



HAL
open science

Étude des émissions polluantes de la combustion de biomasses dans une chaudière à granulés

Angel Alfonso Martinez Martinez

► **To cite this version:**

Angel Alfonso Martinez Martinez. Étude des émissions polluantes de la combustion de biomasses dans une chaudière à granulés. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Normandie Université, 2021. Français. NNT : 2021NORMIR24 . tel-03609132

HAL Id: tel-03609132

<https://theses.hal.science/tel-03609132>

Submitted on 15 Mar 2022

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Normandie Université

THESE

Pour obtenir le diplôme de doctorat

Spécialité (Physique)

Préparée au sein de « l'Institut National des Sciences Appliquées de Rouen »

Etude des émissions polluantes de la combustion de biomasses dans une chaudière à granulés

Présentée et soutenue par
Angel Alfonso MARTINEZ MARTINEZ

Thèse soutenue publiquement le (02-11-2021)
devant le jury composé de

Mme. C. MORIN	Professeure, INSA Hauts-de-France	Rapportrice
M. S. SALVADOR	Professeur, Ecole des Mines d'Albi	Rapporteur
Mme. C. DUPONT	Ingénieure de Recherche, IHE Delft	Examinatrice
Mme. G. TROUVE	Professeure, Université de Mulhouse	Examinatrice
M. Y. ROGAUME	Professeur, ENSTIB/LERMAB	Examinateur
Mme. C. LACOUR	MCF, INSA de ROUEN	Co-encadrant
M. J. YON	MCF, INSA de ROUEN	Co-directeur de thèse
M. A. COPPALLE	Professeur, INSA de ROUEN	Directeur de thèse

Thèse dirigée par Alexis COPPALLE (et Jérôme YON), laboratoire CORIA, Saint Etienne du Rouvray



Remerciement

Je remercie chaleureusement toutes les personnes qui m'ont aidé pendant l'élaboration de ma thèse et notamment mon directeur Monsieur le professeur Alexis Coppalle, pour son intérêt et son soutien, sa grande disponibilité, ses nombreux conseils durant la rédaction de ma thèse et surtout pour sa patience face à ma méthode « unique » d'organisation et à mon emploi particulier de la langue française. Je remercie également mon Co-directeur de thèse Jérôme Yon pour sa volonté et ses efforts de me guider à chaque moment nécessaire ainsi qu'à ma co-encadrante de la thèse Corine Lacour qui s'est occupée de moi dès mon arrivée en France et qui a joué un rôle essentiel sur mon développement personnel et professionnel pendant la thèse. Ce travail n'aurait pas été possible sans le soutien de l'INSA de Rouen, le CORIA et le MESCYT, qui m'ont permis, grâce à ma formation professionnelle ainsi qu'à l'allocation des ressources nécessaires pour y parvenir, de me consacrer sereinement à l'élaboration de ma thèse.

Cette thèse n'aurait pu être menée à bien sans la disponibilité et l'accueil chaleureux que m'a témoigné tout le personnel de l'atelier et département électronique. Ils m'ont aidé, toujours avec de la bonne volonté, dans l'assemblage des équipements nécessaires pour mes manipulations. Merci à tout le personnel administratif du CORIA et de l'INSA Rouen qui, d'une manière ou d'une autre, ont facilité mes tâches. Aussi, François-Xavier Ouf, pour avoir mis à disposition le matériel nécessaire à la réalisation de cette thèse, Daniel Ferry, toujours prêt à collaborer avec les images MET réalisées et à la grande communauté des Dominicains de l'INSA pour leur soutien.

Au terme de ce parcours, je remercie enfin celles et ceux qui me sont chers et que j'ai quelque peu délaissés ces derniers mois pour achever cette thèse. Leurs attentions et encouragements m'ont accompagné tout au long de ces années. Je suis redevable à ma mère Soledad Martinez, pour son soutien moral et matériel et sa confiance indéfectible dans mes choix. Mes sœurs Angela Martinez pour ne m'avoir jamais laissé abandonner mes rêves et Alfonsina Martinez et Paola Martinez pour avoir toujours été disponibles et m'avoir soutenu dans toutes mes aventures.

Enfin, mes remerciements spéciaux à ma copine Stéphanie Lopez qui a vécu avec moi ce voyage et qui a été un élément essentiel de mon développement, avec son apport pour cette thèse en apportant ses connaissances, ses conseils, ses efforts pour m'aider et son soutien qui m'ont fait aligner mes pensées à tout moment, tu as été un grand soutien, merci, te amo.

Résumé

Le besoin de combustibles alternatifs aux énergies fossiles a conduit à se tourner vers de nouveaux combustibles renouvelables. La biomasse est l'une des alternatives les plus utilisées. La biomasse peut être classée en fonction de son origine, comme la biomasse de bois qui est actuellement la plus utilisée. Il existe d'autres types de biomasse comme celle reposant sur les plantations énergétiques. Cependant, l'exploitation de cette biomasse alternative n'est pas toujours correcte et on sait qu'une mauvaise utilisation peut engendrer des comportements différents dans les appareils de combustion avec des conséquences en termes d'émissions polluantes. C'est pourquoi nous devons étudier l'effet de la nature et de la composition de la biomasse sur ses émissions lors de la combustion.

Afin d'étudier expérimentalement la combustion de la biomasse, un banc expérimental basé sur une chaudière domestique à granulés de 20kW a été mis en place pendant la thèse. Les trois biomasses utilisées pour cette thèse sont le bois, le miscanthus et la paille. Les entrées d'air et de combustible sont contrôlées, le banc est instrumenté et permet des mesures d'émissions polluantes gazeuses et particulaires. De nombreux équipements sont utilisés pour le prélèvement (FPS) et les mesures d'émissions polluantes ont été mises en place (TESTO, SMPS, PPS, ELPI, TEOM). Des mesures de masse volumique effective des particules produites pendant la combustion de la biomasse ont également été réalisées.

Différents paramètres tels que le mode d'alimentation (pulsé ou continu), la distribution d'air au sein du foyer et la nature de la biomasse sont étudiés. Les résultats obtenus ont montré que les émissions de CO sont fortement influencées par le type d'alimentation de la chaudière. Nous avons réussi à réduire d'environ 40 % les émissions de CO d'un chauffage classique en modifiant simplement son mode d'alimentation. La distribution d'apport en air dans le foyer de combustion a un effet important sur la réduction des émissions polluantes gazeuses. Les résultats obtenus ont montré de nettes différences dans les niveaux d'émissions gazeuses des trois types de biomasse, le bois étant le moins émissif. Enfin, Au niveau des émissions des particules par les trois types de biomasse, il y a des différences la concentration en masse et la distribution de taille des particules. Les images MET et la masse volumique spécifique montrent des différences entre les particules produites par le miscanthus comparées à celles produites par le bois.

Abstract

The need to find alternatives to fossil fuels has increased the use and the study of new renewables energies. The biomass is one of the most used alternatives. Biomass can be classified according to its origin; the woody biomasses are currently the most widely used. There are other types of biomass such as biomass of agricultural origin and energy crops. The abundance of these kind of biomass, proposes to use them as energy source. The use of alternative biomasses has not been properly exploited and it is known that this use can generate different behaviors in the combustion devices with consequences in terms of polluting emissions. This is why we need to study the effect of the nature and composition of the biomass on its emissions during combustion.

In order to study experimentally the combustion of biomass, an experimental bench based on a domestic pellet boiler of 20kW has been set up during this thesis. The three biomasses used for this work are wood, miscanthus and straw. The air and fuel inlets are controlled, the bench is instrumented and allows measurements of gaseous and particulate pollutant emissions. Numerous equipment's for sampling (FPS) and emission measurements (TESTO, SMPS, PPS, ELPI, TEOM) have been set up. A CPMA was set up in conjunction with the SMPS to evaluate the effective density of particles produced during biomass combustion. TEM images were made from the aerosol produced by the combustion of wood and miscanthus.

Different parameters such as the feeding mode (pulsed or continuous), the air distribution within the furnace and the nature of the biomass are studied. The results obtained showed that CO emissions are strongly influenced by the feeding mode of the boiler. Particles and NO_x can be less affected by this loading process. We were able to reduce the CO emissions of a conventional heater by about 40% by simply changing the feed method. The air distribution in the combustion chamber was also tested. It was observed that small changes in the air distribution close to the fuel bed can have significant effects on the reduction of gaseous pollutant emissions. Also, the results obtained showed clear differences in the levels of gaseous emissions of the three types of biomass, with wood being the lowest of the three. Finally, in terms of particulate emissions, there are clear differences in mass concentration and size distribution, MET images and specific gravity showed differences in the nature and shape of particles for miscanthus and wood biomasses.

Table des matières

Table des matières	iv
Introduction générale	1
Chapitre 1. Etat de l'art	5
1.1. Situation globale	5
1.1.1. L'utilisation de l'énergie en France	5
1.1.2. Les énergies renouvelables.	7
1.1.3. La biomasse et son utilisation comme source d'énergie	12
1.2. Les émissions polluantes issues de la combustion de bois	27
1.2.1. Emission gaz, formation CO et NO _x	30
1.2.2. Méthodes de réduction des émissions	34
1.2.3. Aérosols	35
1.2.4. Composants carbonés et traceur organique	45
1.2.5. Traceurs organiques majeurs	46
1.2.6. Méthodes de prélèvement	48
1.2.7. Normes	51
1.2.8. Etagement d'air	54
1.2.9. Conclusion.....	55
Chapitre 2. Matériels et méthodes	57
2.1. Dispositif expérimental de la combustion	57
2.1.1. Chaudière utilisée	57
2.1.2. Banc d'essais	59
2.2. Les mesures des gaz dans les fumées.	63
2.3. Mesure des émissions particulaires dans les fumées.	66
2.3.1. Prélèvement des particules dans les fumées	67
2.3.2. La mesure de la concentration massique des particules	69
2.3.3. La granulométrie des particules.....	73
2.4. Observation de la morphologie et mesure de la masse volumique effective des particules.....	75
2.4.1. Images de microscopie électronique pour l'observation de la morphologie des particules.	75
2.4.2. Masse volumique effective	77
2.5. Les campagnes expérimentales.....	79
2.5.1. Caractérisation des combustibles.	80
2.5.2. Mesure du débit d'air entrant au niveau du foyer de combustion	83

2.5.3.	Contrôle de la distribution d'air du foyer de combustion	85
2.5.4.	Adaptation de la chaudière à deux modes d'alimentation	88
2.6.	Conclusions	90
Chapitre 3: Caractérisation des émissions produites par la chaudière fonctionnant au bois		91
3.1.	Analyse du fonctionnement nominal de la chaudière	91
3.2.	Influence de la distribution d'air au niveau du lit de pellets	98
3.2.1.	Analyse factorielle de Pareto pour la distribution d'air au niveau du lit de granulés	100
3.2.2.	Influence de la distribution d'air sur la concentration de CO	103
3.2.3.	Influence de la distribution d'air sur la concentration de NO _x	108
3.2.4.	Influence de la distribution d'air sur les émissions de particules	113
3.2.5.	Conclusions	117
3.3.	Influence du mode d'alimentation	118
3.3.1.	Emissions de NO _x avec une alimentation pulsée ou continue	120
3.3.2.	Emissions de CO avec une alimentation pulsée ou continue	121
3.3.3.	Emissions de particules avec une alimentation pulsée ou continue	124
3.3.4.	Conclusions	126
3.4.	Observation de la morphologie et la masse volumique effective des particules	127
3.4.1.	Masse volumique effective	127
3.4.2.	Validation des masses volumiques effectives mesurées grâce à la conversion D _m /D _a	135
3.4.3.	Analyse des clichés obtenus au microscope électronique à transmission	137
3.4.4.	Conclusions	141
Chapitre 4 Utilisation d'autres biomasses (miscanthus et paille)		143
4.1.	Fonctionnement nominal de la chaudière avec le miscanthus, la paille et le bois...	143
4.2.	Comparaison des émissions en CO et NO _x	148
4.3.	Comparaison des émissions en particules	151
4.4.	Conclusion sur les émissions de la combustion de pellets de bois, de paille et de miscanthus.	154
4.5.	Comparaison de la masse volumique effective et de la morphologie des particules émises par la combustion des pellets de bois et de miscanthus.	155
4.6.	Conclusion	160
Conclusion générale et perspectives		161
Conclusion générale		161
Perspectives		164
Annexes.		166

Annexe A. glossaire des abréviations	166
Annexe B. Calculs de base des bilans de masse et d'énergie.....	168
Annexe C : Diamètre aérodynamique et diamètre de mobilité électrique	171
Annexe D. Analyse thermogravimétrique des pellets de bois, miscanthus et paille.	174
Références	175

Introduction générale

Dès le début du 21^e siècle, l'impact environnemental de la production d'énergie a été identifié comme étant l'un des sujets les plus critiques à adresser dans le monde. Les effets du changement climatique peuvent être ressentis plus fortement maintenant qu'il y a 30 ans, les réserves de pétrole diminuent et des efforts de recherche sont entrepris pour réduire la consommation des énergies fossiles dans le monde (Claassen, 1999). Les effets tangibles de cette problématique justifient l'urgence de trouver des solutions et nous poussent à prendre des décisions conséquentes pour accélérer une transition énergétique.

Certains critères sont clés pour qu'un candidat au remplacement des énergies fossiles conventionnelles soit considéré comme acceptable :

- Il doit s'agir d'une source d'énergie renouvelable (Energie qui provient de sources que la nature renouvelle en permanence).
- Son impact sur l'environnement doit être limité.
- Elle ne doit pas être en compétition avec d'autres besoins primaires de l'humanité. (Alimentation, santé, ...).

Actuellement, plusieurs énergies répondent à ces exigences, mais seulement partiellement. C'est pourquoi, il est essentiel de travailler sur l'optimisation des sources d'énergie actuelles ainsi que sur leurs effets négatifs pour éviter de prendre des décisions hâtives (Bern, 2002).

La combustion de la biomasse remplit certains des critères mentionnés ci-dessus. Elle peut être considérée comme renouvelable si son exploitation est réalisée selon des critères de durabilité. De plus, elle serait également bien accueillie car il s'agit d'une forme d'énergie ancienne à laquelle la société est habituée. La biomasse est tellement popularisée parmi les foyers que le chauffage domestique au bois a parfois des problèmes d'approvisionnement (van Loo & Koppejan, 2007).

En revanche, tel que mentionné, aucun type d'énergie ne répond à 100 % aux critères énoncés précédemment et la biomasse ne fait pas l'exception : la combustion domestique de la biomasse est considérée comme une source majeure d'émissions de particules.

Dans ce contexte, le but de cette thèse est l'étude des émissions gazeuses et particulaires par les installations de combustion domestiques utilisant de la biomasse solide. Ceci afin d'estimer l'impact environnemental de cette source d'énergie mais également de comprendre les facteurs ayant un effet sur les émissions de particules et permettant de les limiter.

La combustion de la biomasse a évolué de l'utilisation du bois pour obtenir de la chaleur à partir d'un feu de camp au développement de systèmes de combustion sophistiqués comme ceux utilisés pour les réseaux de chauffage urbain. Des installations pour tous les besoins sont aujourd'hui disponibles, comme les poêles et les chaudières à usage domestique, jusqu'aux installations à l'échelle industrielle.

Les principes évoqués dans cette thèse sont applicables à plusieurs systèmes de combustion, comme les systèmes industriels dans lesquels la biomasse peut être utilisée comme combustible. Néanmoins, cette étude se concentre uniquement sur la combustion dans les systèmes à petite échelle. Ceux-ci sont connus comme une alternative intéressante à l'utilisation du gaz ou de l'électricité en termes de production d'eau chaude sanitaire et de chauffage domestique.

Auparavant, les systèmes de combustion domestiques se caractérisaient par l'émission de grandes quantités de particules, cependant, depuis les années 1980, des progrès ont été réalisés grâce au développement des appareils à granulés. Actuellement, différentes technologies d'appareils sont présentes sur le marché, les appareils à bûches et les appareils à granulés (pellets) étant les deux catégories principales.

Les pellets sont des particules de biomasse qui ont été comprimées afin d'obtenir un combustible de biomasse homogène à haute masse volumique. Ils sont principalement utilisés dans les systèmes de combustion à charge automatique (chaudières, poêles) et leur présente plusieurs avantages par rapport à la biomasse en vrac et décheté. Grâce à leur procédé de fabrication, il est possible d'obtenir des pellets avec une faible teneur en eau, une forme et une taille uniformes, un pouvoir calorifique inférieur (PCI) et une masse volumique élevés (Bell, 2007).

Depuis leur apparition, les granulés de bois ont été largement popularisés dans plusieurs pays européens. Initialement utilisés par le Danemark et la Suède, ils ont trouvé leur place, dix ans plus tard, dans les foyers des allemands et en Autriche. Ces pays, avec la France, l'Italie, la Belgique et la Suisse, possèdent aujourd'hui la majorité des systèmes de combustion domestiques installés dans l'UE (EREC, 2010). Selon la disponibilité locale du combustible, les

chaudières résidentielles peuvent être alimentées non seulement par des granulés de biomasse mais aussi par du bois et du charbon de différents types.

La question des émissions particulières reste d'actualité car des concentrations importantes de particules peuvent encore être observées dans l'environnement. Leurs origines sont variées: agriculture, transport, énergie et industrie. Néanmoins, le chauffage domestique au bois est décrit comme la source majoritaire pour les plus fines d'entre elles. Dans certains pays de l'UE, la contribution de la biomasse brûlée dans les appareils résidentiels aux émissions totales de particules par saison de chauffage peut dépasser 80% (Stolarski, 2013). Pour l'année 2019 en France les applications domestiques sont responsables de 68% des particules fines (PM_{10}), considérées dangereuses pour la santé (Citepa, 2021). Les particules les plus fines représentent un danger important en raison de leur grande pénétration dans les poumons.

Certaines mesures peuvent être réalisées concernant la pollution particulaire. Les particules prélevées dans des fumées sont généralement quantifiées avec une concentration massique (mg/m^3), et parfois en nombre, ($nombre/m^3$) (Wiley, 2011). Certaines autres caractéristiques physiques des particules sont parfois évaluées, c'est le cas de leur granulométrie (en masse et/ou en nombre sur un intervalle de diamètre). En revanche, peu de mesures sur l'origine et la structure des particules sont réalisées. Pourtant, la morphologie des particules, leur masse volumique et aussi leur genèse, sont essentielles pour la compréhension de leur toxicité ainsi que pour arriver à les maîtriser.

Plusieurs expérimentations ont été réalisées dans le cadre de ce travail, afin d'apporter des réponses à la globalité des questions soulevées.

Ce mémoire se scinde en 5 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 informations disponibles à ce jour sur les émissions polluantes issues du chauffage domestique au bois. Diverses problématiques vont être identifiées dans ce chapitre auxquelles ce travail tentera d'apporter des éléments de réponses.

Le Chapitre 2 présentera les équipements de mesure et le banc expérimental utilisés pour cette thèse. Le fonctionnement et la réalisation de l'installation de combustion seront détaillés. Les expériences réalisées dans cette thèse ont été effectuées avec une chaudière commerciale, mais qui a été modifiée afin de pouvoir analyser les facteurs importants qui influencent les

émissions polluantes. De même, les étalonnages nécessaires pour les différents équipements de mesure utilisés seront décrits.

Le Chapitre 3 présentera en détail les expériences réalisées sur les granulés de bois ainsi que l'analyse des résultats obtenus. Il sera divisé en trois parties distinctes :

- L'étude du mode d'alimentation en air du lit de combustion de la chaudière,
- L'influence du type d'alimentation en combustible sur les émissions de particules,
- L'étude de la morphologie des particules provenant de la combustion des pellets de bois, incluant les calculs de leur masse volumique effective ainsi que l'analyse des images de microscopie électronique en transmission (MET) faites sur l'aérosol issu de la chaudière.

Le Chapitre 4 présentera une comparaison entre les granulés de bois (biomasse traditionnellement utilisée), et deux autres types de granulés ; le miscanthus et la paille. Ces biomasses ont été retenues du fait de leur facilité d'approvisionnement, le miscanthus étant considéré comme une culture énergétique.

Pour terminer, les conclusions générales et une mise en perspectives des travaux qui pourraient être envisagés dans la suite de cette étude seront présentés.

Chapitre 1. Etat de l'art

Ce chapitre a pour objectif de cerner le contexte dans lequel ce travail a été conçu, pour comprendre ses motivations. Une fois l'étude placée dans son contexte, une description détaillée de la combustion de la biomasse pour la production d'énergie ainsi que les polluants associés sera réalisée. Enfin, une dernière partie sera dédiée spécifiquement aux connaissances relatives aux particules faisant partie des émissions polluantes. Une liste des abréviations est présentée en annexe A.

1.1.Situation globale

Dans les sections présentées ci-après, la situation globale actuelle dans laquelle cette étude se déroule sera développée. Ainsi, des bilans sur la consommation de l'énergie en France, des énergies renouvelables puis plus spécifiquement sur l'énergie par combustion de la biomasse permettront de mieux saisir les problématiques et enjeux actuels. Par la suite, une comparaison des spécificités des énergies renouvelables avec celles des énergies traditionnelles sera effectuée afin de donner une vision globale du sujet.

1.1.1. L'utilisation de l'énergie en France

Malgré un ralentissement de sa croissance pendant les 3 dernières décennies, la production d'énergie primaire en France semble continuer à augmenter. Celle-ci atteint une moyenne de 138 Mtep en 2018 tel que présenté dans la Figure 1-1(A). Cependant, ceci ne représente que 54% de la consommation total d'énergie en France qui est estimée à 253 Mtep comme mis en évidence par la Figure 1-1(B). En comparant les deux graphiques, on observe que, bien que la France ne produise pas de gaz naturel ni de pétrole, ces deux sources d'énergie correspondent à environ 40% de l'énergie consommé dans le pays. La majorité du déficit énergétique en France est donc comblé par des énergies fossiles. Le pays reste dépendant de ces combustibles qui sont importés et utilisés pour des applications conventionnelles afin de combler son besoin énergétique.

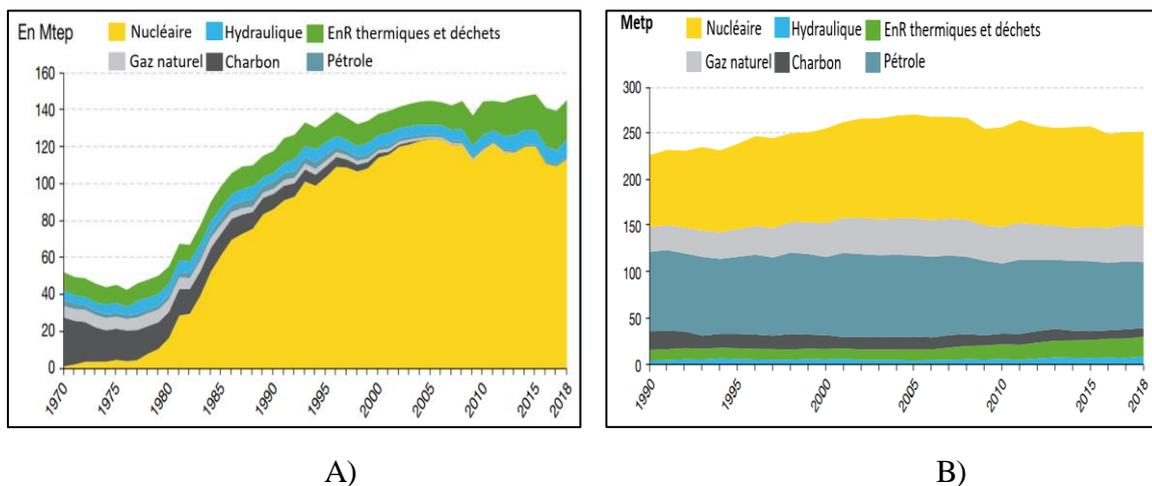


Figure 1-1. A) Types de production d'énergie primaire en France 1990-2018. B) Consommation d'énergie primaire en France 1990-2018, (données corrigées des variations climatiques). (International Energy Agency, 2018).

En ce qui concerne les secteurs consommateurs, la Figure 1-2(A) en donne la répartition détaillée. La consommation énergétique, tenant compte des variations climatiques, a connu un pic en 2001 et a subi une légère décroissance pendant les années suivantes. Elle s'élève à 144 Mtep en 2018, avec un léger rebond depuis 2016.

Le résidentiel-tertiaire est de plus en plus prédominant: sa part dans la consommation énergétique est passée de 43% en 1990 à 46% en 2017. Le secteur des transports a également augmenté passant de 30% à 32%. A l'inverse, la consommation de l'industrie a quant à elle diminué de 24% à 19%, tandis que celle de l'agriculture est restée stable à 3%.

La Figure 1-2 donne un aperçu détaillé de la consommation d'énergie du secteur résidentiel. Celle-ci est restée stable depuis l'année 2000, d'après l'International Energy Agency (Ministère de la Transition Ecologique et Solidaire, 2019), à climat constant (Correction des valeurs faites à cause des variation saisonnières de la consommation) , elle atteint les 41,8 Mtep en 2017. En ce qui concerne la répartition de cette consommation, l'électricité demeure l'énergie la plus consommée, avec 33 % du total, devant le gaz naturel (28 %), les énergies renouvelables (22%) et le pétrole (13%). Depuis quelques années, la part du pétrole baisse au profit des énergies renouvelables (Hydraulique, Biomasse solide, Biocarburants, Éolien (normalisé), Pompes à chaleur) tandis que celle de l'électricité et du gaz n'évolue que très peu.

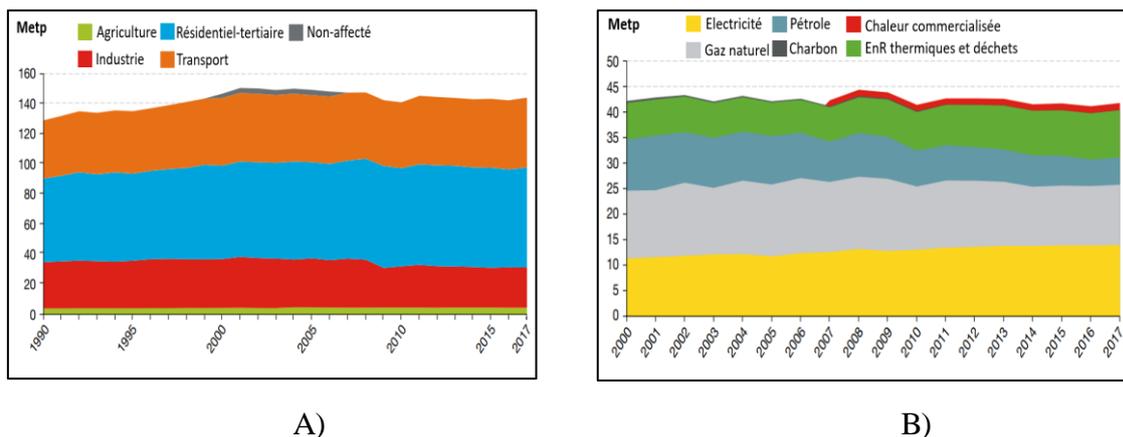


Figure 1-2. A) La consommation d'énergie primaire par secteur en France 1990-2018 (données corrigées des variations climatiques). (B) La consommation d'énergie dans le secteur résidentiel (données corrigées des variations climatiques). (Ministère de la Transition Ecologique et Solidaire, 2019).

1.1.2. Les énergies renouvelables.

Grâce aux efforts faits pour réduire la production des émissions de gaz à effet de serre, l'utilisation de sources d'énergie alternative a augmenté dans les dernières années (Vicente & Alves, 2018). Les énergies renouvelables sont des sources d'énergie dont le renouvellement naturel est assez rapide pour qu'elles puissent être considérées comme inépuisables à l'échelle du temps humain. L'expression « énergie renouvelable » est la forme courte et usuelle pour faire référence aux « sources d'énergie renouvelables » ou aux « énergies d'origine renouvelable » qui sont plus correctes d'un point de vue physique (Bell, 2007).

Les énergies renouvelables représentent environ 13,9% de l'approvisionnement mondial énergétique en 2017, soit 81,02 EJ (exajoule) (IEA, 2019). En 2017, la biomasse représentait la plus grande part d'EnR dans l'approvisionnement mondial, soit 70 % (55,6 EJ). L'hydroélectricité arrive en deuxième position avec 18 % (14,7 EJ), et ensuite les énergies solaire 3,79% (3,07 EJ), éolienne 5,01% (4,06 EJ) et géothermique 4,43%, (3,59 EJ). Tel que présenté sur la Figure 1-3 ; (IEA, 2019). Parmi les sources d'énergie renouvelable, l'une des plus prometteuses est la biomasse.

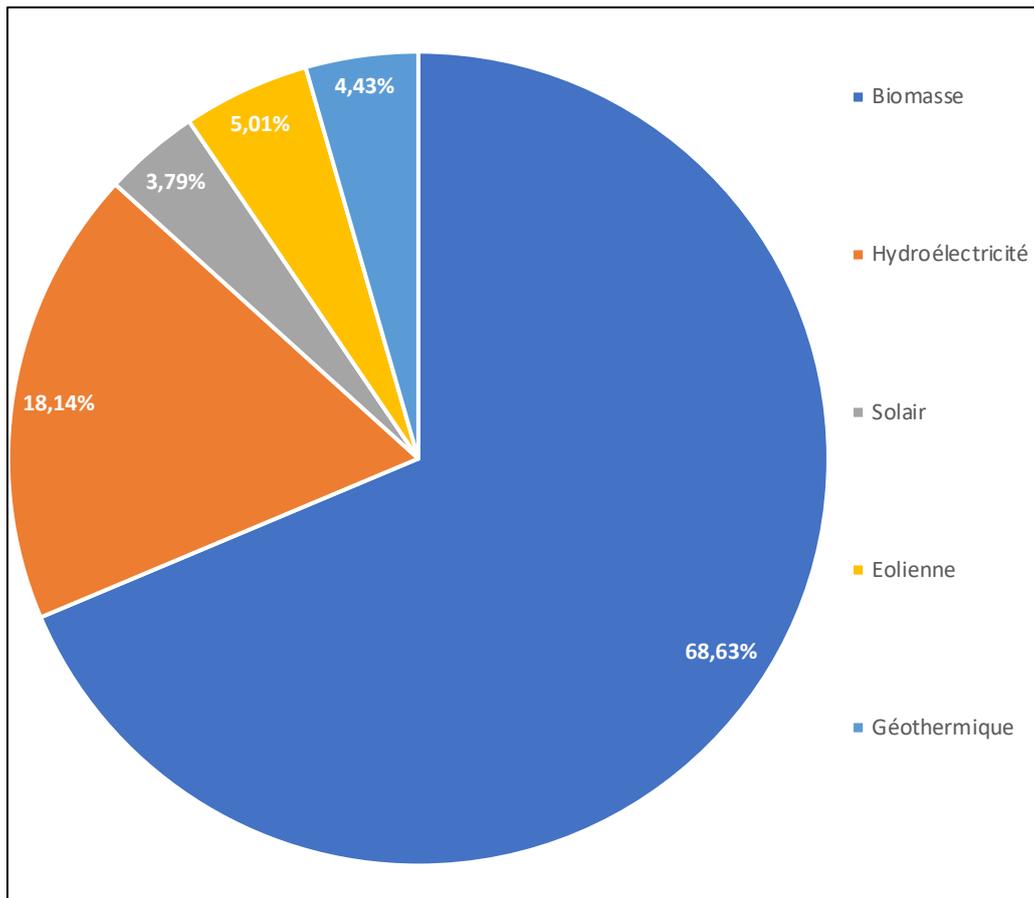


Figure 1-3. Répartition des énergies renouvelables dans la consommation d'énergie mondiale (IEA, 2019).

La biomasse résulte d'un processus biologique, spontané ou provoqué (R.P. Overend, 1985). La biomasse peut être utilisée pour la production d'énergie par combustion directe ou comme moyen de production d'autres biocombustibles.

La Figure 1-4 montre la consommation mondiale d'énergie renouvelable sur le long terme. Comme observé, la consommation d'énergie renouvelable a été dominée par la biomasse traditionnelle (« *traditional biofuels* ») : la combustion du bois, des matériaux forestiers et des déchets agricoles. Bien qu'elle ait été toujours mise en œuvre à petite échelle pendant des milliers d'années, dans plusieurs pays, la production thermoélectrique a été utilisée à grande échelle grâce au développement du pompage-turbinage à partir des années 1920. Après les années 2000, d'autres sources d'énergie renouvelable se développent à grands pas et l'utilisation de la biomasse traditionnelle finit par céder de la place à des nouvelles ressources.

Aujourd'hui, les combustibles traditionnels restent la principale source d'énergie renouvelable, représentant 60% à 70% du total consommé dans le monde. La biomasse traditionnelle reste la principale source de combustible pour la cuisine et le chauffage dans de nombreux ménages à faibles revenus. La combustion de la biomasse demeure donc la plus répandue par rapport aux autres techniques, grâce notamment à son utilisation pour le chauffage des bâtiments (Vicente & Alves, 2018). Selon la Banque mondiale, seulement 7 % des ménages à faibles revenus dans le monde ont accès à des combustibles et à des technologies propres pour la cuisine ; en Afrique subsaharienne la moyenne est de 13 %, et environ 33% en Asie du Sud (La Banque mondiale, 2016).

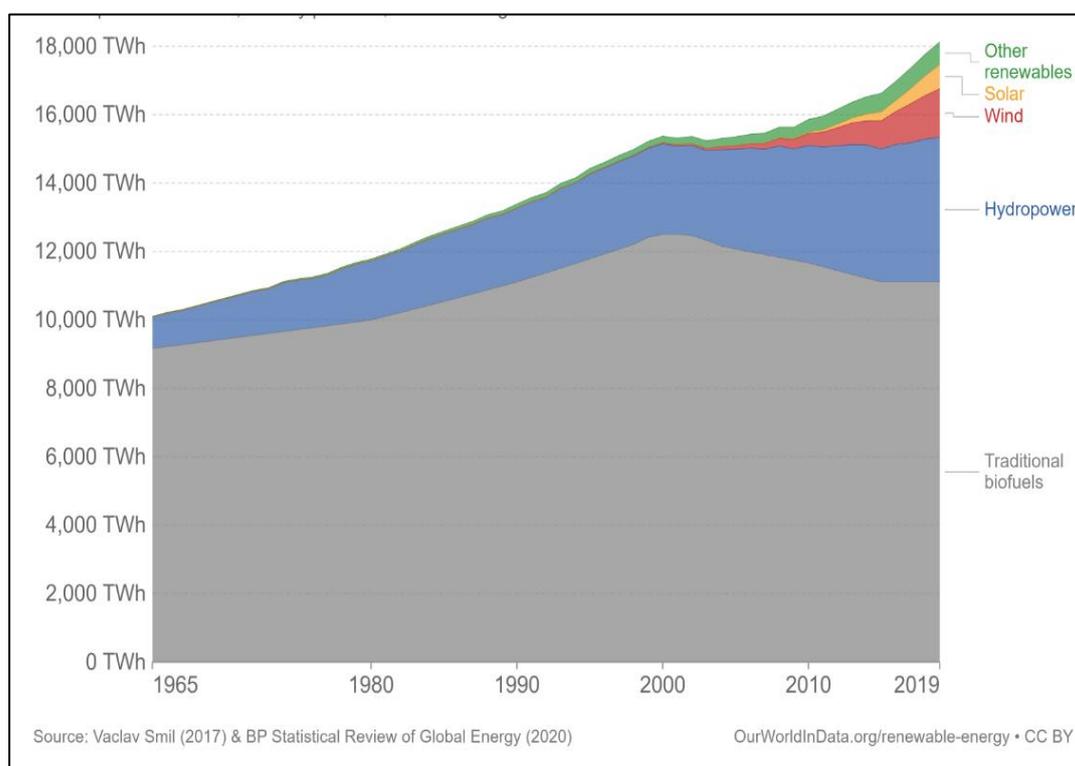


Figure 1-4. Production d'énergie à partir de différents combustibles renouvelables dans le monde. (OWD, 2021).

En 2019, les énergies renouvelables représentent la 4ème source d'énergie primaire en France. Elles représentent 11,7% de la consommation d'énergie primaire, derrière le nucléaire (40%), les produits pétroliers (28,8%) et le gaz naturel (16%) et devant le charbon (3%) et les déchets non renouvelables (0,8%). Au total, la consommation d'énergie primaire s'est élevée à 2 893 TWh en France en 2019, dont 339 TWh correspondent aux énergies renouvelables

(Lelynx, 2021). Les principales énergies renouvelables utilisées en France selon Lelynx sont citées ci-dessous.

- *La biomasse solide :*

La biomasse solide sert principalement à produire de la chaleur, et une partie minime sert à produire de l'électricité. C'est l'énergie renouvelable la plus courante en France dans le secteur résidentiel.

- *L'hydraulique renouvelable :*

La France compte plus de 2 000 installations hydrauliques, ce qui fait d'elle, avec la Suède, l'un des principaux producteurs d'énergie hydraulique de l'Union Européenne. L'hydraulique représente 51% de la production brute d'électricité renouvelable en France en 2019 dont le plus gros de la production est localisé dans l'est ainsi que dans le sud-est du pays. Malgré sa place privilégiée, l'énergie générée à partir de cette source reste variable suite à sa forte dépendance au débit des cours d'eau, mais surtout à la pluviométrie. En 2019, la production hydraulique a légèrement diminué par rapport à 2018.

- *Les biocarburants :*

Ils représentent 9,6% de la production d'énergies primaires renouvelables en France. Cela fait des biocarburants la 3^{ème} source renouvelable en France, derrière la biomasse solide et l'hydraulique. A noter que le biodiesel représente 81% de la consommation de biocarburants, contre 19% pour le bioéthanol.

- *L'éolien :*

Depuis les années 2000, la production d'électricité éolienne augmente constamment. En 2019, la production brute a atteint les 34,6 TWh, soit une progression de 21% par rapport à 2018. Une hausse qui s'explique par des conditions météorologiques très favorables. La puissance raccordée en 2019 s'établit à 1,4 GW, un chiffre en recul par rapport à 2018 (-11%). Le plus gros de la production se fait dans le nord de la France.

- *Le solaire photovoltaïque :*

A partir de l'année 2009, la filière solaire photovoltaïque progresse à vive allure. En 2019, la production s'est élevée à 11,4 TWh, un chiffre en hausse de +7,5% par rapport à 2018. La baisse des prix des modules photovoltaïques sur les dernières années peut notamment expliquer cet engouement. Sans énorme surprise, c'est dans le sud-ouest et le sud-est de la France, les zones géographiques qui bénéficient du plus grand ensoleillement, que la production est la plus forte.

- *Le solaire thermique :*

La filière du solaire thermique a progressé de 3,4% en 2019 pour atteindre 2,2 TWh. Cette filière est particulièrement développée dans les DOM, et spécifiquement à La Réunion. Le solaire thermique y représente les deux tiers des énergies renouvelables consommées pour produire de la chaleur. En métropole, cette proportion n'est que de 1%.

- *La géothermie :*

L'énergie géothermique est particulièrement produite en Ile-de-France, en Nouvelle-Aquitaine et dans le bassin rhénan. En 2018, on a enregistré 1,9 TWh de chaleur livrée.

- *Les pompes à chaleur :*

Le parc de pompes à chaleur installées en France ne cesse de progresser, notamment grâce à la vente d'appareils air-air. En 2019, 34 TWh de chaleur renouvelable ont été produits grâce aux pompes à chaleur, un chiffre en hausse de 12% par rapport à l'année précédente. Selon des chiffres provisoires, 907 000 appareils ont été vendus en 2019. Parmi eux : 728 000 pompes à chaleur air/air, 176 000 air/eau et 2 600 géothermiques.

- *Le biogaz et le biométhane :*

Le biogaz sert principalement à produire de l'électricité et de la chaleur. Entre 2018 et 2019, l'ensemble de la production d'énergie à partir de biogaz a progressé de 13%, rapporte le ministère de la Transition écologique. En 2019, 1,2 TWh de biométhane obtenu par épuration du biogaz, ont été injectés dans les réseaux de gaz naturel. Cela représente une progression de +70% par rapport à 2018. Fin 2019, on comptait 123 installations dédiées en France, soit une capacité totale de 2,2 TWh/an en service.

La Figure 1-5 montre la proportion de la consommation d'énergie renouvelable en France pour 2020. Le bois-énergie est en diminution par rapport à 2016, passant de 41% à 34% de la production d'énergies renouvelables française, mais toujours devant l'hydraulique (17%) et les biocarburants (12%). Par ailleurs, le solaire photovoltaïque ne représente que 3% et la géothermie moins de 3% (Centre de ressources pour la chaleur renouvelable et l'aménagement énergétique de territoires, 2017).

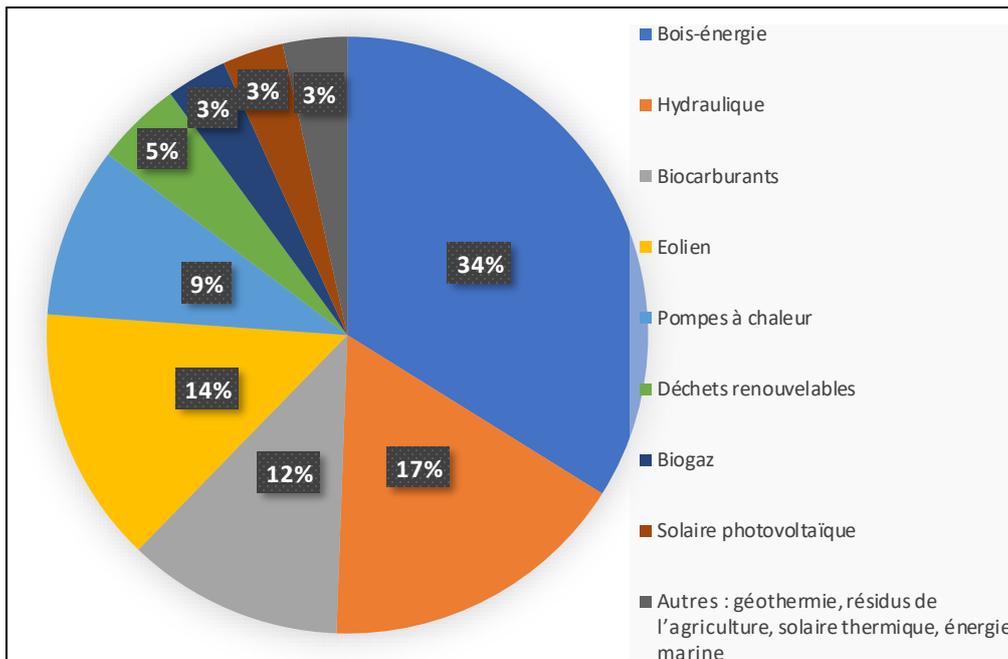


Figure 1-5. Proportions de l'utilisation des énergies renouvelables en France en 2020 (Lelynx, 2021).

