en émet environ deux fois plus. Le poêle à granulés de 2006 n'en émet que $0,02 \text{ mg.Nm}^{-3}$ corrigé à 13% d'O₂. L'impact de la génération et du type d'appareil est ainsi très visible.

Si l'air secondaire de l'appareil de 2006 est fermé, ses émissions de HAP16 sont multipliées par un facteur 7. La présence d'air secondaire est donc une technique très efficace de réduction des émissions d'imbrûlés comme les HAP.

Sur le poêle à bûches de 2012, la combustion de bûches humides triple les émissions de HAP16. La présence d'écorces induit aussi une augmentation claire des émissions de HAP16. Le choix du combustible a donc un impact certain sur les émissions de HAP16.

Les actions de l'utilisateur peuvent influencer la quantité de HAP16 émis. En effet, si les arrivées d'air de l'appareil sont mal réglées (c'est le cas lorsque l'utilisateur ferme les arrivées d'air pour maintenir le feu durant la nuit) les émissions de HAP16 peuvent être multipliées par 15.

La composition des HAP16 n'est pas toujours influencée par les mêmes paramètres que la quantité. Par exemple, la répartition des HAP16 ne dépend pas de la génération de l'appareil. La présence d'air secondaire ne modifie en rien cette répartition. En revanche, le type d'appareil (bûches ou granulés), l'humidité et la présence d'écorces ainsi que le réglage de l'appareil sont des paramètres qui ont des conséquences sur cette répartition.

Un appareil à bûches brûlant du HSECse émet des HAP16 composés en moyenne de 65% de Naphtalène, 14% de Phénanthrène, et 5% d'Acénaphtylène, de Fluoranthène et de Pyrène. La composition des HAP16 émis par un appareil à granulés est différente : 50% de Naphtalène, 12% d'Acénaphtylène et de Phénanthrène, et 6% de Fluoranthène et de Pyrène.

Si le combustible est humide, la proportion de Naphtalène diminuera au profit de l'Acénaphtylène et du Fluorène. A l'inverse, la présence d'écorces augmente la proportion de Naphtalène au dépend principalement du Fluorène et du Phénanthrène. Un mauvais réglage de

l'appareil augmentera aussi la concentration en Naphtalène, mais en dépend cette fois de l'Acénaphthylène.

5.1.7.2 Liquides

Les COSV (dont les HAP) peuvent condenser avant même leur évacuation dans l'air ambiant. Les condensats forment des billes, dont la taille peut varier entre 200 nm et 3 µm (Figure 5-7 a et c). Cette variation de taille est principalement due à la concentration en condensats de COSV. En effet, s'ils sont fortement concentrés, leur statistique de rencontre est plus élevée. Les condensats peuvent alors se coaguler (coalescence ou murissement d'Ostwald), formant alors une sphère de diamètre plus important. Nous avons eu la chance d'assister à la coagulation de deux condensats de COSV au MEB. La Figure 5-7 (b) présente le cliché obtenu.

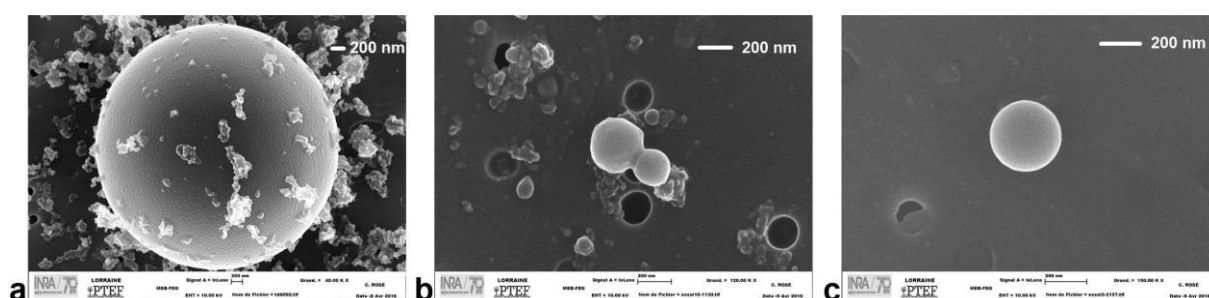


Figure 5-7 : Clichés de COSV condensés (a, x40000 ; c, x150000) et de COSV condensés s'agglomérant (b, x120000)

Certaines conditions de combustion paraissent favoriser ce phénomène, notamment :

- l'allumage traditionnel ;
- des bûches humides ;
- le réglage de l'appareil.

Ces trois types de conditions conduisent à des problèmes connus de mauvaise combustion et notamment de niveau de température faible et de teneur en Dioxygène faible.

Ces trois paramètres correspondent aux trois paramètres favorisant le plus l'émission de HAP. Ils peuvent tous être résolus en utilisant convenablement son appareil : Allumage Top-Down, combustible sec, réglage optimal de l'appareil.

5.1.8 Conclusion

Les mécanismes de formation des différents types de particules ont été définis. De plus, les conditions nécessaires à leur formation ont été décrites précisément. Pour conclure sur cette partie, le Tableau 5-1 résume les résultats de divers paramètres.

	Particules				HAP	
	Masse	Nombre	Granulométrie	Particules spécifiques	Quantité	Répartition (proportion)
Présence d'écorce	+++	---	+	Apparition de nano-cristaux, Augmentation des envolées de cendres et des morceaux de charbon	+++	Augmentation du Naphtalène, Diminution du Fluorène et du Phénanthrène
Combustible humide	++++	=	en masse : ++ en nombre : --	Apparition de COSV condensés	++	Diminution du Naphtalène, Augmentation de l'Acénaphthylène et du Fluorène
Fermeture de l'air	++++	+++	----	Apparition de nano-cristaux et de COSV condensés	++++	Augmentation du Naphtalène, Diminution de l'Acénaphthylène
Top-Down	--	++	Plus fine	Disparition des COSV condensés	non-évalué	non-évalué
Appareil récent	----	non-évalué	Plus fine	Réduction considérable des envolées de cendres, Augmentation en proportions des nanoparticules différenciées, Réduction des particules de bois dégradé thermiquement en phase 1 ou 2, Disparition des morceaux de charbon	---	Aucun impact

Tableau 5-1 : Bilan des effets de quelques paramètres

Ainsi, chaque critère influe de manière spécifique sur les émissions. Il apparaît clairement dans ce tableau que la majorité des émissions polluantes peut être considérablement réduite en appliquant les techniques de traitement primaire des fumées.

En revanche, ces descriptions correspondent aux différents éléments qui ont pu être mesurés au point de prélèvement de référence, et n'indique pas les émissions réelles dans l'air ambiant.

5.2 Une vie de particule

Toutes les particules décrites précédemment évoluent de manière significative dans le conduit d'évacuation des fumées. De plus, c'est dans la chambre de combustion et/ou dans ce conduit que se déroulent les mécanismes de formation décrits plus tôt. Les séries d'essais visant à caractériser l'évolution des particules dans le conduit a permis non seulement de définir les mécanismes de formation des différents types de particules, mais aussi de placer ces mécanismes dans une évolution globale de l'effluent gazeux dans lequel les particules existent. La Figure 5-8 schématise les résultats obtenus. Cette figure a été réalisée en considérant plusieurs hypothèses :

- le combustible est sec et sans écorces ;
- les évolutions des particules décrites se déroulent durant la combustion homogène ;
- la combustion est plutôt maîtrisée et les arrivées d'air sont optimales.

Ainsi, dans ces conditions de combustion, trois grandes familles de particules sont présentes dans la chambre de combustion :

- des nanoparticules peu ou pas agglomérées ;
- des morceaux de bois plus ou moins dégradé thermiquement ;
- des morceaux de charbon présentant une structure amorphe.

Les nanoparticules en présence ont été produites par le mécanisme décrit préalablement directement dans la chambre de combustion. Les morceaux de bois plus ou moins dégradé thermiquement et les morceaux de charbon sont des envolées.

Au point de référence, les particules de bois plus ou moins dégradé de la chambre de combustion ont poursuivi le mécanisme de dégradation, produisant ainsi de nouvelles nanoparticules non agglomérées. Pour rappel, ce mécanisme induit une volatilisation du OC. C'est la raison pour laquelle la concentration en COVT augmente tandis que la concentration en TSP diminue au point de référence par rapport à la chambre de combustion. Le mécanisme d'agglomération s'est aussi déroulé entre ces deux points. Ainsi, au point de référence, les agglomérats sont plus importants que dans la chambre de combustion, et les nanoparticules représentent une fraction plus faible du nombre total de particules. Ce phénomène explique pourquoi la granulométrie des particules est moins concentrée sur la fraction ultrafine au point de référence que dans la chambre de combustion. Le charbon amorphe observé dans la chambre de combustion ne semble pas avoir été modifié au point de référence. Cela est probablement dû à un temps de séjour trop faible.

