

**CARACTÉRISATION PHYSICO-CHEMIQUE DES PARTICULES ISSUES DU
CHAUFFAGE DOMESTIQUE AU BOIS**

***PHYSIC-CHEMICAL CHARACTERIZATION OF THE PARTICLES ISSUED FROM
DOMESTIC WOOD HEATING***

par Benoît **BRANDELET**¹

RÉSUMÉ

Le chauffage domestique au bois est une énergie du présent, mais aussi de l'avenir. Pour lui assurer cet avenir, les émissions de particules doivent être réduites. En quelques années, un travail considérable d'amélioration des appareils a permis de réduire drastiquement ces émissions : la Figure 1 démontre qu'un appareil de 2012 émet 20 fois moins de particules qu'un appareil de 2000. Pour aller plus avant, il est indispensable de déterminer les mécanismes de formation/destruction des particules (Figure 2), ainsi que leurs modifications entre le foyer et la sortie de cheminée. Ces connaissances permettent alors de développer des bonnes pratiques. La Figure 3 démontre qu'un allumage par le haut rejette 30% de particules en moins. La Figure 4 détaille la physique de ces particules. L'humidité du combustible est le paramètre majeur à contrôler, mais la combustion d'écorce conduit à des émissions de nano-cristaux (Figure 5). L'ensemble de ces résultats permettront ainsi de mettre en œuvre des techniques primaires et secondaires de réduction des émissions.

ABSTRACT

The domestic wood heating is an energy source for today, but also for the future. In order to ensure its future, particles emissions must be understood and reduced. Indeed, the particles in the ambient air are an important healthy and environmental issue, and the wood energy sector, especially for firewood stoves, is targeted. Nevertheless, in the last decades, the manufacturers considerably improve the firewood stoves. This optimization of the device led to a high reduction of the emissions. Then, particles emissions are inextricably linked to the generation of the firewood stove. Figure 1 demonstrates that a firewood stove of 2012 emits twenty times less particles than a firewood stove of 2000. To follow up on this thought, it is essential to determine the formation / destruction mechanisms of the particles (Figure 2), as well as their modifications between the combustion chamber and the

¹ benoit.brandelet@univ-lorraine.fr, 74 Le Village, 88460 Xamontarupt
LERMAB, 27 rue Philippe Séguin, CS 60036, 88026 Epinal Cedex
ADEME, 20 Avenue du Grésillé, 49000 Angers

chimney outlet. These news knowledges allowed addressing the subject of the good practices. The Figure 3 describes that a Top-Down ignition emits 30% lesser particles than the Traditional ignition. Moreover, the ignition mode led to a specific kind of particles emissions. The Figure 4 details the physic of those particles thanks to the microscopy. The characteristics of the fuel can also modify the emissions. Then, the nature of the fuel was studied. The moisture of the fuel appeared to be the main parameter to control. Nevertheless, the bark combustion led to an emission of nanocrystals, as shown in the Figure 5. All these results will allow executing primary and secondary particles emission reduction systems.

A Introduction

Le chauffage domestique au bois, la première énergie renouvelable au monde et qui plus est en France, serait une source d'émission de particules fines. Ces particules fines posent des problèmes sanitaires et environnementaux conséquents. Le premier moyen pour réduire lesdites émissions de particules est l'optimisation des appareils de combustion. Les performances des appareils ont évolué de manière significative en termes de rendement et d'émissions de monoxyde de Carbone au cours de la dernière décennie. Les émissions de particules totales (TSP) ont aussi été réduites, comme le démontre une étude prévisionnelle du Syndicat des Energies Renouvelables (SER) [1] en adéquation avec des mesures de l'ADEME [2]. Mais, les types de particules sont multiples, avec des effets environnementaux et sanitaires différents. Un des points clés pour appréhender les familles de particules consiste à connaître la nature de leur carbone constitutif : Carbone Organique (OC) ; Carbone Élémentaire (EC). Une méthode de prélèvement et d'analyse spécifique aux particules émises par la combustion du bois a été développée [3]. Il est alors primordial d'estimer l'évolution des émissions des particules selon la génération de l'appareil, mais aussi de déterminer leurs caractéristiques physico-chimiques.