1.1.3. La biomasse et son utilisation comme source d'énergie

Le terme "biomasse" couvre un large éventail de plantes et de matériaux dérivés, y compris les déchets biodégradables. Étant donné que les compositions chimiques de ces matières premières varient considérablement, le type de technologies de conversion de la biomasse dépend du matériau donné (Hayes, 2013).

L'industrie des combustibles fait souvent référence aux technologies de première ou de deuxième génération. Les combustibles de première génération sont considérés comme ceux qui sont obtenus à partir de cultures et de déchets à base de sucre, d'amidon ou d'huile. À ce jour, la quasi-totalité des combustibles produits commercialement proviennent de ces matières premières (Mohr & Raman, 2013). Les combustibles de deuxième génération sont produits à partir de la conversion de matériaux ligno-cellulosiques, une biomasse qui contient principalement de la cellulose, de l'hémicellulose et de la lignine. Par rapport aux carburants de première génération, les combustibles de deuxième génération présentent un avantage car ils permettent d'éviter d'entrer en concurrence avec d'autres besoins fondamentaux de l'humanité tels que la nourriture. Cette catégorie comprend également les déchets de bois et les déchets provenant d'activités liées à l'agriculture.

Une bonne partie de cette thèse se concentre sur la biomasse de bois. Ceci est dû au fait que la biomasse de bois est la plus commercialisée et la plus référencée actuellement. Il a donc été décidé de commencer l'étude par celle-ci.

Le bois contient deux composants chimiques majeurs : la lignine (18 à 35 %) et les glucides (65 à 75 %). La partie glucidique du bois contient de la cellulose dont la teneur varie de 40 à 50 %, et des hémicelluloses dont la teneur se situe entre 25 et 35 % (Pettersen, 1984).

On s'accorde généralement à dire que la biomasse est une ressource renouvelable. Toutefois, cela n'est pas tout à fait exact. Certains problèmes environnementaux non résolus peuvent se présenter pendant la plantation, la culture, la récolte, le transport et l'utilisation des combustibles de la biomasse, sans compter l'impact associé aux déchets issue de son utilisation. Ceci est mis en évidence en réalisant une Analyse du Cycle de Vie (ACV) de cette biomasse. L'ACV est une méthode normalisée d'analyse environnementale qui prend en compte l'ensemble des étapes de la vie d'un produit depuis l'extraction des matières premières, leurs transformations pour la production jusqu'à sa consommation. (Khila, 2018).

La biomasse continue d'être la plus importante des énergies considérées comme renouvelables. Celle-ci peut être convertie en énergie utile (chaleur ou électricité) ou en vecteurs énergétiques (comparable à du charbon, du pétrole ou du gaz) par des technologies de conversion thermochimique et biochimique. Les technologies de conversion biochimique (qui font intervenir avec des réactions chimiques qui se déroulent au sein de micro-organismes et notamment dans les cellules) comprennent la fermentation pour la production d'alcool et la digestion anaérobique pour la production de gaz enrichi en méthane. Dans la Figure 1-6 une liste non exhaustive de différentes façons de convertir la biomasse en énergie est présentée (van Loo & Koppejan, 2007). Par la suite, une attention particulière sera portée sur la conversion thermochimique de la biomasse car elle est le sujet principal de cette thèse.

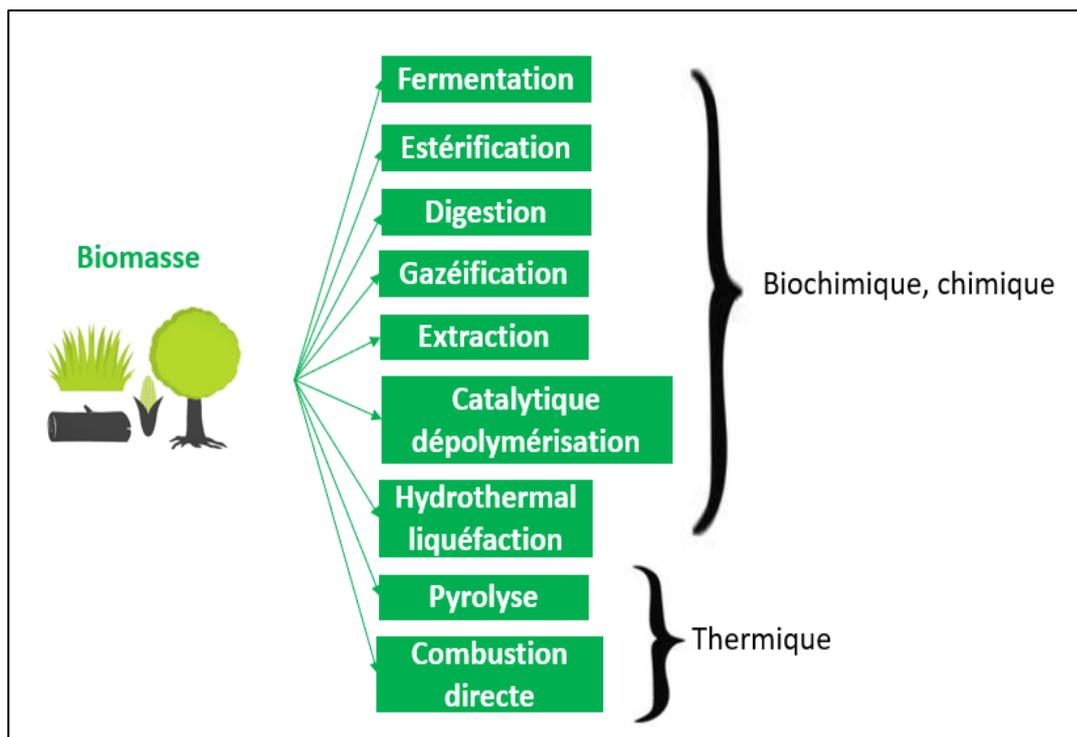


Figure 1-6. Les voies de conversion de la biomasse en énergie, la voie thermique est la plus utilisée. (van Loo & Koppejan, 2007).

Conversion thermochimique de la biomasse

Les procédés thermochimiques permettent de convertir l'énergie chimique de la biomasse en chaleur, électricité ou en carburant. Trois principales technologies commerciales sont disponibles en fonction de l'application : lit fixe, lit fluidisé et écoulement entraîné (Pham, Piriou, Salvador, Valette, & de Steene, 2018). La biomasse peut être convertie en énergie de différentes manières par voie thermique. Trois voies principales sont connues à ce jour : la gazéification, la pyrolyse et la combustion.

La gazéification est réalisée par la combustion partielle de la biomasse dans un milieu pauvre en oxygène, conduisant à la libération d'un produit gazeux (gaz de production ou gaz de synthèse). Trois modes de fonctionnement sont également possibles pour le gazéificateur : en « lit fixe », « lit fluidisé » ou « flux entraîné ». Le gaz résultant est un mélange de monoxyde de carbone (CO), d'eau, de dioxyde de carbone (CO₂), de charbon, de goudron et d'hydrogène (van Loo & Koppejan, 2007). Les technologies de gazéification ont été largement étudiées pour ses applications possibles pour la production d'énergie (Karmakar & Datta, 2011). Les études

sur la gazéification ont connu un grand succès au cours des dernières années (Dupont, Nocquet, Costa, & Verne-Tournon, 2011).

En ce qui concerne la pyrolyse, la combustion partielle est arrêtée à une température relativement basse (450 ° C à 600 ° C), entraînant la création d'un bio-huile liquide, ainsi que des produits gazeux et solides. L'huile de pyrolyse peut alors être utilisée comme carburant pour produire par exemple de l'électricité.

Enfin, la combustion est un phénomène complexe impliquant un couplage simultané des transferts de chaleur et de masse, dans un écoulement de fluide avec réactions chimiques. Sa prédiction et sa modélisation pour optimiser son contrôle exige la connaissance des propriétés du carburant et de la manière dont ces propriétés influencent le processus de combustion.

Il existe d'autres méthodes de conversion et de densification de l'énergie, telles que la torréfaction, plus rarement utilisée, pour la biomasse. La Figure 1-7 montre les principales différences entre les techniques de conversion thermique de la biomasse. Elle montre les principaux produits et les exigences en température pour chacun de ces processus.

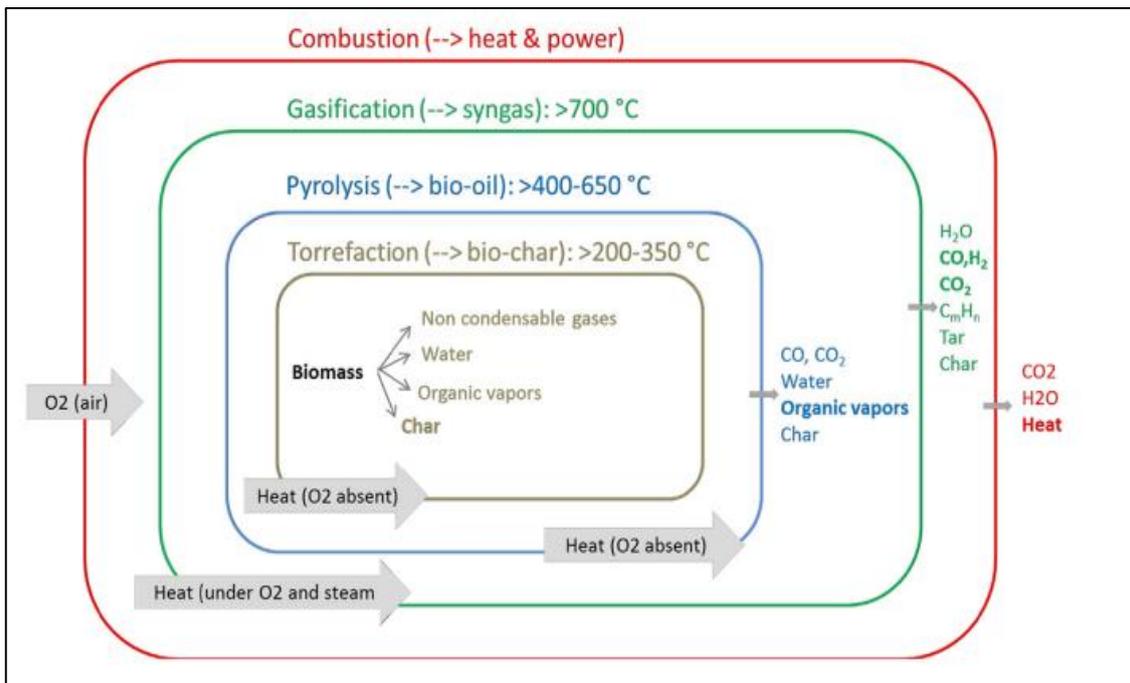


Figure 1-7. Synthèse des procédés thermiques de valorisation de la biomasse (Matsakas, Gao, Jansson, Rova, & Christakopoulos, 2017).

Sur la Figure 1-8, les plages de température ainsi que le rapport air-carburant pour lequel se produit chaque procédé sont présentés. Tel que mis en évidence par cette figure, le processus

qui produit le plus de chaleur est la combustion. C'est donc la plus utilisée car elle s'avère être le processus le plus performant au niveau thermique.

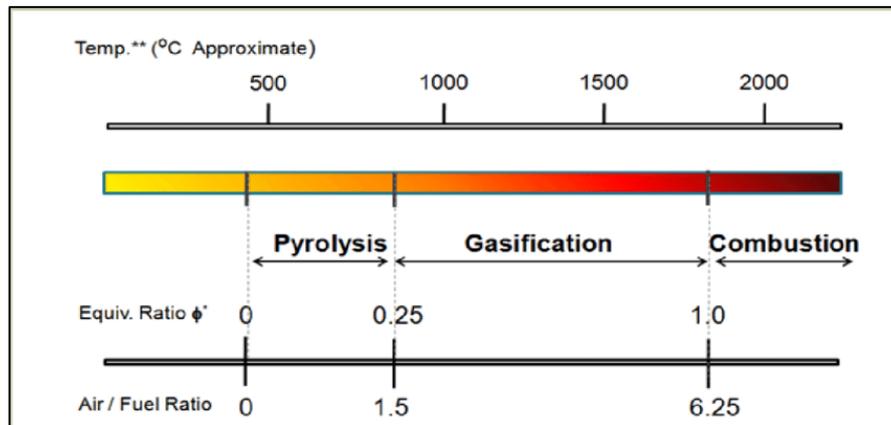
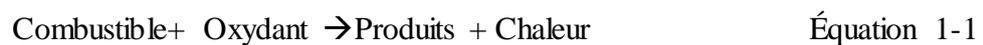


Figure 1-8. Plages de température et de richesse pour la combustion de la biomasse, la gazéification et la pyrolyse (Wilson & Neil Williams, 2013).

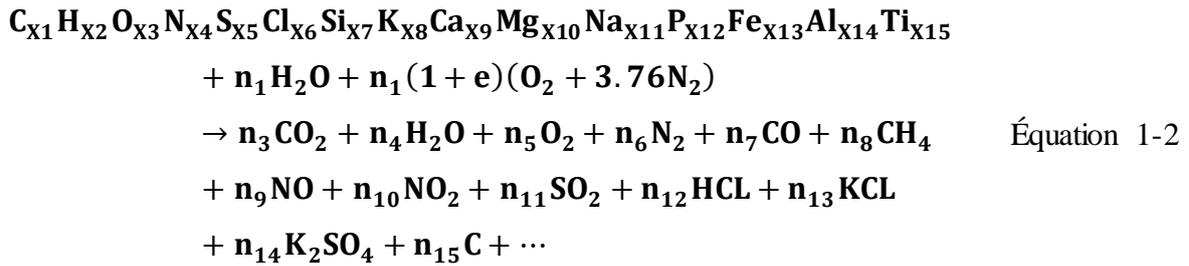
Combustion de solides

Comme mentionné précédemment dans l'introduction de ce travail, la combustion est le plus ancien procédé utilisé par l'humanité. La combustion, vue de la manière la plus simple possible, peut être représentée par l'équation de bilan suivante (Russell, 2013) :



En effet, pour avoir une réaction de combustion, il faut non seulement du combustible mais également suffisamment d'oxydant. Ensuite, cette réaction produit plus de chaleur qu'il n'en faut pour l'allumage, ce qui fait de la combustion un processus ayant un bilan énergétique positif.

Dans le cas spécifique de la combustion de solides, plusieurs phénomènes se produisent simultanément. Contrairement à la combustion des gaz qui est une combustion homogène où la réaction se déroule en phase gazeuse, la combustion des solides est une combustion hétérogène qui se produit en présence des différentes phases (solide-gaz). Une réaction globale dans l'air pour combustible de biomasse pourrait prendre la forme suivante :



Le processus de combustion de la biomasse comporte donc un certain nombre d'aspects physiques et chimiques d'une grande complexité. Le processus de combustion d'un solide peut être divisé en plusieurs processus : le séchage, la pyrolyse, la gazéification et la combustion.

La Figure 1-9 montre le déroulement dans le temps de la combustion d'une particule de biomasse. Sur cette figure, on peut suivre la variation de masse depuis le début de la combustion de la particule jusqu'à ce qu'elle devienne des cendres. La première partie de la figure délimitée par la zone violette est la zone au cours de laquelle la température de la biomasse commence à augmenter, la zone rouge correspond au séchage de la biomasse. Ensuite, la zone blanche est la zone de transition pendant laquelle la température continue à augmenter jusqu'à ce que la température de dévolatilisation soit atteinte. La zone bleue correspond ainsi à la dévolatilisation de la biomasse, pendant laquelle la biomasse se dégrade en composés gazeux légers et l'on observe l'apparition d'une flamme. Surligné en vert, la période où la dévolatilisation existe encore et où la combustion du charbon commence. Ces deux phénomènes se produisent simultanément lorsque la taille de la particule est suffisamment importante. Ensuite, la zone jaune correspond à la combustion du charbon et pour finir la zone grise représente la région où le combustible a été épuisé et où les seuls résidus restants sont des cendres. Les polluants gazeux et particulaires sont principalement émis pendant les phases de dévolatilisation/combustion flamme et de combustion du char.

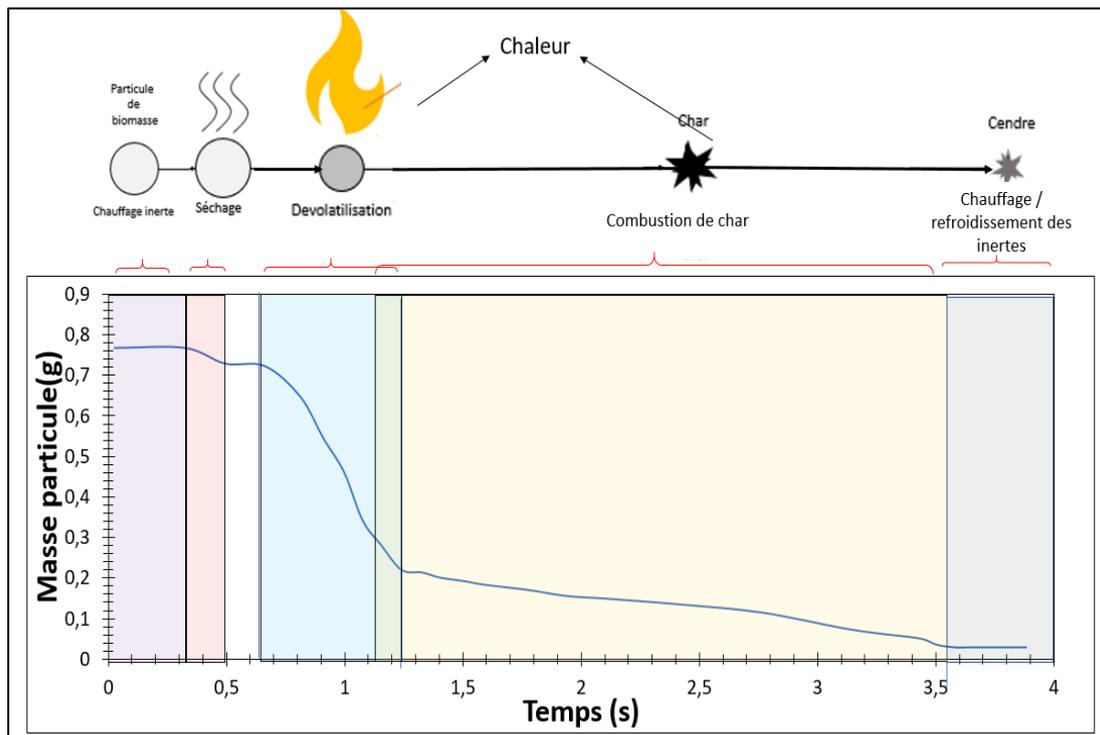


Figure 1-9. Description schématique de la combustion d'une particule de biomasse dans le temps

Les technologies pour la combustion de la biomasse

La combustion de la biomasse peut être réalisée à plusieurs échelles, des chaudières domestiques aux grandes installations industrielles. Cette thèse se concentre sur les applications domestiques, néanmoins, les résultats obtenus sur certains phénomènes de la combustion peuvent être extrapolés à d'autres applications, en particulier lors de l'utilisation de la biomasse déchiquetée.

Le choix et la conception de tout système de combustion de la biomasse sont principalement déterminés par :

- Les caractéristiques du combustible à utiliser.
- La législation environnementale.
- Les coûts et les performances des équipements nécessaires ou disponibles.
- L'énergie produite (chaleur, électricité).

La technologie de combustion est choisie pour s'adapter aux caractéristiques du combustible afin de répondre aux exigences technologiques et écologiques. L'ensemble des

technologies peut donc varier d'un cas à l'autre, mais généralement, les choix sont guidés par des effets d'économie d'échelle liés à la complexité du système d'alimentation en combustible, à la technologie de combustion et au système d'épuration des fumées. Les informations trouvées dans les sections suivantes sont majoritairement tirées du travail de (van Loo & Koppejan, 2007) et (Strehler, 2000). Les références ne seront plus citées pour chaque information discutée par souci de simplicité.

Les systèmes à grande échelle utilisent habituellement des combustibles de faible qualité (haute teneur en humidité, taille des particules et comportement de fusion des cendres non homogènes), tandis que des combustibles de haute qualité sont nécessaires pour les systèmes à petite échelle, en raison des exigences élevées en matière de rendement imposées par les normes et des éventuels problèmes mécaniques et de combustion que certains combustibles de basse qualité pourraient causer.

Dans ce contexte, les technologies de combustion pour les applications à grande échelle, présentent des similitudes avec les systèmes de combustion des déchets. De plus, lorsque des combustibles de biomasse naturelle non traités chimiquement sont utilisés, les technologies d'épuration des gaz de combustion nécessaires sont moins complexes et donc moins coûteuses. Malgré cet avantage, les anciennes technologies de combustion se sont révélées incapables de traiter efficacement les combustibles de biomasse non-homogènes, et des problèmes concernant les émissions et la sécurité ont surgi. De nouvelles technologies de préparation des combustibles, de combustion et d'épuration des gaz de combustion ont été développées. Elles s'avèrent plus efficaces, plus propres et plus rentables que les systèmes précédents et peuvent être utilisées pour une alimentation multicomcombustible. Cela ouvre de nouvelles possibilités pour les applications de combustion de la biomasse dans des conditions qui étaient auparavant trop coûteuses ou inadaptées, augmentant la compétitivité de ces systèmes et la disponibilité des installations sur le marché.

Le développement de technologies plus performantes n'a pas échappé au secteur résidentiel. Au fil du temps, à mesure que l'utilisation de la biomasse pour chauffer les maisons augmentait, les appareils ont évolué et se sont améliorés. Ainsi, la cheminée ouverte utilisée depuis des années a été remplacée par des appareils de plus en plus sophistiqués : poêles (plus ou moins perfectionnés, à bois ou à granulés), foyers fermés, fours, chaudières à bois et, depuis quelques décennies, chaudières à granulés ou à copeaux de bois.

Aujourd'hui, il est connu que le rendement des cheminées est faible (environ 10%) et leur utilisation comme moyen de chauffage domestique n'est plus très populaire, elles ne servent plus que comme objet décoratif et convivial.

Une description plus détaillée des équipements les plus répandus sera réalisée par la suite. La chaudière étant l'équipement choisi pour ce travail expérimental, elle sera bien évidemment détaillée. Mais des informations sur d'autres technologies seront également fournies car la majorité des valeurs obtenues dans ce mémoire seront comparées à d'autres résultats issus de travaux utilisant aussi des granulés mais avec des installations un peu différentes. D'où la nécessité de comprendre la différence entre chacun d'eux.

Poêles conventionnels

Un poêle à bois est un appareil autonome destiné à chauffer l'espace dans lequel il se trouve, sans utiliser de conduits. Les poêles libèrent de l'énergie thermique utile par rayonnement et par convection dans leur environnement. Bien que tous les poêles utilisent les deux formes de transfert de chaleur, ils sont généralement classés en poêles à rayonnement ou à circulation (convection) en fonction du principal mode de transfert de chaleur. Ils fonctionnent avec un tirage naturel et ont des rendements de 30 à 80%, avec des puissances de 5 à 15 kW.

En ce qui concerne leur structure, les parois et l'âtre du foyer sont généralement revêtus de matériaux résistant au feu. En bas de la chambre de combustion, certains poêles sont équipés de grilles à cendres sur laquelle repose le bois. Dans ce cas, les cendres sont récoltées dans un cendrier placé sous la grille. Pour d'autres modèles plus simples, en absence de grille, les cendres sont retirées directement de l'âtre. L'air nécessaire à la combustion est injecté à travers la grille au plus près du bois et les fumées sont rapidement évacuées. Dans les poêles les plus récents, un filet d'air balaye la vitre pour empêcher les dépôts et une deuxième chambre de combustion est ajoutée avec l'injection d'air secondaire pour terminer la combustion des gaz.

Dans la chambre de combustion, un réflecteur peut être installé pour renvoyer la chaleur vers le foyer et imposer une circulation plus longue aux gaz. Dans les poêles catalytiques, un catalyseur est ajouté à la sortie de la chambre de combustion pour limiter les émissions polluantes.

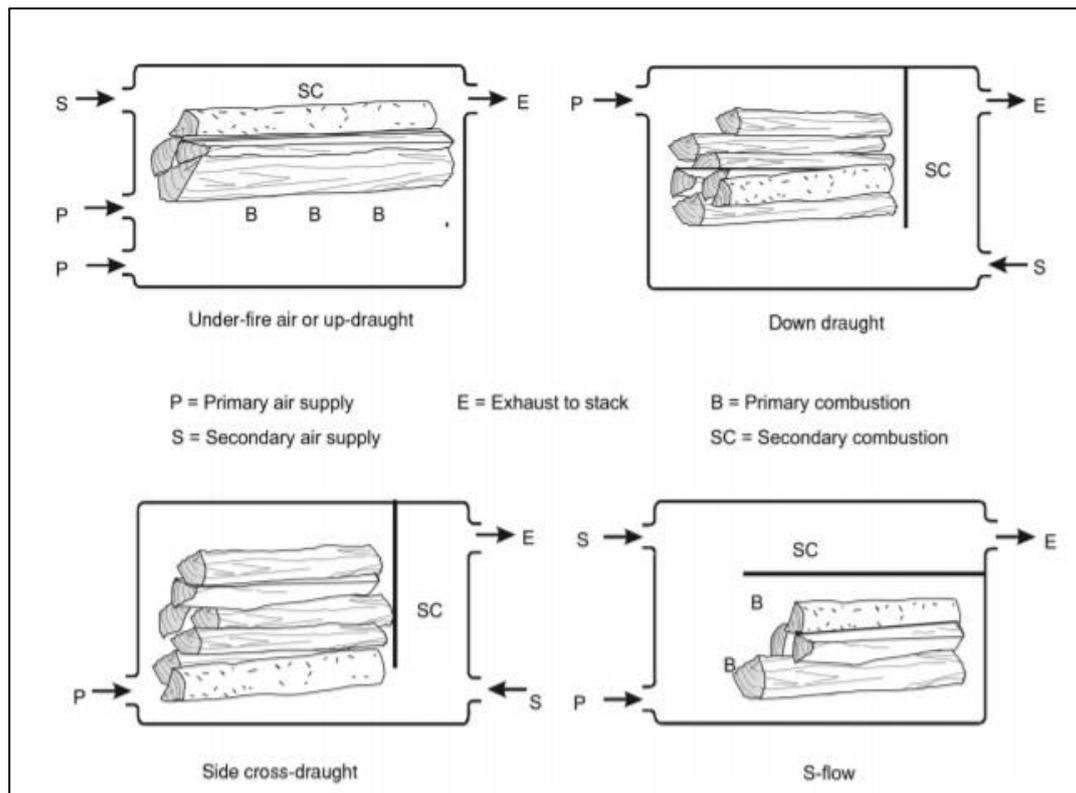


Figure 1-10. Différentes configurations pour l'admission d'air et l'alimentation en carburant sont possibles pour les poêles conventionnels (van Loo & Koppejan, 2007).

Inserts-Foyer fermés à dégagement nul

Un insert de cheminée est essentiellement un poêle à bois installé dans une cheminée existante. Un foyer sans dégagement quant à lui est un poêle à bois conçu pour être fermé afin de donner l'apparence d'une cheminée. Leur fonctionnement est comparable à celui d'un poêle, mais ils nécessitent un système de transfert de chaleur plus élaboré pour éviter une perte de chaleur excessive. Dans les inserts de cheminée, la chaleur est transférée dans une certaine mesure par rayonnement, principalement à partir de la flamme vers les parois de la chambre de combustion et à travers la vitre de la porte. Toutefois, le mécanisme de transfert de chaleur le plus important reste la convection naturelle ou forcée.

Les foyers ouverts peuvent être transformés en appareils de chauffage plus efficaces grâce à des inserts. Les cheminées et inserts sont équipés d'un échangeur de flux d'air pour une meilleure récupération de la chaleur ou, dans certains cas, d'un échangeur d'eau (lié au système de chauffage central), ce qui permet d'atteindre des rendements compris entre 40% et 80 % selon l'appareil. La Figure 1-11 montre un exemple d'insert fonctionnant avec des buches.



Figure 1-11. Exemple d'un insert (Godin Modane)

Poêles à accumulation de chaleur

Les poêles à accumulation de chaleur lourds sont construits à partir de plaques de pierres lourdes. Par exemple, la pierre ollaire ("speckstein" en allemand) est connue pour sa capacité à résister aux flammes directes et à conserver la chaleur. Pendant la combustion, le bois est brûlé à un taux de combustion élevé. Une fois le feu éteint, le poêle continue à diffuser la chaleur accumulée dans la pièce pendant un temps considérable (1 à 2 jours). Les poêles finlandais en stéatite ont généralement une masse considérablement élevée d'entre 700 kg à 3000 kg, et parfois plus encore. Ils peuvent donc stocker beaucoup d'énergie qui est ensuite lentement libérée dans l'espace environnant.

Chaudières à bûches

Il existe de nombreux modèles de chaudières à bûches, qui peuvent être classées en trois catégories en fonction du type de combustion, c'est-à-dire du parcours des gaz dans la chambre de combustion. Pour celles de combustion montante (ou directe), l'air primaire est injecté sous le bois, l'air secondaire au-dessus et le flux d'extraction d'air est naturel (pas d'extracteur ou de ventilateur). Une deuxième classification sont les chaudières à combustion horizontale (ou semi-inversée) où l'air primaire est injecté par le bas du bois, seule la partie en bas de l'empilement de biomasse brûle. Une chambre de combustion séparée pour les gaz (avec air secondaire) est donc placée sur le côté du foyer. Le tirage des fumées quant à lui est souvent

naturel mais peut être forcé. Enfin, pour ceux avec une combustion inversée (ou descendante) l'air primaire est injecté en haut de la chambre de combustion et descend à travers le bois reposant sur une grille ; sous cette grille se trouve une chambre de combustion des gaz (air secondaire). Le tirage peut être naturel mais il est le plus souvent forcé par un ventilateur, ce qui permet également un meilleur contrôle de la combustion, on parle alors de chaudière turbo.

Les chaudières à tirage naturel sont régulées par l'apport d'air primaire : un volet commandé par un thermostat contrôle la quantité d'air primaire injectée dans la chaudière (l'air secondaire étant fixé à l'installation). Lorsque la demande d'énergie augmente (température inférieure à la température de consigne), le volet est ouvert, introduisant une quantité suffisante d'air primaire pour avoir une combustion importante. Lorsque la température de consigne est atteinte, le volet se ferme limitant la combustion. Dans les chaudières de type turbo, le ventilateur permet une régulation en fonction de la demande d'énergie.

Chaudières à surchauffe « Over-fire boilers ».

Les chaudières à surchauffe sont les chaudières domestiques les plus simples et les moins chères pour la combustion de bûches de bois. Dans ces chaudières, la combustion se produit dans tout le lot de combustible plus ou moins en même temps, comme dans les poêles à bois. La chaudière est habituellement équipée d'une entrée d'air primaire sous la grille et d'une entrée d'air secondaire au-dessus du lot de combustible, dans la chambre de combustion (des gaz). Le bois est introduit par la porte supérieure et les cendres sont évacuées par la porte inférieure.

Ces chaudières utilisent le tirage naturel. Les émissions d'hydrocarbures non brûlés des chaudières à surchauffe peuvent être élevées si elles fonctionnent à faible taux de combustion, ce qui est souvent le cas, notamment au printemps et en automne. Une combustion optimale pour l'environnement ne peut être obtenue que si la chaudière fonctionne au rendement thermique nominal. Dans les pays scandinaves, les chaudières à surchauffe sont généralement raccordées à un réservoir de stockage d'eau d'un volume de 1 à 5 m³. Ainsi, l'eau chaude sanitaire est produite par un échangeur de chaleur dans le réservoir de stockage. Dans de nombreux pays européens, les chaudières à surchauffe sont également utilisées avec des réservoirs de stockage de chaleur permettant d'allumer la chaudière à la puissance thermique nominale afin de minimiser les émissions.

Chaudière à tirage descendant « Down-draught boilers »

Les dernières innovations dans le secteur de la combustion des bûches de bois sont les chaudières à tirage descendant. Les gaz de combustion sont forcés à s'écouler vers le bas à travers des trous dans une grille en céramique. L'air de combustion secondaire est introduit dans la grille ou dans la chambre de combustion secondaire, qui est habituellement isolée par de la céramique. La combustion finale a lieu à des températures élevées. Etant donné que la résistance à l'écoulement des gaz de combustion est assez élevée, un ventilateur d'air de combustion ou un ventilateur de gaz de combustion est nécessaire. Ce ventilateur permet également une introduction et distribution précises de l'air de combustion primaire et secondaire dans la chambre de combustion.

Des limites d'émission très strictes dans certains pays ont rendu nécessaire l'introduction de chaudières à tirage descendant. D'autres nouveautés incluent des dispositifs avancés de contrôle de la combustion. C'est le cas des sondes de contrôle lambda pour mesurer la concentration en oxygène des gaz de combustion, permettant un contrôle précis de l'air de combustion et une combustion par étapes. En raison de leur technologie plus avancée, les chaudières à tirage vers le bas sont plus coûteuses que les chaudières simples à tirage vers le haut ou même que les chaudières à surchauffe.

Chaudières à pellets

L'utilisation de granulés de bois pour le chauffage domestique est assez récente. Les appareils à pellets ont été développés dans les années 1980, mais la pénétration significative du marché des poêles à pellets n'a eu lieu qu'au cours des vingt dernières années. Les brûleurs à granulés, destinés aux chauffages centraux, ont été mis au point dans les années 1990 et occupent désormais une part importante du marché du chauffage domestique. En Autriche, en Allemagne et au Danemark, les chaudières à granulés (pellets) sont les plus courantes. Les granulés sont des combustibles issus de sous-produits de la transformation du bois. Dans d'autres pays, l'intérêt pour le chauffage à pellets ne fait que s'éveiller, stimulé par la hausse des prix du pétrole.

Les pellets sont particulièrement intéressants car ils peuvent brûler avec de très faibles émissions, Ils offrent une souplesse d'utilisation comparable à celle des combustibles conventionnels liquides ou gazeux, et parce que les brûleurs à pellets peuvent remplacer les brûleurs à mazout dans les chaudières existantes, une réduction du temps de retour sur investissement peut aussi être observée. Les meilleurs systèmes à granulés peuvent atteindre des rendements de plus de 80 %. Cependant, à charge partielle et à charge variable, le rendement peut diminuer.

Les chaudières à granulés à usage domestique sont généralement construites pour une puissance thermique nominale inférieure à 25 kW. Selon le système d'alimentation, on peut identifier trois types de brûleurs différents tels que présentés dans la Figure 1-12. Les brûleurs les plus intéressants sont certainement ceux à alimentation horizontale (Figure 1-12 schéma B), dans lesquels les gaz sont libérés à l'intérieur d'une chambre de combustion (tube) pendant la dévolatilisation et dans lequel une zone de combustion primaire peut être définie, contrairement aux autres types de brûleurs.

Les chaudières alimentées par le fond sont également intéressantes en raison de la stabilité de ses émissions (Figure 1-12 partie A). L'alimentation par chute, quant à elle (Figure 1-12 partie C) nécessite de conditions de combustion stables et des périodes d'attente minimales, c'est-à-dire en évitant des nombreux démarrages ou le fonctionnement avec une flamme pilote pour garantir des émissions limitées. Les émissions globales peuvent généralement être réduites lorsqu'un allumage électrique plutôt qu'une flamme pilote est utilisé.

Ce dernier type chaudière peut avoir d'autres avantages et inconvénients qui seront plus longuement détaillés dans la suite.

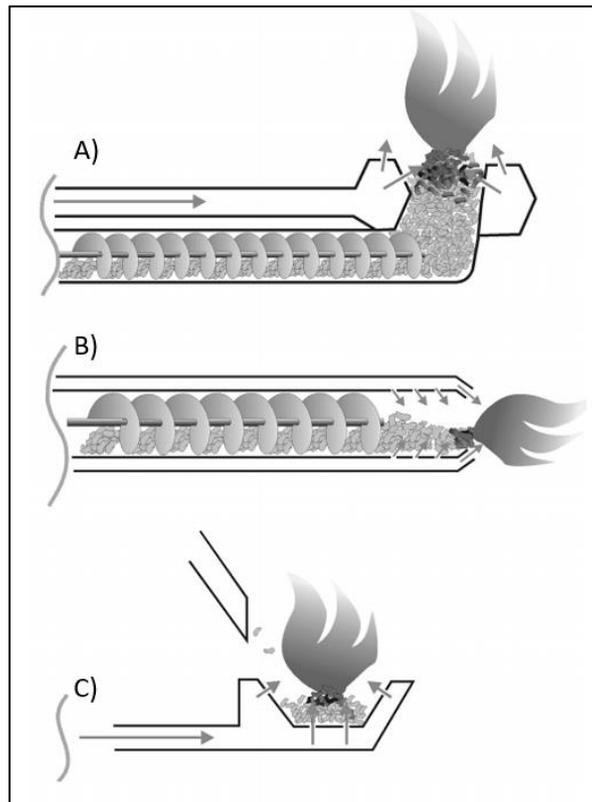


Figure 1-12. A) Alimentation en combustible par le fond de la chambre de combustion. B) Alimentation par le côté de la chambre de combustion. C) Alimentation par chute (« Drop-feed ») (van Loo & Koppejan, 2007).

Technologies de combustion pour les systèmes de chauffages industriel et urbain

Il s'agit de systèmes d'une capacité thermique nominale supérieure à 100kW. Ces fours sont généralement équipés de systèmes d'alimentation en combustible mécaniques ou pneumatiques. En outre, les installations de combustion industrielles modernes sont équipées de systèmes de contrôle des processus permettant un fonctionnement entièrement automatisé. Les cycles fermés sont bien adaptés aux combustibles solides et sont largement appliqués pour la production d'électricité à partir du charbon, de la biomasse et des déchets solides municipaux.

1.2. Les émissions polluantes issues de la combustion du bois

Les inquiétudes concernant les émissions et la nécessité de se conformer à des réglementations de plus en plus strictes ont motivé un nombre considérable de recherches. Les restrictions qui ne s'appliquaient auparavant qu'aux systèmes de combustion à grande échelle, comme les centrales électriques, sont désormais appliquées à des échelles de plus en plus réduites et continuent d'être un moteur pour la recherche et le développement dans de nombreux procédés industriels à haute température. Par ailleurs, dans le cadre du développement actuel, on peut s'attendre à ce qu'un large éventail de combustibles solides contribue à l'approvisionnement énergétique. Outre le charbon, les différents combustibles issus de la biomasse et les déchets ménagers et industriels sont devenus plus importants. L'utilisation de ces nouveaux combustibles et de leurs mélanges introduit de nouveaux défis dans la lutte contre la pollution (Vovelle, Mellottée, & Delbourgo, 1982).

Les émissions polluantes sont détaillées ci-après (van Loo & Koppejan, 2007) :

- Dioxyde de carbone (CO_2) : Il se produit lorsque le carbone du combustible est complètement oxydé.
- Vapeur d'eau (H_2O) : Elle provient de l'eau du combustible (humidité) et de l'oxydation de l'hydrogène.
- Oxydes d'azote (NO_x) : ils proviennent principalement de l'azote contenu dans le combustible (mécanisme du NO combustible : la dégradation du bois produit quelques molécules de NH_3 et HCN , qui sont ensuite oxydées en NO (> 90 %) et NO_2 (10 %) ; (Glarborg, 2003). Le mécanisme du NO thermique (réaction de l'azote de l'air avec l'oxygène) n'est pas majoritaire dans le cas de la combustion de la biomasse car la température du foyer est toujours relativement faible (inférieure à 1000°C), les conditions ne sont pas propices à la dissociation du diazote de l'air (Zhai, et al., 2017).
- Particules : les minéraux contenus dans le bois ainsi que des sels (KCl , NaCl , K_2SO_4) formés par réaction du potassium, calcium, chlore ou soufre du combustible ne sont pas transformés et peuvent être entraînés par les gaz. C'est principalement ces composés qui forment les particules (cendres).

Lorsque la combustion est complète, ou incomplète (Liu, 2009), les fumées sont composées de 70 à 75 % de N_2 , de 5 à 10 % de CO_2 , de 2 à 5 % d' H_2O et de 5 à 15 % d' O_2 , le pourcentage variant en fonction du factor d'air (Haseli, 2012). Dans le bois, les quantités de chlore et de soufre sont très faibles, ce qui implique que les émissions de produits de réaction

de ces éléments sont faibles, ils sont uniquement présents sous forme de traces. L'azote quant à lui représente environ 0,1 % du bois, ce qui produit au maximum 100 ppm de NO lors de sa combustion (Hayes, 2013) (Jenkins, 1998).

Dans un appareil de chauffage au bois, la combustion n'est jamais totalement complète, produisant donc des gaz qui ne sont pas complètement oxydés. Les produits formés par la combustion incomplète du bois sont principalement les suivants :

- Monoxyde de carbone (CO) : Il est formé lors de l'étape d'oxydation du carbone du combustible (Haseli, 2012) et il représente un bon indicateur de la qualité de la combustion. Lorsque la combustion est complète, les teneurs en CO sont très faibles et peuvent augmenter quand la combustion devient incomplète, soit par manque d'O₂, soit à cause d'une température trop faible.

- Imbrûlés solides (ou « *particulate matter* » PM) : Le terme Aérosol désigne des particules solides et liquides en suspension dans l'atmosphère dont la taille peut varier de quelques nanomètres à des dizaines de microns (Calvo, Tarelho, Alves, Duarte, & Nunes, 2014). Les particules d'aérosols atmosphériques peuvent provenir de sources naturelles ou anthropiques et sont soit émises (majoritairement), soit formées dans l'atmosphère à partir de gaz précurseurs (aérosols secondaires). Les aérosols sont constitués de mélanges complexes de composés organiques et inorganiques, présentant un large spectre de propriétés physiques et chimiques, qui déterminent leurs effets sur le climat et la santé (Boucher, 2015), (Pöschl, 2005). Ils se composent de suies (une masse de particules de carbone impur résultant de la combustion incomplète d'hydrocarbures, elles seront discutées plus en détail dans les sous chapitres suivants), de charbon, de goudrons condensés (hydrocarbures lourds) et de poussières de bois (Jaworek, Sobczyk, Marchewicz, Krupa, & Czech, 2020). L'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) a signalé qu'en 2012, environ 4,2 millions de personnes sont décédées du fait de leur exposition à la pollution atmosphérique. En général, 9 personnes sur 10 dans le monde vivent dans des endroits où les limites suggérées par l'OMS sont dépassées (WHO, 2020). Les particules (PM) sont l'un des polluants les plus alarmants en Europe. Les niveaux limites moyens quotidiens dans l'air ambiant fixés par la directive européenne 2008/50/CE sont fréquemment dépassés dans de nombreuses régions.