Au point de prélèvement « sortie » (dilution inactive), les particules ont une fois de plus évolué considérablement par rapport au point de référence. Les particules de bois dégradé thermiquement restantes ont terminé leur transformation (puisque les niveaux de température le permettent), et des nanoparticules ont été produites. En revanche, la concentration en COVT n'a pas augmenté. Cela provient du fait que, contrairement à la chambre de combustion où plus de COVT étaient réemis plutôt qu'oxydés, cette fois, la production entre les deux points est inférieure à l'oxydation, conduisant ainsi à une diminution de la concentration en COVT. En revanche, la concentration en TSP diminue une fois de plus, pour

les mêmes raisons que précédemment (volatilisation de l'OC), mais surtout parce que des particules impactent sur le conduit de fumées. Le mécanisme d'agglomération des nanoparticules se poursuit, et les agglomérats sont de plus en plus importants, à la fois en nombre, en taille et en densité. La granulométrie des particules est donc modifiée, avec une diminution une fois de plus de la fraction ultrafine au profit de la fraction fine. Des morceaux de charbon avec une structure organisée sont prélevés en ce point, ainsi que du charbon présentant une structure quasi-graphitique. Cette dernière famille est probablement issue d'un décollement de particules de charbon du conduit.

Si la dilution est activée, le même mix particulaire est retrouvé dans les fumées. En revanche, les agglomérats de nanoparticules sont très importants, et les nanoparticules non agglomérées sont très rares. En effet, les niveaux de température n'ont pas permis de produire de nouvelles nanoparticules. La granulométrie évolue donc de manière similaire au cas précédent, c'est-à-dire que la fraction ultrafine perd en importance au profit de la fraction fine. Du fait du niveau de température faible, les réactions d'oxydation ne peuvent plus se dérouler. La concentration en COVT doit alors être constante, tout comme la concentration en TSP. Le charbon quasi-graphitique est à nouveau présent dans le mix particulaire. Des COSV condensés doivent aussi être identifiés en ce point. Ils n'ont pas été visualisés lors des essais, mais leur présence est certaine, étant donné la température du milieu (environ 20°C).

De plus, la quantité et la répartition des HAP16 présents dans les fumées varient selon la position de prélèvement. Le point de référence présente une concentration en HAP16 plus faible que dans la chambre de combustion, d'environ 0,4 mg.Nm⁻³ à 13% d'O₂. La quantité d'Acénaphthylène diminue de 61% alors que celle de Naphtalène ne diminue que de 33%. Pourtant, la répartition du Naphtalène sur les HAP16 augmente au point de référence au dépend de celle d'Acénaphthylène.

A la sortie (sans dilution), la quantité de HAP16 est divisée par 1,8 en moyenne. Les HAP sont dégradés de manière proportionnelle à leur température propre d'ébullition, ce qui n'était pas le cas entre la chambre de combustion et le point de référence. Cela signifie donc qu'une forte proportion des HAP, et plus généralement des COSV, condense sur les parois du conduit, provoquant le phénomène de goudronnage. Ainsi, le Naphtalène ayant la température d'ébullition la plus basse augmente de 5% en proportion à la sortie. Lorsque la dilution est active, simulant le champ proche, les HAP16 varient de manière identique entre le point de référence et la sortie.

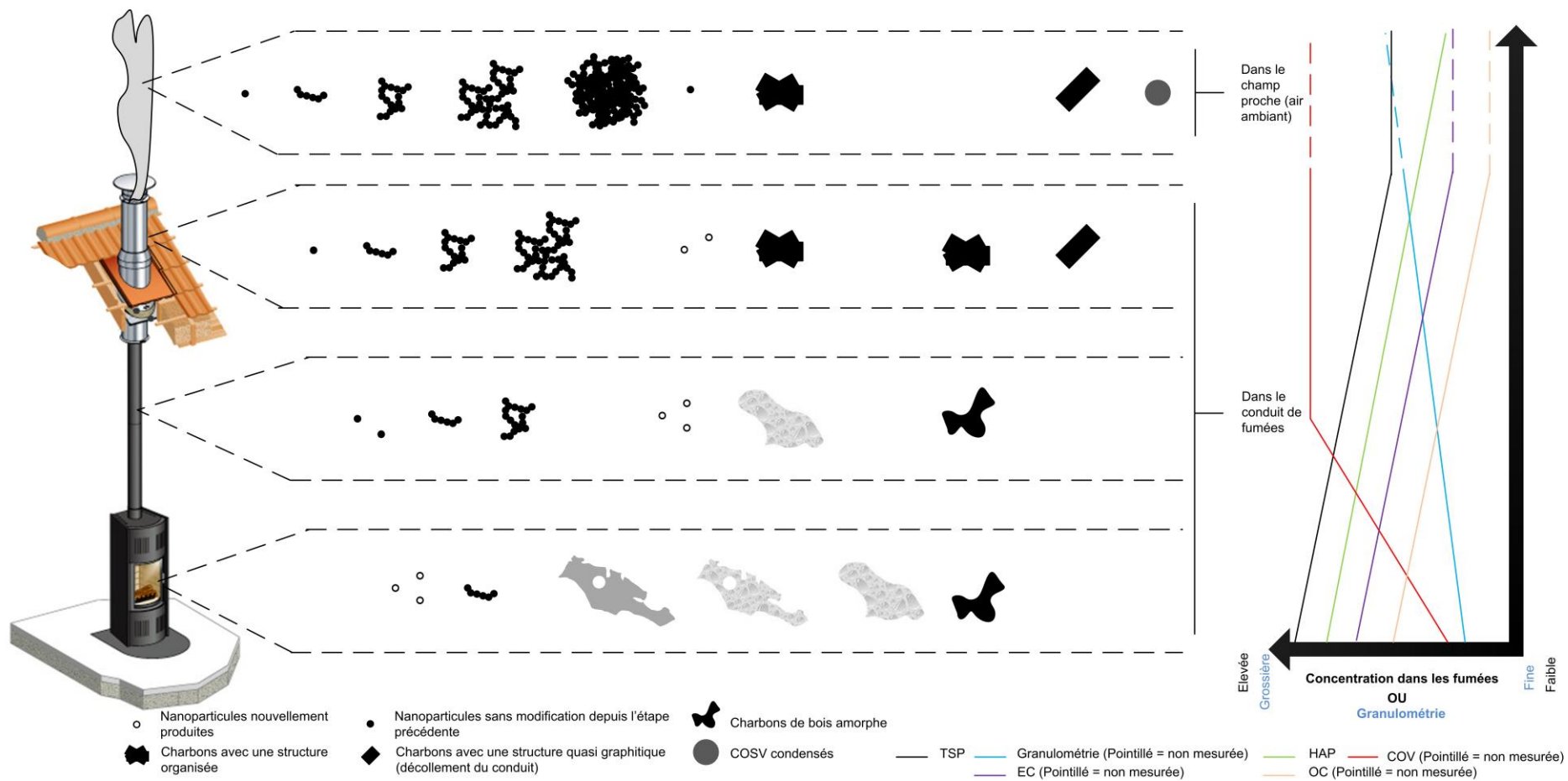


Figure 5-8 : Schéma de l'évolution des particules dans le conduit de fumées (conduit et appareil inspiré de [146])

5.3 Conclusion

Différents types de particules sont émis par la combustion de bois bûches dans des appareils domestique :

- particules de cendres ;
- particules de bois plus ou moins dégradé thermiquement ;
- particules de charbon avec une structure amorphe et/ou quasi-graphitique ;
- nano-cristaux de Silice et de Sodium ;
- nanoparticules non agglomérées ;
- agglomérats de nanoparticules de taille variable ;
- des COSV (dont des HAP) liquides ou gazeux précurseurs des SOA.

Les particules de cendres et de charbon amorphe proviennent d'envolées de cendres et de charbon de la chambre de combustion. Un design optimisé de l'appareil permet d'en limiter fortement l'émission.

Les particules de bois plus ou moins dégradé thermiquement et les HAP (liquides ou gazeux) sont émis par une combustion incomplète. L'optimisation de la combustion permet donc d'en limiter l'émission.