La caractérisation et la compréhension des mécanismes de formation des particules est un enjeu environnemental et sanitaire majeur. Toutefois, afin de mieux estimer les émissions dans l'atmosphère des appareils de chauffage domestique au bois, l'évolution des particules dans le conduit de cheminée doit être appréhendée. A partir de ces connaissances, des bonnes pratiques peuvent être mises en œuvre pour limiter les émissions de particules.

L'impact du mode d'allumage est important à quantifier afin de communiquer plus largement ou non sur ces méthodes innovantes. Néanmoins, l'influence de nombreux autres paramètres, comme l'humidité ou la présence d'écorce influent directement sur les émissions et la nature des particules. Un point clé permettant de réduire les émissions du chauffage domestique consiste ainsi à choisir le combustible avec lequel les émissions seraient les moins importantes et les moins nocives. Des résultats des recherches associées à l'intégralité de ces problématiques sont publiés [4].

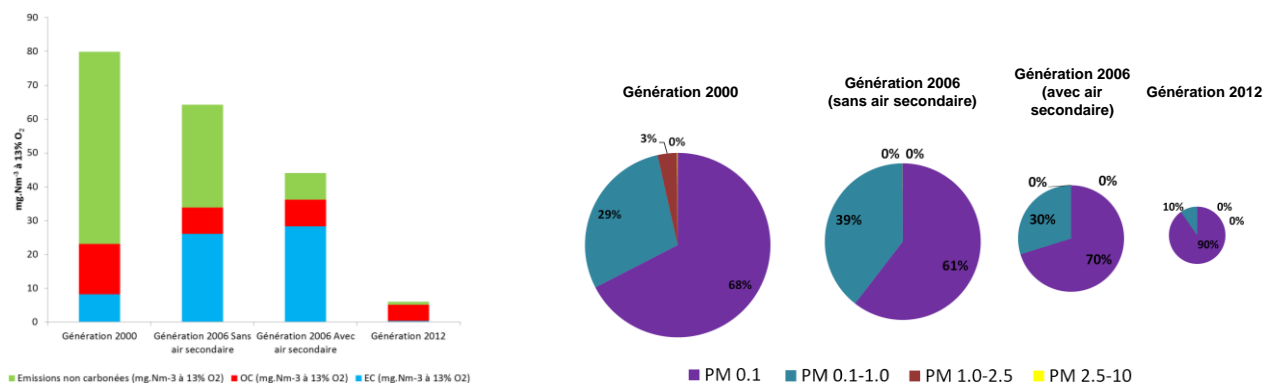
B Evolution des émissions selon la génération de l'appareil

Depuis le début des années 2000, des gros efforts ont été consentis par les fabricants d'appareils pour améliorer leurs performances de manière significative. Ces améliorations ont été réalisées *via* une optimisation de la combustion en suivant la règle des « 4T » : Température, Teneur en O₂, Temps de séjour et Turbulence [5]. Ainsi, la chambre de combustion a évolué, intégrant une isolation, des déflecteurs, des entrées d'air secondaire, ... Quatre générations de foyers ont ainsi été testées :

- Génération 2000 : pas d'air secondaire, pas de déflecteur, chambre non isolée ;
- Génération 2006a : pas d'air secondaire, déflecteur, chambre isolée ;
- Génération 2006b : air secondaire non optimisé, déflecteur, chambre isolée ;
- Génération 2012 : air secondaire optimisé, déflecteur, chambre isolée, appareil étanche.

Les résultats sont très probants et indiquent des écarts d'émissions considérables selon la génération de l'appareil. Les émissions de Composés Organiques Volatils Totaux (COVT, précurseurs connus d'aérosols organiques secondaires), des 16 Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP₁₆: Il s'agit d'une famille de COVT particulièrement toxiques) et de CO sont abaissées de manière considérable entre ces quatre générations de dispositifs de combustion. Les émissions de HAP₁₆ chutent ainsi de 3250 µg.m⁻³ pour la génération 2006a à 200 µg.m⁻³ pour la génération de 2012. Les émissions de COVT sont divisées par 2 entre la génération 2000 et la génération 2012. La Figure 1 présente les résultats des émissions de particules en masse et leur répartition granulométrique en nombre. Ainsi, un appareil de 2012 émet environ 20 fois moins de particules qu'un appareil de 2000. En revanche, les émissions de particules d'un appareil récent avec une combustion maîtrisée sont certes moins importantes en masse, mais avec une proportion de particules ultrafines plus importantes, ce qui atteste de l'amélioration de la combustion.