- Composés organiques volatils (COV) : Ce sont des hydrocarbures formés durant les étapes d'oxydation du carbone, ils sont également émis de manière importante par la combustion du bois, et notamment le benzène, le seul composé réglementé dans l'air ambiant.

Néanmoins, des études ont observé un rapport toluène/benzène trop élevé dans le cas de l'utilisation de la biomasse (Sinha, et al., 2009).

- Hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) : Ils constituent une classe de composés organiques qui comportent des noyaux aromatiques. L'exposition aux HAP n'est presque jamais le fait d'un seul produit chimique, mais de mélanges complexes qui peuvent provenir de diverses sources et emprunter différentes voies d'ingestion dans le corps humain (oral, dermique ou inhalation) (Hsieh, Sedykh, Mutlu, Germolec, & Auerbach, 2021). La cancérogénicité est généralement considérée comme le plus important problème de santé publique associé aux HAP (IARC, 2010).

- Dioxines et furanes: Les polychlorodibenzo-p-dioxines et les polychlorodibenzofurannes (PCDD/PCDF) n'ont jamais été produits intentionnellement mais ils sont les sous-produits involontaires de beaucoup de procédés industriels et de tous les procédés de combustion. Presque tous les 210 congénères possibles sont dégagés par ces sources et, à cause de leur stabilité chimique, physique et biologique ainsi que de leur transport sur de grandes distances, ils sont omniprésents et ont été détectés dans tous les compartiments de l'environnement. En raison de la persistance des congénères 2,3,7,8-substitués et de leurs propriétés lipophiles, des PCDD/PCDF s'accumulent dans les tissus gras et dans les matières riches en carbone telles que sols et les sédiments (UN, 1999).

- Goudrons : Désigne les hydrocarbures lourds qui se condensent, ils sont principalement issus de l'étape de pyrolyse du bois.

La combustion du bois ne représente qu'une part importante des émissions polluantes totales. Sa contribution est surtout due aux émissions de COV, des HAP et du CO mais elle demeure modeste. Cependant, la majorité des polluants émis par la combustion du bois proviennent du chauffage domestique, et non pas du chauffage industriel ou collectif. Par exemple, 92 % des émissions d'imbrûlés solides produites par la combustion du bois, sont produites dans des appareils individuels.

Application	NO _x (kt)	SO ₂ (kt)	CO (kt)	PM (kt)	CH ₄ (kt)	COV-NM (kt)	HAP (t)	PCDD/F (g)
Chauffage résidentiel	15,3	6,1	1967,9	109,9	154,6	466,7	101,0	30,7
Chauffage collectif et industriel	3,4	0,8	5,5	1,9	0,1	0,1	0,2	0,9
Emissions totales du chauffage au bois	6,9	6,9	1973,4	111,7	154,7	466,8	101,2	31,5
Emissions totales en France	664,8	664,8	7062,2	1635,2	2999,6	2353,7	263,5	516,6
Part du chauffage au bois	1,30%	1,00%	27,90%	6,80%	5,50%	19,80%	38,40%	6,10%

Tableau 1-1. Valeurs des émissions pour la combustion du bois pour différentes types d'installation CITEPA pour l'année 2001 (Allemand, 2003).

1.2.1. Emission des gaz CO et NO_x.

Ainsi, les principales émissions gazeuses polluantes sont le CO et le NO_x. Ce sous-chapitre se concentre donc sur leur production et leur formation. Malgré la croissance et le développement des systèmes de combustion domestiques sur le marché, leur fonctionnement reste contraint par certaines caractéristiques spécifiques de la biomasse. Cette dernière contient de l'humidité, des éléments alcalins et d'autres constituants tels que l'azote (N) et le soufre (S) qui sont présents dans des proportions différentes selon le type de biomasse utilisée.

Pendant la combustion, l'humidité contenue dans la biomasse pose des problèmes tels qu'un retard d'allumage, une augmentation du temps de séjour du combustible dans la chambre de combustion et une réduction de la température de flamme (Vicente & Alves, 2018) (Fiedler, 2004). Ces problèmes conduisent à une combustion incomplète et donc à une augmentation des

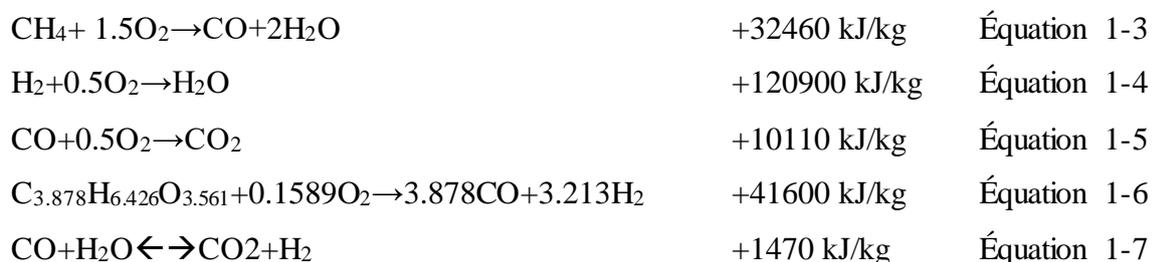
niveaux d'émission de monoxyde de carbone (CO), de composés organiques volatils (COV) et de suie. Le CO est la deuxième émission la plus abondante de la combustion, après le CO₂. Les NO_x sont des gaz toxiques produits tant que le combustible contient de l'azote (Calvo, Tarelho, Alves, Duarte, & Nunes, 2014). D'autres émissions peuvent être liées à la concentration de soufre (S) et de chlore (Cl) dans la biomasse mais cette thèse se concentrera sur les émissions de CO et de NO_x parce qu'ils sont bien documentés dans les normes, qu'il est possible de les optimiser avec les techniques utilisées dans cette thèse et qu'ils sont faciles à mesurer.

Formation du monoxyde de carbone (CO)

Le monoxyde de carbone se forme lors d'une combustion incomplète, lorsque la quantité d'air fourni est inférieure à la stoechiométrie. Comme mentionné auparavant, le CO est un bon indicateur de la qualité de la combustion (complète ou incomplète) et le taux d'émission est plus élevé dans les petits appareils que dans les grandes installations (Vicente, 2018). Le monoxyde de carbone peut se former dans les deux phases de la combustion : homogène (flamme) ou hétérogène (solide). On distinguera les mécanismes impliqués en phase homogène et en phase hétérogène.

Phase homogène

Les réactions montrées ci-dessous seront un résumé des schémas proposés par (Dryer & Glassman, 1973), (de Souza Santos, 1989), (Howard, Williams, & Fine, 1973), (Smoot & Smith, 1985) et (Haseli, 2012).



Les équations ci-dessus représentent la combustion du méthane (Équation 1-3), de l'hydrogène (Équation 1-4), du monoxyde de carbone (Équation 1-5) et du goudron (Équation 1-6). L'Équation 1-7 est la réaction du CO avec la vapeur d'eau « *water-gas shift reaction* ».

Phase hétérogène

Le charbon qui reste après la dévolatilisation subit des réactions chimiques de surface. Etant donné que l'oxydation du charbon se produit à des températures plus élevées que la dévolatilisation, la température de char doit donc être supérieure à la température de vaporisation pour activer cette réaction. Les réactions de surface représentées dans les équations suivantes sont globales et tentent d'expliquer les réactions chimiques qui ont lieu sur la surface du charbon. Le monoxyde de carbone qui est formé va ensuite réagir avec l'oxygène dans le cadre de réactions homogènes (Marangwanda, Madyira, & Babarinde, 2020):



La combustion hétérogène du charbon est un phénomène de surface et par conséquent l'effet de la forme de char est important. En effet, les granulés de biomasse se présentent sous différentes formes et tailles, et elles peuvent être non sphériques. Dans ce cas les granulés ont tendance à avoir une plus grande surface par rapport à la sphère de même volume ainsi qu'une quantité significative de porosités qui augmente le flux d'oxygène dans la matière (Tabet & Gökalp, 2015).

Formation des oxydes d'azote (NOx)

Les émissions d'oxydes d'azote provenant de la combustion et des processus industriels à haute température continuent d'être d'une importance environnementale majeure. L'oxyde nitrique et le dioxyde d'azote sont des précurseurs des pluies acides et participent à la production de smog photochimique, tandis que l'oxyde nitreux est un gaz à effet de serre (Glarborg, 2003).

Les oxydes d'azote, appelés NOx, sont formés soit par la réaction de N₂ dans l'air à haute température, soit par l'oxydation de l'azote chimiquement lié dans le combustible. La plupart des réactions conduisent à la formation de NO, du dioxyde d'azote (NO₂) peut être émis mais

en faible proportion comparé aux émissions sous forme d'oxyde nitrique (NO). Ce dernier peut ensuite être oxydé en NO₂ dans l'atmosphère. Les émissions d'oxyde nitreux (N₂O) peuvent être importantes dans la combustion en lit fluidisé (CLF), mais sont négligeables dans la plupart des systèmes de combustion.

Lorsque la combustion du solide commence, l'azote du combustible est réparti entre les volatiles et la matrice de carbonisation solide (Molina, Eddings, Pershing, & Sarofim, 2000).

Les NO_x sont formés à la fois dans la combustion en phase gazeuse et dans la combustion du résidu charbon. Les mécanismes de réaction possibles en phase gazeuse pour la formation de NO_x dans les applications de combustion de la biomasse sont :

1- Le mécanisme du NO_x-Combustible (« *NO_x-fuel* ») (Miller & Bowman, 1989) (Bowman, 1992) :

L'azote du carburant est converti en NO (> 90%) et NO₂ (< 10%) par une série d'étapes réactionnelles élémentaires appelées mécanisme d'oxydation du carburant. Les principaux composants primaires contenant de l'azote sont NH₃ et HCN. Cependant, des quantités significatives de NO et de N₂ peuvent également être trouvées dans le gaz de pyrolyse. Si suffisamment d'O₂ est disponible, NH₃ et HCN seront principalement convertis en NO par différentes voies de réaction. Cependant, dans des conditions riches en combustible, le NO réagira avec NH₃ et HCN, formant du N₂. Cette réaction est utilisée comme mesure primaire de réduction des NO_x. En optimisant le ratio de l'excès d'air primaire, la température et le temps de résidence, une conversion maximale de NH₃ et HCN en N₂ peut être obtenue.

2- Le mécanisme thermique des NO_x (Beér, 1994):

L'azote présent dans l'air commence à réagir avec les radicaux O et forme du NO à des températures supérieures à 1300°C environ. La quantité de NO formée augmente avec la température, avec la concentration en O₂ et avec le temps de séjour. Cependant, dans les applications de combustion de la biomasse, les températures dans la zone de flamme sont, généralement inférieures à 1300°C, ce qui rend ce mécanisme moins efficace.

3- Le mécanisme rapide « prompt-NO » (Fenimore, 1971):

L'azote présent dans l'air peut également réagir avec le CH, principalement, en formant du HCN, qui suit ensuite les étapes de réaction du mécanisme du « *NO_x-fuel* ». Le mécanisme de NO_x rapide est moins dépendant de la température et beaucoup plus rapide que le mécanisme de NO_x thermique. Cependant, il n'est important que dans des conditions riches en carburant et

dépend fortement de la concentration de CH. Le mécanisme de « *prompt-NO* » n'est généralement pas considéré comme important dans la combustion de la biomasse par rapport au cas des combustibles fossiles.

L'importance relative du mécanisme « NO_x-fuel » par rapport au mécanisme thermique dépend du contenu en azote du combustible, de la température de la combustion et du schéma de mélange du combustible avec l'air (Jenkins, 1998). La combustion de la biomasse (ou des déchets) s'effectue principalement sur une grille ou dans un brûleur à lit fluidisé, systèmes dont les températures de combustion sont basses. Les rendements de NO_x thermique peuvent donc être considérés comme faibles ou négligeables (Miller & Bowman, 1989).

Il existe une dépendance logarithmique entre la quantité de NO_x formée et la concentration de N dans la biomasse (Obernberger, Biedermann, Widmann, & Riedl, 1997). Afin de réduire ces émissions, il faut tenir compte de facteurs tels que l'alimentation en air, la forme du four, l'étagement de l'air (primaire et secondaire), et même la recirculation des gaz de combustion, ce qui contribuerait à réduire les NO_x émis. C'est ce qui va être détaillé dans le paragraphe suivant.

1.2.2. Méthodes de réduction des émissions

Depuis plusieurs années, de nombreux travaux sont réalisés pour développer des méthodes permettant de 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 réaliser les techniques primaires, on agit sur les caractéristiques de l'appareil de combustion (matériaux de fabrication par exemple) et sur les réglages en se basant sur la règle des 4T, (température, teneur en oxygène, turbulence, temps de séjour). Il faut assurer une teneur optimale de l'air par rapport au combustible, maintenir la température de combustion approprié à chaque combustible, assurer un bon mélange air-combustible ce qui nécessite une turbulence de l'air et assurer le temps de combustion de façon à ce que celle-ci s'opère entièrement dans le foyer (volume et forme de la chambre de combustion, nombre et répartition des arrivées d'air, chargement, tirage).

- Techniques secondaires : il s'agit de mettre en place des systèmes de traitement des fumées à la sortie de l'appareil. Des dispositifs particuliers doivent être développés en fonction de la nature du polluant à traiter.

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 NO_x : 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. Ils sont caractérisés par trois éléments principaux : 1-la fraction granulométrique limite d'efficacité : il s'agit de la taille la plus fine des particules filtrées ; 2-l'encombrement, l'emplacement et le coût ; 3 - la technologie utilisée.

Une réduction primaire consiste finalement à améliorer la combustion pour rendre l'appareil plus performant. Cela entraîne une augmentation du prix des appareils de chauffage. Cette augmentation reste minime face au tarif des dispositifs de traitement secondaire et le coût de leur entretien.

1.2.3. Aérosols

Le terme "aérosol" désigne la suspension de particules liquides ou solides dans un milieu gazeux. Le terme a été créé comme l'analogue en phase gazeuse des hydrosols (signifiant « particule d'eau » en grec) et fait référence à la suspension de particules dans un liquide (Kulkarni, Baron, & Willeke, 1993). Il est convenu maintenant dans la communauté scientifique que les aérosols peuvent être modélisés par un système triphasique : liquide, solide et gaz. En effet, il y a beaucoup d'échanges entre les différentes phases en fonction des conditions de formation, conditions de prélèvements et conditions atmosphériques. En 2007, le GIEC (Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat, IPCC, créé en 1988 par l'Organisation Météorologique Mondial et le Programme des Nations Unies pour

l'Environnement) publie un rapport sur les effets néfastes des particules sur la santé et l'environnement. La combustion de la biomasse est un des plus grands contributeurs à la concentration massique d'aérosols au niveau global (Levin, et al., 2010). Les aérosols émis par la combustion de la biomasse ont un effet significatif sur le bilan radiatif de la terre. La composante en carbone noir (BC), qui absorbe fortement les radiations solaires visibles, pourrait être un important facteur de réchauffement de la planète dans les périodes de forçage direct. Les substances nocives de la fumée de combustion de la biomasse (HAP, Particules solides, S, CL, parmi d'autres) augmentent le taux de mortalité des humains, il est donc essentiel d'acquérir une connaissance détaillée des aérosols émis par la combustion de la biomasse solide (Shi, et al., 2019).

Dans le cadre de la qualité de l'air, ces particules sont souvent classées en fonction de leur "diamètre aérodynamique", qui correspond au diamètre moyen d'une sphère qui posséderait des propriétés aérodynamiques équivalentes. L'appellation "PM₁₀" désigne les particules dont le diamètre est inférieur à 10 µm. Le diamètre des particules fines PM_{2.5} et PM₁ sont inférieurs respectivement à 2,5 et à 1 µm. Les effets néfastes sur la santé de l'exposition aux particules ont été décrits dans de nombreuses études épidémiologiques. Les études, les plus anciennes se sont concentrées sur les PM₁₀. Au cours de la dernière décennie, l'accent a de plus en plus été mis sur les PM_{2.5}, et le terme « particules fines » a été limitée à cette fraction de taille. Actuellement, les particules ultrafines (UF, PM_{0.1}) sont également considérées importantes. Cependant pour ces dernières, une caractérisation plus fine serait l'estimation du nombre de particules plutôt que leur masse, en raison de l'effet important de ces petites particules sur la santé (Englert, 2004).

Emission des particules

Les particules sont émises dans l'atmosphère par des phénomènes naturels (soulèvements de poussière, incendie), ou des phénomènes anthropiques (agriculture, transport, chauffage). (Seinfeld & Spyros, 1997) décrivent trois types de particules :

- Le type grossier : Particules de taille supérieure à 1 µm venant majoritairement de processus mécaniques (soulèvements de poussières désertiques, industrielles ou volcaniques).
- Le type accumulation : Particules de taille entre 0,1 et 1 µm venant de coagulation de particules du type fin.

- Le type fin : Particules de taille inférieure à 0,1 µm formées majoritairement par nucléation.

Les particules peuvent être classées en tant que particules primaires, qui sont les particules directement rejetées dans l'atmosphère, et les matières particulaires secondaires (MPS) qui sont constituées de particules formées chimiquement dans l'atmosphère ou simplement ajoutées à d'autres particules formées (Bigg, 1997).

De nombreuses études épidémiologiques ont montré une corrélation entre les effets négatifs sur la santé et l'augmentation des concentrations de particules dans l'air ambiant (Englert, 2004). En raison de cette corrélation et de l'utilisation croissante de la combustion de la biomasse, l'émission de particules provenant de la combustion de la biomasse, en particulier celle des particules ultrafines, doit être étudiée en détail. Les travaux actuels se limitent à la combustion primaire et aux particules émises par les systèmes de chauffage (Johansson, Tullin, Leckner, & Sjövall, 2003). Il existe trois sources principales de particules provenant de la combustion de la biomasse:

1. Les particules provenant d'une combustion incomplète, la suie.
2. Les particules organiques condensables (goudron)
3. Les particules de cendres, dont la matière est inorganique.

La formation de particules dépend des conditions de combustion et de l'excès d'air (Gaegau, 2001). Chaque type de particule a un mécanisme de formation différent. La suie et les particules organiques sont formées par une combustion incomplète dans la zone de flamme, alors que les particules de cendres ont leur origine dans des éléments initiaux (Na, K, ...), présents de la biomasse (Sippula, 2010).

Les particules de suies

Ces particules représentent un mélange complexe de carbone élémentaire amorphe (composant principal) et d'autres matières organiques. Le processus de formation des suies dans les flammes est le même pour la combustion des hydrocarbures légers et les vapeurs de pyrolyse de la biomasse (Fitzpatrick, et al., 2008). Les suies résultent de la formation des premiers anneaux aromatiques qui formeront des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). L'étape suivante est la naissance d'un noyau de particule (inférieur à quelques nanomètres)

dont la croissance par ajout d'acétylène ou d'autres molécules gazeuses conduit à formation finale de la particule de suie. Il existe deux voies de formation de la suie (Wiinikka & Gebart, 2005):

- *A basse température*, les hydrocarbures aromatiques produisent directement de la suie en se transformant en une structure semblable au graphite
- *A des températures plus élevées*, les hydrocarbures aliphatiques et aromatiques se fragmentent d'abord, puis les fragments se polymérisent pour former des molécules plus grandes, formant ainsi la suie.

Ensuite, les particules grossissent par des réactions de surface, la coagulation et l'agglomération (Tissari, et al., 2008). Le processus de formation dépend principalement du combustible, des conditions de combustion et du type de flamme. Dans les unités de combustion de la biomasse à l'échelle industrielle, les quantités de suie dans les émissions sont généralement négligeables, alors que dans les unités de combustion à petite échelle, la suie peut être une fraction importante des émissions de particules fines. Dans le système utilisé pour cette thèse (une chaudière à pellets) les émissions de suies sont aussi négligeables (Boman, Nordin, Boström, & Öhman, 2004).

Les particules organiques

Il existe une grande diversité de composés organiques qui sont formés au cours de la dégradation thermique (pyrolyse) de la biomasse. Ces composants ont des pressions de vapeur et des structures moléculaires très différentes. Ils sont classés en fonction de leur point de rosé selon les catégories présentées ci-dessous (Obaidullah, Bram, Verma, & De Ruyck, 2012):

- Composés organiques très volatils (COTV)
- Composant organique volatile (COV)
- Composant organique semi-volatile (COSV)

Ils peuvent se trouver sous forme liquide ou gazeuse selon leur environnement plus ou moins chaud. De plus, ils peuvent être adsorbés par d'autres particules fines solides (Boman, Nordin, Boström, & Öhman, 2004).

Les particules de cendres

La biomasse contient des éléments inorganiques (Na, K, Mg, Ca, ...) responsables de la formation des cendres pendant la combustion. Ces éléments peuvent être divisés en différentes catégories :

- Les éléments non volatils, comme calcium (Ca), magnésium (Mg), aluminium (Al), entre autres.
- Éléments facilement volatils comme sodium (Na), potassium (K), soufre (S), chlore (Cl).
- Métaux lourds facilement volatile comme le zinc (Zn), le cadmium (Cd), le plomb (Pb), etc.

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 à la biomasse en première approche. Les minéraux contenus dans les combustibles sont séparés en quatre catégories (Kleinhans, Wieland, Frandsen, & Spliethoff, 2018) :

- Sels dissous et autres substances inorganiques présentes dans l'eau du combustible humide. Dans la biomasse, comme le bois ou la paille, les sels dissous proviennent des phases liquides à l'intérieur des plantes. Les éléments sont généralement présents sous forme de cations de K^+ , Na^+ , Ca^{2+} et des anions Cl^- , HPO_4^- , SO_4^{2-} , Cl^- ou $Si(OH)_3O^-$.

- Composés formant des cendres liées à des substances organiques : Éléments non-organiques qui sont incorporés dans des composés organiques (par exemple, dans les cendres de charbon). Les particules de cendres contiennent des minéraux qui font partie de la concentration naturelle du combustible. Il s'agit généralement de cations, notamment Fe^{3+} , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Al^{3+} .

- Minéraux « inclus » trouvés sous forme de particules inorganiques discrètes dans la matrice du combustible, qu'elles soient cristallines ou non. Dans les charbons, ces grains minéraux sont souvent finement dispersés et intimement mélangés à la substance organique et sont donc difficiles à éliminer. Dans la biomasse ligneuse, les minéraux typiques sont composés de Ca, Si, Mg, etc. Dans le cas des combustibles herbacés tels que la paille, le Si soluble sous forme d'acide silicique $Si(OH)_4$ est transporté à l'intérieur des parois cellulaires et s'enrichit en SiO_2 insoluble, ce qui renforce le tissu végétal.

- Les minéraux « exclus », qui sont libérés de la structure organique. Pour les charbons, cela peut se produire pendant le processus de charbonnage ou pendant le broyage dans la centrale électrique. Les grains minéraux exclus typiques sont le quartz, la pyrite ou les minéraux argileux. Dans le cas de la biomasse, les impuretés proviennent du sol ou de contaminants attachés à la plante. Les représentants typiques sont les minéraux argileux sous forme d'aluminosilicates (riches en K, Na, Ca et Fe), les feldspaths ou le quartz.

Par ailleurs, il y a trois mécanismes de formation des cendres (présentés sur la Figure 1-13) :

- La condensation et la nucléation (hétérogène ou homogène) formant des 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) qui forme les particules plus grosses.

Les cendres formées dans une installation de combustion de la biomasse peuvent être divisées en deux fractions principales, les cendres volantes (aérosols retrouvés dans les fumées) et les cendres fixes (restant dans l'installation) (Brunner, 1998). Les cendres volantes sont constituées de cendres entraînées du lit de combustible avec les gaz de combustion et sont donc principalement composées d'espèces réfractaires. Leur granulométrie peut varier de quelques nm à environ 200 nm.

Lors de la combustion, des éléments et composés volatils tels que les métaux alcalins, le S, le Cl et les métaux lourds sont libérés du combustible dans la phase gazeuse et subissent ensuite des réactions homogènes en phase gazeuse (Friedlander, 1977). La pression de vapeur des composés résultants est dans la plupart des cas élevée, de sorte que ces composés forment de nouvelles particules par nucléation (dont la plage de taille est de quelques nanomètres) ou se condensent sur les surfaces des particules existantes. La formation de particules par nucléation et la condensation de vapeurs sur la surface des particules sont toujours des processus concurrents. Plus la surface des particules existantes est grande, plus la formation de particules par nucléation est réduite et la croissance des particules existantes par condensation est favorisée. Avec les processus d'agglomération, la collision des particules entraîne un accroissement des diamètres des particules, qui tendent vers une distribution granulométrique uni modale, dans la plage de taille inférieure à 1 μm .

Les constituants inorganiques des combustibles solides subissent des processus de transformation physique qui dépendent fortement des conditions à l'intérieur de la chaudière et du combustible lui-même (Salzmann & Nussbaumer, 2001). Les transformations physiques possibles des constituants inorganiques sont citées ci-dessous :

- Coalescence des inclusions minérales à l'intérieur de la particule ou à la surface de la particule.
- Détachement de particules minérales ou de cendres des surfaces carbonisées.
- Fragmentation des particules de charbon et coalescence incomplète des minéraux.
- Fragmentation des minéraux exclus en raison de transformations minérales.
- Formation de céno- ou plérosphères inorganiques.
- Vaporisation des espèces minérales, recondensation et agglomération.
- Vaporisation des sels et libération de composés organiques liés, réaction chimique avec les particules de cendres, et leur condensation.

La Figure 1-13 illustre le processus de formation des cendres dans le cas du charbon. Selon le combustible, une quantité considérable de composants inorganiques peut s'évaporer. Sur la Figure 1-13, ces vapeurs inorganiques sont illustrées par des flèches avec un trait continu, tandis que les particules solides sont représentées par des flèches avec des pointillés. Les constituants inorganiques restants, principalement des matières minérales, se décomposent, se transforment en cendres, fondent et fusionnent ensemble selon le type de minéral et les températures. Le comportement des minéraux inclus est complexe. La plupart des particules de cendre ont une tension superficielle suffisamment élevée pour former des gouttelettes de liquide et ne mouillent donc pas la surface des particules de cendre (Obaidullah, Bram, Verma, & De Ruyck, 2012).

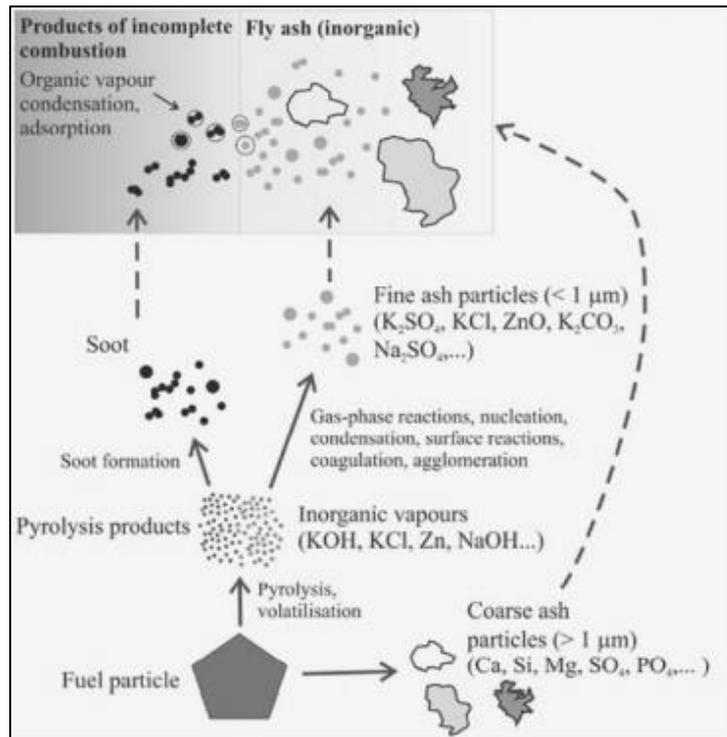


Figure 1-13. Formation des particules (Tissari, et al., 2008).

Diamètres équivalents des particules

Le concept de diamètre équivalent est souvent utilisé dans la science des aérosols pour « attribuer » une valeur de diamètre à une particule non sphérique. Le diamètre équivalent est le diamètre d'une sphère ayant la même valeur d'une propriété physique spécifique que la particule considérée. Il existe différents types de diamètres équivalents et, dans cette thèse, deux seront utilisés. Le diamètre aérodynamique (d_a) est défini comme le diamètre d'une sphère de masse volumique standard ($\rho_0 = 1000 \text{ kg.m}^{-3}$), qui se dépose à la même vitesse terminale que la particule d'intérêt. Ce diamètre sera utilisé pour les mesures avec l'ELPI, qui sera décrit dans le chapitre 2. Le diamètre de mobilité électrique est défini comme le diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de migration dans un champ électrique constant que la particule d'intérêt (Flagan, 2001). Des instruments tels que l'OMA et le SMPS mesurent ce diamètre. Cette mesure est obtenue par un bilan de force entre la force électrique d'un champ électrique constant sur les charges de la particule et la force de traînée subie par la particule dans l'écoulement gazeux.

Morphologie fractale des particules

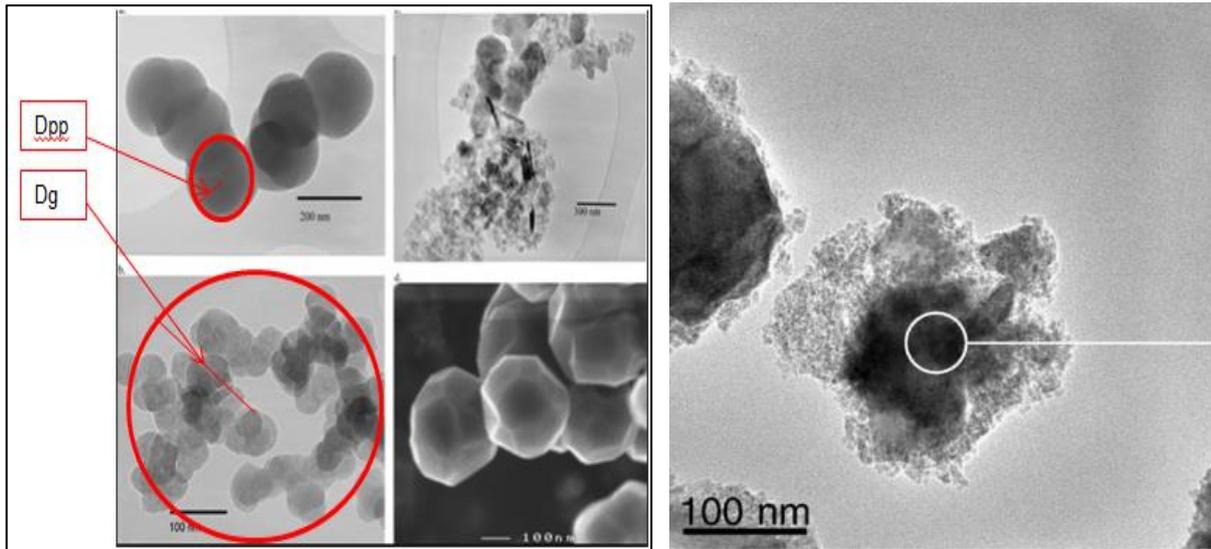


Figure 1-14. Différence entre les diamètres pour des particules agglomérées (Silva, 2009) (Martinez, 2017).

Comme observé sur la Figure 1-14, les particules de suie, et dans certains cas de cendres, ne sont pas sphériques, elles forment des agglomérats de petites sphérules de diamètre D_{pp} . La taille globale de la particule est définie par le diamètre de giration D_g . Leur morphologie peut être décrite par une loi fractale, qui se définit à partir de deux paramètres : le pré facteur k_f et la dimension fractale D_f . On emploie l'adjectif 'fractal' pour ces agglomérats car leur forme rappelle les objets géométriques fractals, c'est-à-dire une courbe ou une surface, dont la structure est invariante par changement d'échelle. Il est possible d'établir la relation suivante (Ouf, Coursil, Géhin, & Vendel, 2005):

$$N_p = k_f \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f} \quad \text{Équation 1-11}$$

Où :

- N_p est le nombre de particules primaires dans l'agglomérat
- k_f est un préfacteur
- D_g est le diamètre de giration— moyenne des distances carrées entre les particules primaires et le centre de masse de l'agrégat
- D_{pp} est le diamètre des particules primaires
- D_f est la dimension fractale,

Le diamètre de giration, D_g , représente la taille globale d'une particule. Sa valeur dans les flammes et dans les fumées est variable et dépend des conditions de combustion. Une analyse granulométrique nous permet de déterminer la distribution statistique des tailles des particules d'un échantillon. Une forme généralement utilisée pour cette distribution est de type log-normal (SFPE, 2002), définie par deux paramètres, la moyenne et l'écart-type géométrique σ .

$$\frac{dN_p}{d \log D_g} = \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi}} \exp\left(\frac{-(\log D_g - D_{g_{\text{moyen}}})^2}{2\sigma^2}\right) \quad \text{Équation 1-12}$$

Où N_p est le nombre de particule totale (par unité de volume).

Puisque l'écart entre les diamètres est en échelle logarithme, le diamètre moyen se calcule avec l'équation suivante :

$$\log d_{\text{moyen}} = \frac{\int_0^\infty \log D_g dN_p}{N_p} \quad \text{Équation 1-13}$$

La taille des particules issue de la combustion de la biomasse est à l'échelle nanométrique. Leur diamètre est généralement plus petit que $1 \mu\text{m}$.

Masse volumique effective

La masse volumique effective (ρ_{eff}) est définie comme la masse par unité de volume calculée avec le diamètre de mobilité, comme donné dans l'Équation 1-14.

$$\rho_{\text{eff}} = \frac{m_p}{\frac{\pi}{6} d_{\text{me}}^3} \quad \text{Équation 1-14}$$

Elle permet de relier les diamètres aérodynamiques et de mobilité de la particule et permet ainsi la conversion entre le nombre par unité de volume et les distributions massiques de la taille (Leskinen, et al., 2014). Dans certaines études, on suppose généralement que ρ_{eff} est égale à 1g.cm^{-3} pour des raisons de simplicité ou par manque de connaissances. Cette hypothèse peut

entraîner des erreurs dans le traitement des données et conduire à des conclusions erronées (Wierzbicka, et al., 2014).

Pour un agglomérat de type fractal, il existe une relation de puissance entre le diamètre de mobilité électrique et la masse.

$$m_p = K d_{me}^{D_{fm}} \quad \text{Équation 1-15}$$

Cette relation est décrite en utilisant un exposant de mobilité de masse D_{fm} (Eggersdorfer, Kadau, Herrmann, & Pratsinis, 2012). Celui-ci est parfois appelé à tort dimension fractale de masse. Cependant, la dimension fractale (D_f) est un paramètre différent car il met en relation le nombre de particules primaires d'un agglomérat avec son rayon de giration (Eggersdorfer, Kadau, Herrmann, & Pratsinis, 2012). Malgré tout, cet exposant D_{fm} peut être utile pour décrire la forme des particules (morphologie).

En combinant les deux relations ci-dessus, on obtient :

$$\rho_{eff} = K' d_{me}^{D_{fm}-3} \quad \text{Équation 1-16}$$

1.2.4. Composants carbonés

Les matières carbonées contenues dans les particules atmosphériques sont constituées de centaines ou de milliers d'espèces organiques individuelles dont les propriétés chimiques et physiques varient considérablement (Seinfeld & Spyros, 1997), (Hamilton, et al., 2004). Les particules de carbone sont des composants majeurs des $PM_{2,5}$, représentant généralement de 25 % à plus de 50 % de la masse des particules. Des mesures récentes, effectuées dans l'est des États-Unis pendant un hiver, ont montré que les particules de carbone dépassaient 70 % de la masse des $PM_{2,5}$ (Tolocka, et al., 2001), (Solomon & Sioutas, 2008).

La matière qui constitue les particules carbonées peut être classée en carbone élémentaire CE (EC en anglais), en carbone organique CO (OC en anglais), et en carbone carbonaté (CC). Le carbone total (CT) représente la somme du CE, CO et CC. Le carbone élémentaire est émis principalement par des sources anthropiques, telles que les gaz d'échappement des véhicules diesel, en particulier dans les zones urbaines, en raison d'une combustion incomplète. Le carbone organique est émis à la fois par des sources anthropiques et naturelles. Il est émis directement dans l'atmosphère (aérosols primaires) ou formé dans l'atmosphère (aérosols secondaires) à partir de précurseurs gazeux. Le carbone carbonaté quant à lui est généralement

associé aux sources liées au sol (Appel, Tokiwa, & Kothny, 1983) et constitue généralement moins de 5 % du CT (Chow, et al., 1993).

Les aérosols carbonés sont des fines particules, de plus ou moins 1 micromètre (μm) de diamètre, qui sont généralement classées soit comme du carbone noir (BC), soit comme du carbone élémentaire (EC), soit comme du carbone organique (OC), dans lequel le carbone est lié à d'autres éléments (Streets, 2004). La capacité des aérosols carbonés à modifier la météorologie et la climatologie dans les régions où les émissions sont élevées, comme en Chine a été démontrée (Ge, et al., 2010).

Les investigations de (Calvo, et al., 2015) ont montré la répartition de la matière carbonée résultant de la combustion de trois espèces de bois différentes, dans un foyer et un poêle à bois. Voici un résumé de leurs résultats : les fractions massiques en EC dans les particules émises par le poêle à bois (6,72-20 %) étaient supérieures à celles du foyer (4,63-7,41 %), tandis que le contraire était observé pour le CO (57-68 % et 67-75 % en poids respectivement pour le poêle à bois et le foyer). Vicente et al. (2015a, 2015c) ont évalué les effets du type de biomasse sur la composition chimique des particules pour deux appareils de combustion. Dans le cas du poêle à bois, le carbone total représentait 54-73 % en poids de la masse des particules, indépendamment du combustible ou des conditions de fonctionnement. La composante carbonée dans les fumées était dominée par le CO, en particulier lorsque des charges élevées de combustible étaient brûlées (Vicente, et al., 2015).

1.2.5. Traceurs organiques majeurs

La contribution des principales sources de pollution atmosphérique la qualité de l'air sur une région peut être diagnostiquée à l'aide de la technique des marqueurs moléculaires organiques. Les composés organiques distinctifs ou les groupes de composés qui sont présents dans les émissions de certains types de sources mais pas d'autres sont utilisés pour quantifier la présence de l'effluent de différentes sources de pollution atmosphérique dans les échantillons de particules fines atmosphériques (Cass, 1998). Lors de la mesure des émissions dans l'environnement, certains composants spécifiques sont généralement utilisés pour suivre la combustion par type de biomasse, ce sont les traceurs organiques. Certains traceurs spécifiques

sont présentés dans le tableau 1-1 dont quelques-uns qui servent à tracer la combustion dans les appareils de chauffage domestique.

Methoxyphenols

La combustion du bois et d'autres combustibles issus de la biomasse produit des composés organiques spécifiques à la source provenant de la pyrolyse de la lignine, notamment des quantités importantes de composés phénoliques méthoxylés (méthoxyphénols). Ces composés ont été utilisés comme marqueurs atmosphériques pour déterminer la contribution de la fumée de bois aux particules fines (PM) dans l'atmosphère. Cependant, la quantification fiable des méthoxyphénols représente un défi analytique car ces composés sont polaires, semi-volatils et peu réactifs.

Acide résinique

L'acide résinique désigne les mélanges de plusieurs acides carboxyliques apparentés, principalement l'acide abiétique, que l'on trouve dans les résines des arbres. Presque tous les acides résiniques ont le même squelette de base : trois anneaux benzéniques fusionnés ayant la formule empirique $C_{19}H_{29}COOH$. Ce sont des gommages collantes, jaunâtres et insolubles dans l'eau.

Les acides résiniques tels que les acides abiétiques ou pimariques sont biosynthétisés principalement par les conifères (gymnospermes) dans les régions tempérées. Les arbres à feuilles caduques dans les zones tropicales sont des producteurs prolifiques de résine et de mucilage (gomme), mais les données sur la composition de la fumée provenant de ces sources ne montrent pas la présence des acides résiniques. Cependant, des dérivés de ces résines, des composés à différents stades de diagenétique ou d'altérations thermiques, ont été constatées dans les aérosols ambiants (Simoneit, et al., 1993).

Hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)

Les systèmes de combustion pratiques produisent généralement des quantités mesurables d'hydrocarbures aromatiques polycycliques et des particules carbonées. En terme de santé, la plupart des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) ne présentent pas d'activité mutationnelle, mais un certain nombre sont des cancérigènes connus (le benzo(a)pyrène par exemple). La crainte qu'une exposition de faible niveau à ces molécules puisse augmenter

l'incidence du cancer et des anomalies génétiques est donc latente. Bien que le niveau de ce risque ne soit pas établi, la recherche sur la production et la destruction de ces composés pendant la combustion est nécessaire et s'intensifie, tout comme l'étude du problème de la formation de la suie. Une grande partie de l'intérêt actuel pour le contrôle des émissions de suie est basé sur le constat que des composés mutagènes peuvent être portés par la suie. Ces composés sont fréquemment trouvés sur la suie puisque lorsqu'ils sont présents, ils s'y condensent, à des températures inférieures à 200 °C (Wornat, Sarofim, & Longwell, 1987). Cependant, on sait que la formation de la suie et des HAP n'est pas nécessairement couplée et qu'il est possible de produire des HAP sans produire de suie.

Anhydrides Monosaccharide

Au cours de la dernière décennie, les anhydrides monosaccharidiques (AM) levoglucosan (1,6-anhydro- α -D-glucopyranose), mannosan (1,6-anhydro- α -D-mannopyranose) et galactosan (1,6-anhydro- α -D-galactopyranose) ont fait l'objet d'une attention accrue en raison de leurs propriétés de traceurs spécifiques de la combustion de la biomasse.

Les AM sont générés lors de la combustion et de la pyrolyse de la cellulose et de l'hémicellulose et constituent une classe importante de composés de la fraction des aérosols organiques. Ce sont des composés organiques solubles dans l'eau (Dye, 2005). Ils sont utilisables comme traceur de la combustion de la biomasse solide.