Les nano-cristaux proviennent de la combustion d'écorces et/ou de la combustion de bûches humides. Ainsi, le simple choix du combustible permet d'éliminer ces émissions.

Les particules de charbon quasi-graphitique proviennent d'un décollement de charbon du conduit d'évacuation des fumées. Un entretien régulier de l'installation permet donc de limiter fortement ces émissions.

En revanche, les nanoparticules et les agglomérats de nanoparticules sont des produits directs de la combustion du bois. A l'heure actuelle, aucune technique primaire ne permet d'en éliminer l'émission. Néanmoins, l'optimisation de la combustion réduit de manière significative les émissions de nanoparticules en masse, et donc d'agglomérats de nanoparticules dans l'air ambiant, bien que ces nanoparticules représentent une proportion des émissions plus importante. Il a été démontré dans ce travail qu'une faible température augmente significativement le mécanisme d'agglomération. Comme les agglomérats peuvent être plus facilement filtrés que les nanoparticules non agglomérées (du fait de leurs tailles), des systèmes forçant l'agglomération des nanoparticules pourraient faciliter la filtration.

CONCLUSION GENERALE

Ce travail a permis de répondre aux différents objectifs préalablement mis en évidence par l'étude bibliographique, pour rappel :

- déterminer les particules types émises par un appareil à bûches et un appareil à granulés ;
- évaluer l'incidence de la génération de l'appareil sur la globalité des émissions, et plus particulièrement sur les propriétés physico-chimiques des particules ;
- établir les impacts sur les émissions des différentes caractéristiques du combustible (essence, écorces, calibre, humidité, ...)
- définir pour chaque type d'aérosols (solides ou gazeux) les mécanismes de formations associés et les conditions nécessaires à leur formation ;
- déterminer l'évolution des particules dans le conduit de cheminée.

Afin de répondre à ces objectifs, de nouvelles méthodes de prélèvements et d'analyses ont été développées. En effet, à notre connaissance, aucune méthode ne permettait jusqu'alors de mesurer la teneur en OC/EC des particules issues de la combustion du bois et prélevées directement dans le conduit, sans dilution ni refroidissement des fumées. Une méthode a donc été mise au point, et permet jusqu'à l'analyse de filtres intégralement noirs à l'aide d'ajout de saccharose. La validation statistique de ce protocole a également permis de confirmer la reproductibilité de la méthodologie en toutes circonstances. Par ailleurs, une méthode prototype de mesure, rapide et peu coûteuse, du ratio OC/EC des particules basée sur la simple mesure de la couleur des filtres a été proposée. Cette nouvelle méthode doit être améliorée dans le futur afin d'augmenter sa précision.

En parallèle de ce travail et dans le cadre de la collaboration mise en place avec l'INRA pour cette thèse, de l'imagerie et de la microanalyse X des particules ont été menées à l'aide de nombreux équipements dont dispose le site INRA de Champenoux. Ainsi, une méthode de prélèvement dédiée à ces applications a été développée, encore une fois adaptée aux particules issues de la combustion du bois. En ce qui concerne l'imagerie des particules, le point sensible permettant d'obtenir une très bonne résolution était la métallisation des filtres. Pour la microanalyse X, nous avons utilisé un logiciel basé sur le modèle 'GSR Software' (Gun Shot Residue) de la police scientifique. L'objectif initial de ce type de logiciel est la détection automatique suivie d'une microanalyse X des résidus particulaires émis par une déflagration d'une arme à feu. Nous avons appliqué ce logiciel à des particules émises par la combustion du bois. De nombreux réglages ont donc été réalisés, et à l'heure actuelle plus de 100 000 particules ont ainsi été analysées.

Ces analyses innovantes ainsi que les mesures classiques ont été réalisées sur plus de vingt séries d'essais et pour chaque répétition, avec parfois plusieurs points de prélèvement en simultané. Une base de données importante a ainsi été produite, comportant de nombreux résultats et montrant l'influence de nombreux paramètres sur les caractéristiques physico-chimiques des particules.

Outre le développement de méthodes d'analyses innovantes, il a été démontré dans un premier temps que les émissions d'un appareil à bûches sont très spécifiques et non comparables à celles d'un appareil à granulés. Les émissions de HAP16 sont beaucoup plus élevées dans le cas de la combustion de bûches. De plus, la répartition de ces HAP était aussi différente. Pour les émissions particulaires, le même constat peut être dressé. En effet, le foyer fermé émet considérablement plus de particules en masse et en nombre ainsi que d'OC et d'EC. Le type même de nanoparticules diffère : 20 à 50 nm dans la combustion de bûches, 20 à 150 nm dans la combustion de granulés.

La combustion de bûches peut être décomposée en trois phases : l'allumage, la combustion homogène, la combustion hétérogène. Finalement, nous avons démontré que la majorité des émissions particulaires était produite durant la phase d'allumage.

De nombreux types de particules ont été mis en évidence durant cette étude. Les envolées de cendres sont majoritairement émises par des appareils peu performants. Les appareils récents, de par leur technologie et leur design, en ont réduit significativement ces émissions. Les émissions de particules de charbon, composées majoritairement d'EC, peuvent être considérablement limitées en ramonant l'installation de manière fréquente. Les particules de bois, plus ou moins dégradé thermiquement, peuvent être complètement supprimées si la combustion est bien maîtrisée. Il en va de même pour les émissions de HAP et de COVT (précurseurs à la formation de particules dans l'atmosphère). Les émissions de nano-cristaux résultent de l'utilisation d'un combustible ayant de l'écorce, ou de la fermeture des arrivées d'air. Ainsi, une sélection du combustible et un réglage de l'appareil permettent d'éviter leur émission en nano-cristaux. En revanche, les nanoparticules sont toujours produites par une combustion. De plus, lorsque la combustion est maîtrisée, le nombre de nanoparticules augmente.

Les émissions varient aussi selon la génération de l'appareil. Globalement, un appareil récent induit des émissions (de la majorité des polluants) considérablement réduites, mais produit des particules plus fines. Par exemple, un appareil étanche de 2012 émet en moyenne huit fois moins de particules en masse qu'un appareil traditionnel des années 2000. En revanche, la fraction ultrafine représente alors 90% en nombre des particules, contre seulement 65% en moyenne pour des appareils d'avant 2006. Les nanoparticules de 20-50 nm sont donc bien le fruit d'une combustion maîtrisée. Ces nanoparticules représentent ainsi un problème majeur, puisque toutes les autres émissions peuvent être réduites en améliorant la combustion. Pour obtenir une émission nulle en particules, il faudra développer des moyens de filtration de ces nanoparticules, ce qui paraît de prime abord très compliqué.

Néanmoins, nous avons aussi démontré que ces nanoparticules s'aggloméraient entre leur point de production et l'évacuation des fumées. Cette agglomération est par ailleurs intimement liée au niveau de température : si les fumées, et donc les nanoparticules, évoluent dans un milieu à faible température, des agglomérats plus importants se formeront. Or, les agglomérats sont sans aucun doute plus facilement filtrables, de par leur taille. Un système favorisant l'agglomération puis filtrant les agglomérats diminuerait donc de manière significative les émissions de particules du chauffage domestique au bois.

Le chauffage domestique au bois a donc un avenir certain. Cependant, pour que cet avenir soit pérenne, cette énergie doit s'adapter aux contraintes environnementales actuelles et futures. L'amélioration des appareils est une voie prometteuse, mais les avancées technologiques ne permettront pas d'élucider de manière définitive la problématique des particules fines.

Ainsi, deux nouvelles problématiques émergent clairement de ce travail. En premier lieu, une réflexion doit être menée pour former les utilisateurs d'appareils de chauffage domestique au bois de manière efficace et globale. La réduction des émissions du chauffage domestique au bois ne peut être efficace et effective sans la participation d'utilisateurs avertis et « éduqués ». Néanmoins, comme expliqué précédemment, une combustion parfaitement maîtrisée produira tout de même des nanoparticules. Il est donc primordial de développer des systèmes de traitement des particules des fumées en connaissance de leur évolution dans le conduit d'évacuation des fumées. Un système s'appuyant sur le phénomène d'agglomération des nanoparticules semble être une alternative intéressante.

Durant le temps d'éducation des utilisateurs et de développement de systèmes de dépollutions adaptés au chauffage domestique au bois, des systèmes simples permettant d'évaluer les caractéristiques des particules émises pourraient être développés, comme notamment la mesure de la couleur des filtres. Ainsi, des campagnes de mesures chez les particuliers pourraient permettre d'évaluer la quantité et la composition en Carbone Organique et Carbone Élémentaire réelle des particules émises. Des collaborations avec les médecins pourraient permettre d'évaluer la toxicité réelle des particules émises.