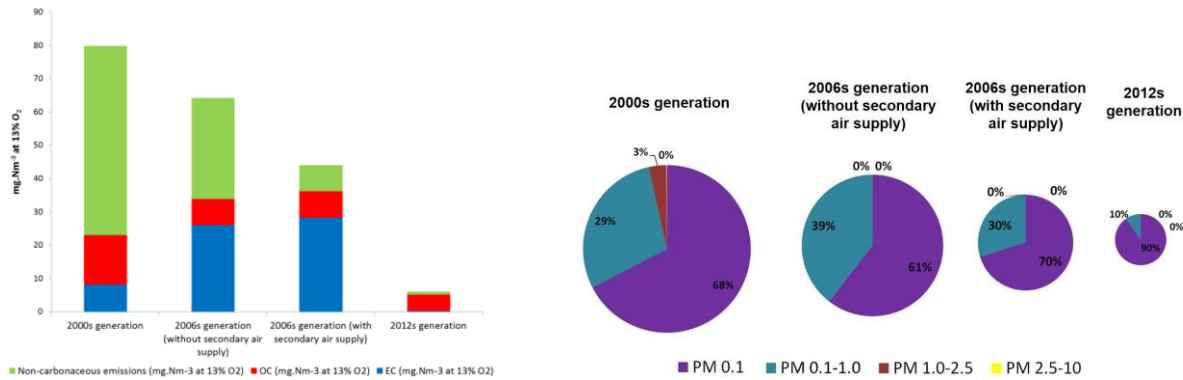
Figure 1 : Evolution des émissions de particules en masse détaillées chimiquement (a) et répartition granulométrique en nombre (b)



(a)

(b)

Figure 1: Particles emissions evolution in mass chemically detailed (a) and size distribution in number (b)



Par ailleurs, cette étude sur l'impact de la génération de l'appareil a permis de déterminer le domaine d'influence des paramètres de l'appareil. Par exemple :

- l'air secondaire influe sur la quantité de polluants émis (gazeux et solides) ainsi que sur la répartition granulométrique des particules mais pas sur leur nature chimique (notamment le ratio OC/TSP) ni sur les proportions relatives des différents HAP₁₆ ;
- le ratio OC/TC ne dépend pas de la qualité de la combustion ;
- le design de l'appareil est un facteur ayant un impact sur 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.

Ainsi, compte tenu des améliorations notables, le renouvellement du parc d'appareil est clairement une priorité. Cependant, même un appareil très performant émet quelques particules. Pour améliorer encore les performances, les mécanismes de formation, de réduction et de modifications doivent être élucidés.

C L'évolution des particules et de leurs caractéristiques le long du conduit de cheminée

Un insert de 12 kW a été équipé d'un système permettant de prélever des particules à trois niveaux différents :

- dans la chambre de combustion de l'appareil, avant l'entrée dans le conduit de cheminée ;
- au point de référence normé (environ 1 mètre de conduit après la sortie de l'appareil) ;
- juste avant l'évacuation des fumées (avec ou sans dilution).

Le premier résultat global est que 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 dégradés thermiquement ;
- des morceaux de charbon présentant une structure amorphe.

Les nanoparticules en présence ont été produites par un mécanisme de dégradation thermique du bois. Les morceaux de bois plus ou moins dégradés thermiquement et les morceaux de charbon sont des

NOTE DE RECHERCHE
Présentée par Michel VERNOIS, section 2 « Forêts et filière bois »

envols, c'est-à-dire des particules dans la chambre de combustion qui sont entraînées dans le conduit de fumées.

Au point de référence, les particules de bois plus ou moins dégradées de la chambre de combustion ont poursuivi le mécanisme de dégradation, produisant ainsi de nouvelles nanoparticules non agglomérées. La concentration en COVT augmente tandis que la concentration en TSP diminue au point de référence par rapport à la chambre de combustion. Un mécanisme d'agglomération est apparu 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.