1.2.6. Méthodes de prélèvement

La méthode d'échantillonnage utilisée joue un rôle très important. Afin de mieux comprendre, interpréter et comparer certaines valeurs, la méthode d'échantillonnage utilisée doit être connue. Idéalement, la connaissance de l'impact de chaque paramètre sur l'échantillonnage et la mesure devrait permettre de comparer les résultats d'une méthode à ceux d'une autre. Il existe sept paramètres principaux pour définir clairement une méthode d'échantillonnage :

- La distance entre le foyer et le point de prélèvement, c'est-à-dire juste en sortie du système de combustion ou plus loin dans la cheminée.
- 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 de canne par rapport à 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.

La vitesse de prélèvement joue un rôle assez faible, voire négligeable. Une vitesse supérieure à l'iso cinétisme 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 dans la canne. 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 hauteur de prélèvement dans le conduit d'évacuation des fumées a une influence sur la température du gaz prélevé, puisque la température des fumées sera d'autant plus basse lorsque 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. Si les échantillons sont prélevés à hautes températures, ils continuent d'être le siège de réactions chimiques, les aérosols peuvent continuer à s'agglomérer. La dilution est donc importante pour figer ces transformations le plus rapidement possible.

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 impacte elle aussi des pertes de particules pour des raisons similaires. On définit un diamètre de coupure tel que, pour les particules ayant un diamètre supérieur, elles ne sont pas prélevées. Il apparaît ainsi que :

- Le diamètre de coupure augmente avec la racine carrée du débit volumique
- Une vitesse des fumées élevée dans le conduit diminuerait le diamètre de coupure.
- Un grand diamètre de buse entrainera un petit diamètre de coupure (faible vitesse dans la buse)

La figure 1-16 résume le cycle d'évolution des particules dans le conduit des fumées (Brandelet, 2016). Cela permet de situer une méthode de prélèvement, et ainsi vérifier ce qui est véritablement mesuré. La Figure 1-15 est organisée 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 (Carbone elemental) (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 représenté par l'éloignement de la mesure au foyer de combustion dans le conduit de cheminée et jusqu'au rejet atmosphérique.

Selon la position dans le schéma, la nature de la particule est différente. Les SVOC (« *Semi-Volatile Organic Compounds* », Composant Organique Semi-Volatil) et les VOC (« *Volatile Organic Compounds* », Composant Organique Volatil) vont être craqués (de manière différente selon le niveau de température) pour former les AOP (Aérosol Organique Primaire) ou ne vont pas être craqués et seront alors appelés OGC (« *Organic gaseous Compounds* » Composé Organique Gazeux) Les VVOC (« *Very Volatile Organic Compounds* » Composant Organique Très Volatile) 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 (Emissions de Particules Primaires) ce qui équivaut aux PA (Aérosols Primaires). Celles-ci vont se retrouver dans l'atmosphère et subiront d'autres réactions éventuelles. Quant à eux, les OGC vont se retrouver dans l'atmosphère et

constitueront des précurseurs aux SOA (Aérosols Organique Secondaires) ou des gaz de type méthane. L'addition des SOA et des PME représente 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 différentes (Brandelet, 2016).

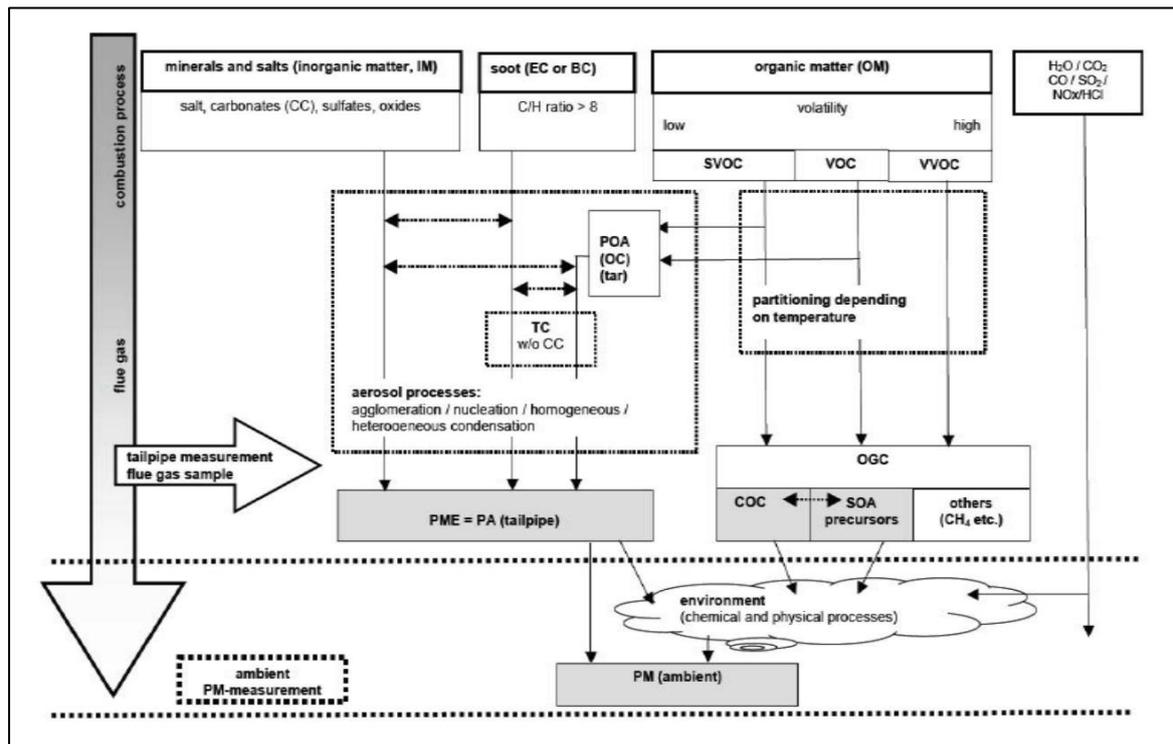


Figure 1-15. Principaux phénomènes influençant l'état d'un échantillon prélevé dans les conduits des fumées (Brandelet, 2016).

1.2.7. Normes

Il est important de se rappeler la nécessité de contrôler et de réglementer les émissions de polluants, en particulier celles de la combustion de la biomasse car 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 (Brandelet, 2016). Ainsi, les émissions liées au bois énergie ont été réglementées dans le monde entier. Le Tableau 1-2 présente une synthèse des normes en vigueur en France.

Appareil	NF EN	Classe	Rendement	CO	OGC	TSP
Foyer & Inserts	13229	1	>70%	<0,3% ppm à 13%	-	-
		2	<70% & >60%	>0,3% & <1% ppm à 13%	-	-
Poêles à Buches	13240	1	>70%	<0,3% ppm à 13%	-	-
		2	<70% & >60%	>0,3% & <1% ppm à 13%	-	-
Poêles à granule	14785	-	>75%	<0,04% ppm à 13%	-	-
Chaudière à granules	15270	1	>70%	15000mg/m ³ à 10%	1750mg/m ³ à 10%	200mg/m ³ à 10%
		2	>70%	5000mg/m ³ à 10%	200mg/m ³ à 10%	180mg/m ³ à 10%
Poêles de masse	15250		>70%	<0,3% ppm à 13%	-	-

Tableau 1-2. Tableau récapitulatif des normes pour le fonctionnement des équipements de chauffage domestique (Brandelet, 2016).

Il faut se rappeler qu'il existe des normes pour le fonctionnement et la construction des chaudières. Les normes EN 303-5 et EN 12809 décrivent comment doivent fonctionner les chaudières à combustible solide. Un résumé des normes pour le prélèvement des polluants est montré dans le tableau 1.3. L'un des objectifs de cette thèse est l'étude et l'amélioration de la combustion, les prélèvements ont été réalisés juste en sortie de la chaudière avec une sonde à dilution. Nous avons donc décidé de ne pas utiliser les normes pour faire les prélèvements.

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 5H	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 de bois	Prélèvement par tunnel à dilution (filtre 32 °C)
ASTM E 2515-07		
Norme AS/NZS 4018:2014		Prélèvement par tunnel à dilution (filtre 20 °C)
BS 3841-1:1994		Prélèvement par tunnel à dilution (filtre 30 °C)
NS 3058-2		Prélèvement par tunnel à dilution (filtre 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	PM ₁₀ /PM _{2,5} solide, sources fixes industrielles, hautes concentrations (>40 mg/m ³)	Mesurage à l'aide des impacteurs virtuels sur gaz chaud (Température d l'effluent)
NF EN ISO 23210		Mesurage à l'aide des impacteurs en cascade sur gaz chaud (température d l'effluent)
ISO/DIS 25597	PM ₁₀ /PM _{2,5} solides et espèces formées par dilution combinées, sources fixes industrielles, hautes concentrations (>50 mg/Nm ³)	Technique de dilution et échantillonneurs cyclone surgaz dilué (température d 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 et 30 g/m ³)	Prélèvement à l'iso cinétisme sur filtre chauffé (120 °C) associé à un module de six barboteurs (20°C)

Tableau 1-3. Récapitulatif des normes pour le prélèvement des particules (Brandelet, 2016).

1.2.8. Étagement d'air

L'étagement de l'air (« *air staging* »), ou combustion en deux étapes, est généralement décrit comme l'introduction d'air de surchauffé dans la chaudière ou le four. L'étagement de l'air dans le brûleur (étagement interne de l'air) est l'une des conceptions les plus utilisées pour les brûleurs à faibles émissions de NO_x (Liu, Chaney, Li, & Sun, 2013).

C'est une stratégie de contrôle des émissions de NO_x qui est maintenant couramment utilisée dans les centrales électriques au charbon, qu'il s'agisse de nouvelles constructions ou de modernisations. L'air de combustion est introduit par étapes dans le four de combustion, créant ainsi une zone primaire riche en combustible et conduisant à une flamme de combustion primaire moins intensive. L'étagement de l'air réduit la formation de NO_x principalement par deux mécanismes (Zabetta, Hupa, & Saviharju, 2005):

1. La privation d'oxygène et un mélange moindre du combustible et de l'air dans la zone de combustion primaire, ce qui empêche la conversion de l'azote du combustible en NO_x et réduit donc les émissions de NO_x et de CO.
2. L'obtention d'une flamme de combustion primaire plus froide et donc moins de NO_x thermique.

Quelques études ont démontré son potentiel de réduction des NO_x entre 40 et 70%, selon la teneur en azote du combustible ainsi que d'autres conditions opératoires (Purvis, Tadulan, & Tariq, 2000), (Oberberger, 1998). Cependant, la taille du foyer de combustion d'une chaudière domestique à biomasse peut être trop petite pour que l'étagement de l'air permette d'obtenir des réductions significatives des NO_x. En outre, il peut y avoir compétition entre les émissions d'oxydes d'azote et les émissions de CO et d'hydrocarbures imbrûlés. Les réductions de NO_x obtenues peuvent s'accompagner d'une augmentation significative des émissions de CO (Johansson, et al., 2004) (Eskilsson, Rönnbäck, Samuelsson, & Tullin, 2004). L'objectif de cette étude est d'étudier le potentiel de réduction des NO_x par l'étagement d'air d'une chaudière à pellets commerciale. L'accent est mis sur la manière dont des modifications simples de l'installation et de la configuration de la chaudière peuvent être utilisées pour contrôler les émissions de NO_x et en même temps pour maintenir les émissions de CO à de faibles niveaux.

1.2.9. Conclusion

Différents paramètres impactant la nature et la quantité des émissions ressortent de cet état de l'art :

- Les conditions du foyer.
- Le type d'appareils de chauffage domestique (poêle, chaudière).
- Le conditionnement du combustible (Buches, Pellets, bois déchiqueté).
- Le mode opératoire.
- La nature du combustible.

L'état de l'art réalisé permet de confirmer que la combustion de la biomasse est une alternative importante aux combustibles fossiles, mais elle pose en même temps de nouveaux défis pour son utilisation et la compréhension des émissions polluantes produites. Il est constaté que son utilisation au niveau domestique est en augmentation. Donc, une étude de ce type d'appareils, plus particulièrement les chaudières, pourrait être intéressante pour mieux comprendre ses effets sur l'environnement.

L'étude bibliographique montre que les émissions de NO_x font partie des émissions importantes de la combustion de la biomasse. Néanmoins, elle révèle des désaccords sur la manière dont ils sont effectivement produits. Les différents auteurs s'accordent à dire que les NO_x sont produits par le mécanisme de réaction du NO_x-combustible, mais on dispose de peu d'informations sur l'endroit exact où ces réactions se produisent dans le lit de combustible. Donc, il est important d'obtenir plus d'informations à ce sujet.

Différents auteurs ont montré l'intérêt de l'utilisation d'autres types de biomasse que le bois. La nature du combustible est un facteur qui a une influence importante sur les polluants émis. Il est important de caractériser les émissions produites par la combustion des nouveaux types de biomasse, afin de connaître les éventuelles difficultés liées à l'utilisation de ces biomasses et tenter de les corriger afin d'optimiser leur application.

L'état des connaissances révèle qu'il reste encore beaucoup à faire pour caractériser les particules produites lors de la combustion de la biomasse. Par conséquent, un effort important sur la caractérisation des particules a été réalisé dans cette thèse.

Finalement, cette étude bibliographique a permis d'établir une liste d'objectifs très précis auxquels ce travail de thèse tend à répondre :

- Déterminer les émissions types émises par un appareil à granulés.
- Etudier l'influence de différents modes opératoires (différents types d'alimentation).
- Etudier la possibilité de diminuer les émissions de NOx produits.
- Caractériser les particules produites par la combustion de la biomasse.
- Etudier l'influence du type de combustible utilisé (différents types de biomasses).

Afin de répondre à ces différents objectifs, de nombreux paramètres ont été définis, des protocoles de prélèvements et d'analyses ont été développés, afin de réaliser des expérimentations ciblant ces points précis. La présentation des paramètres et des équipements utilisés est l'objet du chapitre suivant.

Chapitre 2. Matériels et méthodes

Ce chapitre décrira les équipements utilisés pour mettre en œuvre les expériences réalisées au cours de cette thèse. Il montrera également l'installation de combustion et les modifications apportées. Certains équipements de mesure ont été étalonnés avec soin en raison du besoin d'adapter la mesure aux aérosols émis lors de la combustion de la biomasse.

2.1. Dispositif expérimental de combustion

Ce sous-chapitre a pour objectif de montrer en détail l'équipement de combustion choisi pour cette thèse, une chaudière domestique. Un équipement de taille moyenne a été choisi afin de faciliter sa modification et de permettre l'installation de systèmes de mesure adaptés aux objectifs de ce projet.

2.1.1. Chaudière utilisée

Le système de combustion choisi pour la réalisation des expériences est une chaudière à granulés (pellets) de la marque PERGE model Silvatherm Compact 20 CGR. Il s'agit d'une chaudière de petite puissance (20kW) à lit fixe. Un schéma de la chaudière utilisée est présenté sur la Figure 2-1.

La chambre de combustion a été fabriquée en céramique réfractaire, ses dimensions sont de 20x15x8 cm³ comme observé sur la Figure 2-2. La chaudière est équipée d'un allumeur ; il s'agit d'une résistance électrique située près de la base centrale de la chambre de combustion. Les pellets sont chargés manuellement dans une trémie et envoyés par la vis sans fin vers la chambre de combustion. Cette dernière permet une alimentation de la chambre de combustion par la partie supérieure (« *top-feed* »), tel qu'exposé dans le chapitre 1. Pendant la phase d'allumage, les granulés sont déposés sur la résistance électrique et sont chauffés jusqu'à leur inflammation.

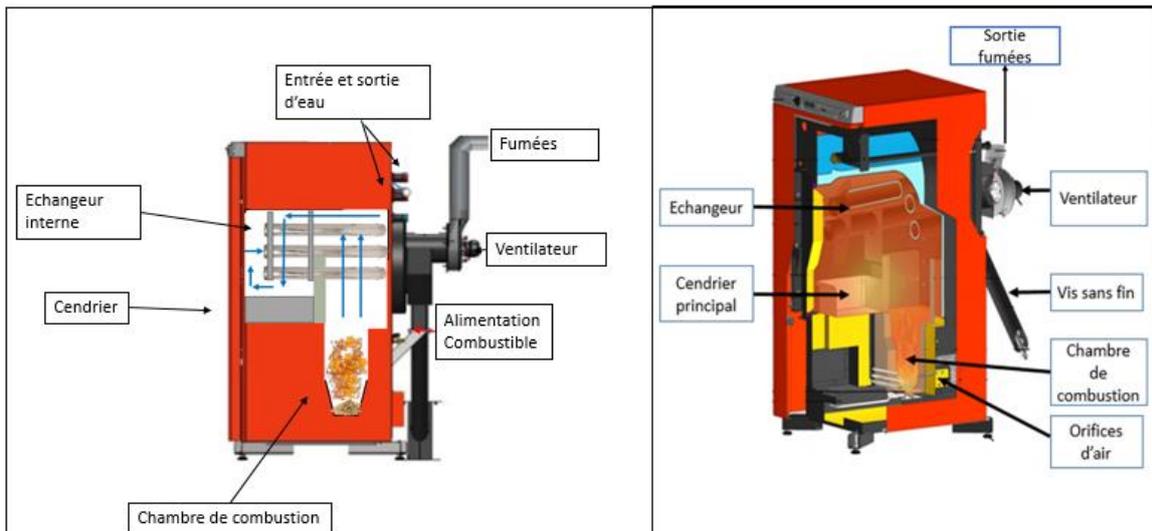


Figure 2-1. Chaudière silvatherm 20kW utilisée pour la thèse. Alimentation de combustible avec une vis sans fin, fonctionnement par aspiration assistée par ventilateur.

L'alimentation de la chaudière fonctionne soit en mode continu, soit en mode pulsé. Ces deux modes de fonctionnement seront expliqués en détail dans la section 2.5.4. Afin de réguler l'alimentation en pellet dans la chaudière, la vis sans fin a été calibrée pour déterminer le débit d'alimentation. La combustion des granulés de bois se fait donc avec un taux d'alimentation variable et contrôlable correspondant à un débit entre 0,9 et 1,5 g/s de granulés.

Après combustion, les fumées sont dirigées vers un échangeur de chaleur interne situé au-dessus de la chambre de combustion. Dans cet échangeur, le transfert de chaleur s'effectue avec l'eau de service côté calandre. Un ventilateur d'extraction est utilisé pour extraire les produits de combustion de la chaudière à la sortie de l'échangeur. Cette extraction entraîne une pression réduite au sein de la chaudière et donc une aspiration forcée de l'air à travers les lignes d'orifices situées dans la partie basse de la chambre de combustion (Figure 2-2).

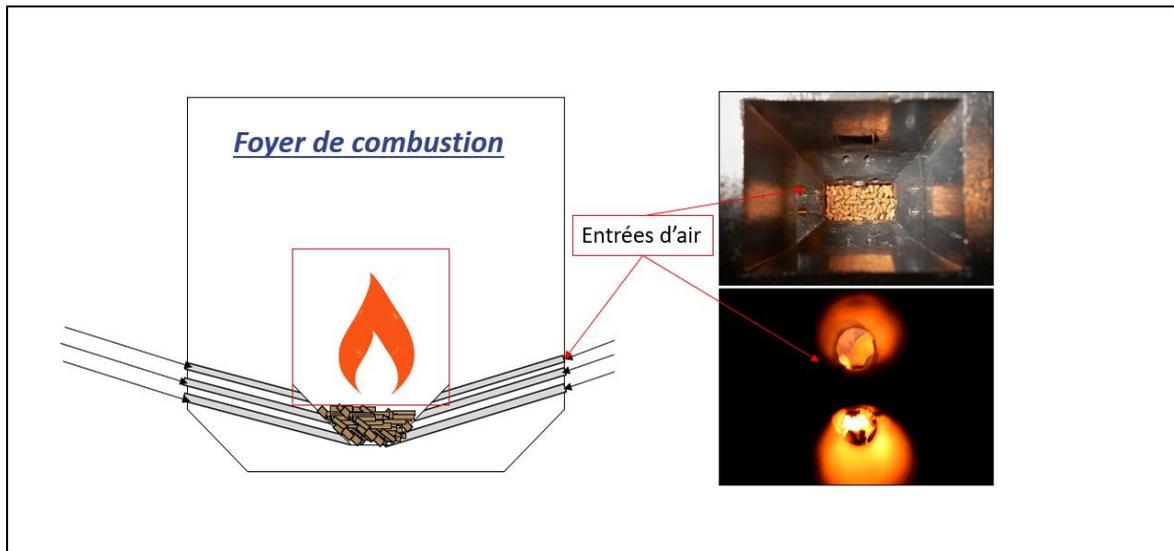


Figure 2-2. La chambre de combustion et les orifices d'alimentation en air répartis sur trois niveaux.

Donc comme il a été dit précédemment, l'aspiration d'air dans la chambre de combustion est faite par ces orifices placés sur ses 4 côtés, comme le montre la Figure 2-2 Ils sont répartis sur 3 rangées à des hauteurs différentes dans le foyer. Cette répartition des orifices a permis d'apporter des modifications sur l'alimentation d'air, ce qui sera expliqué dans la section 2.5.3., afin d'étudier l'effet de l'alimentation en air dans la chambre de combustion.

En raison de l'aspiration naturelle d'air de la chaudière, le système de dépôt des cendres est situé dans la partie centrale de la chaudière, tel qu'observé dans la Figure 2-1. L'entrée des tubes de l'échangeur de chaleur est équipée d'un système permettant de piéger les cendres de plus grande taille produites lors du processus de combustion. Ces dépôts de cendres doivent être nettoyés régulièrement pour éviter d'endommager la chaudière.

2.1.2. Banc d'essais

Afin d'utiliser la chaudière d'une manière semblable à son fonctionnement en continu dans une maison, un système de récupération de chaleur a été développé. L'eau chauffée sortant de l'échangeur de la chaudière est envoyée dans un échangeur de chaleur à plaques de marque SWEP (E1) comme le montre la Figure 2-3. Celui-ci possède une capacité maximale de 35 kW et un circuit d'eau externe. La fonction principale de cet échangeur de chaleur est de dissiper la

puissance produite par la chaudière. Cela signifie que la chaudière pourra fonctionner en continu et atteindre un état stationnaire.

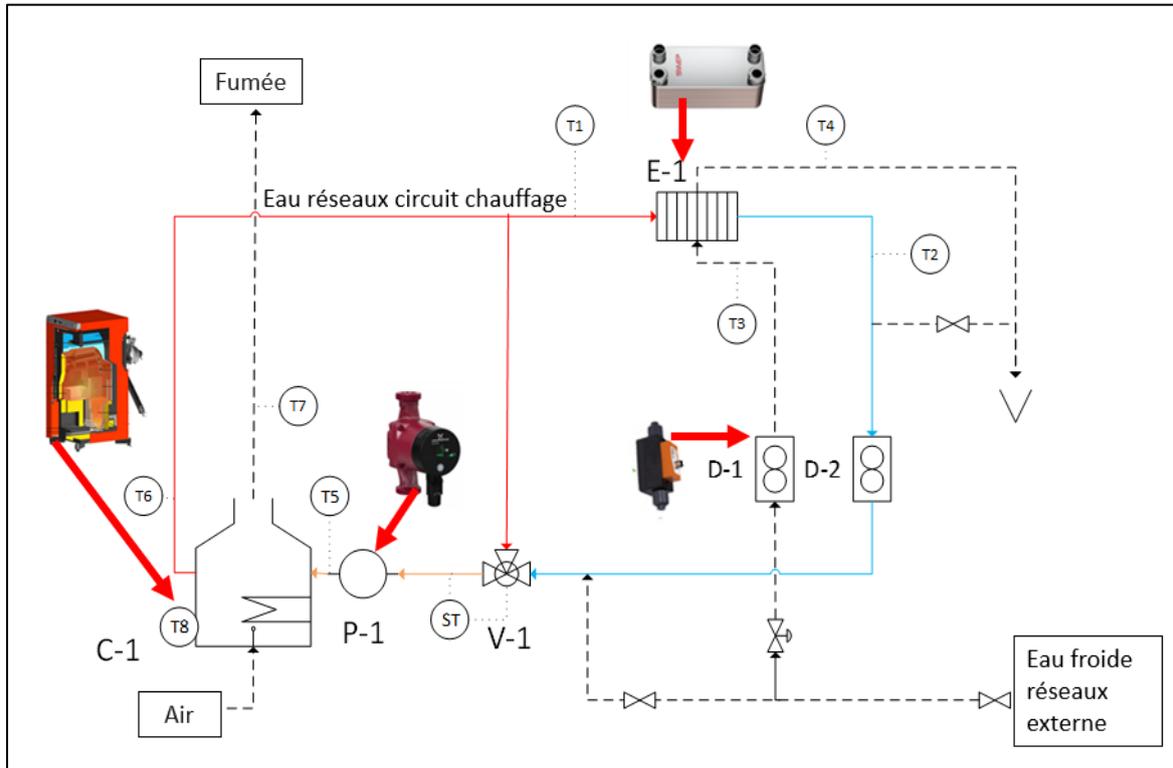


Figure 2-3. Couplage de la chaudière et du système de récupération de chaleur pour obtenir un fonctionnement en régime permanent. (P-1 pompe en ligne, V-1 vanne 3 voies, C-1 chaudière, E-1 Echangeur de chaleur, D-1 et D-2 débitmètres)

La vanne V-1 est une vanne de régulation à 3 voies (Siemens model MXG461) essentielle à la régulation de la chaudière. Elle est utilisée pour ajuster et réguler la température de l'eau à l'entrée de la chaudière. Cette température est mesurée grâce à une sonde spéciale qui envoie un signal et régule la position de la vanne V-1. La température est ajustée en mélangeant l'eau chaude sortant de la chaudière et l'eau froide qui vient de l'échangeur de chaleur. Cette température d'entrée de l'eau est critique pour la régulation du système. En réglant la température de l'eau d'entrée et l'alimentation de combustible, les autres températures de l'installation restent sous contrôle car le système fonctionne en continu.

La pompe P-1, quant à elle, est une pompe de ligne (Grundfos) qui peut être réglée à 3 débits différents. Si le débit d'eau du circuit interne est trop élevé, la température de la sortie de la chaudière peut être trop basse et créer des problèmes d'efficacité. Le système a deux circuits d'eau, le circuit interne qui représente l'eau de service, qui est en contact avec la chaudière, et le deuxième circuit est l'externe, qui est utilisé pour le passage à travers l'échangeur de chaleur

pour le refroidissement de l'eau de service. Les débits d'eau sont mesurés avec des débitmètres électromagnétiques (type MIK de la marque Kobold (D-1, D-2)), ce qui permet de compléter les bilans thermique et massique du système, et de calculer l'efficacité de toute l'installation.

Les températures d'entrée et de sortie de l'eau de la chaudière sont mesurées à l'aide des thermocouples T5 et T6 et celles de l'échangeur de chaleur avec T1, T2, T3 et T4. Tous ces thermocouples sont de type K chemisé, avec une sonde de 1 mm de diamètre. La chambre de combustion est également équipée d'un thermocouple T8 de type K de 0,25 mm pour surveiller les changements de température avec une réponse temporelle plus rapide. Aucune correction de rayonnement n'a été appliquée, ce thermocouple a surtout servi à donner des informations pour comparer entre eux les différents régimes de fonctionnement de la chaudière. Un thermocouple de type K, T7, est placé dans le conduit d'évacuation des gaz de combustion pour mesurer la température des fumées. Les sorties analogiques des thermocouples et des débitmètres sont transmises via une carte A/D à un ordinateur utilisant une carte National Instrument, où les signaux sont traités sur des périodes d'échantillonnage de 1 seconde. Le pilotage et les mesures sont gérés par un programme LabVIEW. Le post-traitement des données a été réalisé dans un programme python développé pour l'occasion.

Comme il s'agit d'un système conçu entièrement pour cette thèse, des tests de stabilité du système chaudière/circuit d'eau ont été effectués pour vérifier son bon fonctionnement. La phase de démarrage dure environ 15 minutes, au cours de laquelle les différents capteurs, présentés Figure 2-3, montent en température. Ensuite, l'ensemble du système atteint un état thermique stable. Dans la Figure 2-4, les variations des principales températures du système sur environ 26 min pour une alimentation de la chaudière à 80% de sa puissance ont été reportées. On s'aperçoit qu'il n'y a pratiquement aucune variation de ces paramètres pendant 26 min, ce qui indique, après la phase de démarrage, une très bonne stabilité du banc de tests.

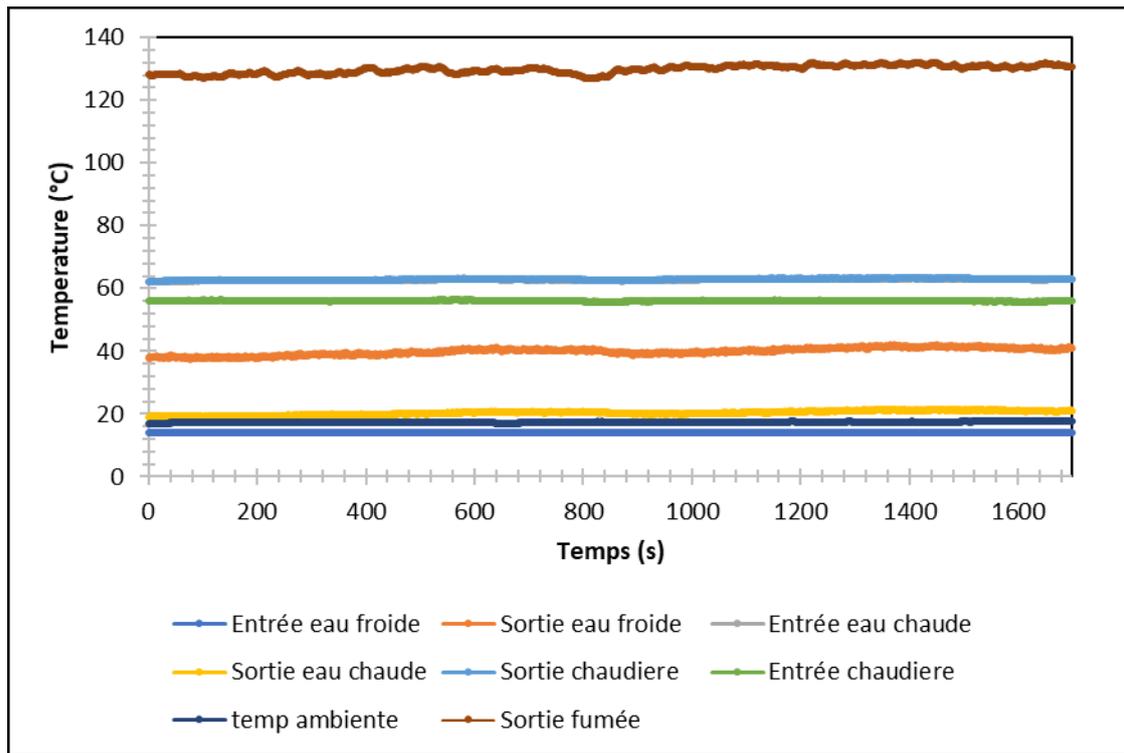


Figure 2-4. Températures en fonction du temps pour les différents paramètres de fonctionnement de la chaudière, montre la stabilité thermique du système.

L'efficacité de la chaudière dans cette thèse est calculée par :

$$\eta_{th} = \frac{P_{utile,sortie\ chaudière}}{P_{Entrant}} = \frac{\dot{m}_{eau} C_{p_{eau}} (T_{sortie} - T_{entre})}{PCI * \dot{m}_{combustible}} \quad \text{Équation 2-1}$$

Avec :

$P_{Entrant}$ = Puissance alimentée à la chaudière ($J.s^{-1}$)

$P_{utile,sortie\ chaudière}$ = Puissance utile à la sortie de la chaudière ($J.s^{-1}$)

\dot{m}_{eau} : Débit massique d'eau passant la chaudière ($kg.s^{-1}$).

$C_{p_{eau}}$: Capacité thermique massique de l'eau dans la chaudière ($J.K^{-1}.kg$)

T_{sortie} : Température de l'eau à la sortie de la chaudière (K).

T_{entre} : Température de l'eau à l'entrée de la chaudière (K).

PCI: Pouvoir calorifique combustible ($J.kg^{-1}$).

$\dot{m}_{combustible}$: Débit massique combustible ($kg.s^{-1}$).

Grâce aux appareils de mesure utilisés (Thermocouple et débitmètres) et à la connaissance du débit de combustible alimenté par la vis sans fin, nous pouvons évaluer l'efficacité du système complet. Grâce à l'équation 2-1 on trouve une efficacité utile entre 70% à 80%, ce qui est une bonne efficacité pour un système de combustion à granulés (van Loo & Koppejan, 2007). Les détails des calculs d'efficacité du système sont reportés dans l'annexe B.

Pour les tests effectués, il a été possible d'observer une température moyenne du foyer de combustion de 700 à 900 °C, avec une température de sortie des fumées comprise entre 160 et 195 °C. Ces valeurs de température correspondent aux valeurs de fonctionnement en régime permanent de la chaudière utilisée dans cette thèse.

2.2. Les mesures des gaz dans les fumées.

L'objectif de cette partie est de décrire le matériel utilisé pour la mesure des concentrations des gaz dans les fumées. Cette thèse s'intéresse à la mesure des concentrations de CO, NO_x et O₂. Le prélèvement se fait juste à la sortie de l'extracteur, dans le conduit de fumée, comme présenté dans la Figure 2-5.

Le TESTO 350 est un analyseur de combustion portatif professionnel. L'appareil se compose de l'unité de commande (permettant d'afficher les valeurs de mesure et de commander le coffret d'analyse) et du coffret d'analyse (appareil de mesure). Le TESTO fonctionne avec des cellules électrochimiques pour l'O₂, le CO et les NO_x. En revanche, pour mesurer le CO₂, la méthode d'analyse utilise une cellule d'absorption infra-rouge. Avec l'aide du logiciel « *Easy emissions* », il est possible de suivre en permanence l'évolution des émissions mesurées par le TESTO. L'appareil est régulièrement étalonné à l'aide d'une bouteille contenant un mélange de 15% d'O₂, 5% de CO₂ et 3500 PPM de CO.

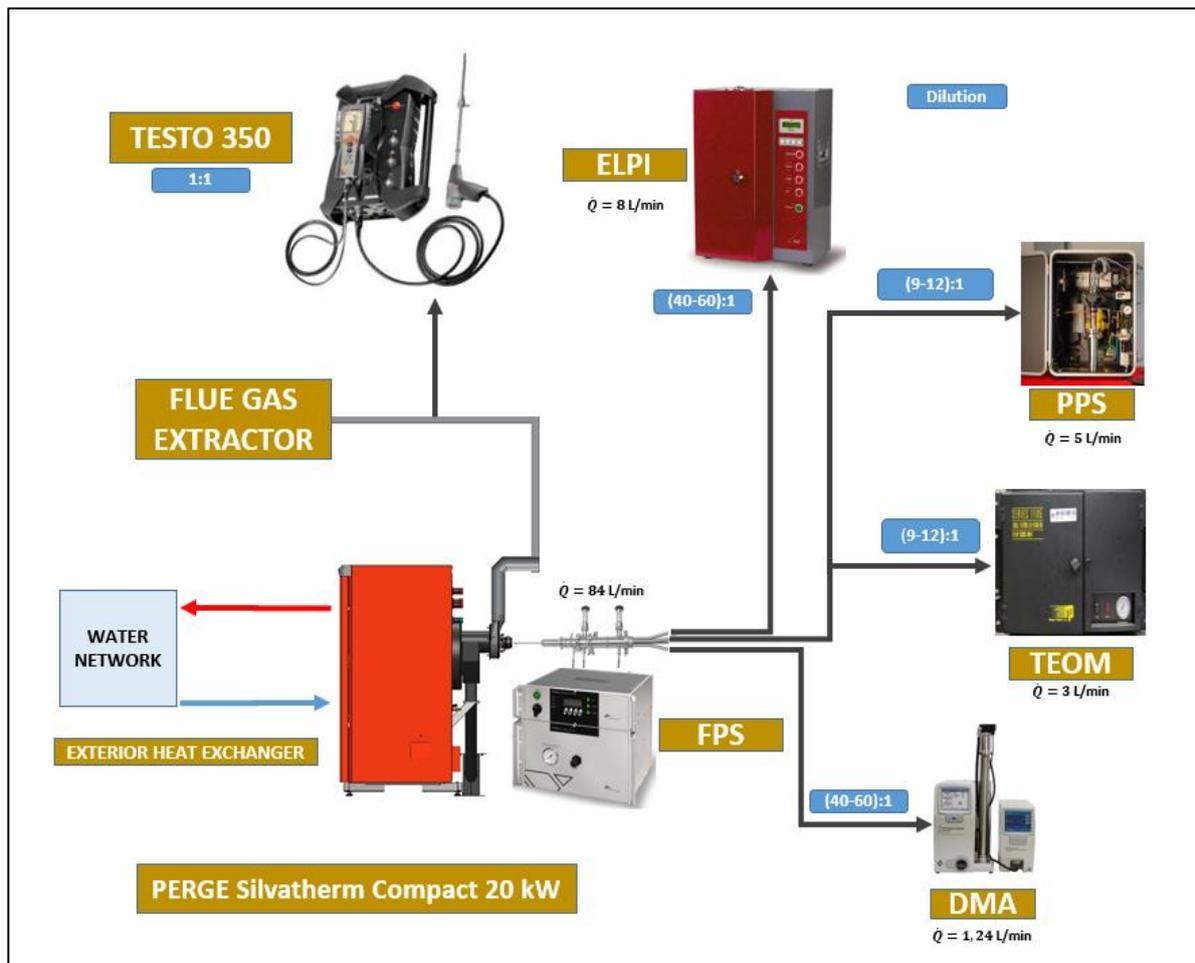


Figure 2-5. Vue d'ensemble des équipements de mesure utilisés pour analyser les concentrations en gaz de combustion et la concentration et la taille des particules dans les fumées produites par la combustion de la biomasse (dans le carré bleu le taux de dilution utilisé).

Le temps de réponse de la cellule de NO_x est de 30 s) et celle pour le CO de 40s, selon les informations du fabricant. Le temps de réponse total de l'ensemble de l'équipement (passage dans les tubes de fumées, canne de prélèvement et analyseur TESTO) est de l'ordre de 50 secondes pour le CO, ce qui est suffisant pour détecter des fluctuations de concentrations dans les fumées. Une fois que la chaudière est stabilisée (débits et température), un suivi des concentrations a été effectué pendant 1 heure avec le TESTO 350 (sans dilution) pour observer d'éventuelles variations. Ce test s'est concentré sur les deux émissions polluantes gazeuses principales étudiées pendant cette thèse, le CO et les NO_x. Un exemple des observations est donné dans la Figure 2-6 pour une puissance de chaudière égale à 18 kW.

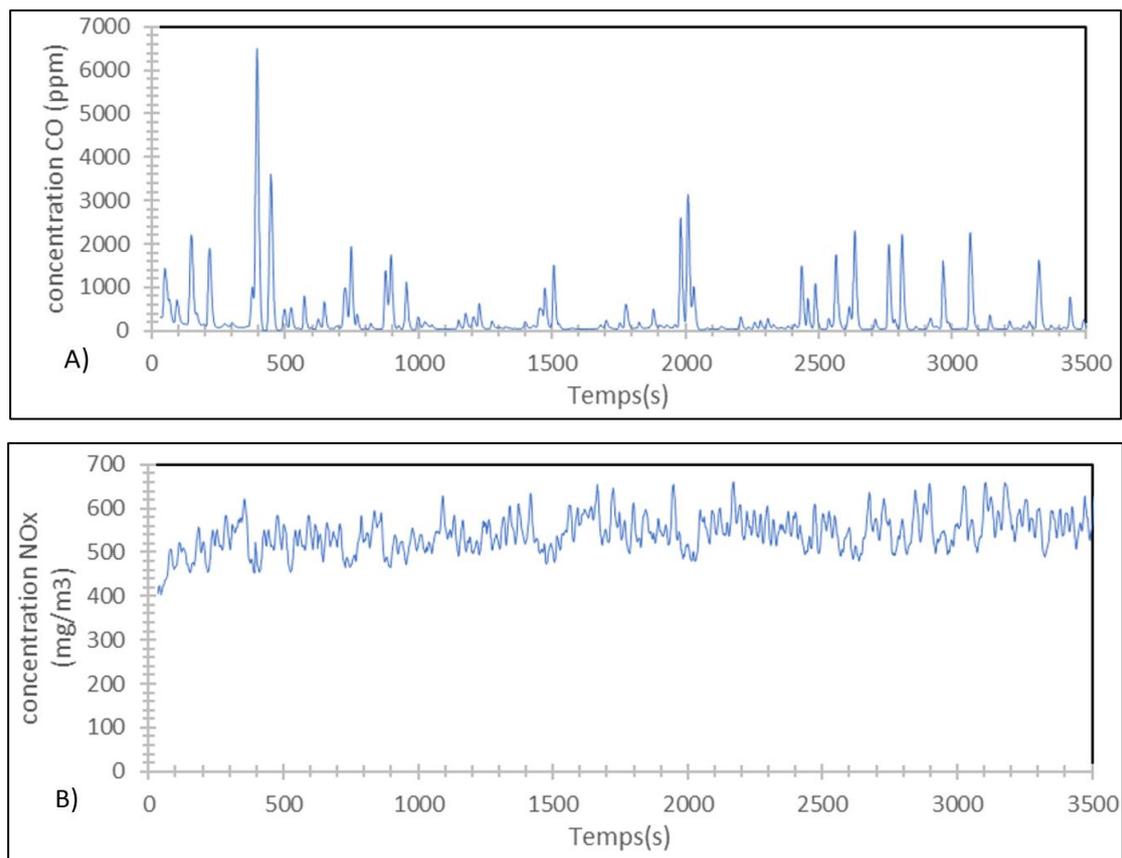


Figure 2-6. Concentration de CO A) et de NOx B) sur 3500 s pour la combustion de bois avec la chaudière stabilisée à 18 kW.

La Figure 2-6 A) montre que les concentrations de CO pendant 3500 secondes ne sont pas régulières; des pics importants une intermittence peuvent être observés. La Figure 2-6 B) montre quant à elle que les concentrations de NOx fluctuent légèrement autour d'une valeur moyenne mais ne présentent pas une intermittence comme pour le cas du CO. La moyenne cumulée des valeurs est présentée sur la Figure 2-7. La Figure 2-7 supérieure montre que le début de la stabilisation de la moyenne cumulée de CO est obtenu après 30 minutes de prélèvement. Pour le NOx, présenté sur la Figure 2-7 inférieure, la moyenne ne varie pas significativement pendant les 60 minutes de mesure, et dès les premières dix minutes, une valeur moyenne représentative est obtenue. Grâce à cette étude, il peut être établi qu'un temps minimum de prélèvement de 30 minutes est nécessaire pour cette chaudière afin d'avoir une moyenne représentative des émissions de CO. Les analyses effectuées dans le cadre de cette thèse ont donc été réalisées sur la base d'un échantillonnage de 30 minutes et sur 3 expériences.