Pour conclure, le développement du chauffage domestique au bois ne peut être pérenne que s'il évolue. A court terme, les deux axes majeurs sont clairement l'éducation des utilisateurs et le renouvellement du parc. Ensuite, à moyen terme, en parallèle du développement de système de traitement des fumées, les émissions d'imbrûlés gazeux, comme le monoxyde de Carbone, les COV ou encore les HAP, doivent être considérablement réduites. Cette réduction doit être le fruit d'une avancée technologique des appareils.

Références

- [1] Commissariat Général au développement Durable, « Chiffres clés de l'énergie, Edition 2015 », févr. 2016.
- [2] Commissariat Général au développement Durable, « Bilan énergétique de la France pour 2014 », juill. 2015.
- [3] Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat, « Changements Climatiques 2007, rapport de synthèse », 2007.
- [4] Grenelle de l'environnement, « Comité opérationnel n° 10, PLAN DE DÉVELOPPEMENT DES ÉNERGIES RENOUVELABLES À HAUTE QUALITÉ ENVIRONNEMENTALE », 2007.
- [5] Assemblée Nationale, « Rapport d'information sur la biomasse au service du développement durable », juin 2013.
- [6] ADEME, « Chiffres clés climat air énergie 2014 », Etude, Rapport, févr. 2015.
- [7] Commissariat Général au développement Durable, « Chiffres clés des énergies renouvelables, Edition 2015 », 2015.
- [8] Syndicat des Energies Renouvelables, « Annuaire de la filière française du bois énergie et biocombustibles solides, secteurs collectif, tertiaire et industriel, 2013-2014 », 2014.
- [9] G. Blonder, « wood fuel for barbecue ». [En ligne]. Disponible sur: <http://www.genuineideas.com/ArticlesIndex/srawoodfuel.html>. [Consulté le: 30-août-2016].
- [10] V. L. Sjaak et K. Jaap, *The Handbook of Biomass Combustion and Co-firing*. 2008.
- [11] F. P. L. (u.s.) et F. L. (Frederick L. Browne, *Theories of the combustion of wood and its control*. Madison, Wis. : U.S. Dept. of Agriculture, Forest Service, Forest Products Laboratory, 1958.
- [12] X. Déglise, « Les conversions thermochimiques du bois », vol. n°34 Revue forestière française, 1982.
- [13] Syndicat des Energies Renouvelables, « Annuaire des acteurs industriels français du chauffage au bois domestique ».
- [14] ADEME, Solagro, Biomasse Normandie, et BVA, « Etude sur le chauffage domestique au bois: Marchés et Approvisionnement », 2013.
- [15] Observ'ER, « Suivi du marché 2015 des appareils domestiques de chauffage au bois », mars 2016.
- [16] Y. Rogaume, « Production de chaleur à partir du bois - Combustible et appareillage », Techniques de l'ingénieur, 10 avr. 2005.
- [17] PROPELLET FRANCE, « Guide du Granulé », 2012.
- [18] « Forinvest Business Angels : association de forestiers investisseurs pour le financement des entreprises et le développement de la filière forêt bois en France » Les chiffres de la filière granulé de bois en 2015 », 2015.
- [19] ADEME et Bio Intelligence Service, « Bilan environnemental du chauffage collectif (avec réseau de chaleur) et industriel au bois », déc. 2005.
- [20] CITEPA, « CITEPA / Format Secten 2015 (mis à jour juin 2016) », 2016.
- [21] ADEME, « PEREN²BOIS: Evaluation technico-économique des performances énergétiques et environnementales des meilleures techniques disponibles de réduction des émissions de poussière fines et de composés organiques pour les appareils de combustion domestique utilisant la biomasse. », avr. 2012.

- [22] Office fédéral de l'environnement (OFEV), Département fédéral de l'environnement, des transports, de l'énergie et de la communication (DETEC), et Confédération Suisse, « Liste des gaz à effet de serre anthropiques », 2010.
- [23] INERIS, « Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAPs) », 2003.
- [24] H. Huang et A. Buekens, « On the mechanisms of dioxin formation in combustion processes », *Chemosphere*, vol. 31, n° 9, p. 4099–4117, 1995.
- [25] A. Rabl, J. V. Spadaro, et P. D. McGavran, « Health risks of air pollution from incinerators: a perspective », *Waste Manag. Res.*, vol. 16, n° 4, p. 365–388, 1998.
- [26] C. Hueglin, C. Gaegauf, S. Künzel, et H. Burtscher, « Characterization of Wood Combustion Particles: Morphology, Mobility, and Photoelectric Activity », *Environ. Sci. Technol.*, vol. 31, n° 12, p. 3439-3447, déc. 1997.
- [27] J. Kjällstrand et M. Olsson, « Chimney emissions from small-scale burning of pellets and fuelwood—examples referring to different combustion appliances », *Biomass Bioenergy*, vol. 27, n° 6, p. 557–561, 2004.
- [28] K. J. Loo Van S, *Handbook of Biomass Combustion and Co-Firing*. Twente University Press, ISBN, 2002.
- [29] G. Bruno, « Les aérosols : émissions, formation d'aérosols organiques secondaires, transport longue distance - Zoom sur les aérosols carbonés en Europe - », Manuscrit de doctorat, 2007.
- [30] C. Bauschlicher et A. Ricca, « Mechanisms for polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) growth », *Chemical Physics Letters*, 326, p283, 2000.
- [31] T. E. McGrath, W. G. Chan, et M. R. Hajaligol, « Low temperature mechanism for the formation of polycyclic aromatic hydrocarbons from the pyrolysis of cellulose », *J. Anal. Appl. Pyrolysis*, vol. 66, no 1, p. 51–70, 2003..
- [32] J. A. Koziński et R. Saade, « Effect of biomass burning on the formation of soot particles and heavy hydrocarbons. An experimental study », *Fuel*, vol. 77, n° 4, p. 225-237, mars 1998.
- [33] B. M. Jenkins, A. Daniel Jones, S. Q. Turn, et R. B. Williams, « Particle concentrations, gas-particle partitioning, and species intercorrelations for polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) emitted during biomass burning », *Atmos. Environ.*, vol. 30, n° 22, p. 3825–3835, 1996.
- [34] J. D. McDonald, B. Zielinska, E. M. Fujita, J. C. Sagebiel, J. C. Chow, et J. G. Watson, « Fine particle and gaseous emission rates from residential wood combustion », *Environ. Sci. Technol.*, vol. 34, n° 11, p. 2080–2091, 2000.
- [35] I. Gulyurtlu, D. Karunaratne, et I. Cabrita, « The study of the effect of operating parameters on the PAH formation during the combustion of coconut shell in a fluidised bed », *Fuel*, vol. 82, n° 2, p. 215–223, 2003.
- [36] J. Kesselmeier et M. Staudt, « Biogenic volatile organic compounds (VOC): an overview on emission, physiology and ecology », *J. Atmospheric Chem.*, vol. 33, no 1, p. 23–88, 1999..
- [37] M.-L. Rabot-Querci, « Etude d'un dispositif de traitement des imbrûlés des appareils de chauffage indépendants au bois », Manuscrit de doctorat, Nancy 1, 2006.
- [38] Y. Zeldovich, « The oxydation of nitrogen in combustion and explosions », 1946.
- [39] Y. Rogaume, « Physico-chimie de la dégradation thermique des molécules azotées : Cas du polyamide et du polyuréthane », Manuscrit de doctorat, 1999.
- [40] P. Flament et G. Martin, « Les émissions de NOx par les foyers fixes de combustion », avr. 1990.
- [41] J. A. Miller et C. T. Bowman, « Mechanism and modeling of nitrogen chemistry in combustion », *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 15, no 4, p. 287–338, 1989.