Au point de prélèvement « sortie » (dilution inactive), les particules de bois dégradées thermiquement restantes ont terminé leur transformation (puisque les niveaux de température le permettent), et des nanoparticules ont été générées. En revanche, la concentration en COVT n'a pas augmenté. La concentration en TSP diminue encore, pour les mêmes raisons que précédemment (volatilisation de l'OC), mais aussi parce que des particules s'agrègent par impact et se déposent sur le conduit de fumées. Le mécanisme d'accrétion des nanoparticules se poursuit, et les agglomérats sont de plus en plus importants, à la fois en nombre, en taille et en densité. La répartition granulométrique des particules est donc modifiée, avec une diminution 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 mélange particulaire est retrouvé dans les fumées. En revanche, les agglomérats de nanoparticules sont très importants, et les nanoparticules non agglomérées sont alors très rares. La Figure 2 récapitule schématiquement les différents modes de production et d'évolution des particules.

Figure 2 : Mécanismes de productions des différents types de particules

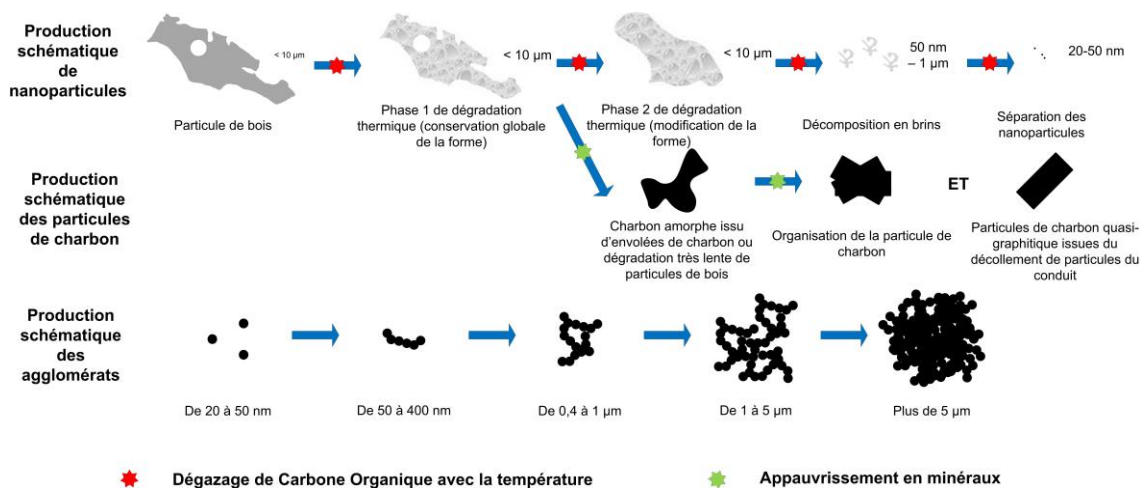
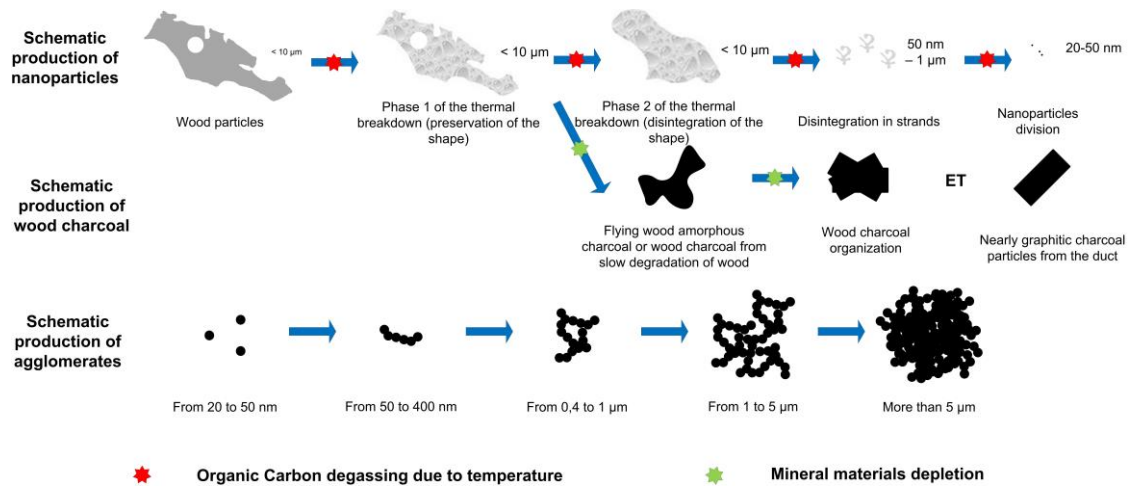