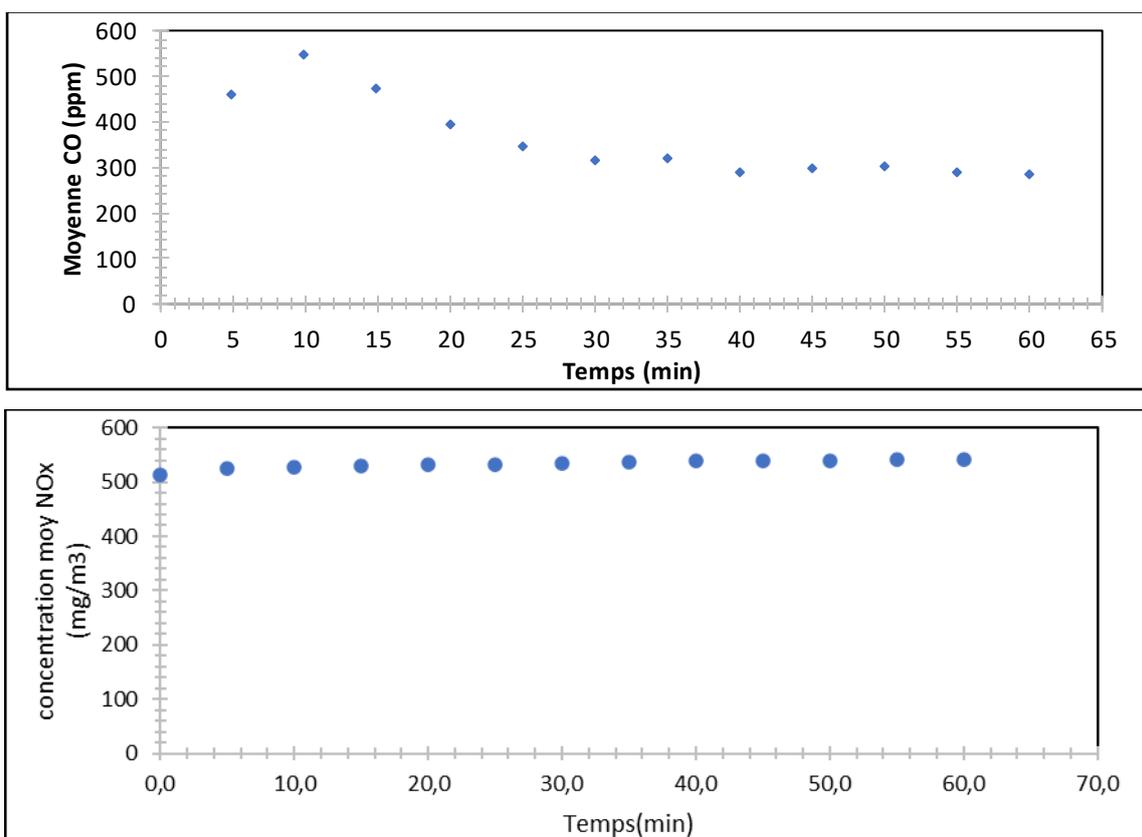


Figure 2-7. Moyenne cumulée des concentrations. Figure du haut CO et figure du bas NOx, mesurées pendant 1h sur la chaudière à 18 kW.

2.3. Mesure des émissions particulaires dans les fumées.

Cette partie décrit le système de prélèvements utilisé pendant cette thèse pour les mesures d'émissions en particules. Elle aborde ensuite les équipements utilisés pour mesurer les propriétés des particules, notamment leurs concentrations massiques et en nombre et leur répartition par taille. Les étalonnages nécessaires, effectués sur cet équipement et les bancs expérimentaux spéciaux mis en place pour effectuer des mesures seront également présentés. Enfin, le protocole pour l'obtention des images réalisées par microscopie électronique à transmission sera présenté et discuté.

2.3.1. Prélèvement des particules dans les fumées

Comme pour les gaz, les échantillons de fumées sont prélevés à la sortie de la chaudière (Figure 2-5). Ils sont dilués grâce à une sonde FPS (*Fine Particle Sampler*, de la marque Dekati) tel qu'illustré sur la Figure 2-8. Ce dispositif permet d'ajuster le facteur de dilution entre 20 et 200. L'échantillon est extrait des fumées en utilisant une sonde en acier inoxydable de 8 mm, il est ensuite dilué en deux étapes à l'aide d'un tube poreux et d'un éjecteur (Figure 2-8).

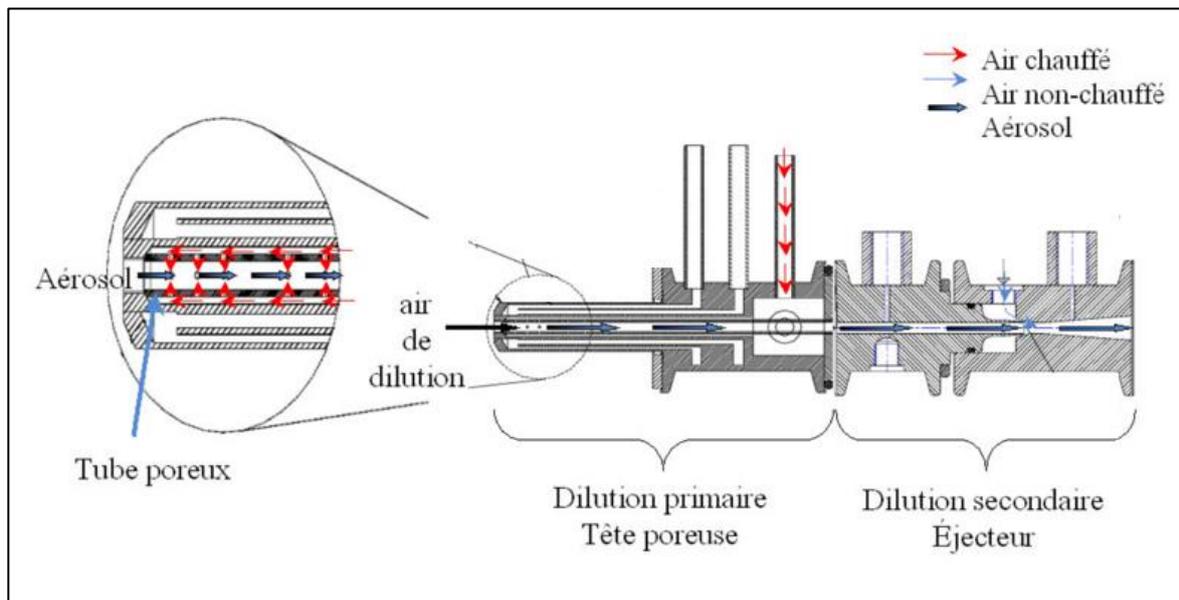


Figure 2-8. Schéma de fonctionnement de la sonde FPS utilisée pour le prélèvement et la dilution des fumées, équipée d'une tête chauffante pour contrôler la température de l'échantillon à l'entrée de la sonde (Ouf, 2006).

La dilution primaire a lieu à l'intérieur du tube perforé où l'échantillon brut se mélange avec l'air de dilution émis par la paroi perforée du tube. Ce tube perforé est logé dans la partie extrême de la sonde, qui peut être chauffée pour éviter que les composantes condensables soient à l'état liquide. Cette dilution primaire peut être ajustée en modifiant le débit d'air de dilution. D'autre part, l'étage de dilution secondaire est une pompe à éjecteur qui assure le prélèvement de l'échantillon dans le diluteur primaire, mais qui, du fait de son principe de fonctionnement, ajoute une dilution secondaire importante. L'échantillon de fumée dilué sortant du système est toujours à pression et température ambiantes, ce qui facilite l'utilisation des appareils de mesure des particules. Le résultat du calcul du taux de dilution est déterminé et sauvegardé en temps réel ainsi que les données de température et de pression, ce qui facilite le post-traitement.

Comme mentionné précédemment, la zone de dilution primaire peut être chauffée. Ceci permet de contrôler la température de la tête de sonde. Cette température est importante en raison de la possibilité de condensation de certaines vapeurs, surtout dans le cas des fumées générés par la combustion de la biomasse. En effet, lors de la combustion de la biomasse, les condensables représentent un pourcentage important des particules prélevées dans les fumées. (Brandelet, 2016).

La Figure 2-9 montre l'influence de la température d'entrée de la sonde sur la concentration totale des particules mesurées. Ces mesures ont été réalisées en sortie de la sonde FPS grâce à la microbalance TEOM qui sera décrite dans la section suivante. Il est mis en évidence qu'au fur et à mesure que l'on augmente la température d'entrée de la sonde, la concentration totale des particules augmente également. Cela pourrait être dû au fait que l'augmentation de la température évite la condensation sur la tête de la sonde. Au vu de ces observations, la température de la tête de sonde a été fixée à 200°C, afin d'éviter la condensation des vapeurs dans les fumées.

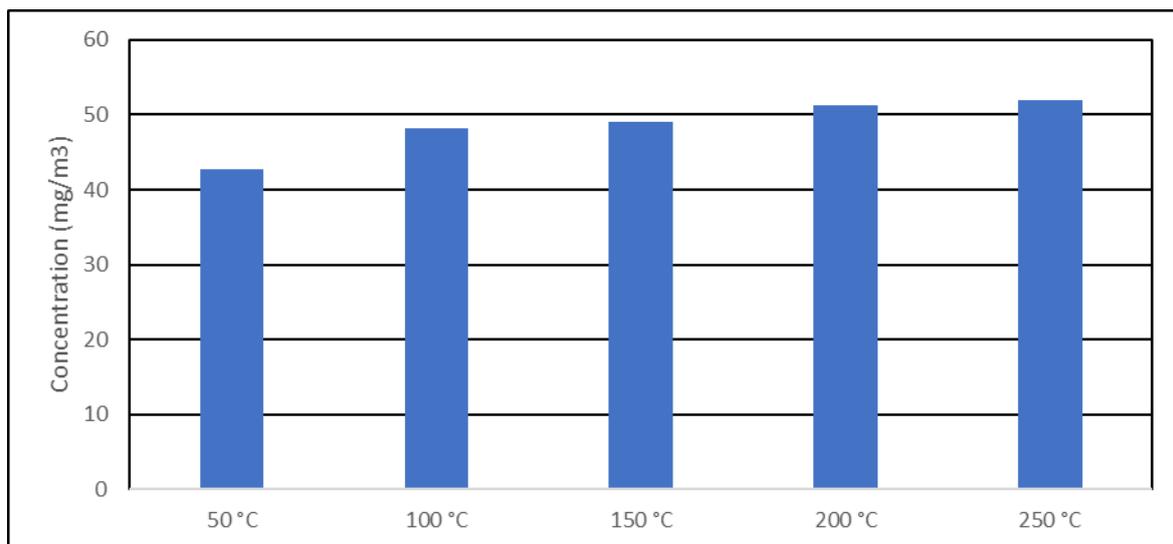


Figure 2-9. Concentration mesurée des particules en sortie de sonde FPS pour différentes températures de la tête de la sonde de prélèvement.

2.3.2. La mesure de la concentration massique des particules

Pour mieux comprendre les émissions de particules pendant la combustion de la biomasse, il est nécessaire de connaître les paramètres qui caractérisent les particules. Le présent travail se concentre sur la mesure de trois paramètres importants pour la caractérisation des émissions, à savoir :

- La concentration massique.
- La taille des particules.
- Le nombre total de particules (par unité de volume).

Pour la concentration massique des particules, deux équipements ont été utilisés :

Microbalance oscillante (TEOM) : C'est un appareil qui mesure la concentration en masse des particules. Le principe de la mesure repose sur la détermination du changement de la fréquence d'oscillation naturelle d'un filtre lorsque les particules sont déposées sur celui-ci (Allen, et al., 1997). L'avantage de cet appareil est que le principe de la mesure repose sur une observation de la fréquence, ce qui peut être simple à réaliser. Cette fréquence ne dépend pas de la nature des particules mais seulement de la masse déposée, et permet une mesure sensible en temps réel. Pour la réalisation de la mesure, il faut étalonner l'appareil afin de convertir la fréquence en une masse déposée sur le filtre. La constante d'étalonnage du constructeur sera utilisée. En revanche, l'inconvénient de l'appareil est le temps nécessaire pour avoir une variation de masse suffisante sur le filtre oscillant. En général, on effectue une moyenne sur 10 ou 20 s.

Capteur de particules Pegasor (PPS) : C'est un instrument compact et peu sensible à la température des échantillons. Il est utilisé pour la surveillance des particules ultrafines émises par les moteurs automobiles (Chung, 2014) car il a la capacité de mesurer la concentration massique (mg/m^3) et la concentration en nombre des particules ($\#/\text{cm}^3$) dans les gaz de combustion. La Figure 2-10 montre un schéma de fonctionnement du PPS. Le principe de cet appareil est la détection électrique des aérosols. Les particules sont prélevées directement dans les gaz d'échappement et chargées électriquement par un ioniseur corona. Le flux est pompé par un éjecteur diluteur inclus dans le PPS (Amanatidis, Maricq, Ntziachristos, & Samaras, 2016), (Zhai, et al., 2017).

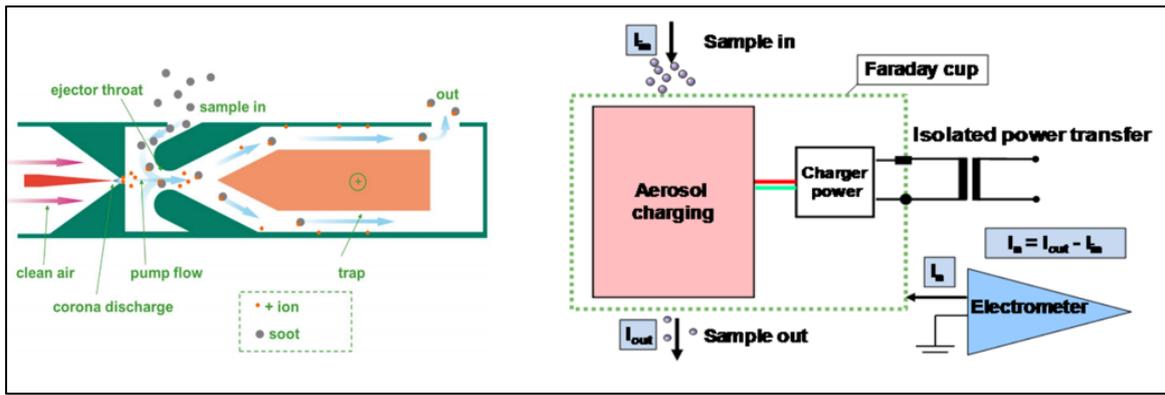


Figure 2-10. Fonctionnement général du PPS (Pegasor, 2018).

L'appareil mesure le courant I porté par les particules chargées. Grâce à l'Équation 2-2, la concentration massique C_s peut être déterminée :

$$C_s = \frac{1}{16,666} \frac{K}{q_v} I \quad \text{Équation 2-2}$$

Où K est la constante du PPS, q_v le débit de prélèvement du PPS et I le courant mesuré. Cet appareil nécessite donc un étalonnage afin de connaître la valeur de K . Il est légitime de se poser la question de l'influence de la nature des particules sur la valeur de K . En effet, la charge acquise par les particules est certainement fonction de la nature des particules (suies, goudrons, cendres, ...).

L'avantage du PPS par rapport au TEOM est son temps de réponse qui est assez court, de l'ordre de 0,2 s, ceci permet un suivi plus rapide des variations de la concentration massique comparé à la microbalance TEOM. Cependant, le temps de transit entre le foyer et la sortie de la sonde FPS est un critère déterminant.

Jusqu'à présent, le PPS n'a pas souvent été utilisé pour évaluer les émissions de combustion de la biomasse, mais plutôt pour des applications sur les moteurs automobiles (Amanatidis, Maricq, Ntziachristos, & Samaras, 2016). Des mesures de concentration massique des particules ont été réalisées avec un PPS par (Lefevre, 2019) à l'aide d'un générateur miniCAST, un équipement qui produit un aérosol de suie stable. Le Tableau 2-1 montre 4 différents points de fonctionnement du miniCAST qui produit des particules avec des propriétés physiques et chimiques différentes. On peut constater (comme évoqué par le fabricant) que la valeur du coefficient K varie en fonction du diamètre et du taux de composé organique. Cependant il est possible que la nature des particules soit également importante, puisque la valeur de K est très variable d'une application à l'autre (Shin, et al., 2010).

	CAST 1	CAST 2	CAST 3	CAST 4
$D_{p,geo}$	26,6	36,3	29,9	14,9
$N_{p,modal}$	66,0	44,0	38,0	135,0
ρ_p (kg/m ³)	1543,0	1235,0	1321,0	1227,0
OC/TC(%)	4,1	40,0	87,0	22,1
K(UA)	1,652	1,585	2,78	0,54

Tableau 2-1. Propriétés morphologique et chimique des nanoparticules de références. $D_{p,geo}$ représente le diamètre médian des particules primaires, $N_{p,modal}$ est le nombre modal de particule primaire d'une distribution log-normale, ρ_p est la masse volumique du matériau et OC/TC est le taux de composé organique de la particule (Lefevre, 2019). K est la constante définie par l'éq. 2.2.

En raison de la variabilité du paramètre K, il a été nécessaire d'effectuer un étalonnage pour connaître sa valeur pour le cas des particules émises par la chaudière à pellets. Pour cela, le TEOM a été utilisé en le branchant sur la sonde à dilution FPS en même temps que le PPS, afin de connaître avec précision la concentration massique des échantillons et le courant en sortie du PPS.

La connaissance de la valeur de Cs obtenu par le TEOM et de I donné par le PPS permet d'obtenir la valeur du coefficient K en utilisant l'équation 2-2. Cette opération a été répétée un certain nombre fois sur différents états de fonctionnements stationnaires de la chaudière. Une température de sonde FPS de 200 °C et une dilution d'un facteur de 10 ont été utilisées. Les résultats sont fournis dans le Tableau 2-2 pour les aérosols produits par la combustion de bois, avec une alimentation de 1.5 g/s de combustible et une efficacité de 80%.

Expérience	TEOM Cs (mg/m ³)	PPS courant I (pA)	K (UA)
1	167,90	2713,15	0,91
2	172,90	3112,76	0,84
3	109,80	2202,94	0,75
4	160,10	2174,78	1,02
5	185,10	2318,77	1,18
6	148,70	2680,58	0,82
7	105,70	2212,07	0,67
8	102,90	1739,85	0,81
9	165,10	2905,74	0,85
10	170,70	2527,15	1,01
11	126,00	2266,41	0,83
12	89,60	1962,64	0,68
Moyenne	-	-	0,86

Tableau 2-2. Valeurs des concentrations massiques mesurées par le TEOM et ayant servi à l'étalonnage du PPS.

A partir des résultats du tableau, on obtient une valeur moyenne de K égale à 0,86. Cette valeur du coefficient K peut être comparée aux valeurs fournies par le fabricant pour des particules diesel, et qui sont données ci-dessous dans le Tableau 2-3. Elles sont présentées en fonction du diamètre des particules.

Diamètre (nm)	100	150	200	300	400	500	600	800	1000
K	2,5	4,5	6	9	12	15	18	24	30

Tableau 2-3. Valeurs du paramètre d'étalonnage K fournies par le constructeur PEGASOR en fonction du diamètre.

En comparant les données du Tableau 2-2 avec celles du Tableau 2-3 (valeurs fabricant) il est mis en évidence que les valeurs calculées pour le paramètre K dans le cas des particules issues de la combustion de la biomasse (cas d'étude), sont inférieures à celles obtenues par le fabricant quel que soit le diamètre. En faisant une extrapolation de la tendance observée avec les données du Tableau 2-3 fournies par le fabricant, jusqu'à la valeur moyenne du diamètre des particules observées avec le SMPS (cas d'étude $D_{me}=70nm$), on trouve une valeur de 1,6514, ceci est le double de la valeur obtenue par l'étalonnage effectué avec le TEOM.

Cela peut s'expliquer par le fait que les particules utilisées par le fabricant du PPS pour son étalonnage ne sont pas des particules de combustion de biomasse, donc de nature très différente. Il semble que l'état de charge des particules dans le PPS soit influencé par la nature des particules (Yon, 2015). Les particules issues à la combustion de la biomasse semblent se charger plus efficacement que celles issues de la combustion du diesel. Par conséquent, la valeur du paramètre K égal à 0,86 sera utilisée pour les applications de combustion du bois.

2.3.3. La granulométrie des particules

Au cours de ce travail, deux appareils ont été utilisés pour mesurer la distribution en taille des particules: un analyseur de diamètre de mobilité électrique « *Scanning mobility particle sizer* » (SMPS) et un « *Electrical Low Pressure Impactor* » (ELPI), qui fournissent respectivement un diamètre de mobilité électrique et un diamètre aérodynamique. Ces deux diamètres ne sont égaux que dans les cas de particules sphériques.

L'analyseur de diamètre de mobilité (SMPS, marque TSI) est un instrument composé d'un analyseur de mobilité électrique (DMA) couplé à un compteur de particules CPC. Le DMA sélectionne les aérosols en fonction de leur diamètre de mobilité. A l'aide d'un dispositif de scan sur les diamètres, chaque classe de particule est envoyée sur le compteur qui mesure le nombre de particules par unité de volume associé à chaque classe. La mesure et la classification se font dans une plage comprise entre 10 nm et 1 µm. Le principe de ce dispositif repose sur la mobilité électrique des particules dans un écoulement (Jeong & Evans, 2009), il est décrit dans l'annexe C. La définition du diamètre de mobilité électrique est également donnée dans l'annexe C. La Figure 2-11 montre un exemple de distribution en taille (diamètre de mobilité) des particules prélevées dans les fumées de la chaudière pour une puissance de 90% de sa puissance nominale.

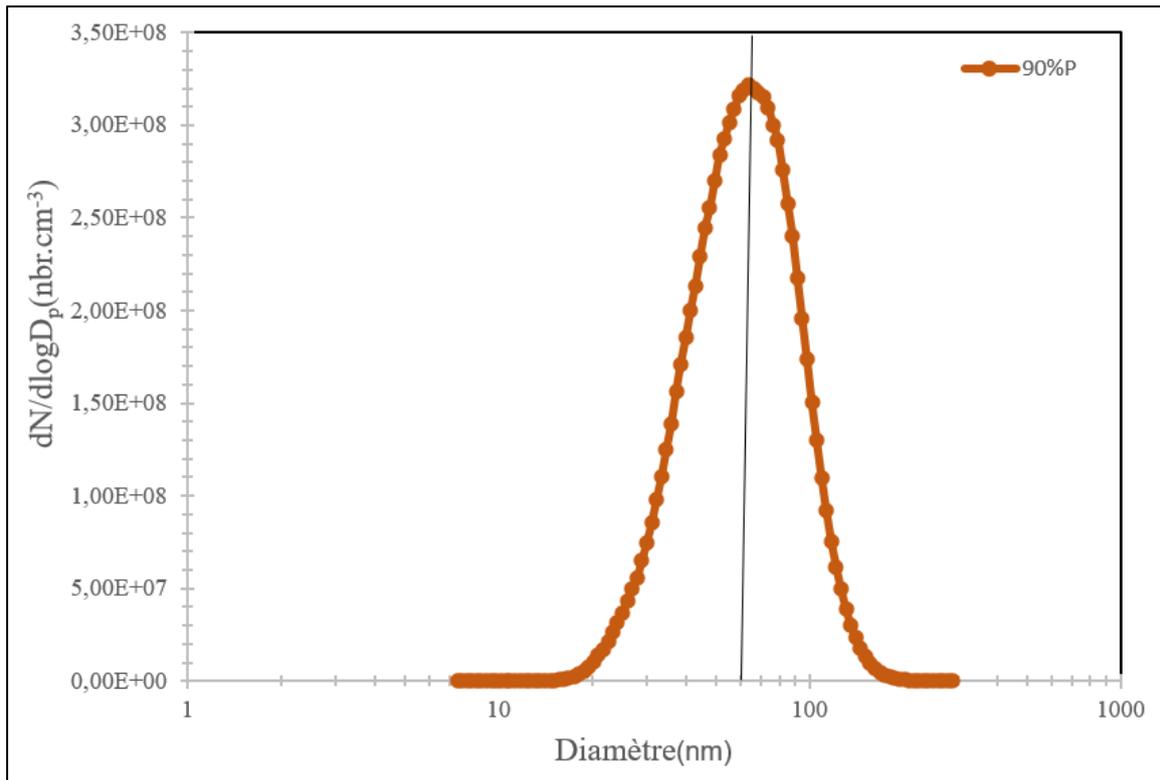


Figure 2-11. Exemple de distribution des diamètres de mobilité électrique en $dN/d\log D_p$ (nbr.cm^{-3}), observées pour les particules prélevées dans les fumées pour un fonctionnement à 90% de la puissance nominale.

L'Impacteur Electrique Basse Pression (ELPI, produit par Dekati) mesure quant à lui en même temps la distribution de tailles des particules et leur concentration sur une plage granulométrique de 30 nm à 10 μm . La mesure repose sur une série d'impacteurs disposés en cascade, chaque impacteur étant muni d'un électromètre permettant de mesurer le nombre de particules déposées par inertie, les particules ayant été chargées en amont. Cet appareil fournit donc, pour chaque impacteur, le diamètre aérodynamique et la concentration au cours du temps. Ce dispositif permet de classer les particules différentes classes de diamètres aérodynamiques et de mesurer leur concentration (Ouf, 2006), avec une résolution temporelle bien inférieure à celle du SMPS, en revanche le nombre de classes est réduit au nombre d'impacteurs installés, soit 13 en tout. Le principe et la définition du diamètre aérodynamique sont détaillés dans l'annexe C.

Même s'il est connu dans la littérature que la distribution des diamètres des particules issues de la combustion de la biomasse est unimodale et centrée sur des particules de 0,1 μm de diamètre, nous avons voulu vérifier par nous-même la possibilité d'avoir des particules de plus grande taille. Donc, l'ELPI a été utilisé afin d'observer la possible présence des particules

de plus de 1 micromètre de diamètre, et qui ne sont pas détectées par le SMPS. La Figure 2-12 montre un exemple de distribution en taille (diamètre aérodynamiques) des particules prélevées dans les fumées, dans les mêmes conditions que pour la Figure 2-11. La distribution de taille obtenu par l'ELPI montre qu'effectivement les diamètres des particules sont dans la gamme 0-1 µm avec un mode vers 0,1 µm. Les données de diamètre aérodynamique seront utilisées plus tard pour la validation du calcul de la masse volumique effective des particules.

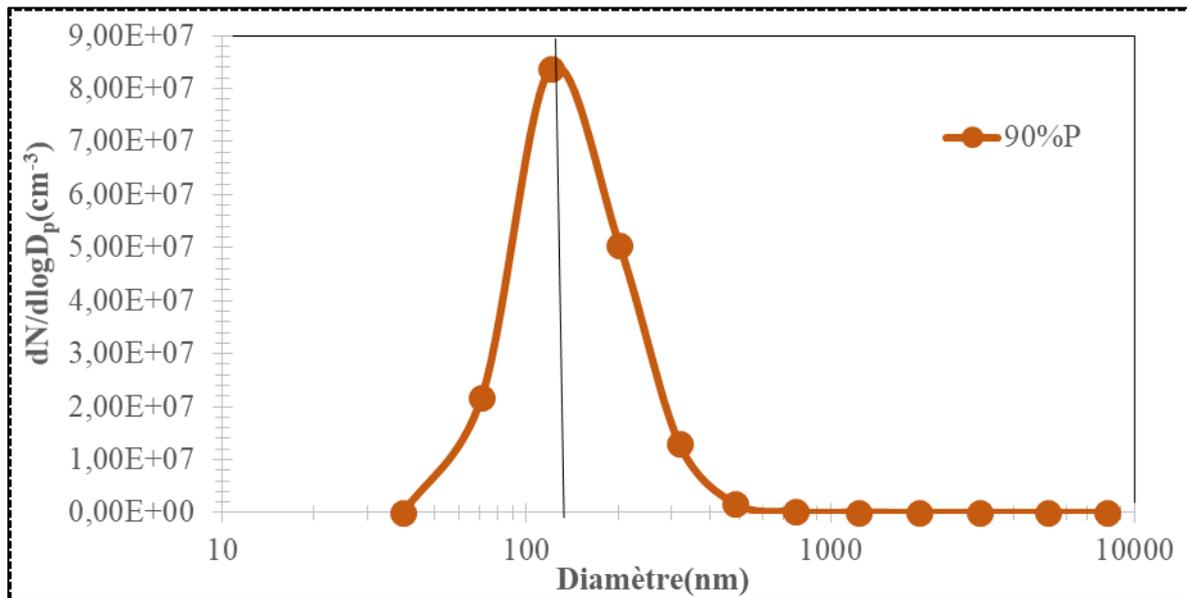


Figure 2-12. Exemple de distribution des diamètres aérodynamiques observés pour les particules prélevées dans les fumées pour un fonctionnement de 90% de la puissance nominale.

2.4. Observation de la morphologie et calcul de la masse volumique effective des particules

2.4.1. Images de microscopie électronique pour l'observation de la morphologie des particules.

Dans les fumées générées par la combustion de la biomasse, on trouve des particules de tailles différentes, de formes irrégulières, dont la nature chimique est très variable (Li W., 2008) (Tissari, 2008). Afin d'analyser finement les résultats de diamètres et de masse volumique effective, il a été décidé d'effectuer des images au microscope électronique. Elles ont été réalisées avec l'aide du laboratoire de l'Université d'Aix-Marseille II sur de membranes formVar. A noter que les membranes formVar ne sont pas très adaptées à ce type d'étude car

elles sont relativement épaisses et contiennent une grosse quantité de carbone, d'oxygène, et des traces de silicium. Ceci ne facilite pas les analyses chimiques car on trouve ces éléments dans de nombreux composés. Cela a donc diminué le niveau de détail obtenu ainsi que la possibilité de réaliser une cartographie des éléments chimiques présents dans les particules.

Le prélèvement des particules a été effectué à la sortie du FPS avec différents temps d'exposition des membranes formVar et plusieurs dilutions afin de s'assurer du dépôt de suffisamment de particules sur les grilles. Il en est ressorti qu'un temps d'exposition des grilles entre 15, 30, 60, 120 s associé à une dilution d'un facteur 9 permettent d'obtenir suffisamment de particules pour l'analyse des images. La Figure 2-13, présente deux exemples d'images obtenues.

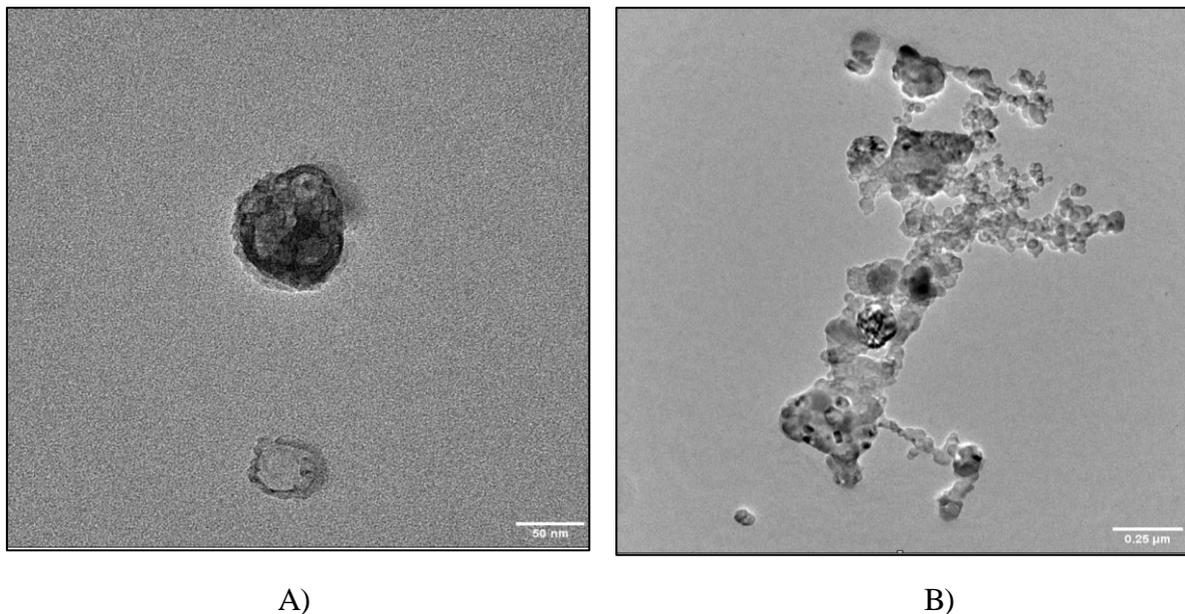


Figure 2-13. Deux exemples de particules prélevées dans les fumées de la combustion des pellets de bois observées au microscope électronique (MET).

Sur ces images, des particules de formes et de tailles différentes sont observées. Elles semblent être également de natures différentes. Grâce à ces images, on pourra connaître la morphologie des particules présentes dans les fumées et améliorer les analyses des variations de certains paramètres.

2.4.2. Masse volumique effective

La masse volumique effective ρ_{eff} d'une particule est définie par la relation suivante (Leskinen, 2014)

$$\rho_{\text{eff}} = \frac{6m_p}{\pi d_{\text{me}}^3} \quad \text{Équation 2-3}$$

Où d_{em} est le diamètre de mobilité des particules et m_p est la masse de la particule.

La variation de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité est un indicateur de la forme des particules et leur composition. Pour ces raisons, il a été décidé de faire une étude de cette grandeur, en utilisant un système comme celui illustré sur la Figure 2-14. Cette mesure nécessite un DMA, un « *Centrifugal Particle Mass Analyzer* » (CPMA) et d'un compteur de particules CPC positionnés en série. En amont du CPMA, on trouve le DMA qui sert à sélectionner les particules sur une classe de diamètres. Ensuite, le CPMA sélectionne les particules en fonction de leur masse (Olfert et Collings, 2005). C'est un classificateur d'aérosols qui sélectionne les particules en fonction de leur rapport masse/charge. Il produit un aérosol mono-dispersé basé sur une métrique de masse, alors que le DMA utilise une métrique de mobilité électrique. Cet équipement n'a été utilisé que pour la détermination de la masse volumique effective des particules.

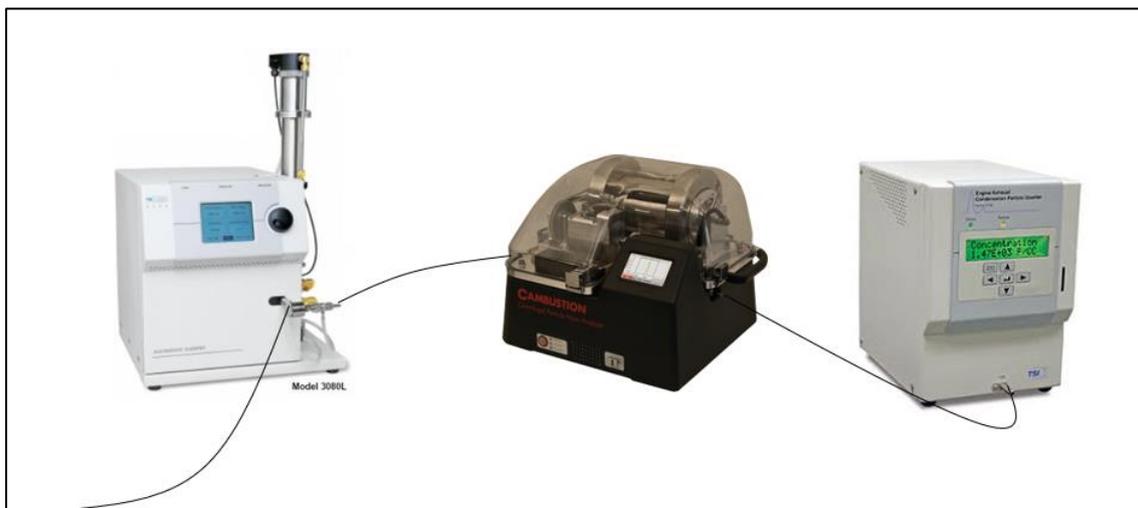


Figure 2-14. Dispositif utilisé pour la mesure de la masse volumique effective des particules, à gauche le DMA, au milieu le CPMA et à droite le compteur de particule CPC. L'échantillon prélevé dans les fumées est d'abord introduit dans le DMA.

L'insertion du CPMA entre le DMA et le compteur CPC provoque une altération de la mesure du diamètre de mobilité du SMPS. Il existe, dans le SMPS, un facteur « temps de transit » (t_m) dû au cheminement des particules entre la colonne (DMA) et le CPC, celui-ci est modifié par la présence du CPMA. La valeur par défaut est de $t_m=1,13$ s. Avec la présence du CPMA, cette valeur a dû être déterminée grâce à des sphères en latex (Nanosph., 203 nm), dont les diamètres et la masse volumique sont connues. Le dispositif utilisé est présenté Figure 2-15. Il a été installé en amont un homogénéisateur qui est utilisé pour créer un aérosol de particules de latex de 203 nm. Les billes latex passent par un impacteur pour s'assurer qu'aucune particule de plus grand diamètre ne pénètre dans le DMA en raison d'impuretés, puis par une tour de gel de silice pour éliminer l'humidité contenue. Le résultat est un aérosol sec et homogène dont le diamètre modal est de 203 nm.

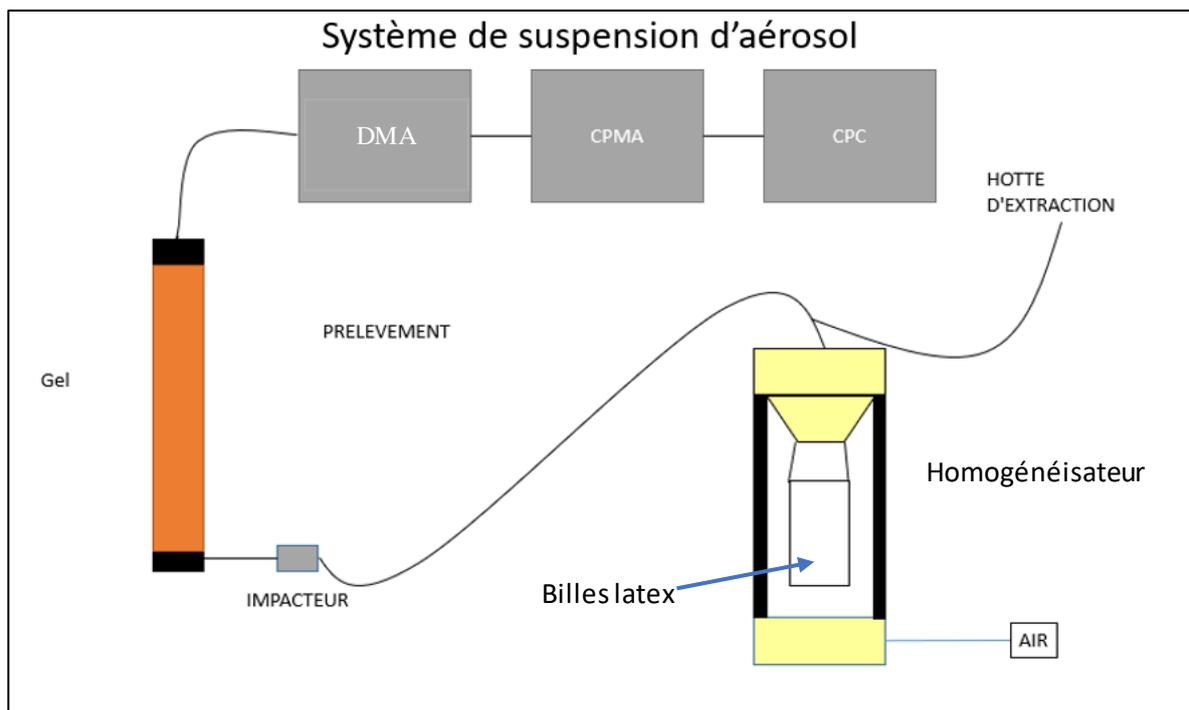


Figure 2-15. Banc d'essai étalonnage avec des billes latex permettant la détermination du temps de transit au sein du dispositif.

Le mode de la distribution mesuré par le dispositif est relevé pour différentes temps de transit, de $t_m=1,13$ s à $t_m=8,0$ s. On obtient différentes valeurs des diamètres des billes, les résultats sont présentés sur la Figure 2-16 A). La valeur précise de t_m peut être obtenue par interpolation en utilisant la valeur connue du diamètre des billes (203nm) afin de s'en servir pour la nouvelle configuration (SMPS, CPMA, CPC). Pour les billes de 203 nm, un facteur t_m

égal à 7,23 s, a été trouvé. Une nouvelle expérience a été menée en utilisant la valeur de $t_m=7,23$ s, montrant un accord avec les valeurs attendues pour des billes de 203 nm, les résultats sont présentés sur la Figure 2-16 B).