- [42] C. T. Bowman, « Control of combustion-generated nitrogen oxide emissions: technology driven by regulation », in Symposium (International) on Combustion, 1992, vol. 24, p. 859–878.
- [43] C. Morley, « The formation and destruction of hydrogen cyanide from atmospheric and fuel nitrogen in rich atmospheric-pressure flames », *Combust. Flame*, vol. 27, p. 189–204, 1976.
- [44] C. Morley, « The mechanism of NO formation from nitrogen compounds in hydrogen flames studied by laser fluorescence », in Symposium (International) on Combustion, vol. 18, p. 23–32, 1981.
- [45] G. G. De Soete, Mechanisms of nitrogen oxides formation and destruction during combustion, *International Journal of Thermal Sciences*, 28(330), 353-373 1989.
- [46] T. Nussbaumer, Overview on technologies for biomass combustion and emission levels of particulate matter, Swiss Federal Office for the Environment (FOEN), Zürich, Switzerland, juin 2010.
- [47] L. S. Johansson, B. Leckner, L. Gustavsson, D. Cooper, C. Tullin, et A. Potter, « Emission characteristics of modern and old-type residential boilers fired with wood logs and wood pellets », *Atmos. Environ.*, vol. 38, n° 25, p. 4183-4195, août 2004.
- [48] AFNOR, *NF EN 13229 : Foyers ouverts et inserts à combustibles solides - Exigences et méthodes d'essai*. 2002.
- [49] AFNOR, *NF EN 13229/A1 : Foyers ouverts et inserts à combustibles solides - Exigences et méthodes d'essai*. 2003.
- [50] AFNOR, *NF EN 13229/A2 : Foyers ouverts et inserts à combustibles solides - Exigences et méthodes d'essai*. 2005.
- [51] AFNOR, *NF EN 13240 : Poêles à combustible solide - Exigences et méthodes d'essai*. 2002.
- [52] AFNOR, *NF EN 13240/A2 : Poêles à combustible solide -Exigences et méthodes d'essai*. 2005.
- [53] AFNOR, *NF EN 14785 : Appareils de chauffage domestique à convection à granulés de bois - Exigences et méthodes d'essai*. 2006.
- [54] AFNOR, *Pr NF EN 16510 : Equipement de chauffage domestique*. 2013.
- [55] AFNOR, *NF EN 15250 : Appareils de chauffage domestique à combustible solide à libération lente de chaleur - Exigences et méthodes d'essai*. 2007.
- [56] AFNOR, *Pr NF EN 15250 : Appareils de chauffage à combustible solide à libération lente - Exigences et méthodes d'essai*. 2013.
- [57] ADEME, « Chauffage au bois labellisé », 2011.
- [58] ADEME et Syndicat des Energies Renouvelables, « Charte de qualité “Flamme Verte”, Appareils de chauffage indépendants au bois », 2014.
- [59] J. I. Seinfeld et S. N. Pandis, « Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change », *Environ. Sci. Policy Sustain. Dev.*, vol. 40, n° 7, p. 26-26, 1998.
- [60] O. US EPA, « Particulate Matter ». [En ligne]. Disponible sur: <http://www.epa.gov/airscience/air-particulatematter.htm>. [Consulté le: 09-avr-2014].
- [61] F. Cavalli *et al.*, « Advances in characterization of size-resolved organic matter in marine aerosol over the North Atlantic », *J. Geophys. Res. Atmospheres 1984–2012*, vol. 109, n° D24, 2004.
- [62] T. J. Christian *et al.*, Comprehensive laboratory measurements of biomass-burning emissions: 1. Emissions from Indonesian, African, and other fuels, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, vol. 108, n° D23, 2003.
- [63] S. . Urbanski, W. M. Hao, et S. Baker, « Chemical Composition of Wildland Fire Emissions », *Developments in Environmental Science*, p. 79-108, 2009.

- [64] R. Jaenicke, « Abundance of cellular material and proteins in the atmosphere », *Science*, vol. 308, n° 5718, p. 73-73, avr. 2005.
- [65] J. L. Battarbee, N. L. Rose, et X. Long, « A continuous, high resolution record of urban airborne particulates suitable for retrospective microscopical analysis », *Atmos. Environ.*, vol. 31, n° 2, p. 171-181, janv. 1997.
- [66] M. Glikson, S. Rutherford, R. W. Simpson, C. A. Mitchell, et A. Yago, « Microscopic and submicron components of atmospheric particulate matter during high asthma periods in Brisbane, Queensland, Australia », *Atmos. Environ.*, vol. 29, n° 4, p. 549-562, mars 1995.
- [67] T. A. Mather, D. M. Pyle, et C. Oppenheimer, « Tropospheric volcanic aerosol », *Geophys. Monogr. Ser.*, vol. 139, p. 189-212, 2003.
- [68] J. O. Nriagu, « A global assessment of natural sources of atmospheric trace metals », *Nature*, vol. 338, n° 6210, p. 47-49, mars 1989.
- [69] J. Lewtas, « Air pollution combustion emissions: Characterization of causative agents and mechanisms associated with cancer, reproductive, and cardiovascular effects », *Mutat. Res. Mutat. Res.*, vol. 636, n° 1-3, p. 95-133, nov. 2007.
- [70] J. Löndahl *et al.*, « Deposition of biomass combustion aerosol particles in the human respiratory tract », *Inhal. Toxicol.*, vol. 20, n° 10, p. 923-933, 2008.
- [71] Plan Régional Santé Environnement et Agence Régionale de la Santé, « Air PACA, Qualité de l'Air /html/particules_fines.php », 2013. [En ligne]. Disponible sur: http://www.atmopaca.org/html/particules_fines.php. [Consulté le: 03-juin-2014].
- [72] A. Markus *et al.*, « Baseline Scenarios for the Clean Air for Europe (CAFE) Programme », févr. 2005.
- [73] D.W. Dockery, « New England J. Med. , Vol 329 », pp. 1753-1759, 1993.
- [74] International Energy Agency (IEA), United Nations Development Programme (UNDP), et United Nations Industrial Development Organization (UNIDO), « Energy poverty: How to make modern energy access universal? Special early excerpt of the World Energy Outlook 2010 for the UN General Assembly on the Millennium Development Goals », sept. 2010.
- [75] T. Nussbaumer, N. Klippel, et M. Oser, « Health Relevance of Aerosols from Biomass Combustion in Comparison to Diesel Soot Indicated by Cytotoxicity Tests », *Blood Cells*, vol. 7, p. 8, 2005.
- [76] M. Tapanainen *et al.*, « In vitro immunotoxic and genotoxic activities of particles emitted from two different small-scale wood combustion appliances », *Atmos. Environ.*, vol. 45, n° 40, p. 7546-7554, déc. 2011.
- [77] R. Gieré et X. Querol, « Solid particulate matter in the atmosphere », *Elements*, vol. 6, n° 4, p. 215-222, 2010.
- [78] R. Gieré, M. Blackford, et K. Smith, « TEM study of PM_{2.5} emitted from coal and tire combustion in a thermal power station », *Environ. Sci. Technol.*, vol. 40, n° 20, p. 6235-6240, 2006.
- [79] J. S. Lighty, J. M. Veranth, et A. F. Sarofim, « Combustion aerosols: factors governing their size and composition and implications to human health », *J. Air Waste Manag. Assoc.*, vol. 50, n° 9, p. 1565-1618, 2000.
- [80] C. Piot, « Polluants atmosphériques organiques particulaires en Rhône-Alpes: caractérisation chimique et sources d'émissions », Manuscrit de doctorat, Grenoble, 2011.
- [81] Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), « Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change », 2007.
- [82] *Décret n°2010-1250 relatif à la qualité de l'air*. 2010.