Figure 2: Production process of different kind of particles



Parallèlement, la quantité et la répartition des HAP₁₆ présentes 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. A la sortie (sans dilution), la quantité de HAP₁₆ est divisée par 1,8 en moyenne. Les HAP, et plus généralement les COSV, condensent donc sur les parois du conduit, provoquant le phénomène de goudronnage. Lorsque la dilution est active, simulant le champ proche (zone géographique proche de l'évacuation des fumées), les HAP₁₆ varient de manière identique entre le point de référence et la sortie.

Ainsi, différents mécanismes (production de nanoparticules, agglomération des nanoparticules, condensation des COSV, décollement de charbon du conduit, ...) ont été clairement mis en évidence par cette étude. La compréhension de ces phénomènes était un enjeu majeur de ce travail. A l'aide de ces nouvelles connaissances, l'impact des bonnes pratiques de combustion peut maintenant être étudié de manière plus précise.

D Les bonnes pratiques de combustion

1. L'allumage par le haut

Plusieurs essais ont été réalisés, avec un allumage par le bas, dit « Traditionnel », et l'allumage par le haut, dit « Top Down ». Les émissions sont tout à fait différentes dans les deux modes d'allumages. En effet, un allumage par le haut induit des émissions de CO et de COVT deux fois plus faibles qu'avec un allumage traditionnel. Concernant les émissions de particules, les résultats sont tout aussi probants. La Figure 3 met en évidence que les émissions de particules totales sont alors 35% plus faibles. L'analyse OC/EC permet d'observer que les émissions d'OC sont divisées par trois quand celles d'EC sont multipliées par deux. Cela prouve une combustion mieux contrôlée lorsque l'allumage est effectué par le haut. De plus, la granulométrie en nombre des particules est aussi modifiée, puisque la proportion de particules ultrafines (<100nm) augmente de 10% *via* un allumage par le haut.

Figure 3 : Impact du mode d'allumage sur les émissions et les caractéristiques chimiques des particules

NOTE DE RECHERCHE
Présentée par Michel VERNOIS, section 2 « Forêts et filière bois »

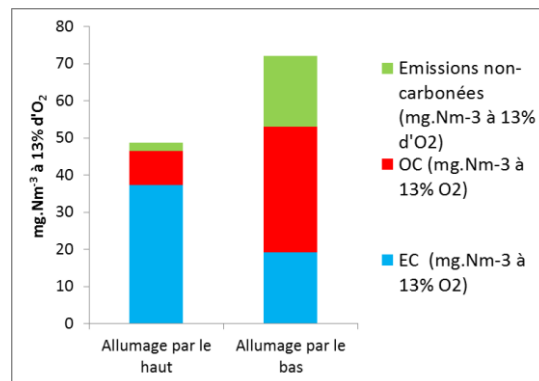
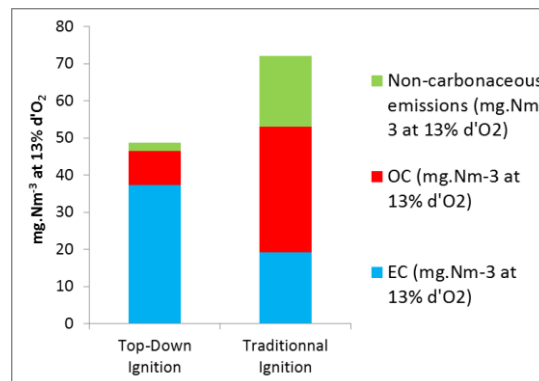


Figure 3: Ignition impacts on TSP emissions and particles chemical characteristics



La microscopie permet de mieux comprendre ces phénomènes. La Figures 4 montre que les particules émises par l'allumage « Top Down » sont majoritairement des nanoparticules peu ou pas agglomérées quand celles émises par l'allumage « Traditionnel » sont plutôt de la matière fondue et des condensats de Composés Organiques Semi Volatils (COSV).