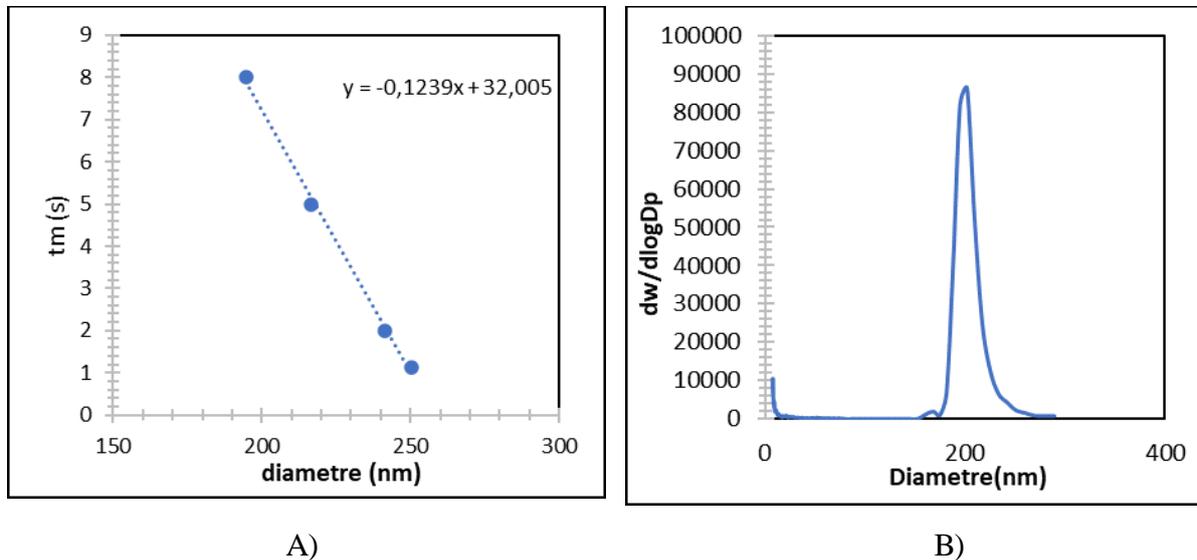


Figure 2-16. Courbes d'étalonnage, pour la configuration utilisée pour les expériences de masse volumique effective. A gauche le temps de transit en fonction du diamètre (sélectionné au niveau du SMPS), à droite la distribution en masse observée (En sortie du CPMA)

2.5. Les campagnes expérimentales.

Plusieurs séries de mesures ont été effectuées pour analyser les émissions de la combustion dans une chaudière à pellet domestique, elles sont expliquées ci-dessous. L'objectif de cette partie est de présenter les différents combustibles utilisés et leur caractérisation. Ainsi que les études spécifiques réalisées avec les équipements détaillés dans ce chapitre.

2.5.1. Caractérisation des combustibles.

L'un des objectifs de cette thèse est l'étude de la possibilité d'utiliser d'autres types de biomasse que du pellet de bois pour des applications domestiques. Pour cela, nous avons décidé d'utiliser deux autres types de biomasse que le bois pour la réalisation des expériences :

Le Miscanthus, aussi appelée « Herbe à Eléphant », « Eulalie » ou « Roseau de Chine », est une plante herbacée vivace de la famille des Poaceae (Graminées) originaire d'Afrique et d'Asie du sud. Issue des marais, pentes et flanc de collines, c'est une plante robuste qui n'est sujette ni aux maladies, ni aux attaques de rongeurs ou autres ravageurs (Lewandowski, 2000). Il en existe une vingtaine d'espèces aux couleurs et aux caractéristiques très différentes : les plus courtes font à peine 35 cm de haut, alors que les plus grandes peuvent atteindre 3,5m à 4m de hauteur. Certaines variétés sont stériles à multiplication végétative quand d'autres ont des graines fertiles ou un système racinaire traçant, il faut donc veiller pour ces dernières à ce qu'elles ne deviennent pas trop envahissantes (Jones, 2001). Le miscanthus utilisé est le gigantesque, il a été obtenu grâce à la société «Didier FERTIL » de la région Normande et qui a fabriqué les granulés sans additif pour l'agglomération.

La paille est l'autre combustible étudié. Elle représente la partie de la tige (chaume) de certaines espèces de graminées cultivées, dites céréales à paille (blé, orge, avoine, seigle, riz), coupée lors de la moisson. Elle est employée comme fibre textile (dans les chapeaux de paille) ou comme matériau de construction depuis des temps immémoriaux (Zhou, 2005). C'est le plus souvent un coproduit de la production des grains. La paille peut être soit enfouie sur place comme amendement organique, soit enlevée et « exportée » hors de la parcelle pour d'autres utilisations. La partie de la tige, de faible hauteur, restant plantée au sol constitue le chaume ou éteule. En France, elle est principalement produite dans les régions céréalières (Centre, Picardie et Champagne-Ardenne). La paille utilisée est une paille de blé vendue par le même fabricant et sans l'utilisation d'additifs.

La paille peut être considérée comme « *Agricultural Crops* » et le miscanthus comme « *herbaceous crops* » (González Martínez, Floquet, Dupont, da Silva Perez, & Meyer, 2020), le miscanthus étant utilisé comme « *energy crop* ».



A)

B)

C)

Figure 2-17. Pellets utilisés de : A) bois B) miscanthus C) paille

La Figure 2-17 montre les trois biomasses utilisées au cours de cette thèse. Les pellets de bois ont une masse volumique de 1250 kg/m³ alors qu'elle est d'environ 1150 kg/m³ pour le miscanthus. Les granulés de paille ont une masse volumique un peu plus faible, autour de 950-1000 kg/m³. Les pellets ont environ 6mm de diamètre et entre 10 à 40mm de longueur :

Les principaux paramètres qui permettent de caractériser ces combustibles sont :

- L'humidité ;
- Le Pouvoir Calorifique ;
- La teneur en cendres ;
- La composition chimique élémentaire.

La mesure de l'humidité est réalisée selon la norme NF EN ISO 18134-1 et elle est répétée quatre fois par échantillon. Cette mesure peut être décomposée en trois étapes :

1. Pesée de l'échantillon humide
2. Mise en four à 103-105°C durant 24 h
3. Pesée de l'échantillon anhydre.

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

Le Tableau 2-4, présente les résultats des tests réalisés pour les différentes biomasses. L'humidité observée a toujours été de l'ordre de 8%.

Pour la quantité de substances volatiles, la norme NF EN 15402 a été appliquée à l'aide du même four. Une masse de pellet définie et mesurée est déposée dans un creuset vide avec un couvercle, qui est ensuite inséré dans le four dont la température est maintenue à (900± 10) °C. Les échantillons sont traités pendant 24 h. et ensuite pesés une dernière fois (masse solides).

La mesure du taux de cendres a été réalisée selon la norme NF EN ISO 18122 à l'aide du même four utilisé précédemment. Une masse définie (généralement comprise entre 50 et 100 g) de broyats anhydres de pellets a été placée dans des récipients en porcelaine de masse connue. Ces récipients étaient ensuite placés dans le four réglé à 550 °C. L'échantillon restait dans le four (à 550°C) durant 24 heures, il a enfin été pesé à nouveau.

Dans le Tableau 2-4, il peut être constaté que le taux de cendre varie entre les trois types de pellets. Le bois est le matériau qui donne le moins de cendre et la paille la plus grande quantité.

Biomasse	Humidité	Volatils	Solides	Cendres
Bois	7,8%	80,4%	19,0%	0,1%
Miscanthus	8,2%	78,0%	20,0%	1,9%
Paille	8,3%	75,2%	20,4%	4,4%

Tableau 2-4. Propriétés physiques calculées pour les trois biomasses (Volatils, solides, cendres base sèche)

Composants de la biomasse

L'analyse élémentaire des combustibles a été réalisée avec l'aide du laboratoire COBRA. Pour l'analyse élémentaire seulement, le C et le H ont été mesurés car la concentration de N inférieure à 0,4%. L'oxygène a ensuite été obtenu par différence. Pour cette thèse seulement les mesures élémentaires pour le bois ont été réalisées. Les données pour la paille et le miscanthus sont extraites de la littérature, leurs analyses n'ayant pas pu être faites au cours de cette étude.

Echantillon	C% masse	H% masse	O% masse	N% masses	Laboratoire
Bois	46,08	6,42	47,50	<0,4	COBRA
Miscanthus	44,7-48,6	5,9-6,7	39,8-46,8	0,30-0,57	(Marte, 2019)
Paille	41,8-45,6	5,0-6,8	35,8-39,4	0,55-0,70	(Marte, 2019)

Tableau 2-5. Composition élémentaire des pellets utilisés

Analyse TGA : comportement de la biomasse

Des mesures TGA ont été réalisées pour les trois types de biomasses afin d'avoir plus d'informations si nécessaire pour l'analyse de la combustion. Les résultats de TGA sont donnés dans l'annexe D.

Mesure du PCI

Les mesures du PCI des biomasses ont été réalisées dans un calorimètre de la marque CAL2K, une bombe calorimétrique qui utilise l'oxygène à haute pression pour la combustion de matériaux. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau suivant.

Echantillon	PCI (MJ/kg)
Paille de blé	15,7
Miscanthus	16,5
Bois	17,4

Tableau 2-6. PCI mesuré pour les différentes biomasses

2.5.2. Mesure du débit d'air entrant au niveau du foyer de combustion

Une étape importante pour l'étude de la combustion est la détermination de la quantité d'air qui entre dans la chaudière. La chambre de combustion se compose de 21 orifices par lesquels l'air pénètre dans la chambre de combustion. Ils ont trois diamètres d'entrée différents : petits (3 mm), moyens (8 mm) ou grands (9,5 mm). La procédure pour déterminer la quantité d'air qui passe par les orifices vers le foyer de combustion a été réalisée dans une chambre de combustion externe à la chaudière mais ayant les mêmes dimensions. En utilisant le dispositif de mesure présenté dans la Figure 2-18 A), il a été possible de déterminer les 3 courbes (Figure 2-18-B) représentant le débit à travers chaque catégorie d'orifice en fonction de la perte de charge générée par chacun d'entre eux. Ensuite, une mesure de la perte de charge à travers des orifices d'air dans la chaudière avec une couche de granulés sans combustion (à froide) a été réalisée. Il a été supposé que la différence de pression était approximativement la même que celle trouvée lors du fonctionnement de la chaudière avec combustion (à chaude). Une différence de pression entre la chambre de combustion et les entrées de l'air égale à 30 Pa a été mesurée. En utilisant les courbes de la Figure 2-18-B) et la différence de pression (ΔP) mesurée, il est possible de déduire la quantité d'air passant par chaque orifice. Par les orifices de plus grande taille un débit de 20 L/min a été calculé, par les orifices de taille moyenne la valeur trouvée a été de 15 L/min et par les orifices de taille plus petite le débit est de 8L/min. Au total

par les 24 orifices divisés en 14 grands, 2 moyens et 8 petits le débit d'air entrant dans le foyer de la chaudière est de 374 L/min.

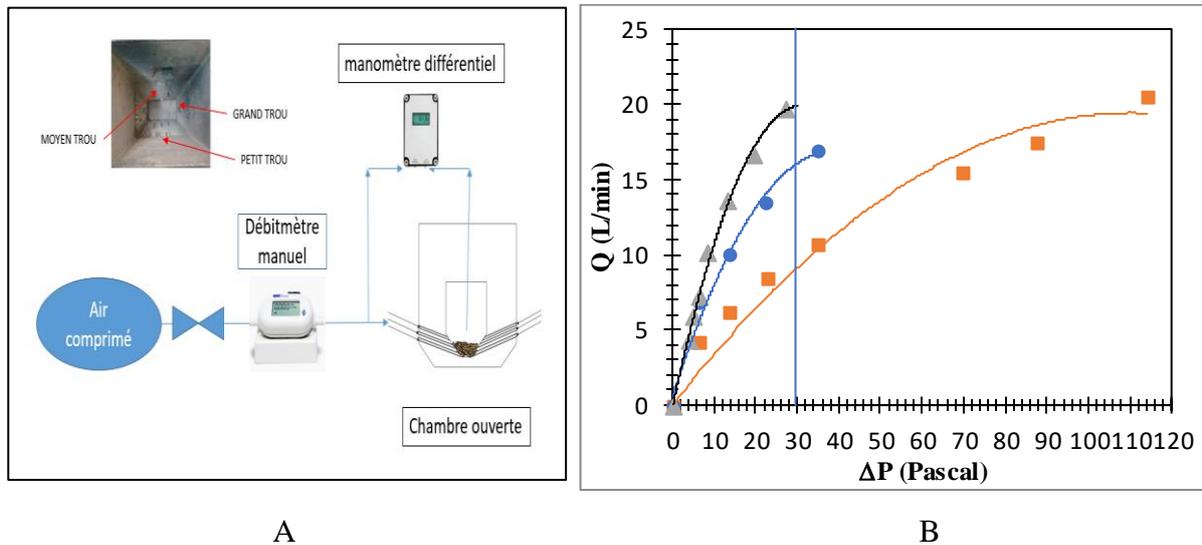


Figure 2-18. A) Configuration de dispositif de mesure réalisé sur le foyer pour déterminer le débit entrant pour les orifices d'alimentation d'air. B) Courbes obtenues pour déterminer le débit d'air entrant dans le foyer de la chaudière en fonction de la perte de charge à travers les orifices.

Une autre méthode a été utilisée pour déterminer le débit d'air total rentrant dans la chaudière, il s'agit d'un bilan de l'élément carbone. Le calcul est fait en fonction de la concentration des gaz dans les fumées. Les détails de la méthode sont développés dans l'annexe B. Cette méthode permet de trouver le débit d'air total qui rentre dans la chaudière, soit une valeur de 412 l/min. On trouve par rapport à l'air rentrant dans le foyer un écart de 10%. Ce facteur d'air, par rapport à l'air rentrant dans les orifices du foyer vient essentiellement du système d'injection des pellets.

Le calcul du facteur d'air (λ) sera réalisé en ne tenant compte uniquement l'air entrant dans le foyer par les orifices car il est considéré comme le principal responsable de la qualité de la combustion. Cependant, pour une combustion complète, il faudrait tenir compte de l'air entrant à tous les niveaux de la chaudière. En conséquence, les valeurs obtenues pour les calculs du facteur d'air utilisant uniquement le débit d'air passant les orifices peuvent donner des valeurs inférieures à 1 ($\lambda < 1$).

Avec les mesures des débits massiques d'air entrant dans les orifices, nous pouvons estimer le facteur d'air total introduit dans la chambre de combustion, avec l'équation suivante :

$$\lambda_{\text{Total}} = \frac{\dot{m}_{\text{air total}}}{\dot{m}_{\text{air, stoechiométrie}}} \quad \text{Équation 2-4}$$

Et pour calcul du facteur d'air passant par chaque ligne d'orifice (λ_{Orifice}), avec l'équation suivante :

$$\lambda_{\text{Orifice}} = \frac{\dot{m}_{\text{air, Orifice}}}{\dot{m}_{\text{air, stoechiométrie}}} \quad \text{Équation 2-5}$$

avec

$\dot{m}_{\text{air total}}$ = Débit massique d'air entrant la chambre de combustion (kg.s^{-1}).

$\dot{m}_{\text{air, Orifice}}$ = Débit massique d'air entrant par chaque ligne d'orifices (kg.s^{-1}).

$\dot{m}_{\text{air, stoechiométrie}}$ = Débit massique d'air nécessaire pour faire une oxydation complète du débit massique de biomasse introduit dans la chaudière (kg.s^{-1}).

2.5.3. Contrôle de la distribution d'air du foyer de combustion.

Comme évoqué auparavant, l'utilisation domestique des chaudières à charbon ou à biomasse est une source importante d'émission de particules fines et de polluants gazeux (Vicente & Alves, 2018). Il est essentiel de considérer les stratégies possibles pour réduire les émissions de ce type d'application. Dans la zone de flamme, des études ont utilisé un étage d'air, c'est-à-dire, l'injection d'une alimentation d'air secondaire au-dessus du lit de pellets. (Zabetta, Hupa, & Saviharju, 2005). Cependant, dans ce travail, seuls les flux d'air rentrant au niveau du lit de pellets ont été étudiés. Ceci est dû au fait que, dans le cas de la combustion de la biomasse (Glarborg, 2003), la formation des NOx est très contrôlée par la voie chimique « *fuel-NO* », c'est-à-dire qu'elle dépend de la quantité d'azote présente dans le combustible. Ce principe du contrôle de l'air au niveau du foyer de combustion a été appelé distribution de l'air du foyer », pour le différencier du principe d'étagement de l'air qui est appliqué à la zone de flamme et de post-combustion.

La chaudière commerciale utilisée pour la thèse a donc été modifiée pour pouvoir contrôler l'air qui rentre dans la chambre de combustion. Celle-ci a 3 lignes d'orifices à différents niveaux comme présenté sur la Figure 2-19.

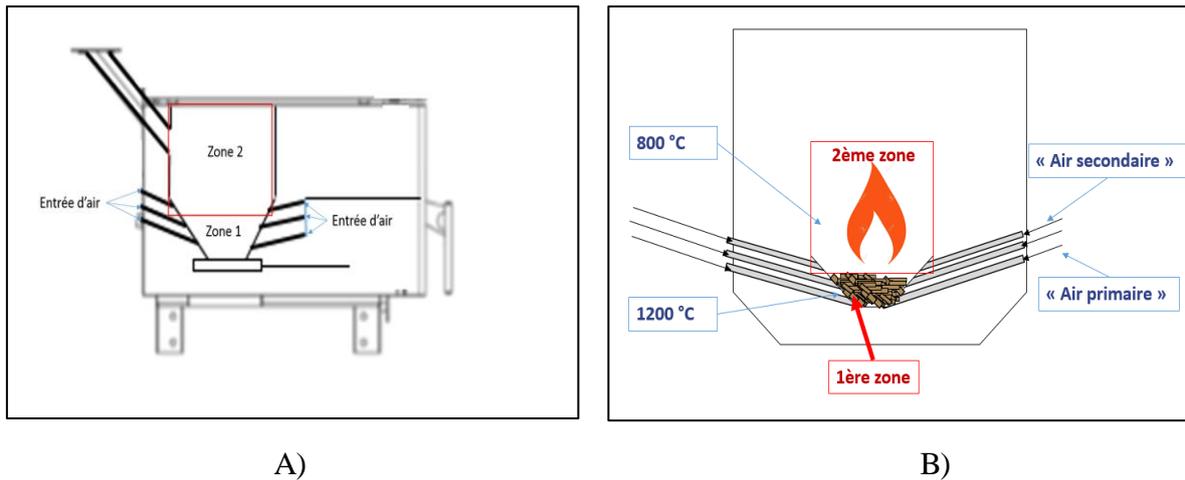


Figure 2-19. A) Schéma de l'injection de l'air au niveau du foyer de combustion (vue de coté). B) Schéma de l'injection de l'air au niveau du foyer de combustion (vue de face).

Tel que mentionné précédemment, les débits passant dans les orifices (petits, moyens et grands) ont été mesurés en fonction de la perte de charge générée. Trois cols soniques différents ont été nécessaires pour contrôler le débit d'air qui passe par chaque ligne d'orifices. Ils ont été dimensionnés pour pouvoir laisser passer un flux d'air maximum de $8 \text{ g}\cdot\text{s}^{-1}$ chacun. Ainsi, il est possible d'injecter l'air stœchiométrique nécessaire pour une alimentation correspondant à 100% de la puissance nominale. Ces trois lignes d'injection munies de cols soniques sont présentées sur la Figure 2-20.

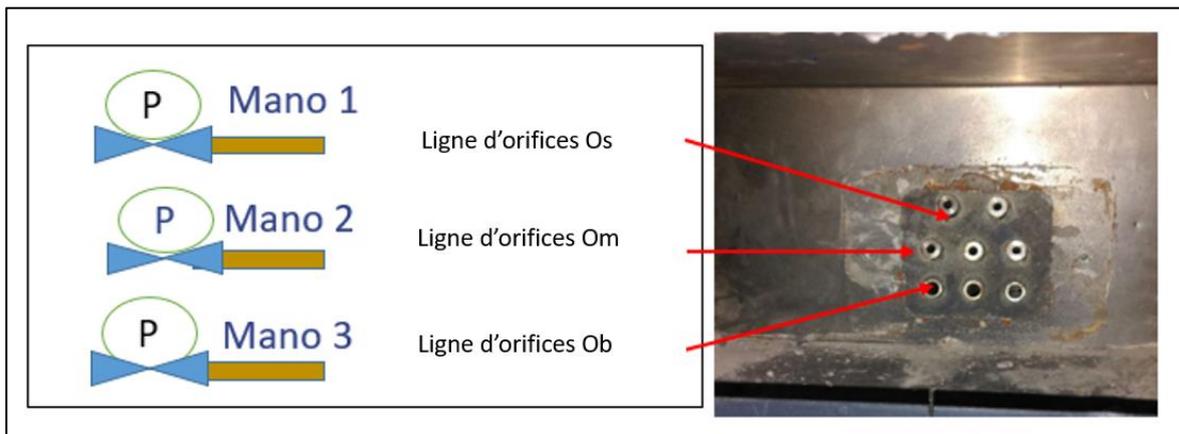


Figure 2-20. Utilisation de trois lignes d'injection de l'air au niveau du foyer de combustion.

Les cols soniques ont été calibrés à l'aide d'un compteur massique d'air, la Figure 2-21 présente 3 courbes d'étalonnages qui représentent les débits massiques en fonction de la

pression amont. Avec ces trois lignes d'injection, il est possible de faire varier et de contrôler les entrées d'air au niveau du foyer et de voir les effets sur les émissions polluantes.

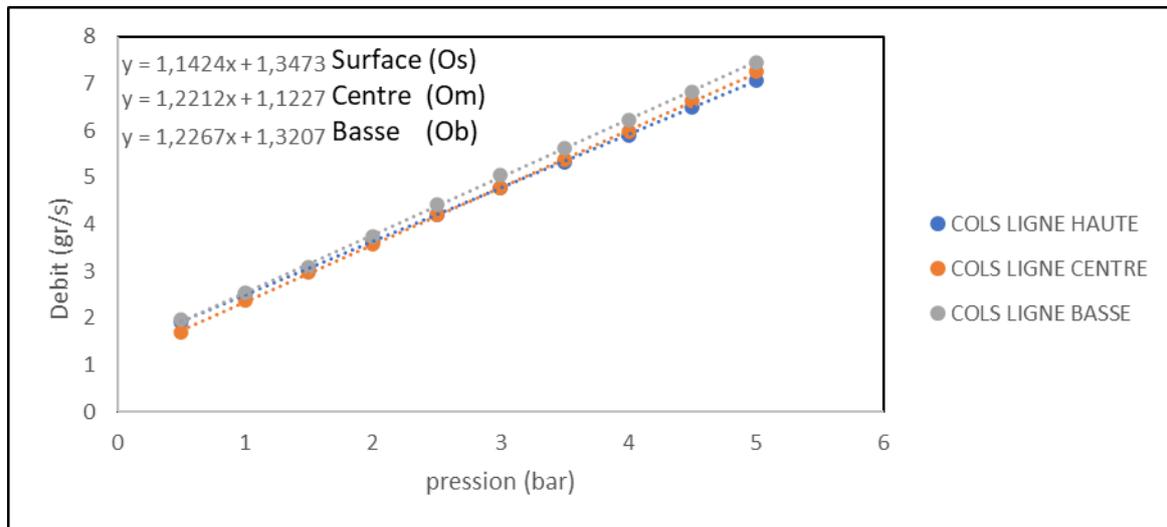


Figure 2-21. Courbes d'étalonnage des trois cols soniques

Après l'installation du système d'alimentation d'air par les cols soniques, il était important de démontrer qu'on a obtenu un fonctionnement similaire de la chaudière à celui qui existait avant le contrôle du débit d'air entrant dans le lit de combustible. C'est pourquoi, avant d'installer ce dispositif de contrôle du débit d'air, des expériences ont été réalisées pour deux types d'alimentation des pellets (pulsé et continu). Ces mesures ont été effectuées à 80% de la puissance nominale de la chaudière. Un résumé des mesures de température obtenues pendant le fonctionnement de la chaudière peut être vu dans le tableau ci-dessous. Les mesures de température faites avant et après les modifications avec les cols soniques montrent qu'il existe peu de variation dans les conditions de fonctionnement de la chaudière. Ce qui veut dire que les modifications réalisées ne perturbent pas la chaudière thermiquement.

Expérience	Entrée d'eau froide	Sortie d'eau froide	Entrée d'eau chaude	Sortie d'eau chaude	Sortie Chaudière	Entrée Chaudière	Température de fumées	Température ambiante
Unité	(°C)	(°C)	(°C)	(°C)	(°C)	(°C)	(°C)	(°C)
Alimentation continue avec cols soniques	15	34	61	20	61	54	145	15
Alimentation continue sans col sonique	16	31	62	20	62	54	149	21

Tableau 2-7. Résumé des températures obtenues avant et après modifications de l'alimentation en air du foyer pour deux types d'alimentation à 80% de la puissance nominale de la chaudière.

2.5.4. Adaptation de la chaudière à deux modes d'alimentation

Etant donné que des pics d'émissions du CO ont été observés, il a été décidé d'étudier l'influence de l'alimentation en pellets sur ces pics. En effet, on peut supposer que le mode d'alimentation peut affecter la génération des pics de CO. A l'origine, le fabricant a prévu un mode d'alimentation des pellets en discontinu. Les granulés sont chargés dans le foyer grâce à une vis sans fin qui fonctionne de manière cyclique (mode pulsé). L'alimentation pulsée est réalisée par cycles de 10 secondes. Cependant, la vis sans fin ne fonctionne que sur une partie du cycle. Par exemple, si la chaudière travaille à 80% de la puissance nominale, la vis sans fin fonctionne 8 secondes et s'arrête pendant 2 secondes. En revanche, à la puissance nominale, la vis tourne en continu.

Pour avoir une alimentation en continu si la puissance demandée est inférieure à la puissance nominale, le fonctionnement de la vis sans fin a été changé. Un potentiomètre a été ajouté au moteur d'entraînement de la vis sans fin pour contrôler la vitesse de rotation. Ainsi, désormais, pour réguler la puissance de la chaudière il faut travailler avec des pourcentages de vitesse rotation. C'est à dire, 80% de la puissance sera fournie avec 80% de la vitesse de rotation de la vis sans fin. La Figure 2-22 montre le fonctionnement de la vis sans fin pour les deux régimes (continu et pulsé) dans le cas d'une puissance de 80%.

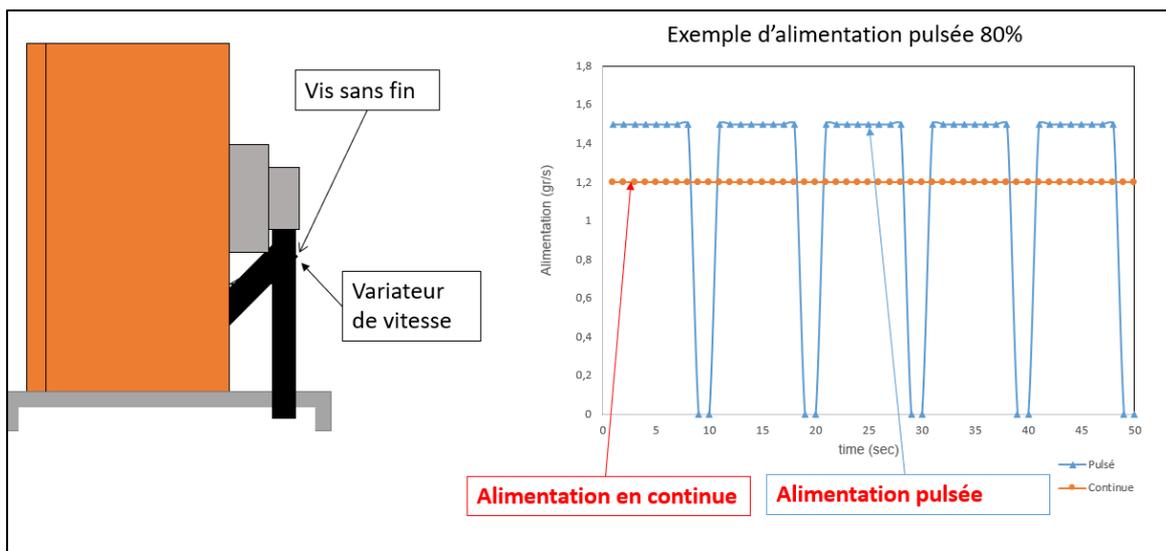


Figure 2-22. a) Installation du variateur de vitesse sur le moteur de la vis sans fin. b) Alimentation en pellets pour les deux régimes pulsé et continu à 80% de la puissance nominale

Par ailleurs, il a fallu étalonner la vis sans fin pour connaître la consommation des pellets à chaque puissance choisie. Cet étalonnage peut être observé sur la Figure 2-23. On constate que l'alimentation a une marge de précision qui pourrait avoir une légère influence sur les émissions, cependant le niveau de confiance pour des valeurs de régulation est d'approximativement 95%.

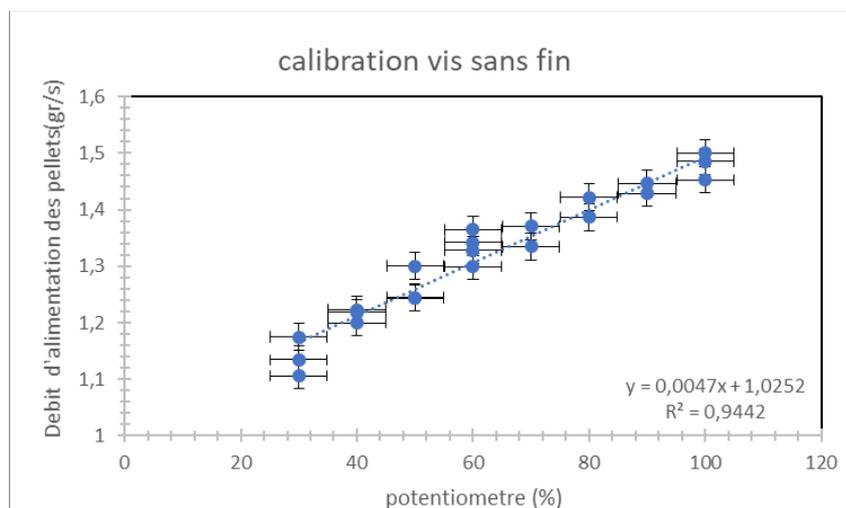


Figure 2-23. Courbe de calibration du débit massique de la vis sans fin. La formule d'interpolation linéaire est valable entre 30-100 % du potentiomètre.

2.6.Conclusions

Au cours de ce travail de thèse, le temps investi dans l'adaptation et la conception de l'équipement qui a été utilisé pour les études a été important. Malgré une conception et une construction de l'installation expérimentale très chronophage réalisée lors de la première année de thèse, c'est grâce aux efforts effectués pour la réalisation de ces ajustements que l'analyse des émissions a pu être réalisée avec précision. Les modifications apportées à la chaudière ont permis l'adaptation des équipements à partir desquels une répétabilité et une performance satisfaisante de la chaudière ont pu être obtenues. L'alimentation par des cols soniques permettant d'alimenter le foyer avec un débit précis s'est avérée sans impact sur le fonctionnement original de la chaudière. Enfin, la modification apportée au mode d'alimentation a permis d'assurer la fiabilité des valeurs mesurées et régulées.

Les étalonnages effectués sur les équipements de mesure ont également été réalisés soigneusement afin d'adapter les mesures à ce travail qui concerne la combustion de la biomasse. Comme évoqué, la plupart des équipements de mesure des polluants sur le marché aujourd'hui visent certaines utilisations conventionnelles telles que celle sur les moteurs automobiles. En effet, l'exemple du PPS a montré que la valeur de K obtenue auprès du fabricant ne s'appliquait pas au cas des aérosols produits lors de la combustion de la biomasse. Un montage particulier a été réalisé pour permettre la détermination de la masse volumique effective.

Chapitre 3: Caractérisation des émissions produites par la chaudière fonctionnant au bois

Dans ce chapitre, l'ensemble des résultats obtenus à partir de la combustion des pellets de bois seront présentés et analysés. Pour étudier l'influence de certains paramètres de la chaudière sur les émissions polluantes, un fonctionnement de référence (nominal) a été défini. Il correspond à une puissance de 20 kW. Avec une alimentation en pellet pulsée à 80% (l'alimentation a été effectuée sur 8s pour un cycle de 10s). Cela correspond aux fonctionnements de la chaudière pour une puissance de 80% de la puissance maximale (26kW). Les émissions en CO, NO_x et PM sont étudiées pour des expériences réalisées avec des variations de la distribution d'air dans le lit de granulé et en fonction du mode d'alimentation. La masse volumique effective des particules issues de la combustion du bois est également analysée. Enfin, l'observation des clichés des particules prélevées dans les fumées permettra de compléter les informations quant à la nature de ces aérosols.

Certaines analyses présentées dans ce chapitre ont été réalisées avec des outils statistiques spécifiques afin de mieux comprendre l'influence de certains paramètres.

3.1. Analyse du fonctionnement nominal de la chaudière

Dans cette première partie, nous allons étudier les performances nominales de la chaudière utilisée.

Remarque importante : Les normes européennes sont bien définies concernant les essais des appareils résidentiels à combustibles solides (EN 12809:2002, EN 13240:2001, EN 13229:2001, EN 14785:2006). Elles exigent l'utilisation de cycles de combustion prédéfinis et bien contrôlés. La différence de comportement des appareils entre un usage bien contrôlé et une utilisation réelle est significative, en particulier dans les appareils fonctionnant avec des bûches où le processus de combustion présente une grande variabilité tout au long des principales phases (séchage, pyrolyse/gazéification, combustion).

La chaudière utilisée pour la mise en œuvre des expériences présentées ci-dessous suit la norme EN 303-5:2012 qui décrit la performance et construction des chaudières spéciales pour

combustibles solides, à chargement manuel et automatique. Cependant, dans le cadre de ce travail, le cycle normalisé Européen n'a pas été suivi et le fonctionnement présenté ci-dessous correspond à un fonctionnement à pleine puissance.

Pour rappel, tel que mentionné dans le chapitre précédent, les mesures commencent après la stabilisation thermique de la chaudière, c'est-à-dire après 30min. Les prélèvements ont ensuite été réalisés à la sortie des fumées de la chaudière pendant 30 min.

Le système expérimental utilisé décrit dans le chapitre 2 est présenté à nouveau dans la Figure 3-1 ci-dessous. Les numéros utilisés pour les thermocouples dans la figure seront les mêmes numéros utilisés ensuite pour réaliser les analyses.

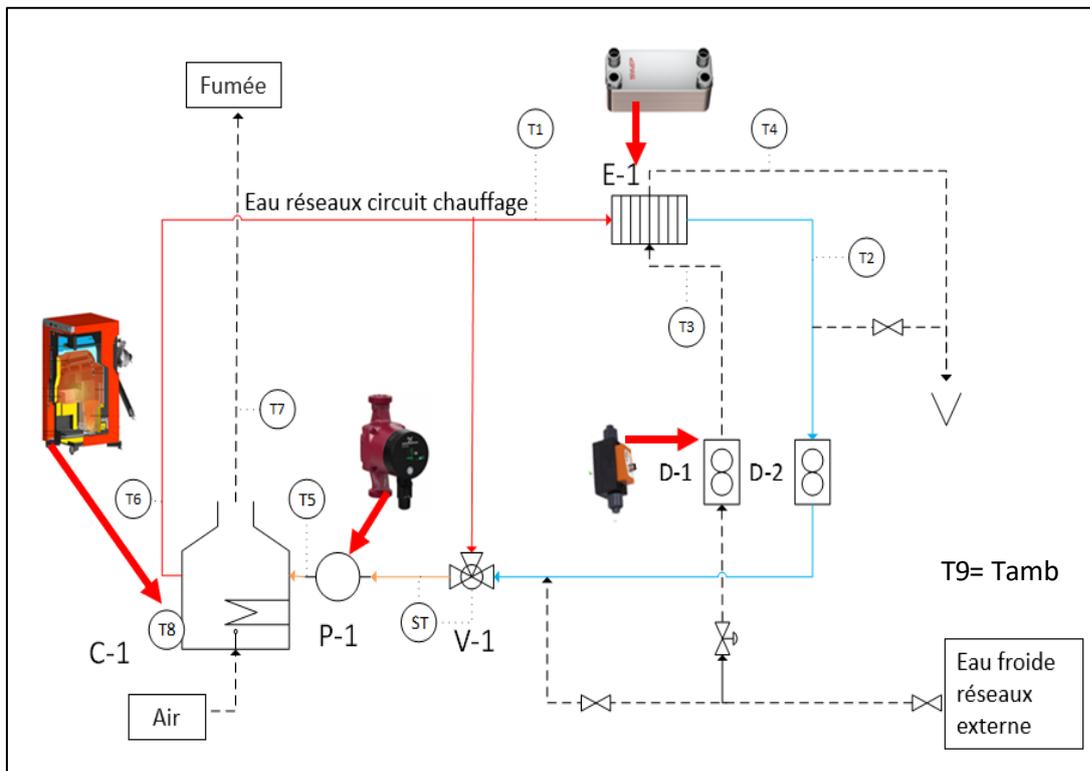


Figure 3-1. Système utilisé pour les expériences de la combustion de bois dans une chaudière domestique.

Pour la première analyse statistique réalisée dans cette série d'expériences, des essais ont été effectués sur 8 jours différents dans les mêmes conditions de fonctionnement (soit 8 tests différents). Les valeurs de température ont été prises pour l'ensemble du système et les échantillons de fumées ont été prélevés pour mesurer la concentration de gaz à la sortie de la chaudière. Les particules ont également été échantillonnées en utilisant un FPS (page 67), la

dilution étant de 20:1 pour les appareils PPS et TEOM et 50:1 pour le SMPS sur les 8 jours d'expériences. La tête du FPS a été chauffée à 200 °C pour éviter la condensation et le TESTO a été placé directement à la sortie de fumés.

Cette série de tests permettra d'assurer la répétabilité du fonctionnement du système. Il convient également de mentionner que la chaudière a été nettoyée après chaque série importante de manipulations, c'est-à-dire tous les 10 à 15 tests, pour éliminer le calcaire et les cendres qui peuvent avoir un effet thermique significatif sur le système d'échangeur de chaleur de la chaudière.

Les données obtenues ont été analysées statistiquement en calculant les moyennes et les écarts types, les valeurs obtenues sont visibles sur la Figure 3-2 a). Ainsi les écarts types sont représentés par les barres d'erreur dans la Figure 3-2 a). L'on remarque que les valeurs affichées sont faibles, les variations pendant les 8 jours sont donc négligeables. Le système peut être considéré stable au niveau thermique, et la combustion est bien répétable.

Dans la Figure 3-2 b) les moyennes et les écarts types pour les concentrations en gaz à la sortie fumée de la chaudière sont présentés. Les résultats sont représentés à 13% afin de pouvoir se comparer avec les auteurs qui utilisent cette valeur de O_{2ref} . La correction a été réalisée à l'aide de l'équation suivante :

$$C_{\text{corrigé}} = C_{\text{mesuré}} \frac{(20,9 - O_{2\text{ref}})}{(20,9 - O_{2\text{mesuré}})} \quad \text{Équation 3-1}$$

Si on veut comparer avec la norme antérieurement citée NF EN 303-5 il faut corriger les valeurs obtenues pour 10% d'oxygène. Pour le monoxyde de carbone nous avons obtenues 61 mg/m³ à 10% d'O₂, ce qui est inférieur à la valeur limite donnée par la norme de 500 mg/m³ à 10% d'O₂. Par contre, pour les NO_x, la valeur trouvée c'est 300 mg/m³ à 10% d'O₂, qui est une valeur supérieure à celle donnée par la norme de 200 mg/m³ à 10% d'O₂.

Sur la figure 3-2b les écarts types sont plus importants, en particulier pour le CO. En effet, la nature très intermittente des émissions de CO dans ce type de processus a déjà été observée avec des écarts types du même ordre de grandeur que la moyenne (Lamberg, Sippula, Tissari, & Jokiniemi, 2011), (Ozgen, et al., 2014). Dans notre cas, tel que mis en évidence sur la Figure 3-2. b), les écarts types de CO sont importants et peuvent varier entre 30% et 50% de la valeur moyenne.

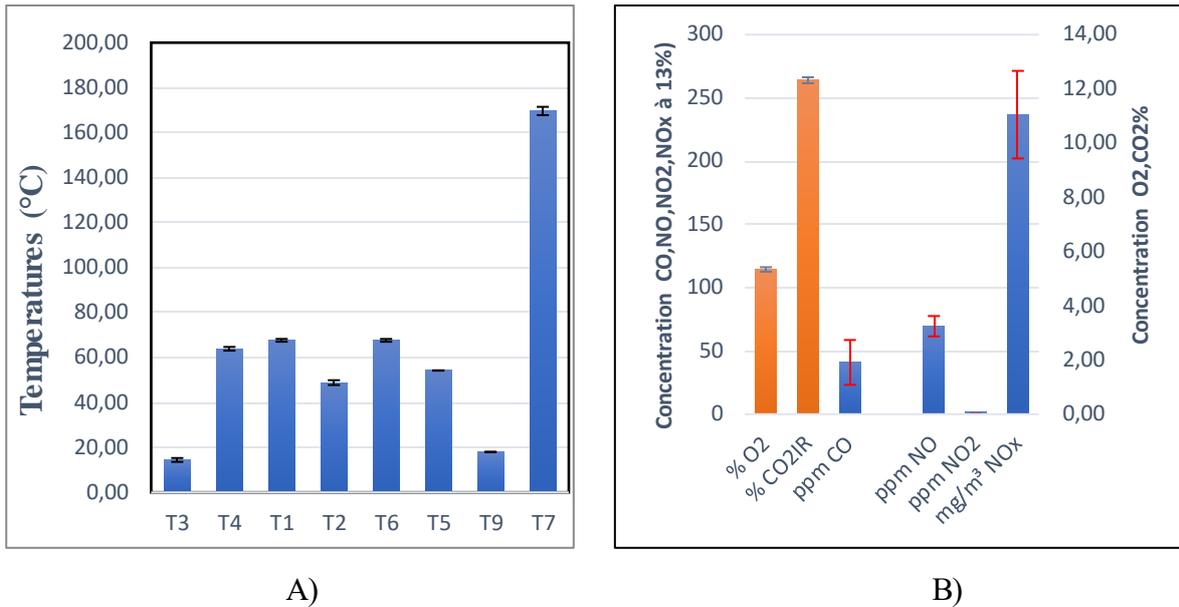


Figure 3-2. A) Moyenne des températures dans le système de récupération de la chaleur et les fumées, pour 8 tests B) Moyenne des concentrations des émissions gaz pour les mêmes tests (CO, NO, NO₂, NO_x corrigés à 13% de O₂).

Dans la suite du manuscrit et dans un effort de synthèse, les résultats des concentrations CO et NO_x seront directement corrigées à 13% (les résultats de concentration pour le O₂ ne seront pas présentés). Comme il a été dit précédemment, les résultats sont représentés à 13% afin de pouvoir se comparer avec beaucoup d'autres auteurs qui utilisent cette valeur de O_{2ref}.

Pour le cas des particules, les concentrations pour 8 essais sont présentées sur la Figure 3-3 A). Comme observé, les écarts types peuvent varier entre 25% et 30% au cours d'un essai. On peut voir que la concentration des particules est assez stable sur les 8 jours avec une moyenne de 22 mg/m³. La Figure 3-3 B) quant à elle présente la distribution du diamètre des particules mesurée avec le SMPS. En raison d'un problème technique de l'équipement, uniquement 3 tests ont pu être effectués. Les résultats montrent qu'il n'y a pas de variations significatives entre les formes des distributions ainsi que dans le nombre maximum de particules. La distribution des diamètres ressemble à une log-normale avec un mode à 60 nm environ.