- [83] Directive n° 2008/50/CE. 2008.
- [84] Airparif, « Airparif - Réglementation - Normes françaises ». [En ligne]. Disponible sur: <http://www.airparif.asso.fr/reglementation/normes-francaises>. [Consulté le: 16-sept-2016].
- [85] IGBE, Fiche 23 « Les particules fines (PM10, PM2,5) ». 2009.
- [86] I. . Smith et L. . Sloss, « IEA Coal Research. London, UK », 1998.
- [87] L. S. Johansson, « Characterization of particle emission from small-scale biomass combustion », Manuscrit de doctorat, 2002.
- [88] M. Frenklach, H. Wang, et H. Bockhorn, « Soot Formation in Combustion », *Springer-Verl. Berl.*, vol. 165, 1994.
- [89] A. F. Sarofim et J. J. Helble, « The impact of ash deposition on coal fired plants », in *Proceedings of the engineering foundation conference, England*, 1993.
- [90] R. W. Bryers, « Fireside slagging, fouling, and high-temperature corrosion of heat-transfer surface due to impurities in steam-raising fuels », *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 22, n° 1, p. 29–120, 1996.
- [91] E. Hedberg *et al.*, « Chemical and physical characterization of emissions from birch wood combustion in a wood stove », *Atmos. Environ.*, vol. 36, n° 30, p. 4823–4837, 2002.
- [92] (WHO) World Health Organization, « Health Effects of Black Carbon », 2012.
- [93] P. M. Fine, G. R. Cass, et B. R. Simoneit, « Chemical characterization of fine particle emissions from fireplace combustion of woods grown in the northeastern United States », *Environ. Sci. Technol.*, vol. 35, n° 13, p. 2665–2675, 2001.
- [94] Airparif, « Origine des particules en Île de France », sept. 2011.
- [95] C. Rogaume, Y. Rogaume, G. TROUVE, et A. ZOULALIAN, « Diagnostic environnemental du chauffage au bois dans des appareils indépendants Environmental Assessment of wood burning in independent heating devices », *Pollut. Atmos.*, vol. 135, 2009.
- [96] B. R. T. Simoneit *et al.*, « Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles », *Atmos. Environ.*, vol. 33, n° 2, p. 173-182, janv. 1999.
- [97] C. A. Pio *et al.*, « Chemical composition of atmospheric aerosols during the 2003 summer intense forest fire period », *Atmos. Environ.*, vol. 42, n° 32, p. 7530-7543, oct. 2008.
- [98] Y. N. Samsonov *et al.*, « Particulate emissions from fires in central Siberian Scots pine forests », *Can. J. For. Res.*, vol. 35, n° 9, p. 2207-2217, sept. 2005.
- [99] Ministère de l'écologie, du développement durable, des transports et du logement, Ministère du travail, de l'emploi et de la santé, et Ministère de l'agriculture, de l'alimentation, de la pêche, de la ruralité et de l'aménagement du territoire, *Circulaire du 18 novembre 2011 relative à l'interdiction du brûlage à l'air libre des déchets verts.*
- [100] Syndicat des Energies Renouvelables, « Détails de la feuille de route du Grenelle », juin 2006.
- [101] ADEME, « Evaluation Prospective 2020-2050 de la contribution du secteur Biomasse Energie aux émissions nationales de polluants atmosphériques », nov. 2009.
- [102] J. Tissari, K. Hytönen, O. Sippula, et J. Jokiniemi, « The effects of operating conditions on emissions from masonry heaters and sauna stoves », *Biomass Bioenergy*, vol. 33, n° 3, p. 513-520, mars 2009.
- [103] U. Zuberbühler, G. Baumbach, et D. Straub, « Fine particle emissions from wood combustion in different firing systems – 6° International Conference on Technologies and Combustion for a Clean Environment », p. 1277-1280, juill. 2001.

- [104] U. Wieser et C. Gaegauf, « Nanoparticle emissions of wood combustion processes – 1st World Conference and Exhibition on Biomass for Energy, Sevilla, Spain », p. 805-808, 2000.
- [105] H. Tsuji, H. Makino, et H. Yoshida, « Classification and collection of fine particles by means of backward sampling », *Powder Technol.*, vol. 118, n° 1–2, p. 45-52, août 2001.
- [106] ADEME, « Programme Européen EN_PME_TEST relatif à la validation d'une méthode commune au niveau européen de détermination des émissions de particules des appareils de chauffage domestique à combustibles solides, Synthèse annuelle n°1. », janv. 2014.
- [107] AFNOR, *NF EN 14774-2 : Détermination de la teneur en humidité - Méthode par séchage à l'étuve*. 2010.
- [108] AFNOR, *NF EN 14918 : Biocombustibles solides - Détermination du pouvoir calorifique*. 2010.
- [109] AFNOR, *NF EN ISO 18122 : Biocombustibles solides - Méthode de détermination de la teneur en cendres*. 2015.
- [110] ADEME, POUJOULAT, LERMAB, Seguin Duteriez, et D2I Groupe Invicta, « QUALICOMB: REDUCTION A LA SOURCE DES EMISSIONS ISSUES DU CHAUFFAGE DOMESTIQUE AU BOIS PAR USAGE DE COMBUSTIBLES DE QUALITE », 2016.
- [111] AFNOR, *NF EN 13284-2 : Émissions de sources fixes - Détermination des faibles concentrations en masse de poussières - Partie 2 : systèmes automatiques de mesure*. 2004.
- [112] EPA, *US EPA Method 5 : Determination of particulate matter emission from stationary sources*. .
- [113] EPA, *US EPA Method 17 : Determination of particulate matter emissions from stationary sources*. .
- [114] AFNOR, *NF X43-329 : Emissions de sources fixes - Prélèvement et mesurage d'hydrocarbures aromatiques polycycliques à l'émissions*. 2003.
- [115] ADEME, « Rapport Final du projet CORTEA "Espace Bois: Etude de la sensibilité des paramètres de fonctionnement des appareils de chauffage domestique au bois sur la composition et l'émission des particules fines" ». », oct. 2014.
- [116] F. Cavalli, M. Viana, K. E. Yttri, J. Genberg, et J.-P. Putaud, « Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol », *Atmospheric Meas. Tech.*, vol. 3, n° 1, p. 79–89, 2010.
- [117] J. J. Schauer *et al.*, « ACE-Asia Intercomparison of a Thermal-Optical Method for the Determination of Particle-Phase Organic and Elemental Carbon », *Environ. Sci. Technol.*, vol. 37, n° 5, p. 993-1001, mars 2003.
- [118] S. S. Park *et al.*, « Evaluation of the TMO and TOT methods for OC and EC measurements and their characteristics in PM 2.5 at an urban site of Korea during ACE-Asia », *Atmos. Environ.*, vol. 39, n° 28, p. 5101–5112, 2005.
- [119] S. S. Park, Y. J. Kim, et K. Fung, « PM 2.5 carbon measurements in two urban areas: Seoul and Kwangju, Korea », *Atmos. Environ.*, vol. 36, n° 8, p. 1287–1297, 2002.
- [120] C. Schauer, R. Niessner, et U. Pöschl, « Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Urban Air Particulate Matter: Decadal and Seasonal Trends, Chemical Degradation, and Sampling Artifacts », *Environ. Sci. Technol.*, vol. 37, n° 13, p. 2861-2868, juill. 2003.
- [121] J. J. Schauer, M. J. Kleeman, G. R. Cass, et B. R. T. Simoneit, « Measurement of Emissions from Air Pollution Sources. 3. C1–C29 Organic Compounds from

- Fireplace Combustion of Wood », *Environ. Sci. Technol.*, vol. 35, n° 9, p. 1716-1728, mai 2001.
- [122] Groupement National de Microscopie Electronique à Balayage et de microAnalyses, *Microscopie électronique à balayage et Microanalyses*. François Brisset, 2006.
- [123] O. Sippula, K. Hytönen, J. Tissari, T. Raunemaa, et J. Jokiniemi, « Effect of Wood Fuel on the Emissions from a Top-Feed Pellet Stove », *Energy Fuels*, vol. 21, n° 2, p. 1151-1160, mars 2007.
- [124] L. S. Johansson, C. Tullin, B. Leckner, et P. Sjövall, « Particle emissions from biomass combustion in small combustors », *Biomass Bioenergy*, vol. 25, n° 4, p. 435-446, oct. 2003.
- [125] S. C. van Lith, V. Alonso-Ramírez, P. A. Jensen, F. J. Frandsen, et P. Glarborg, « Release of Inorganic Elements during Wood Combustion. Release to the Gas Phase of Inorganic Elements during: Wood Combustion. Part 1: Development and Evaluation of Quantification Methods », *Energy Fuels*, 2006.
- [126] S. C. van Lith, P. A. Jensen, F. J. Frandsen, et P. Glarborg, « Release to the gas phase of inorganic elements during wood combustion. Part 2: influence of fuel composition », *Energy Fuels*, vol. 22, n° 3, p. 1598–1609, 2008.
- [127] J. N. Knudsen, P. A. Jensen, W. Lin, F. J. Frandsen, et K. Dam-Johansen, « Sulfur transformations during thermal conversion of herbaceous biomass », *Energy Fuels*, vol. 18, n° 3, p. 810–819, 2004.
- [128] J. N. Knudsen, P. A. Jensen, et K. Dam-Johansen, « Transformation and release to the gas phase of Cl, K, and S during combustion of annual biomass », *Energy Fuels*, vol. 18, n° 5, p. 1385–1399, 2004.
- [129] D. C. Dayton *et al.*, « Release of inorganic constituents from leached biomass during thermal conversion », *Energy Fuels*, vol. 13, n° 4, p. 860–870, 1999.
- [130] E. Vainio *et al.*, « Fate of fuel-bound nitrogen and sulfur in biomass-fired Industrial boilers », Manuscrit de doctorat, 2014.
- [131] J. Schneider *et al.*, « Mass spectrometric analysis and aerodynamic properties of various types of combustion-related aerosol particles », *Int. J. Mass Spectrom.*, vol. 258, n° 1–3, p. 37-49, déc. 2006.
- [132] J. Tissari *et al.*, « Fine particle and gaseous emissions from normal and smouldering wood combustion in a conventional masonry heater », *Atmos. Environ.*, vol. 42, n° 34, p. 7862-7873, nov. 2008.
- [133] J. A. Rau, « Composition and size distribution of residential wood smoke particles », *Aerosol Sci. Technol.*, vol. 10, n° 1, p. 181–192, 1989.
- [134] P. H. Hasler, T. H. Nussbaumer, et others, « Particle size distribution of the fly ash from biomass combustion », in *Proceedings of the 10th European Conference and Technology Exhibition*, 1998, p. 8–11.
- [135] M. Wöhler *et al.*, « Investigation of real life operation of biomass room heating appliances – Results of a European survey », *Appl. Energy*, vol. 169, p. 240-249, mai 2016.
- [136] E. D. Vicente, M. A. Duarte, A. I. Calvo, T. F. Nunes, L. Tarelho, et C. A. Alves, « Emission of carbon monoxide, total hydrocarbons and particulate matter during wood combustion in a stove operating under distinct conditions », *Fuel Process. Technol.*, vol. 131, p. 182–192, 2015.
- [137] B. Miljevic *et al.*, « Oxidative potential of logwood and pellet burning particles assessed by a novel profluorescent nitroxide probe », *Environ. Sci. Technol.*, vol. 44, n° 17, p. 6601–6607, 2010.