Figure 4 : Nanoparticules peu ou pas agglomérées émises par l'allumage par le haut (a, x40 000), Condensats de COSV et matière fondue émis par l'allumage par le bas (b, x40 000)

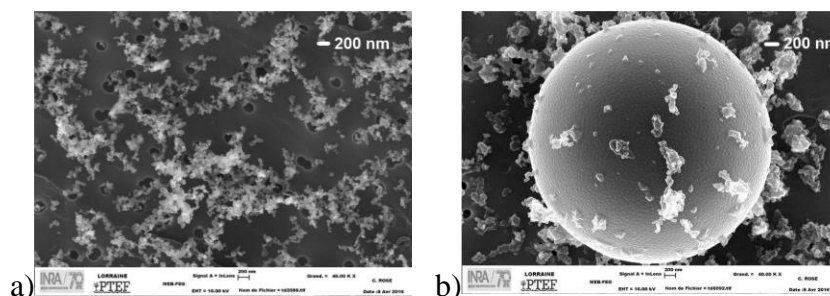
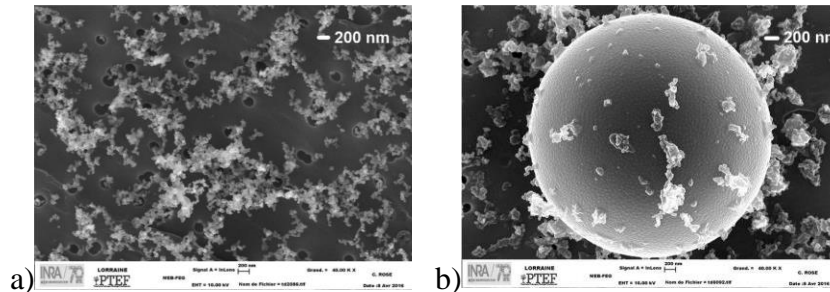


Figure 4: Nanoparticles little or no agglomerate from Top-Down ignition (a, x40 000), SVOC condensates and melted materials from Traditional ignition (b, x40 000)



Pour conclure, l'allumage par le haut émet considérablement moins d'imbrûlés gazeux et de particules totales. En revanche, des études complémentaires permettraient de valider ou non l'augmentation des émissions d'ECK *via* ce type d'allumage.

2. Les caractéristiques du combustible

Les caractéristiques du combustible influent de manière significative sur les émissions de particules. Tout d'abord, un combustible humide induit des émissions d'imbrûlés gazeux en moyenne quatre fois plus importantes, mais surtout des émissions de particules en moyenne quarante fois plus importantes qu'avec un combustible sec. Un combustible humide provoque une combustion de très mauvaise qualité avec des niveaux de température très faible, le tout conduisant à de fortes émissions d'imbrûlés gazeux, mais aussi de particules de bois légèrement dégradées thermiquement.

La présence d'écorce a quant à elle un effet plus discret, n'influant que très légèrement sur les émissions. Néanmoins, l'imagerie électronique et la microanalyse X des particules ont permis de mettre en évidence que la combustion d'un combustible contenant de l'écorce provoque une augmentation du taux de Silice dans les particules, mais aussi induit une émission de nano-cristaux de Silice et de Sodium, comme en témoigne la Figure 5.

Figure 5 : Nano-cristaux de Silice (a, x150 000) et de Sodium (b, x150 000) émis par la combustion d'écorce

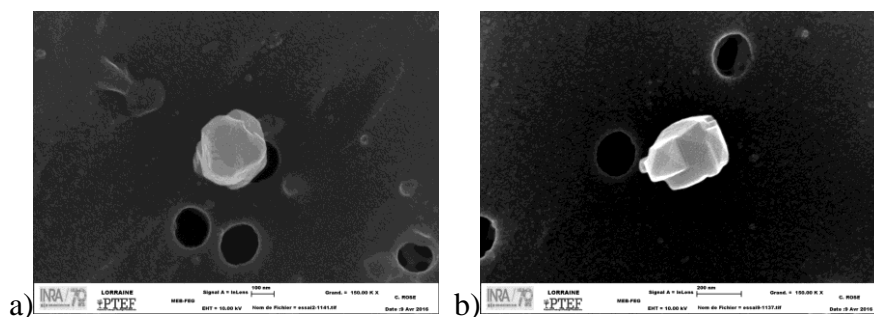
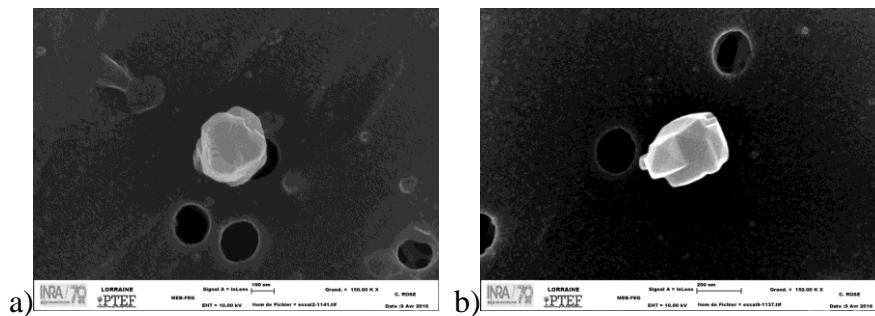