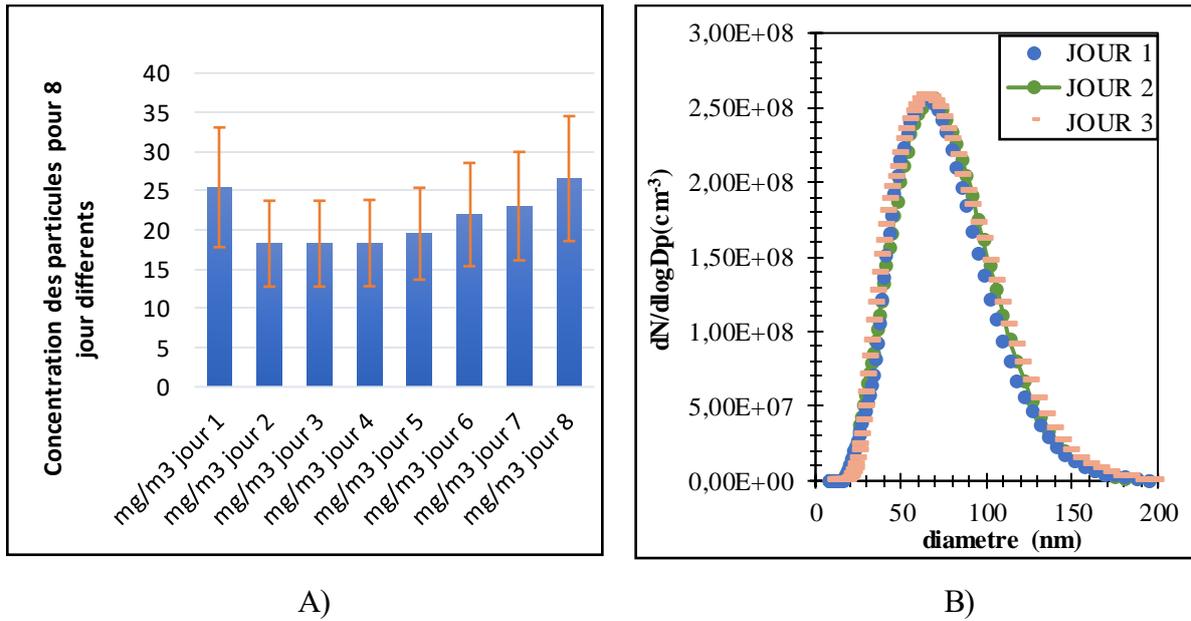


Figure 3-3. A) Moyenne et écart type des concentrations en particules mesurées avec le PPS pour 8 essais. B) Distribution des diamètres des particules pour 3 essais différents et mesurées avec le SMPS.

Les particules éjectées dans les fumées sont donc ultrafines, et la majorité ont un diamètre de mobilité inférieur à 100nm (mode à 60nm). Ceci est en accord avec les résultats de Bowman (Boman, Pettersson, Westerholm, Boström, & Nordin, 2011) obtenus avec un poêle à pellets, de Gaegauf (Gaegauf, Wieser, & Macquat, 2001) et (Bejaoui, Creyx, Delacourt, Morin, & Therssen, 2019), avec une chaudière à pellet, mais aussi de (Oser, Nussbaumer, Schweizer, Mohr, & Figi, Influences on aerosol formation in an automatic wood furnace., 2001) avec du bois déchiqueté (« *wood ship* »). Bowman montre également que ces particules contiennent majoritairement des sels inorganiques. Ce point sera développé lorsque des images de particules prises au microscope électronique seront étudiées.

Sur la Figure 3-4, les résultats obtenus avec l'ELPI sont présentés et montrent que le mode de la distribution est de l'ordre de 103 nm, en accord avec les résultats de Lamberg, (Lamberg, Sippula, Tissari, & Jokiniemi, 2011). Les diamètres aérodynamiques sont donc légèrement plus élevés que les diamètres de mobilité obtenus avec le SPMS (Figure 3-3). Ceci s'explique par le fait que le diamètre aérodynamique est obtenu par une masse volumique effective $\rho_0 = 1 \text{ g/cm}^3$ alors que la mesure du SMPS prend en compte la mobilité électrique des particules. Cette valeur plus élevée du diamètre aérodynamique indiquerait que nos particules ont une masse volumique effective plus élevée que 1 g/cm^3 .

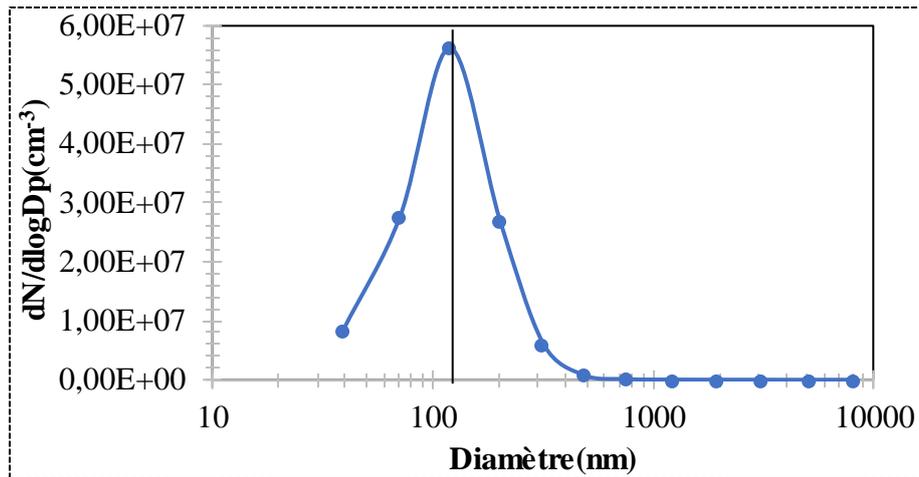


Figure 3-4. Distribution du diamètre des particules mesurée avec le ELPI pour un fonctionnement à 100% de la puissance (26kW).

On peut toutefois remarquer que cette différence peut être plus importante, comme le montrent les résultats de Krugly (Krugly, et al., 2014) et Johansson (Johansson, Tullin, Leckner, & Sjövall, 2003). Les modes des distributions fournies par l'ELPI dans ces travaux sont de l'ordre de 200nm (Krugly, et al., 2014) dans le premier cas et de 120nm (Johansson, Tullin, Leckner, & Sjövall, 2003) dans le deuxième.

Il est important, pour faire des comparaisons avec d'autres auteurs, de convertir les valeurs de concentration en facteur d'émission, c'est-à-dire en rapportant les quantités étudiées à l'énergie apportée par le combustible, ce qui peut faciliter l'analyse. L'équation 3-2 sert à convertir les valeurs des concentrations massiques en facteurs d'émissions.

$$E_i = C_i * \frac{V_{FG}}{PCI} \quad \text{Équation 3-2}$$

Avec :

C_i = concentration du polluant (mg/m³)

V_{FG} = Debit des fumées (m³/kg combustible), tel que calculé dans l'annexe B.

PCI = pouvoir calorifique inférieur du combustible (MJ/kg)

La Figure 3-5 montre les moyennes des facteurs d'émission pour les 8 essais ; pour les émissions de CO, NOx et particules.

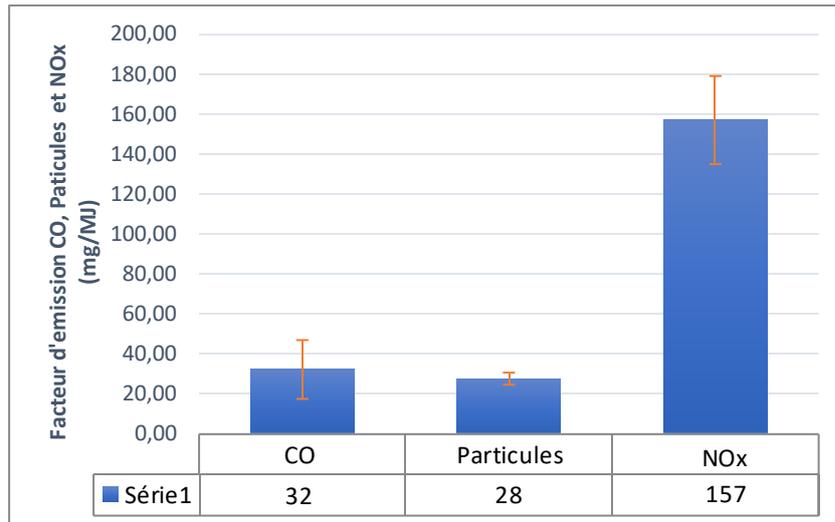


Figure 3-5. Moyenne des facteurs d'émissions sur 8 essais pour le CO, particules et NOx.

On peut observer que les émissions polluantes de la chaudière sont répétables et que son fonctionnement est assez stable. Les émissions du système sont comparables à celles trouvées dans d'autres études effectuées pour un poêle à pellets (Boman, Pettersson, Westerholm, Boström, & Nordin, 2011) et pour des chaudières (Myat et al. 2014, Ozgen et al. 2014, Lamberg et al. 2012). Les valeurs obtenues sont reportées dans le Tableau 3-1, ainsi que celles données par d'autres études avec des granulés de bois.

A noter que les valeurs de Boman correspondent à un fonctionnement à la puissance nominale (5kW). Lorsque la charge en combustible diminue, Boman note qu'à la fois le CO et les PM augmentent fortement, les NOx variant peu. D'autre part Krugly annonce un écart type de l'ordre de 20 mg/MJ pour 81 mg/MJ de moyenne pour les NOx et 102 mg/MJ pour une moyenne de 75 mg/MJ pour le CO, ce qui témoigne d'une grande variabilité des résultats de mesures, comme cela a été également observé dans cette étude.

	Martinez	Krugly*	Boman	Win	Ozgen**	Lamberg*
Système	pellet boiler	pellet boiler (13 kW)	Pellet stove (5 kW)	pellet boiler (22 kW)	pellet boiler (25 kW)	pellet boiler (25 kW)
CO (mg/MJ)	32	75	130	15	350	79
NOx (mg/ MJ)	157	81	57	62	71	49
Particules (mg/ MJ)	28	19	16	0,5	61	20
Technologie de mesures des particules	PPS	PM _{TOT} (Dépôt sur filtre quartz)	PM _{TOT} (Dépôt sur filtre verre)	PM _{2.5} (ELPI)	PM _{TOT} (Dépôt sur filtre quartz)	PM _{1.0} (Dépôt sur filtre quartz)
*Valeurs données en g/kg reconverties en mg/MJ avec $H_{\text{comb, pellet bois}} = 17,64 \text{ MJ/kg}$						
** Attention, appareil muni d'une sonde à oxygène lambda						

Tableau 3-1. Résumé des facteurs d'émissions trouvés dans la littérature pour les installations à pellets de bois.

3.2. Influence de la distribution d'air au niveau du lit de pellets

Dans ce sous-chapitre, l'influence de la distribution de l'air dans le lit de granulés de bois sera étudiée. Comme on peut le voir dans plusieurs publications telles que (Liu, Chaney, Li, & Sun, 2013), (Carroll, Finnan, Biedermann, Brunner, & Obernberger, 2015), (Houshfar, et al., 2012) et (Salzmann & Nussbaumer, 2001), il est courant d'utiliser une stratégie de l'étagement d'air pour la réduction des émissions de NOx. Cette stratégie fonctionne bien car la production de NOx par la biomasse est principalement due aux réactions de l'azote contenu dans la biomasse comme vu dans le chapitre 1.

Dans les travaux cités précédemment, l'étagement d'air est réalisé en faisant varier les débits d'air dans le lit de combustible par rapport à une entrée d'air secondaire qui est située dans la zone de flamme. Le travail présenté ici s'est concentré sur l'étude de la distribution d'air au niveau du foyer de combustion, à différentes hauteurs dans le lit de granulés. Comme étudié par plusieurs auteurs, (Serrano, Portero, & Monedero, 2013), (Lamberg, Sippula, Tissari, & Jokiniemi, 2011), (Oser, Nussbaumer, Schweizer, Mohr, & Figi, Influences on aerosol formation in an automatic wood furnace., 2001) et (Purvis, Tadulan, & Tariq, 2000), la

distribution d'air au travers du lit de combustible va avoir des effets sur l'oxydation des chars et la dévolatilisation de la matière et donc elle influence la production des émissions de polluants. Cette étude se concentrera donc sur l'effet de la distribution d'air dans le lit de combustible sur les émissions de CO, NO_x et des particules.

Le foyer de combustion comporte 3 lignes d'orifices (Figure 2-20): ceux situés dans les parties basse et centrale de la chambre (appelés Ob et Om) et qui injectent de l'air directement dans le lit de combustible, et ceux de la partie supérieure (appelés Os) qui sont juste en haut du lit de granulés (voir Figure 3-6).

Il est important de noter que, pour tous les résultats concernant l'influence de la distribution de l'air dans le lit de granulés, le débit massique de combustible et la puissance ont été fixées aux valeurs nominales, c'est-à-dire 1.5 g/s et 26 kW.

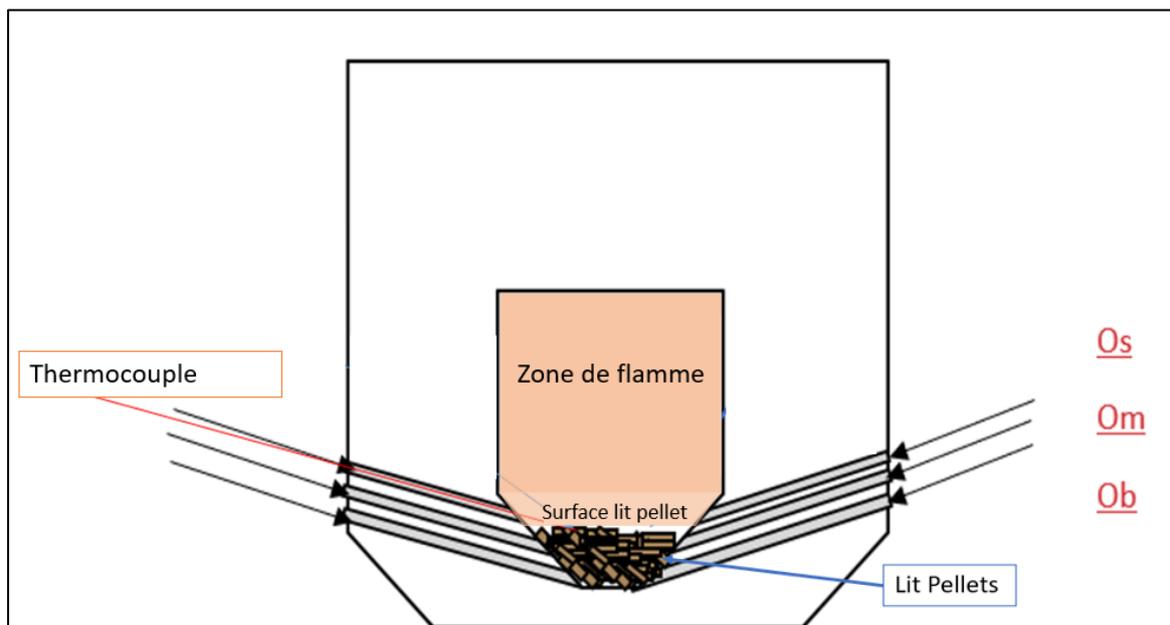


Figure 3-6. Schémas de position du thermocouple au-dessus du lit de granulés et des entrées d'air dans le lit de granulés.

3.2.1. Analyse factorielle de Pareto pour la distribution d'air au niveau du lit de granulés

Etant donné les 3 variables principales sur la distribution d'air dans le foyer (Os, Om et Ob), l'étude séparée de l'effet de chaque ligne d'orifice devient complexe. L'utilisation d'outils statistiques appropriés pour étudier l'effet de la distribution d'air au travers de ces orifices est intéressante et permet de mieux comprendre les émissions observées pour les différentes conditions d'expériences. Pour cela, il a été décidé d'utiliser des « plans factoriels », un outil statistique permettant une diminution considérable du nombre d'essais nécessaires afin de réaliser une interprétation rapide et représentative des phénomènes étudiés. Ils fournissent des résultats qualitatifs faciles à présenter à des non-spécialistes et offrent la possibilité d'étudier un très grand nombre de facteurs, de détecter des interactions éventuelles, ainsi que la réalisation d'une modélisation et d'une prédiction aisées des résultats avec une bonne précision (Hinkelmann, 2012).

Pour l'étude de l'influence du débit d'air passant par les orifices (Os, Om, Ob) il a été décidé d'utiliser un design de 3^3 . Cela veut dire, un design factoriel de 3 niveaux et 3 facteurs. Les niveaux sont les valeurs possibles que peut prendre la variable contrôlée (valeur du débit d'air qui passe par Os, Om et Ob). Les facteurs quant à eux sont les variables à modifier (débit d'air Os, débit d'air Om et débit d'air Ob). Ce plan factoriel considère donc 3 facteurs avec trois niveaux chacun et est composé de 3^3 traitements (nombre d'essais=27). Logiquement, les modèles 3^k représentent un challenge additionnel comparé à un design expérimental 2^k (2 niveaux, k facteurs) lorsqu'ils sont appliqués. Par exemple, lorsque quatre facteurs doivent être étudiés et qu'une seule réplication est envisagée, une réplication étant le nombre de fois qu'une expérience doit être refaite dans les mêmes conditions), le plan 3^4 nécessite un total de 81 tests, un pour chaque traitement, alors que le plan 2^4 ne nécessite que 16 tests. Ainsi, lorsqu'il existe de nombreux facteurs, quatre ou plus, il est pratiquement prohibitif d'envisager un plan factoriel de 3^k . Cependant, lorsque le nombre de facteurs est faible, trois au maximum, le plan factoriel 3^k est une bonne alternative.

L'étude a été réalisée pour les 3 principaux paramètres de réponse NOx, CO et PM (corrigées à 13% d'oxygène). Les variables d'entrée utilisées pour l'étude, c'est-à-dire les variables qui seront modifiées (facteurs) au cours des expériences, sont les débits d'air passant à travers chaque ligne d'orifices, c'est-à-dire Os, Om et Ob. La sélection des niveaux discrets

utilisés (les trois) valeurs que prendra la consigne de débit d'air a été réalisée arbitrairement mais en tenant compte des valeurs stœchiométriques de la combustion. Les valeurs choisies pour chaque facteur sont présentées dans le Tableau 3-2.

Facteurs	Debit _{min}	Debit _{max}
O _b	2,6g/s	5,0 g/s
O _m	2,3 g/s	4,8 g/s
O _s	3,6 g/s	4,8 g/s

Tableau 3-2. Niveaux choisis pour chaque facteur (débit d'air par type d'orifice). Le niveau central est la valeur entre le Debit_{min} et le Debit_{max}

En raison du manque de connaissance du comportement du système, cette étude n'a pas permis de conclure sur chaque facteur analysé. Cependant, elle donnera de façon qualitative une idée claire de l'influence des entrées d'air dans le système sur les émissions polluantes. Les résultats de l'application de la méthode de plan factoriel sont reportés sur la Figure 3-7, déterminée par l'analyse ANOVA (Analyse de variance). Le détail de l'analyse de la variance ne sera pas abordé dans cette thèse, seule l'analyse du diagramme de Pareto sera utilisée pour analyser rapidement l'influence de chaque orifice.

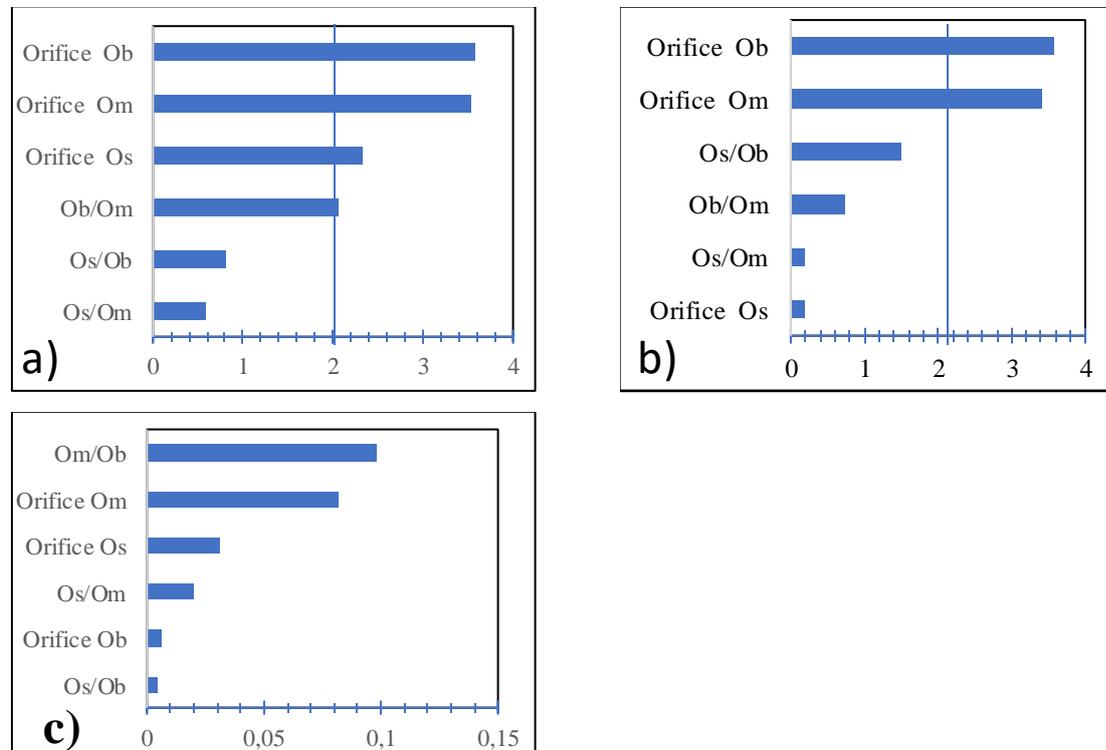


Figure 3-7. a) Influence de la distribution de l'air sur la concentration de CO b) Influence de la distribution de l'air sur le NOx c) Influence de la distribution de l'air sur les particules.

Chaque barre mesure l'influence du paramètre dans les émissions polluantes. Ainsi, plus grande est la barre, plus d'impact a le paramètre. La ligne verticale bleu sur chacun des graphiques indique quant à elle la valeur critique pour une distribution T de Student avec une erreur de 17 degrés de liberté et $\alpha = 0,05$, $t_{\alpha/2,v} = 2,1098156$. Les paramètres qui dépassent cette limite ont une influence significative.

La Figure 3-7 a) montre l'influence de la distribution de l'air sur les concentrations de CO dans les fumées. On observe quelle est l'influence des trois lignes d'orifices Ob, Om et Os. Les orifices Om (centre) et Ob (bas) ont un impact plus significatif que les orifices Os (qui restent significatif). Ceci est en accord avec les observations de Gomez (Gómez, Porteiro, de la Cuesta, Patiño, & Míguez, 2016), qui montrent que le CO est principalement formé dans le lit de granulés par la combustion du char et dans une moindre mesure par la combustion homogène dans la flamme. La concentration de char comme il a été observé par (Gómez, Porteiro, de la Cuesta, Patiño, & Míguez, 2016) augmente au fur et à mesure que l'on descend dans le lit de combustible. Le comportement observé de ces 3 variables montre que les deux lignes d'orifices dans la partie inférieure du lit ont une influence considérable sur la combustion hétérogène et donc sur les émissions de CO. L'effet de la ligne Os à la surface n'est pas négligeable mais vu sa position par rapport au lit, son influence ne peut être importante que sur la combustion homogène dans la flamme.

Sur la Figure 3-7 b) il peut être constaté que les lignes qui ont une influence notable sur la production de NOx sont aussi Om et Ob. La ligne du haut a une faible influence, cela peut être dû au fait que cette ligne est au-dessus du lit de granulés. Etant donné que l'air d'Os n'entre pas directement dans le lit, cette injection d'air n'agirait pas sur la combustion hétérogène. Comme mentionné dans le chapitre 1, la formation la plus importante de NOx est due aux réactions de l'azote présent dans le combustible (« NOx-fuel »), c'est-à-dire aux réactions à proximité du combustible (Glarborg, 2003), ce qui pourrait expliquer l'influence forte des lignes d'orifice Ob et Om.

Enfin l'influence de chaque ligne d'injection d'air sur les émissions de particules est visible dans la Figure 3-7 c). Aucun des paramètres n'a un impact notable sur la production des particules. Cela pourrait être dû au fait que la production de particules est liée à la température des granulés de biomasse. Il a été montré (Bowman, Carroll) que les particules émises sont principalement des cendres, formées de sels d'alcalins. Leur formation résulte donc principalement de la dévolatilisation des éléments alcalins et elle est ralentie si la température du

lit décroît. Dans cette étude, la température moyenne dans la chambre de combustion ne change pas lorsque la distribution du débit d'air varie dans les lignes d'orifice. Une autre possibilité envisagée est que le changement de concentration massique des particules n'est pas perceptible suite à une abondante rétention des plus grandes particules dans la chaudière en raison des chicanes à la sortie du foyer et sur les tubes de l'échangeur à eau. En d'autres termes, il pourrait y avoir une influence sur la concentration des particules, mais il n'est pas détectable dans les échantillons pris dans les fumées, étant donné que les particules les plus lourdes tombent dans un cendrier et ne sortent pas dans les fumées. Seul un bilan complet des particules de cendres volantes et fixes permettrait de répondre à cette question.

En conclusion, grâce à l'étude des plans factoriels, une première analyse de l'effet de la distribution d'air dans le foyer a pu être menée. Il semble que les lignes Om et Ob aient une influence sur la formation de CO et NOx. Ce résultat sera exploré de façon quantitative dans la suite du travail. Il convient d'être prudent car des valeurs ont été imposées aux variables d'entrée (débits d'air aux orifices) et il a été supposé que les variations des émissions sont faibles et monotones entre deux niveaux choisis pour les variables d'entrée. Il est également possible que le système se comporte différemment avec d'autres valeurs des débits d'air. Une étude plus approfondie de l'influence de chaque ligne d'orifices serait intéressante à mener.

3.2.2. Influence de la distribution d'air sur la concentration de CO

Cette section présente les résultats des mesures obtenues pour les concentrations de monoxyde de carbone en faisant varier les débits d'air dans les orifices Os, Ob, et Om. Dans le paragraphe précédent (analyse Pareto), il a été observé que les orifices Ob et Om auraient une influence équivalente sur les émissions de CO. Afin de limiter le nombre de conditions à tester, il a été choisi de faire varier uniquement deux débits à la fois.

Ainsi, pour une première étape, le débit des orifices Ob et Os ont été modifiés tout en gardant constant le débit dans les orifices Om à 3,58 g/s. Sur le Tableau 3-3 les valeurs du facteur d'air λ , en fonction du débit d'air massique à travers Os et Ob, axe-y et axe-x respectivement, est représentée. Le facteur d'air (λ) est calculée grâce à l'équation 2-4. On remarque que des valeurs inférieures à un (valeur stœchiométrique) sont obtenues, ceci expliqué par le fait que λ est calculé au niveau du foyer et non pas sur l'ensemble des entrées d'air de la chaudière.

Débit d'air Os (g/s)														Débit d'air Ob (g/s)
7,06	1,20	1,23	1,27	1,31	1,34	1,35	1,39	1,43	1,47	1,54	1,61	1,67	1,74	
5,92	1,08	1,10	1,14	1,18	1,21	1,22	1,27	1,31	1,35	1,41	1,48	1,55	1,62	
4,89	0,96	0,99	1,03	1,07	1,10	1,11	1,15	1,19	1,23	1,30	1,37	1,43	1,50	
4,77		0,98	1,02	1,06	1,08	1,10	1,14	1,18	1,22	1,29	1,35	1,42	1,49	
4,55		0,95	0,99	1,03	1,06	1,07	1,11	1,16	1,19	1,26	1,33	1,40	1,47	
4,20			0,95	0,99	1,02	1,04	1,08	1,12	1,16	1,22	1,29	1,36	1,43	
3,86				0,96	0,98	1,00	1,04	1,08	1,12	1,19	1,25	1,32	1,39	
3,63					0,96	0,97	1,01	1,05	1,09	1,16	1,23	1,30	1,36	
3,52						0,96	1,00	1,04	1,08	1,15	1,22	1,28	1,35	
3,18							0,96	1,00	1,04	1,11	1,18	1,25	1,31	
2,83								0,97	1,01	1,07	1,14	1,21	1,28	
2,49									0,97	1,04	1,10	1,17	1,24	
1,92										0,91	0,97	1,04	1,11	
-	1,32	1,57	1,93	2,30	2,55	2,67	3,04	3,41	3,77	4,39	5,00	5,61	6,23	Débit d'air Ob (g/s)

Tableau 3-3. Distribution du facteur d'air (λ_{orifice}) en fonction du débit d'air injecté en bas du lit (orifices Ob) et de l'air injecté en haut du lit (orifices Os) avec le débit de l'orifice central (O_m) fixé (Facteur d'air calculé à partir d'air rentrant le foyer de combustion).

Le Tableau 3-4 présente la concentration en CO obtenue pour certaines conditions présentées dans le Tableau 3-3. La ligne stœchiométrique dans le Tableau 3-4 correspond au débit total dans les trois lignes d'orifices égal à 9,09 g/s (rappel : le débit massique de combustible est fixé et vaut 1,5 g/s). La partie blanche dans le tableau correspond à la partie pour laquelle les mesures n'étaient pas possibles dues à de mauvaises conditions de fonctionnement, les émissions étaient trop hautes et la chaudière a cessé de fonctionner. Une légende colorée permet de voir les émissions de CO supérieures à 31 mg/m³ en orange, les émissions comprises entre 21 et 30 mg/m³ en jaune et les émissions entre 10 et 20 mg/m³ en vert. Afin de pouvoir comparer avec d'autres publications, il est nécessaire de corriger les mesures pour une concentration en oxygène spécifique. La correction de l'oxygène dépend de la norme utilisée, les deux concentrations les plus couramment utilisées étant de 13% et 11% d'oxygène. Dans cette étude la correction choisie a été obtenue en recalculant les concentrations avec un taux d'O₂ à 13% dans les fumées. Il est important de noter que les orifices O_m ont aussi une influence importante sur le lit de combustible, il faut donc en tenir compte lors de l'analyse de l'influence de la distribution de l'air. Pour rappel, dans le premier cas de figure étudiée (Tableau 3-4) le débit O_m était égal à 3,6 g/s.

Sur la Figure 3-8, la concentration moyenne en monoxyde de carbone obtenue pendant 30 minutes (après stabilisation de la chaudière) est représentées en fonction du facteur d'air total « λ_{Total} ». Sur cette figure, une diminution de la concentration en CO est observée quand λ_{Total} augmente. Les données présentent un coefficient de corrélation égal à -0,6857. Ces

résultats mettent en avant l'influence de la quantité totale d'air injectée dans le lit de granulés sur la diminution de la concentration en CO.

Debit d'air Os (g/s)															
7,06	x	x	x	x	17,43	x	x	x	x	x	x	x	x	x	31 mg/m ³
5,92	x	x	x	x	21,38	x	x	x	x	x	x	x	x	x	21-30 mg/m ³
4,89	45,83	x	x	x	22,45	x	16,57	x	20,54	x	13,39	x	10,06	10-20 mg/m ³	
4,77		x	x	x	11,80	x	x	x	x	x	x	x	x		
4,55		55,56	x	x	x	x	29,89	x	16,15	x	10,68	x	15,07		
4,2			36,82	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x		
3,86				31,16	x	x	20,23	x	30,54	x	18,23	x	8,19		
3,63					20,24	x	x	x	x	x	x	x	x		
3,52						21,50	18,48	x	37,12	x	20,65	x	x		
3,18							20,23	x	30,54	x	18,23	x	8,19		
2,83								24,88	x	x	x	x	x		
2,49									30,63	40,00	39,07	44,99	72,28		
1,92									159,70	x	x	779,55	x		
-	1,32	1,57	1,93	2,3	2,55	2,67	3,04	3,41	3,77	4,39	5	5,61	6,23	Debit d'air Ob (g/s)	

Tableau 3-4. Concentration de CO en ppm en fonction de l'air injecté en bas du lit (orifices Ob) (Valeurs corrigées de 13% d'O₂ dans les fumées). La valeur encerclée en bleu correspond au cas du fonctionnement de référence. Valeurs (fixes) du débit dans les orifices Om égale à 3,58 g/s et pour une alimentation de combustible de 1,5 g/s et une puissance de 21 kW.

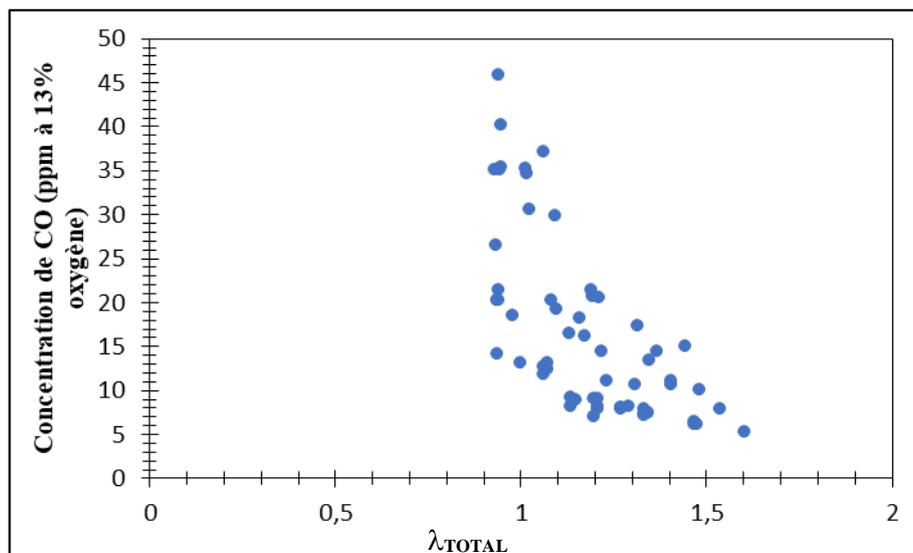


Figure 3-8. Concentration de CO en fonction de λ_{TOTAL} (air introduit par les 3 types d'orifices Os, Om et Ob), pour une alimentation de combustible de 1,5 g/s et une puissance de 21 kW (Facteur d'air estimé à partir de l'air rentrant le foyer de combustion).

Les résultats obtenus par l'analyse factorielle réalisée précédemment (chapitre 3.2.1.) ont montré qualitativement l'influence de chaque ligne d'orifices dans la production de monoxyde de carbone, les orifices Os à la surface du lit de granulés ayant l'effet le moins important. Le fait que les orifices Om et Ob soient les plus importants pour la production du monoxyde de carbone est en accord avec le principe que le CO est émis principalement à cause d'une

combustion incomplète dans la combustion de char (Collazo, Porteiro, Míguez, Granada, & Gómez, 2012). Selon (Porteiro, et al., 2009), qui a réalisé une modélisation pour une chaudière de même type que celle utilisée pour cette thèse, ils affirment que la forte concentration de CO dans les gaz qui quittent le lit est une conséquence des processus de dévolatilisation et d'oxydation du charbon. Ils montrent aussi que la concentration de char augmente au fur et à mesure que l'on descend dans le lit de combustible. Donc le CO généré par la combustion du charbon devrait être contrôlé par les orifices les plus bas du foyer, c'est-à-dire au niveau des orifices Om et Ob. (Porteiro, et al., 2009) mentionnent aussi une influence mineure de la combustion homogène dans la flamme sur la production de CO, ce qui a également été mis en évidence par l'analyse Pareto (Figure 3-7).

Il est donc important d'évaluer l'existence d'une relation plus précise entre les émissions du CO et l'air injectée à la surface.

Sur la Figure 3-9, la concentration de monoxyde de carbone est représentée en fonction de l'air introduit par les orifices de surface, pour différents débits Ob+Om fixés. Les données présentées sont également corrigées à 13% d'oxygène. Aucune tendance claire ne se dessine pour les 4 différents débits Ob+Om étudiés. Cependant, on s'aperçoit qu'il y a une légère décroissance du CO quand le débit des orifices Os augmente, ce qui est d'autant plus marqué lorsque le débit dans les orifices Ob est faible.

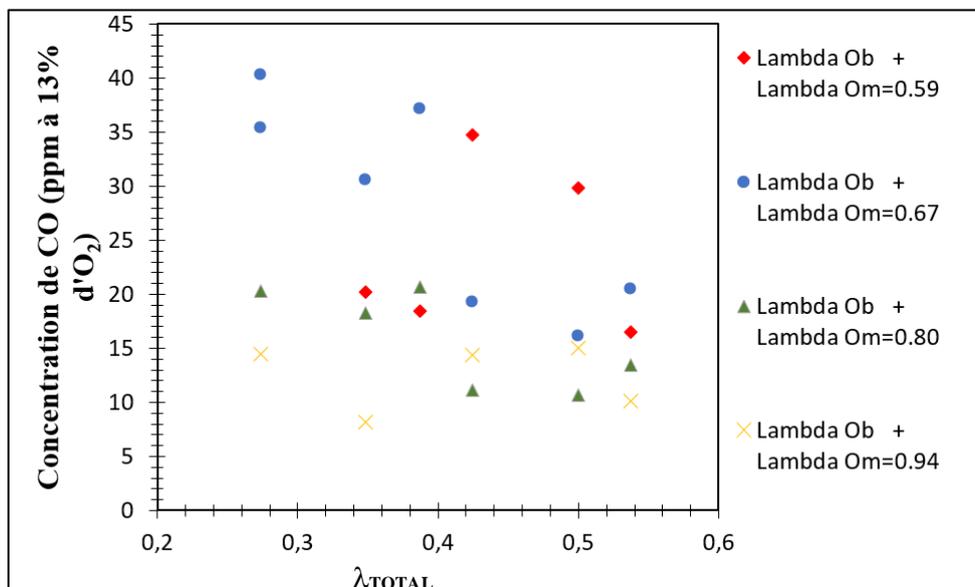


Figure 3-9. Concentration de CO en ppm corrigé à 13% d'O₂, par rapport à l'air qui rentre par les orifices Os, pour plusieurs valeurs fixées du débit dans Om et Ob.

Ceci corrobore l'observation faite par (Carroll, Finnan, Biedermann, Brunner, & Obernberger, 2015), à savoir que la réduction de l'apport d'air secondaire entraîne une augmentation des émissions de monoxyde de carbone (CO) et des particules. (Serrano, Portero, & Monedero, 2013) trouvent également que l'ajout d'air secondaire, au-dessus du lit de combustible, réduit les émissions de CO. Enfin, Lamberg a observé que l'augmentation de l'air secondaire par rapport à l'air primaire (injecté dans le lit) diminue le CO dans les fumées. Il conclut en annonçant que les fortes corrélations entre $\lambda_{\text{Prim}}/\lambda_{\text{Sec}}$ (définies dans la publication par l'air en rapport excès primaire/ rapport air en excès secondaire) et les émissions indiquent que la relation entre l'air primaire et secondaire semble être le facteur le plus important affectant les émissions, et donc, il pourrait être déterminant dans la réduction des émissions polluantes.

Une façon d'approfondir cette analyse est de faire une étude uniquement pour les orifices Ob et Om. La Figure 3-10 montre une tendance négative avec un coefficient de corrélation de -0,5968. Ce coefficient indique une tendance négative moins prononcée que la première corrélation visible sur la figure 3.8 mais toujours assez significative. Ceci peut être une preuve additionnelle que le facteur principal ayant une influence sur la production de CO est la distribution de l'air dans le lit de combustible. Néanmoins l'air injecté dans la zone de flamme joue un rôle secondaire dans la production de CO.

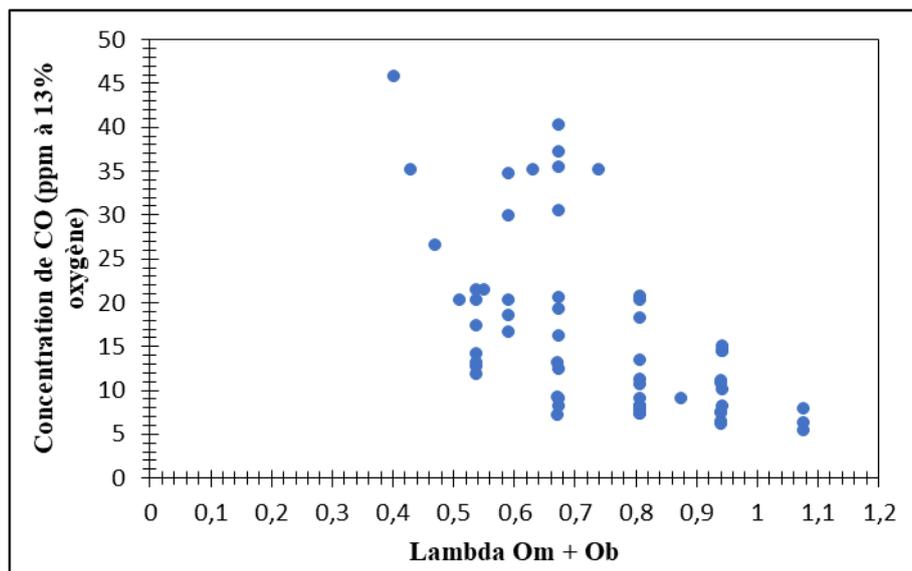


Figure 3-10. Concentration de CO par rapport à l'air qui rentre dans la chambre de combustion par les orifices Om et Ob, pour une alimentation de combustible de 1,5 g/s et une puissance de 21 kW.

Remarque : Cette sensibilité des émissions de CO à la distribution de l'air est aussi liée à la taille des granulés de combustibles (Rabaçal, Fernandes, & Costa, 2013). Les processus de conversion (séchage, dévolatilisation et combustion du charbon) se superposent dans le temps pour les gros granulés, alors qu'ils sont séquentiels pour les petits granulés. La vitesse de propagation du front de réaction à travers le lit de combustible est plus lente pour les grands granulés, car ceux qui sont situés dans la partie inférieure du lit consomment de grandes quantités d'oxydant et limitent sa disponibilité vers la partie haute du lit, ce qui entraîne un appauvrissement en oxygène dans la partie supérieure du lit. En fin de compte, cela se traduit par des émissions de CO plus élevées.