- [138] E. D. Vicente *et al.*, « Influence of operating conditions on chemical composition of particulate matter emissions from residential combustion », *Atmospheric Res.*, vol. 166, p. 92–100, 2015.
- [139] E. Pettersson, C. Boman, R. Westerholm, D. Boström, et A. Nordin, « Stove Performance and Emission Characteristics in Residential Wood Log and Pellet Combustion, Part 2: Wood Stove », *Energy Fuels*, vol. 25, n° 1, p. 315-323, janv. 2011.
- [140] L. S. Bäfver, B. Leckner, C. Tullin, et M. Berntsen, « Particle emissions from pellets stoves and modern and old-type wood stoves », *Biomass Bioenergy*, vol. 35, n° 8, p. 3648-3655, août 2011.
- [141] R. K. Chakrabarty *et al.*, « Brown carbon in tar balls from smoldering biomass combustion », *Atmos Chem Phys*, vol. 10, n° 13, p. 6363-6370, juill. 2010.
- [142] G. Reichert *et al.*, « Investigation of user behavior and assessment of typical operation mode for different types of firewood room heating appliances in Austria », *Renew. Energy*, vol. 93, p. 245-254, août 2016.
- [143] G. Shen *et al.*, « Influence of fuel moisture, charge size, feeding rate and air ventilation conditions on the emissions of PM, OC, EC, parent PAHs, and their derivatives from residential wood combustion », *J. Environ. Sci.*, vol. 25, n° 9, p. 1808-1816, sept. 2013.
- [144] S. Froeschke, S. Kohler, A. P. Weber, et G. Kasper, « Impact fragmentation of nanoparticle agglomerates », *J. Aerosol Sci.*, vol. 34, n° 3, p. 275-287, mars 2003.
- [145] J. Jiang, G. Oberdörster, et P. Biswas, « Characterization of size, surface charge, and agglomeration state of nanoparticle dispersions for toxicological studies », *J. Nanoparticle Res.*, vol. 11, n° 1, p. 77-89, juin 2008.
- [146] « Les Conduits - Chauffage Bois et Pellets ». [En ligne]. Disponible sur: <http://chauffageboispellets.com/17.html>. [Consulté le: 13-sept-2016].

A.ANNEXES: LISTES DES ABRÉVIATIONS

Les abréviations sont triées par ordre d'apparition dans le manuscrit.

Energie primaire : Première forme d'énergie disponible dans la nature avant toute transformation

Energie finale : L'énergie livrée aux consommateurs (ne prend pas en compte les rendements)

Energie utile : L'énergie utilisée par les consommateurs (prend en compte les rendements)

SER : Syndicat des Energies Renouvelables

ENR : Énergie Renouvelable

ENRt : ENR thermique

PAC : Pompe A Chaleur

ADEME : Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie

CO : Monoxyde de Carbone

H₂ : Dihydrogène

PCI : Pouvoir Calorifique Inférieur (en kJ.kg⁻¹ ou kcal.kg⁻¹)

PCIh : PCI humide (en kJ.kg⁻¹ ou kcal.kg⁻¹)

PCIs : PCI sec (en kJ.kg⁻¹ ou kcal.kg⁻¹)

Hb : Humidité sur brut (en %)

PCS : Pouvoir Calorifique Supérieur(en kJ.kg⁻¹ ou kcal.kg⁻¹)

CO₂ : Dioxyde de Carbone

NO_x : Oxydes d'Azote ; **NO** : Monoxyde d'Azote ; **NO₂** : Dioxyde d'Azote

SO₂ : Dioxyde de Soufre

SO_x : Oxydes de Soufre

HAP : Hydrocarbure Aromatique Polycyclique

HAP₄, **HAP₈** et **HAP₁₆** : La valeur dépend du nombre de HAP mesurés

PME : Emission de Particules Primaires

PM₁₀, **PM_{2,5}**, **PM₁**, **PM_{0,1}** : Particules de diamètre inférieur à 10, 2,5, 1 ou 0,1 µm

CITEPA : Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique

ITEQ : Indice de Toxicité EQuivalente

COV (VOC) : Composé Organique Volatil

COVT (TVOC) : COV Totaux

COVNM : COV Non-Méthanique

COVV (VVOC) : Composé Organique très Volatil

COSV (SVOC) : Composé Organique Semi-Volatil

HCl : Acide chlorhydrique

AOP (POA) : Aérosol Organique Primaire

AOS (SOA) : Aérosol Organique Secondaire

COG (OGC) : Composé Organique Gazeux

COC : Composé Organique Condensable

CH₄ : Méthane
C₃H₈ : Propane
C₂H₂ : Acétylène
N₂O : Protoxyde d'Azote
NH₃ : Ammoniac
HCN : Acide cyanhydrique
HNCO : Acide isocyanique
SP : Particules Solides, obtenues via un prélèvement sur filtre chaud
DT : Tunnel à Dilution
TSP : Particules Totales en Suspension
FV : Flamme Verte
PPA : Plan de Protection de l'Atmosphère
GIEC : Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat (**IPCC** : Intergovernmental Panel on Climate Change)
CAFE : Clean Air For Europe (Air Pur Pour l'Europe)
IEM : Indicateur d'Exposition Moyenne
ZAPA : Zones d'Actions Prioritaires pour l'Air
SRCAE : Schéma Régional Climat Air Energie
OC : Carbone Organique
EC : Carbone Élémentaire
ELPI : Impacteur Electrique Basse Pression
OWB : Outdoor Wood Boiler (appareil de chauffage au bois extérieur)
IM : Matière Inorganique
OM : Matière Organique
TC : Carbone Total
PA : Aérosol Primaire
SNCR : Réduction Sélective Non Catalytique
SCR : Réduction Sélective Catalytique
COFRAC : COmité FRançais d'ACcréditation
HSECse : Hêtre SEC sans écorces
HSECae : Hêtre SEC avec écorces
HHUMse : Hêtre HUMide sans écorces
HHUMae : Hêtre HUMide avec écorces
SSECse : Sapin SEC sans écorces
SSECae : Sapin SEC avec écorces
SHUMse : Sapin HUMide sans écorces
FID : Détecteur à Ionisation de Flamme
IM : Impacteur Manuel
PC : Carbone Pyrolytique
MEB : Microscope Electronique à Balayage
FEG : Canon à émission de champ (Field Emission Gun)
EDS : Spectromètre en sélection d'énergie
WDS : Spectromètre en dispersion de longueur d'onde

GSR : Gun Shot Residue (Résidu de tir d'arme à feu)

WD: Distance de travail

BSD: Back Scattered Detection (Détecteur d'électrons rétrodiffusés)

B. ANNEXES: SCENARIO TOP-DOWN

Afin d'évaluer l'impact des deux types d'allumage dans le cas d'une utilisation du poêle WABI, un scénario a été développé. Deux périodes de chauffage ont été considérées. La première correspond à l'utilisation du poêle en semaine. L'utilisateur allume son poêle vers 18h00 quand il rentre du travail, puis l'éteint vers 23h00. Cette période simule au mieux un rythme de vie d'une famille durant la semaine. La seconde période simule l'utilisation du poêle le week-end, avec un allumage du poêle dès 09h00 jusqu'à 21h00. Pour ces deux périodes, les premières 30 min correspondent à l'allumage du poêle. Les facteurs d'émissions des deux types d'allumage ont été calculés à partir des expériences réalisées en 3.2.1 et sont présentés dans le Tableau B-1. Pour pouvoir réaliser le scénario, les facteurs d'émissions du poêle une fois chaud et à plein régime doivent être connus. Ces facteurs d'émissions ont été calculés à partir des essais normés réalisés sur le poêle WABI, décrit en 3.1.2 et présenté dans le Tableau B-1. Ainsi, le scénario utilise les facteurs d'émissions du plein régime et ceux de l'allumage Top-Down dans un cas, puis ceux du plein régime et de l'allumage Traditionnel dans l'autre cas. Les résultats entre les deux réponses pourront donc être comparés.