Figure 5: Nano-crystals of Silica (a, x150 000) and of Sodium (b, x150 000) from bark combustion

NOTE DE RECHERCHE
Présentée par Michel VERNOIS, section 2 « Forêts et filière bois »



Ainsi, l'utilisation d'un combustible sec et écorcé est vivement conseillée puisque cela permet de limiter de manière considérable les émissions d'imbrûlés gazeux et de particules.

E Conclusions et perspectives

De nouvelles techniques d'analyses spécifiques aux particules émises par le chauffage domestique au bois, comme la microanalyse X ou l'analyse OC/EC ont pu être développées. De plus, l'impact de la génération de l'appareil a été clairement mis en évidence, puisqu'un appareil performant de 2012 émet 20 fois moins de particules et 15 fois moins de HAP₁₆ qu'un appareil de 2000. Enfin, l'application de bonnes pratiques dans un appareil performant permet de supprimer les émissions de :

- nano-cristaux (écorce) ;
- charbon amorphe (humidité, mauvais réglages, allumage par le bas, ...) ;
- HAP condensés (humidité, mauvais réglages, allumage par le bas, ...) ;
- particules de bois thermiquement dégradées (phase 1 ou 2) ou non.

De plus, ces bonnes pratiques permettent aussi de réduire les émissions de TSP et d'imbrûlés gazeux. Ensuite, des mécanismes de formation/destruction et d'évolution des particules dans le conduit ont été décrits et proposés à la communauté scientifique :

- agglomération des nanoparticules ;
- condensation des HAP et des COSV ;
- phénomène d'impact des particules entre elles ;
- dépôt et décollement dans le conduit ;
- réactions physico-chimiques dans le champ proche d'émission.

L'intégralité de la base de données qui a été produite lors de ce travail (analyse OC/EC, HAP, COV, TSP, micro-analyse X, ...) permettra aux experts de mieux estimer la toxicité et l'impact environnemental du chauffage domestique au bois. Par la suite, les mécanismes mis en évidence permettront de développer des systèmes d'élimination des particules plus efficaces. Bien entendu, le renouvellement du parc doit être une priorité. Mais, il est primordial de sensibiliser les utilisateurs à l'application des bonnes pratiques, sans lesquels les appareils restent fortement émissifs. Le chauffage domestique au bois pourrait alors connaître une nouvelle croissance, encore plus écologique et responsable.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- 1) Syndicat des Energies Renouvelables, 2006. – Détails de la feuille de route du Grenelle. Juin.
- 2) ADEME, 2009 - Evaluation Prospective 2020-2050 de la contribution du secteur Biomasse Energie aux émissions nationales de polluants atmosphériques. Novembre.
- 3) BRANDELET B., ROSE C., ROGAUME C. et ROGAUME Y., 2017. – Investigation of the organic carbon ratio analysis on particles from biomass combustion and its evolution in three generations of firewood stoves. *Biomass Bioenergy*, **vol. 99**, p. 106-115, Avril.
- 4) BRANDELET B., 2016. – Caractérisation physico-chimique des particules issues du chauffage domestique au bois, Université de Lorraine, https://www.academie-agriculture.fr/system/files_force/academiciens_echivent/2017/2017thesebrandeletbenoitanalyse xd.pdf?download=1
- 5) AUTRET E. et ROGAUME Y., 2011. – Production de chaleur à partir de bois - Émissions atmosphériques. Notions de base. *Tech. Ing.*, n° **BE8750 v1**, Avril.