Configurations	CO (g.kg ⁻¹)	NOx (g.kg ⁻¹)	SOx (g.kg ⁻¹)	COVT (gEqCH ₄ .kg ⁻¹)	CH ₄ (gEqCH ₄ .kg ⁻¹)	TSP (mg.kg ⁻¹)	TC (mg.kg ⁻¹)	EC (mg.kg ⁻¹)	OC (mg.kg ⁻¹)
Top-Down	21.192	0.679	0.05	1.466	0.346	471	489	392	97
Traditionnel	38.323	0.526	0.24	2.664	0.89	588	557	202	355
Plein Régime	15.194	0.45	0.131	0.791	0.366	69	34	3.92	30

Tableau B-1 : Facteurs d'émissions calculés des trois configurations pour tous les polluants mesurés

Les résultats du scénario sont convaincants. Même à l'échelle d'une seule soirée de chauffage, la réponse avec l'allumage Traditionnel émet significativement plus de polluants que celle avec l'allumage Top-Down. La Figure B-1 présente un diagramme comparatif de ces deux réponses. Seules les émissions d'EC sont plus importantes avec l'allumage Top-Down. Les émissions de NOx et de SOx ne sont que peu impactées à priori par le type d'allumage. Ces deux polluants vont donc être retirés du scénario global.

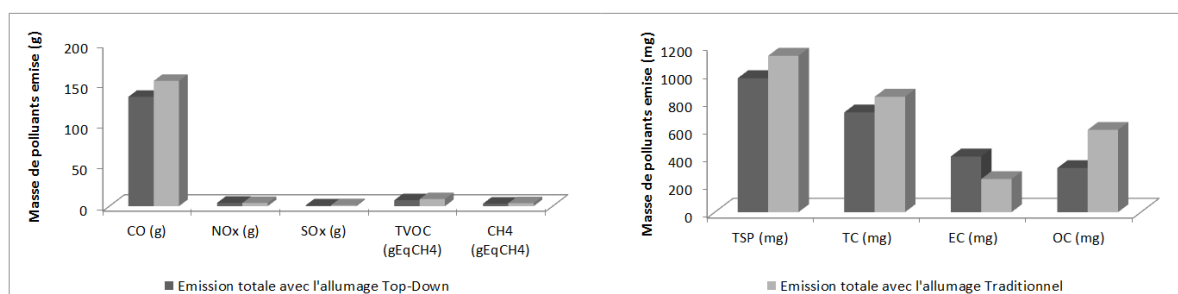


Figure B-1 : Diagramme comparatif des deux réponses du scénario pour tous les polluants à l'échelle d'une soirée de chauffage

Les résultats pour une semaine complète de chauffage suivent les mêmes tendances. Le Tableau B-2 présente les résultats des deux réponses du scénario global. Cela signifie que si un utilisateur du poêle WABI passe de l'allumage Traditionnel à l'allumage Top-Down, il réduira considérablement ses émissions polluantes :

- Les émissions de CO seront 10% plus faibles ;
- Les émissions de COVT, de CH₄, de TSP et de TC seront 12% plus faibles ;
- Les émissions d'OC seront 40% plus faibles.

Le carbone élémentaire est émis de manière 100 fois plus concentré pendant l'allumage que durant le régime permanent. De plus, l'allumage Top-Down émettrait plus d'EC que l'allumage Traditionnel. Ce changement de mode d'allumage entraînerait donc une augmentation des émissions d'EC de l'ordre de 65%. Ainsi, le scénario serait donc défavorable concernant les émissions d'EC puisque le type d'allumage impacte considérablement leurs émissions. Ces résultats ne sont pas quantitatifs et ne peuvent être appliqués à un autre poêle de technologie différente. Des études complémentaires pourraient permettre de vérifier si la généralisation de l'allumage Top-Down sur l'ensemble du parc resterait négative pour les émissions d'EC. Reichert et al. [142] ont démontré dans une enquête que huit utilisateurs sur dix allumaient leur poêle de manière traditionnelle. Cela signifie que si l'allumage Top-Down est définitivement considéré comme plus favorable, une campagne de communication pourrait réduire considérablement les émissions du chauffage individuel au bois dans le secteur résidentiel-tertiaire.

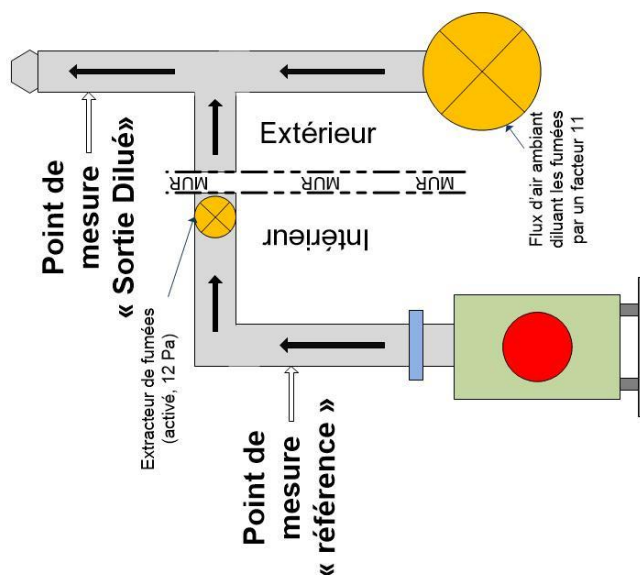
	CO (g)	COVT (gEqCH ₄)	CH ₄ (gEqCH ₄)	TSP (mg)	TC (mg)	EC (mg)	OC (mg)
Emission totale avec l'allumage Top-Down	1295	70	30	8365	5824	2896	2923
Emission totale avec l'allumage Traditionnel	1432	79	34	9497	6613	1759	4848
Gain (%)	10 %	12 %	12 %	12 %	12 %	-65 %	40 %

*Gain= 100-((émissions Top-Down / émissions Traditionnel)*100)*

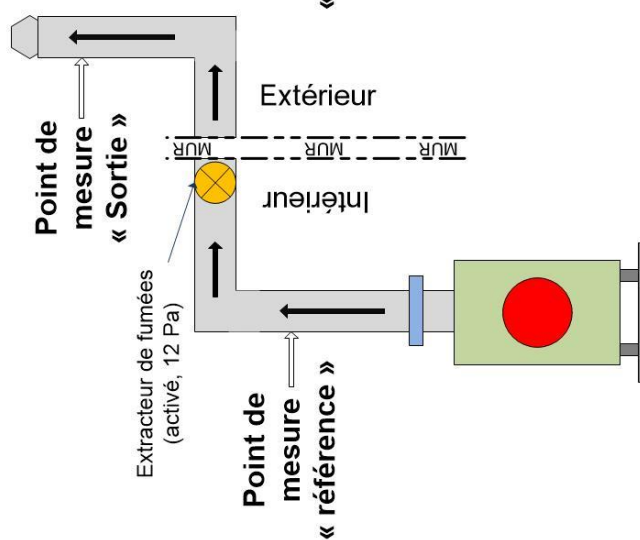
Tableau B-2 : Résultats globaux des deux réponses au scénario complet

C.ANNESES: DEFINITION DES TROIS MODES EXPERIMENTAUX

**Mode 3 :
Particules du
champ proche**



**Mode 2 :
Evolution des
particules**



**Mode 1 :
Naissance des
particules**