Le rôle de l'air injecté dans le lit est donc important, mais il ne faut pas oublier que, au-dessus du lit, des conditions favorables à l'oxydation des gaz de pyrolyses doivent être satisfaites. Les émissions de composés issus de la combustion incomplète des chaudières à granulés, en particulier le CO et les hydrocarbures imbrûlés (HC), sont plus faibles lorsque les conditions de combustion qui favorisent l'oxydation des espèces imbrûlées quittant le lit de combustible sont remplies. Les limitations d'oxygène et les basses températures inhibent l'oxydation, ce qui entraîne une augmentation des émissions de CO.

3.2.3. Influence de la distribution d'air sur la concentration de NOx

Comme le rappellent (Rabaçal, Fernandes, & Costa, 2013) et (Serrano, Portero, & Monedero, 2013), dans les petites chaudières domestiques, la température dans la chambre de combustion est généralement inférieure à 1300 °C et, par conséquent, la formation de NO par le mécanisme du combustible devrait être la principale source d'émissions de NOx. Glarborg (Glarborg, 2003) confirme que la principale source de production de NOx dans la combustion de la biomasse est l'azote contenu dans le combustible. Cette production de NOx (Fuel-NOx) peut être influencée par la distribution de l'air dans le lit combustible. Ce paragraphe présente donc les valeurs obtenues pour les NOx en faisant varier les débits d'air dans les orifices O_s et O_b , tout en gardant une valeur fixe dans les orifices O_m . Tel qu'observé précédemment, les orifices O_b et O_m auraient une influence équivalente sur les émissions de NOx. Toutefois, pour limiter le nombre de conditions à tester, il a été décidé de faire varier uniquement le débit dans les orifices O_b et O_s tout en gardant constant le débit dans les orifices O_m . L'ensemble des mesures est présenté dans le Tableau 3-5, dans lequel les concentrations de NOx sont corrigées à 13% de O₂. La ligne stœchiométrique ($\lambda=1$ tableaux 3-3) correspond au débit total dans les

trois lignes d'orifices égal à 9,05 g/s (rappel : le débit massique de combustible est fixe et vaut 1,5 g/s). Contrairement au CO, la zone proche de la ligne stœchiométrique n'est pas une zone de réduction de l'émission des NOx. En revanche, pour des débits d'air assez importants, au niveau des orifices Ob et Os, on observe une réduction assez sensible (voir l'ellipse rouge sur le tableau).

Debit d'air Os (g/s)															
7,06	x	x	x	x	291,39	x	x	x	x	x	x	x	x	x	250-300 mg/m3
5,92	x	x	x	x	286,54	x	x	x	x	x	x	x	x	x	200-250 mg/m3
4,89	247,13	x	x	x	x	x	210,41	x	178,90	x	197,10	x	214,87	150-200 mg/m3	
4,77	x	x	x	261,18	x	x	x	x	x	x	x	x	x		
4,55	237,16	x	x	x	x	x	215,45	x	168,80	x	171,44	x	201,11		
4,20		239,32	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x		
3,86			234,25	x	x	x	166,95	x	184,73	x	168,99	x	194,49		
3,63				254,19	x	x	x	x	x	x	x	x	x		
3,52					242,03	155,31	x	186,31	x	162,24	x	x	x		
3,18						214,43	x	180,25	x	185,78	x	206,14	x		
2,83							219,82	x	x	x	x	x	x		
2,49								219,27	270,48	257,47	255,78	285,56	x		
1,92									224,09	x	183,02	x	x		
-	1,32	1,57	1,93	2,30	2,55	2,67	3,04	3,41	3,77	4,39	5,00	5,61	6,23	Debit d'air Ob (g/s)	

Tableau 3-5. Concentration de NOx en mg/m³ corrigées à 13% en fonction de l'air injecté en bas du lit (orifices Ob). La valeur cerclée en bleu correspond au cas du fonctionnement de référence. Valeur fixe du débit dans les orifices Om (égale à 1,5 g/s et la puissance égale à (21 kW).

Sur la Figure 3-11, on peut voir les émissions de NOx, en fonction du λ_{Total} entrant dans la chambre de combustion de la chaudière. Contrairement au CO, ces données ne montrent pas de tendance significative. On observe que ces données ont un coefficient de corrélation de -0,4. Les NOx diminuent lorsque l'air total rentrant dans la chambre de combustion augmente, cependant cette tendance n'est pas très marquée. Tout ceci peut être lié au fait que le plus important pour la production de NOx est la réaction de l'azote contenu dans la biomasse. En d'autres termes, tout l'air qui entre dans la chambre de combustion ne joue pas un rôle important dans la production d'oxyde nitreux (Ma, et al., 2021). Comme vu dans l'analyse factorielle effectuée au début de ce chapitre, les orifices qui jouent un rôle important sur les émissions de NOx sont les orifices Ob et Om.

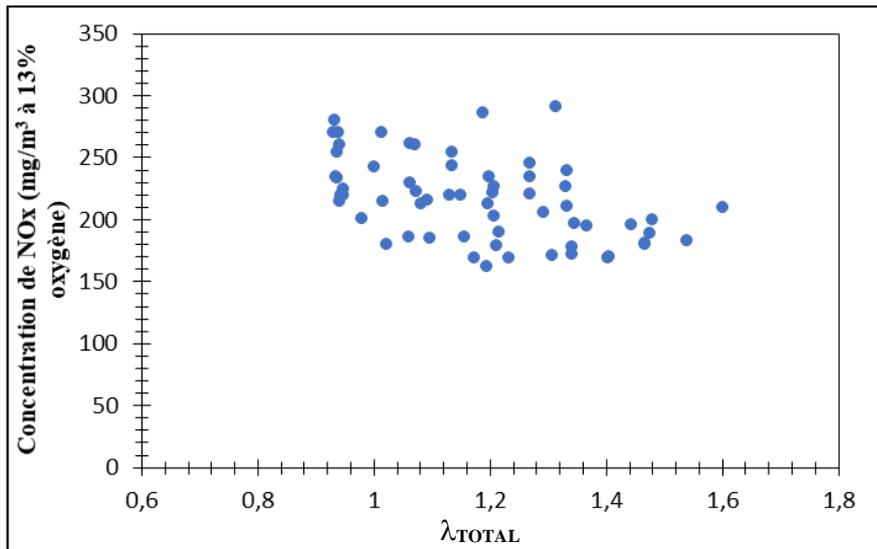


Figure 3-11. Concentration de NOx par rapport à l'air total qui rentre dans la chambre de combustion (Facteur d'air estimé à partir de l'air rentrant le foyer de combustion).

Comme pour le CO, il a été décidé d'étudier l'effet de l'air entrant par les orifices Os, c'est-à-dire l'air injecté à la surface du lit de granulés en contact avec la flamme. Sur la Figure 3-12, on peut voir les courbes de concentration de NOx pour différentes valeurs fixes des débits d'air dans les orifices Om et Ob. Il est difficile de trouver une tendance claire pour ces orifices. En d'autres termes, la production de NOx n'est pas directement liée à l'entrée d'air en surface du lit.

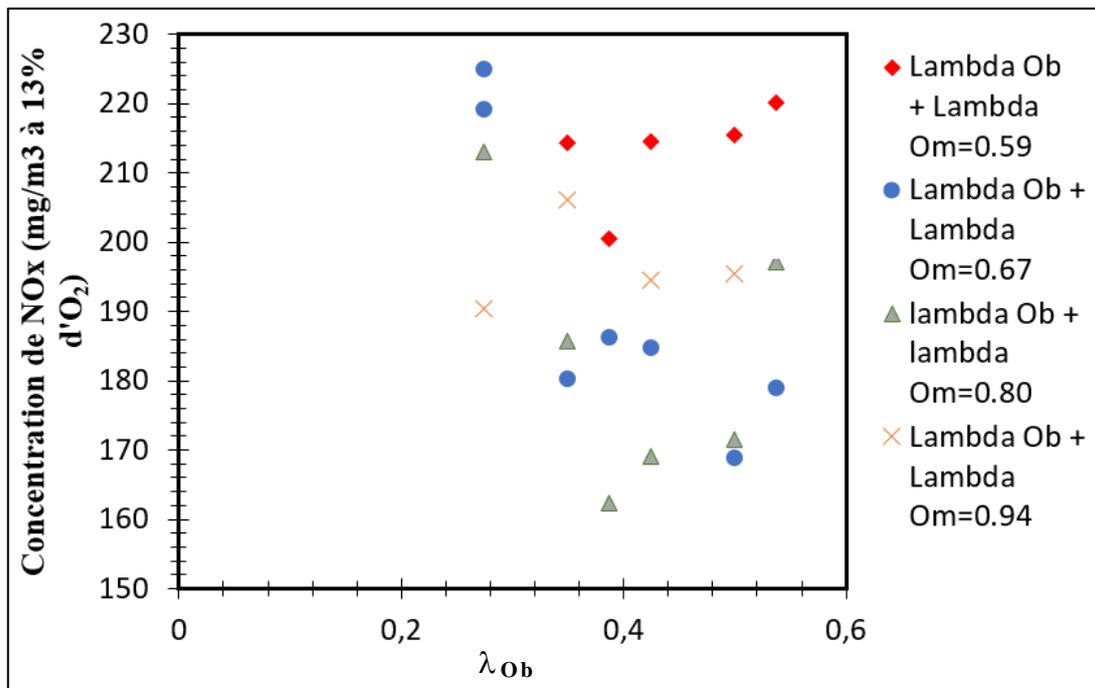


Figure 3-12. Concentration de NOx en fonction de l'air injecté en surface du lit (orifices Os), corrigées à 13%.

La Figure 3-13 représente la production de NOx en fonction de l'apport d'air passant par les orifices Om et Ob. Une tendance à la réduction plus prononcée que pour les résultats reportés sur la Figure 3-11 est à noter. Le facteur de corrélation est égal à -0,62. Cette tendance plus marquée à la réduction est en accord avec la théorie (Houshfar, et al., 2012), (Liu, Chaney, Li, & Sun, 2013). Le NOx serait principalement formé dans la zone du lit de combustible, ce qui est aussi en accord avec l'analyse faite précédemment et qui explique comment pour ces cas, les orifices dans la partie inférieure et moyenne du lit sont les plus importants. Grâce à ces résultats, il est possible d'affirmer que la distribution d'air dans le lit de granulés (Ob, Om) joue un rôle similaire à celui de l'étagement d'air.

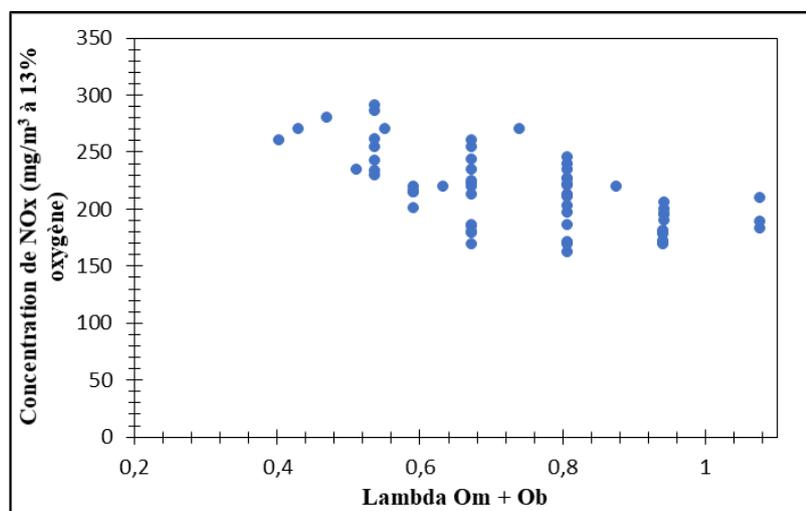


Figure 3-13. Concentration de NOx en fonction du lambda des orifices Om et Ob corrigée à 13% de O2.

L'ensemble des résultats présentés sur les Figure 3-10 à Figure 3-12 montre que les émissions des NOx sont peu sensibles à l'apport d'air total mais diminuent légèrement en fonction de l'air injecté directement dans le foyer. Ces concentrations de NOx peuvent varier de 16 à 40% d'après l'analyse des valeurs obtenues lors de ces expériences. Il est bien connu que les émissions de NOx dépendent fortement de la teneur en azote du combustible, ce qui confirme l'importance du mécanisme combustible-NO. Cependant, cette faible influence de la distribution de l'air dans le foyer doit être annoncée avec prudence. Les conditions spécifiques de combustion peuvent avoir un effet sur la conversion du HCN et du NH3 libérés pendant la dévolatilisation en NO, en particulier le niveau de facteur d'air, le mélange, la turbulence et la température. En effet, Carroll (Carroll, Finnan, Biedermann, Brunner, & Obernberger, 2015) a constaté que les émissions de NOx, avec une chaudière fonctionnant avec du bois déchiqueté, baissent avec la diminution de l'apport d'air dans la zone de combustion primaire. Avec des

conditions réductrices dans la chambre de combustion primaire, les composés azotés formés initialement (NH_3 et HCN) peuvent être réduits en azote moléculaire si la température et le temps de séjour sont suffisants. Il existerait une combinaison optimale du $\lambda_{\text{primaire}}$, de la température et du temps de séjour pour chaque appareil de combustion qui minimiserait la conversion de l'azote du combustible en NO_x . Mais Carroll indique que l'air primaire reste la variable clé dans la réduction des niveaux d'émission de NO_x . Néanmoins, Carroll confirme que le facteur d'air (λ_{Total}) a peu d'effet sur les émissions de NO_x , et ce pour d'autres combustibles que le bois.

Pour quelques expériences, la température de la chambre a été mesurée au niveau de la surface du lit. La position du thermocouple est présentée sur la Figure 3-6. Sur la Figure 3-14 A) il peut être observé que la température a une influence aussi sur les NO_x car la température de la chambre serait impactée par l'air qui rentre dans le foyer.

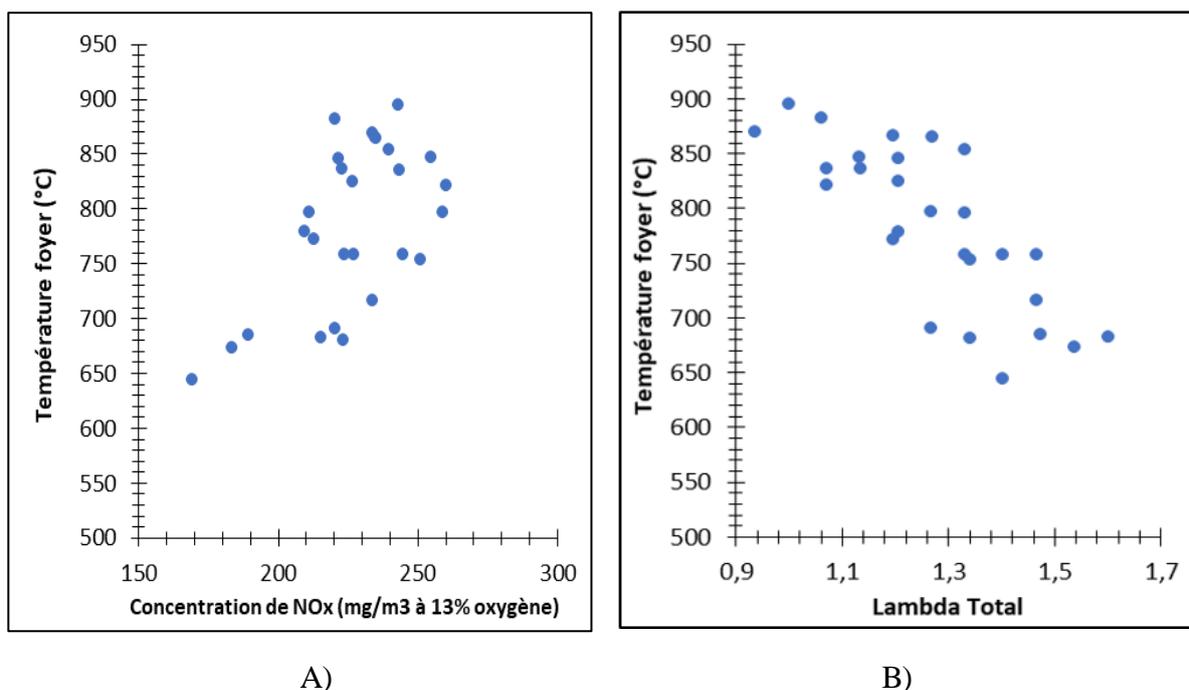


Figure 3-14.A) Température dans la chambre de combustion, en haut du lit de granulé, en fonction de la concentration de NO_x corrigé a 13% d'Oxygène. B) Température en fonction de l'alimentation totale d'air (Facteur d'air estimé à partir de l'air rentrant le foyer de combustion).

La Figure 3-14 B) met en évidence l'influence de l'air total sur la température de la chambre de combustion. Avec cette analyse, on montre l'influence de la température sur les émissions NO_x qui est l'un des paramètres les plus critiques et dont il faut tenir compte pour analyser les réactions qui se déroulent dans le lit combustible.

Enfin, on note que les résultats de cette étude sont aussi en accord avec les travaux réalisés par Lamberg (Lamberg, Sippula, Tissari, & Jokiniemi, 2011), qui n'a pas constaté un effet important de la variation de l'air directement injecté dans le lit ou à sa surface sur les émissions de NO_x dans les fumées.

Le point sur la corrélation entre la teneur initiale en azote et l'émission des NO_x sera de nouveau discuté lors de la présentation des résultats obtenus avec d'autres combustibles, le miscanthus et la paille.

3.2.4. Influence de la distribution d'air sur les émissions de particules

L'influence de la distribution de l'air dans le lit sur les particules émises a été étudiée également. À cette fin, l'effet de la distribution d'air dans le foyer sur les PM total, qui sont la mesure de la masse totale des particules produites pendant la combustion, a été étudié. La Figure 3-15 A) montre que la concentration des particules a tendance à augmenter lorsque l'on introduit davantage d'air dans la chambre de combustion. Toutefois, cette information doit être interprétée avec prudence car la dispersion des résultats reste importante tandis que la corrélation est faible. De même, la Figure 3-15 B) montre que l'émission des PM est aussi très faiblement corrélée à la quantité d'air injectée directement dans le lit (à travers les orifices Ob et Om).

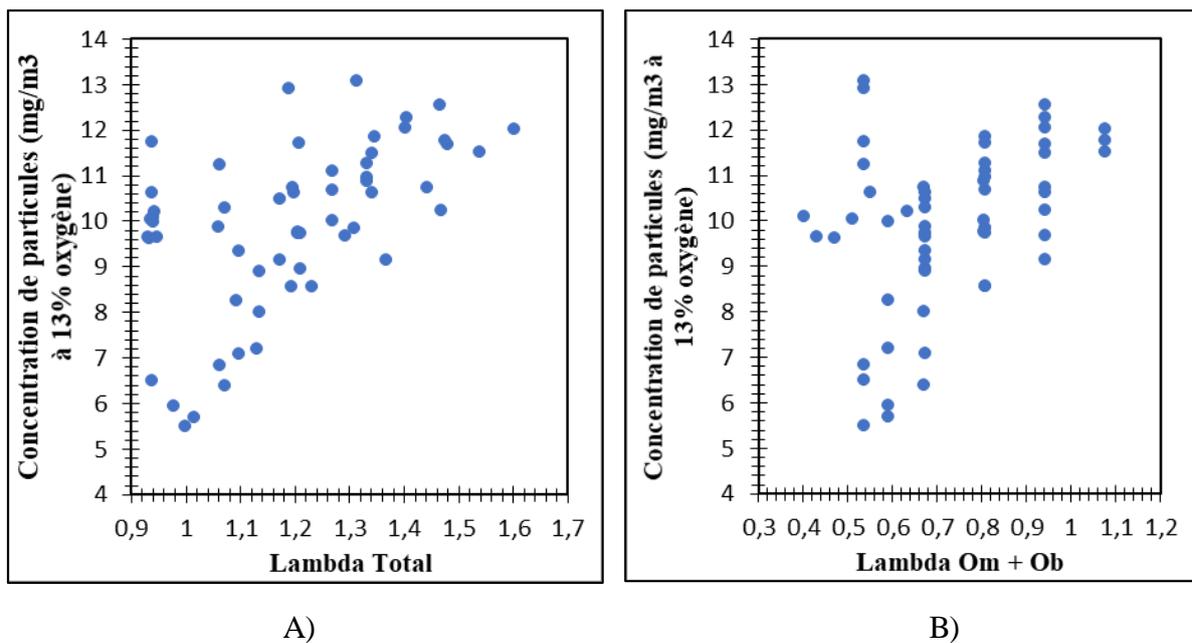


Figure 3-15. A) Concentration des particules corrigées à 13% d'oxygène en fonction du facteur d'air Total. B) Concentration des particules corrigées à 13% d'oxygène en fonction du facteur d'air Om + Ob (Facteur d'air estimé à partir de l'air rentrant le foyer de combustion).

En utilisant la masse volumique effective des particules, on peut calculer leurs concentrations massiques à partir des diamètres mesurés par le SMPS, et déterminer le rapport $PM_{0.1}/PM_1$. Pour une masse volumique effective de 1800 kg/m^3 (valeur obtenue pendant cette thèse comme cela sera vu un peu plus loin) un rapport moyen $PM_{0.1}/PM_1=0,6$ est obtenu. Les études faites par (Obaidullah, Bram, Verma, & Ruyck, 2012), mettent en avant un rapport $PM_{0.1}/PM_{TOT}=0,86 \pm 0,07$. On confirme donc que la très grande majorité de la masse est apportée par des particules dont le diamètre est inférieur à 100nm.

La Figure 3-16 présente les distributions de taille des particules pour différentes valeurs du rapport des débits $(Om+Ob)/Os$. On peut ainsi analyser l'effet de l'injection d'air dans la partie supérieure du lit de granulé. On a représenté en bleu les cas correspondants à $(Om+Ob)/Os>2$ et en rouge les cas contraires. On observe que pour des débits $(Om+Ob)/Os>2$ (courbes bleues) les quantités de particules sont plus importantes avec un mode de la distribution un peu plus faible que pour les cas $(Om+Ob)/Os<2$ (courbes rouges). Toutefois le mode de la distribution des diamètres ne change pas de manière importante, ce qui pourrait impliquer que les particules conservent la même morphologie. Il est connu, que pour les conditions de fonctionnement dans les chaudières, les particules les plus présentes dans les fumées sont des cendres et elles aient des diamètres entre 50-90 nm, comme montré par (Wiinikka & Gebart,

2005) ainsi que précédemment. Si la majorité des particules était des suies, une augmentation de leur nombre se traduirait par une augmentation de leur taille à cause du processus d'agglomération, ce qui n'est pas observé. Les particules présentes dans les fumées de cette installation semblent être majoritairement des cendres. Ceci sera confirmé plus loin avec les analyses des clichés de microscopie électronique.

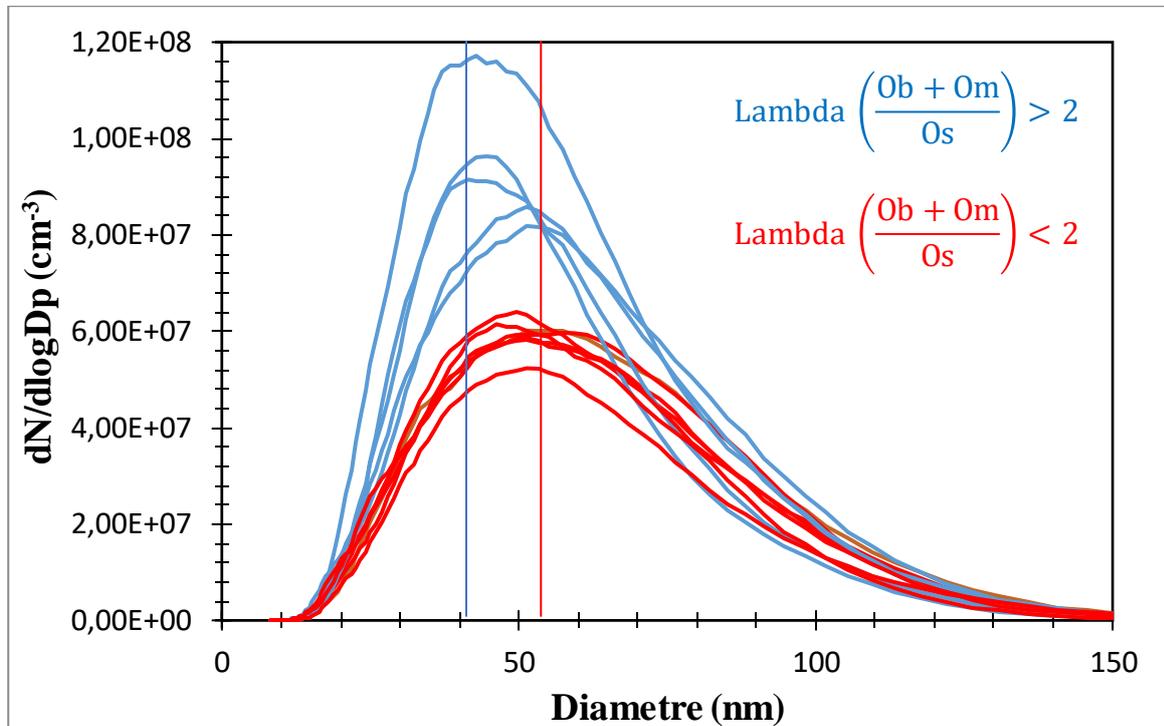


Figure 3-16. Distribution de la taille des particules pour différentes relation de distribution d'air $(O_m+O_b)/O_s$.

Cette faible influence de la distribution de l'air dans le foyer a déjà été observée dans d'autres travaux. Carroll (Carroll, Finnan, Biedermann, Brunner, & Obernberger, 2015) a étudié les émissions polluantes dans une chaudière utilisant de la biomasse déchiquetée, en particulier du bois et du miscanthus. Il note qu'environ 85% des particules sont des PM_{10} (diamètre $< 10\mu m$), et que le facteur d'air (λ_{Total}) n'a pas d'effet sur les PM_{10} . De même, la quantité d'air injectée dans le lit ($\lambda_{Ob + Om}$) a également peu d'influence sur les PM_{10} . (Lamberg, Sippula, Tissari, & Jokiniemi, 2011) ont mesuré les émissions de particules émises par une chaudière à pellets. En faisant varier les quantités d'air injectées dans le lit (air primaire AP) et au-dessus du lit (air secondaire AS), ils trouvent que les PM_{10} augmentent lorsque le rapport AP/AS augmente. D'ailleurs ils concluent, comme pour le CO, que les fortes corrélations entre le rapport AP/AS et les émissions en particules indiquent que la relation entre l'air primaire et secondaire semble

être le facteur le plus important affectant les différents facteurs d'émission. En revanche, lorsqu'on diminue l'air AP, la concentration en nombre diminue. (Oser, Nussbaumer, Schweizer, Mohr, & Figi, Influences on aerosol formation in an automatic wood furnace., 2001) ne constatent pas de variation importante des PMs ou du nombre de particules lorsque le facteur d'air reste faible ($<1,4$). Toutefois ; lorsqu'un test a été réalisé avec une grande valeur de facteur d'air ($\lambda_{Total}=3$), une baisse sensible des PMs et une augmentation du nombre ont été observées.

On s'aperçoit que les résultats sur les PMs sont assez contradictoires et qu'il est difficile de conclure quant à l'influence de la distribution de l'air dans le foyer sur les émissions de particules. Dans la présente étude, on rappelle que l'effet observé est faible. La quantité de particules fines inorganiques, les cendres, n'est pas corrélée à la qualité de la combustion mais elle est plutôt contrôlée par la volatilisation des éléments formant des cendres pendant la combustion et la formation ultérieure de particules pendant le refroidissement des gaz de combustion (Tissari, et al., 2008). Le degré de volatilisation des éléments formant les cendres est régi par la température dans le lit de pellet. Enfin il faut rappeler que, dans la chaudière utilisée pour ce travail de thèse, l'échangeur de chaleur bloque les plus grosses particules entraînées au-dessus du foyer.

Comme évoqué précédemment, (Lamberg, Sippula, Tissari, & Jokiniemi, 2011), dans un système semblable à celui adapté au CORIA, montrent une réduction significative des émissions de particules fines en changeant le ratio d'étagement d'air. Néanmoins, cette observation sur les PMs ne permet pas d'identifier si le changement de la distribution de l'air au niveau du lit fait varier l'entraînement des particules au-dessus du foyer; en particulier pour les ultrafines avec un diamètre inférieur à 100 nm. La Figure 3-17, extraite des travaux de Lamberg, montre la distribution des diamètres de mobilité des particules pour différentes charges, et différents débits d'airs primaire et secondaire. L_{25} correspond à la charge maximale de la chaudière, $Prim_1$ et $Prim_2$ deux autres fonctionnements en réduisant le débit d'air primaire (AP) tout en conservant le même débit d'air secondaire (AS), Sec_1 et Sec_2 deux autres fonctionnements en réduisant le débit AS tout en conservant le même débit AP. La diminution des débits AP ou AS ne fait pas diminuer le nombre de particules ultrafines détectées dans les fumées, et donc s'il y a un effet sur l'entraînement des particules juste au-dessus du lit, il est masqué par les effets de l'échangeur et du dépôt sur ses parois.

Dans le cas présent, la chaudière fonctionne par aspiration, c'est-à-dire que le système crée une dépression à la sortie de la chaudière et l'air est donc aspirée dans la chambre de combustion. Afin de contrôler l'air entrant dans la chambre, un système d'alimentation à travers les orifices Ob-Om-Os a été ajouté (voir Figure 3-6 plus haut). Cependant, le ventilateur continue à aspirer pour maintenir un fonctionnement similaire à l'original. Une injection d'air forte au niveau du lit pourrait entraîner et extraire les cendres du lit de granulés à une vitesse plus élevée, ce qui leur permettrait de passer plus facilement à travers les pièges mécaniques de la chaudière et d'être finalement détectées à la sortie de la chaudière. Les résultats de (Lamberg, Sippula, Tissari, & Jokiniemi, 2011), reportés sur la Figure 3-17, montrent qu'une injection forte d'air au niveau du lit pourrait renforcer l'entraînement des particules ultrafines. Cette injection pourrait donc avoir une influence au niveau des émissions en sortie de chaudière. La légère augmentation des PM observée à l'émission sur la Figure 3-16 pourrait être aussi liée à la turbulence formée dans la chambre à cause d'une injection forte dans le lit (Ob+Om) par rapport à l'injection dans la surface (Os).

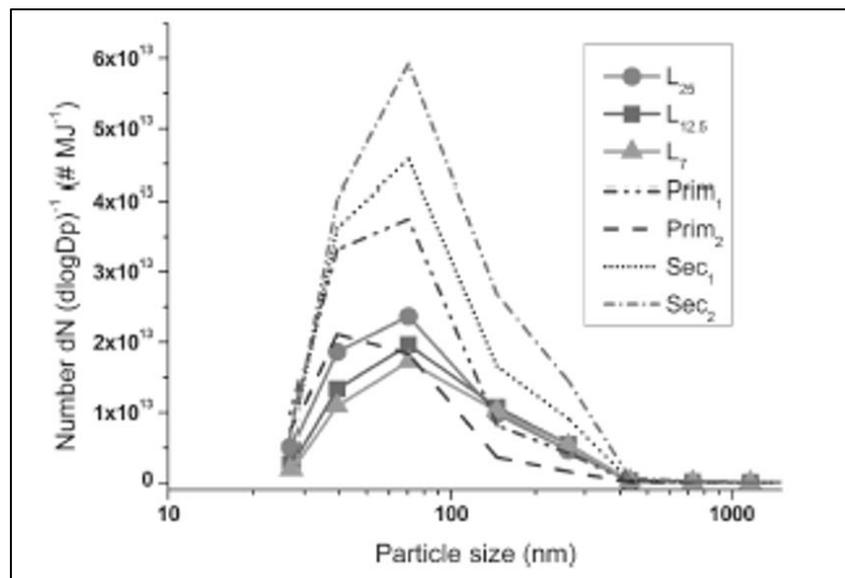


Figure 3-17. Distribution de la taille des particules pour différents distribution d'air dans le système de combustion utilisé par Lamberg.

3.2.5. Conclusions

Une analyse de l'influence de la distribution de l'air dans le lit de combustible (granulés de bois) a été réalisée. Une analyse statistique et qualitative (analyse factorielle) des expériences

réalisées en modifiant l'injection d'air dans les trois lignes d'orifices de la chaudière a été effectuée. Elle a montré que les deux lignes inférieures (Ob et Om) ont une influence significative sur la formation de NO_x tandis que la ligne supérieure (Os) n'a pas d'effet significatif. Ceci corrobore en partie la théorie selon laquelle ce sont les conditions dans le lit de granulés qui peuvent influencer la formation de NO_x, étant donné que les NO_x sont principalement formés à partir du mécanisme chimique « NO_x-combustible ». Mais la température du lit de granulés semble aussi importante pour comprendre la formation des NO_x dans le lit de granulés. Elle a également permis de mettre en lumière que, malgré un effet légèrement moins important de la ligne Os, les trois lignes ont un impact sur la formation de CO. Cette analyse est en accord avec la théorie selon laquelle la formation de CO est principalement générée dans la combustion du charbon et secondairement dans la flamme. Une analyse plus poussée de cette distribution d'air pour le CO a corroboré les résultats de l'analyse de Pareto et a montré que le monoxyde a tendance à diminuer lorsque le facteur d'air augmente, un comportement constaté par (Carroll, Finnan, Biedermann, Brunner, & Obernberger, 2015), pour lequel on peut observer qu'il existe une valeur optimale pour le facteur d'air qui minimise la concentration de CO.

Pour les émissions de particules, aucune tendance claire n'a pu être observée. Mais on soupçonne que la vitesse d'entrée de l'air dans le lit de pellets a un effet sur l'envol des particules et donc sur les émissions à la sortie de la chaudière.

3.3. Influence du mode d'alimentation

Après avoir analysé l'effet de la distribution de l'air au niveau du lit de granulés, d'autres paramètres permettant de réduire les émissions dans une chaudière domestique peuvent également être considérés. Dans ce chapitre, nous allons essayer de caractériser l'effet du mode d'alimentation des pellets sur les émissions polluantes produites par la chaudière étudiée.

Pour rappel l'alimentation en combustible du système est à l'origine pulsée, comme montré par la courbe bleue sur la Figure 3-18. Les modifications apportées sur la vis sans fin ont permis d'avoir une alimentation continue, c'est-à-dire, d'obtenir une puissance équivalente de la chaudière avec une alimentation ininterrompue (section 2.5.4), comme montré dans la Figure 3-18 par la ligne rouge.

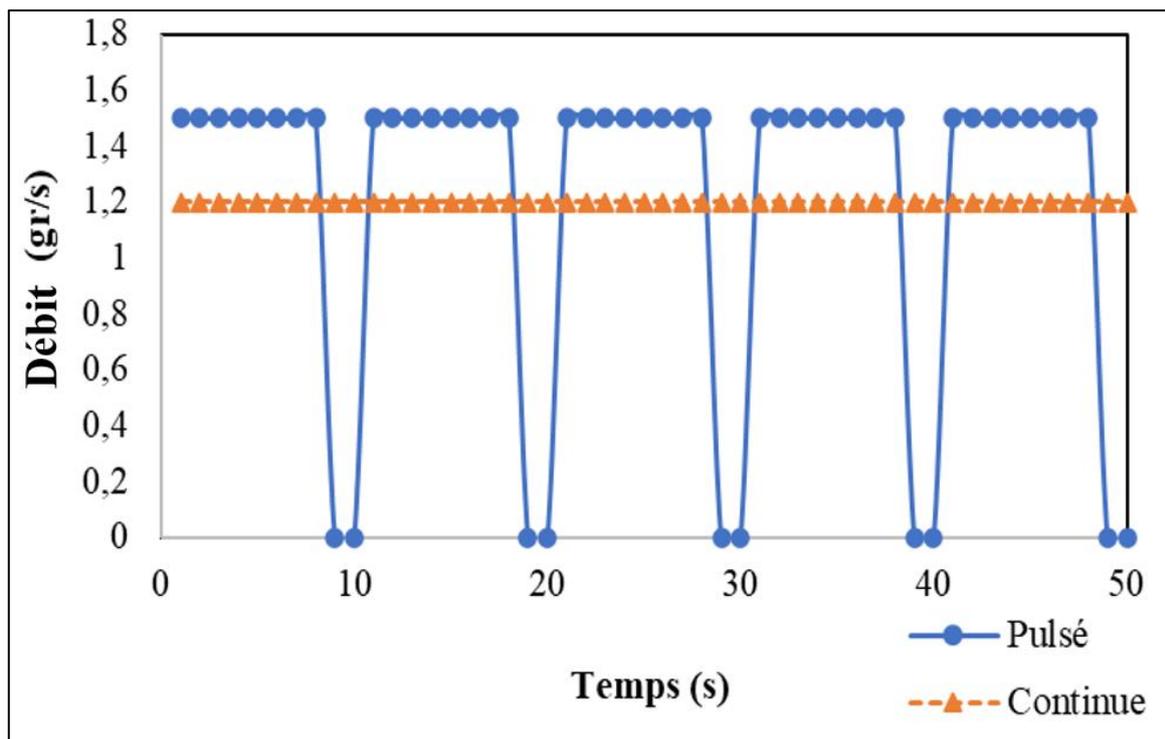


Figure 3-18. Débits de pellets obtenus avec une alimentation continue ou pulsée pour 80% de la puissance nominale de la chaudière. En bleu le mode d'alimentation pulsée équivalent à 1.2 g/s d'alimentation de pellet, en rouge l'alimentation en continue pour le même débit.

Pour cette partie de l'étude, toutes les conditions de fonctionnement du système ont été maintenues constantes. Le débit d'air a été réglé au ratio original pour lequel la chaudière a été conçue, c'est-à-dire 8,60 g/s. La température d'entrée de la chaudière a quant à elle été réglée à 54 °C.

Les modifications effectuées permettent à la chaudière de fonctionner en continu pour une puissance donnée alors qu'à sa conception elle fonctionnait par intermittence en fonction de la puissance demandée. Pour baisser la puissance de la chaudière en mode d'alimentation continu, il suffit de réduire la vitesse du moteur entraînant la vis sans fin. Mais il n'a pas été possible de faire fonctionner la chaudière à une puissance inférieure à 70%. De même, il n'a pas été possible de diminuer la puissance de la chaudière en dessous de 60% en pulsé. Pour les expériences en mode pulsé, une puissance de 70 à 90 % a été utilisée.

3.3.1. Emissions de NOx avec une alimentation pulsée ou continue

Sur la Figure 3-19 A), les concentrations de NOx sont représentées en fonction du temps pour le régime pulsé tandis que, sur la Figure 3-19 B) les concentrations sont représentées pour le régime continu. De fortes fluctuations de concentration peuvent être constatées pour les deux régimes, pulsé et continu. Les fluctuations ne sont donc pas dues au régime intermittent du mode pulsé. Cependant, on observe que pour les deux régimes d'alimentation les concentrations moyennes restent relativement stables pendant 20 min de mesure.

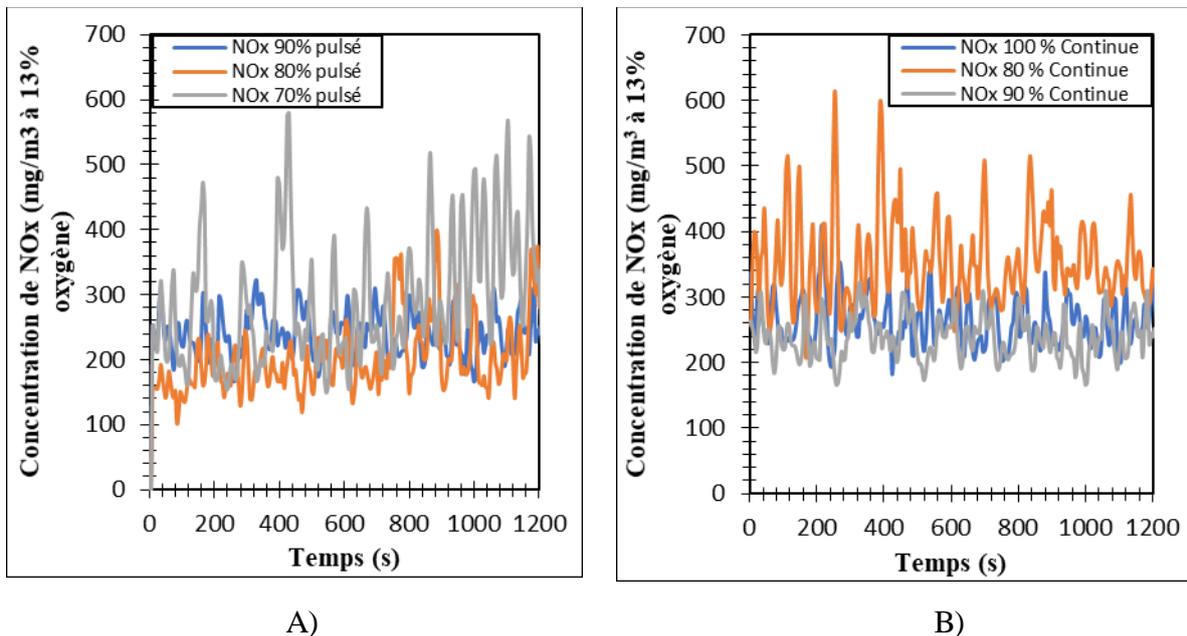


Figure 3-19. A) Concentration de NOx pour différents régimes d'alimentation en pulsé (valeurs corrigées pour 13% O₂) B). Concentration de NOx pour différents régimes d'alimentation continue (valeurs corrigées pour 13% O₂).

Les moyennes et les écarts types des fluctuations des concentrations et des facteurs d'émission sont présentés dans le Tableau 3-6. L'écart type maximal est de 11% de la valeur moyenne pour les concentrations et les facteurs d'émission (cas 80% pulsé). Par rapport aux données obtenues concernant le CO (Figure 3-7), les fluctuations de NOx sont plus faibles pour les mêmes modes de fonctionnement de la chaudière.

Puissance	Mode	Concentration moyenne et écart type (mg/m³)	Facteur d'émissions Moyen et écart type (g/GJ)
100%	Continue	240±20	124 ±10
90%	Pulsé	240±19	124 ±10
80%	Pulsé	197±20	103±11
70%	Pulsé	277±19	145±10
90%	Continue	261±18	137±9
80%	Continue	348±24	182±13

Tableau 3-6. Concentration moyenne de NO_x corrigées à 13 % d'oxygène pour les différents modes d'alimentation. Les écarts types sont donnés à droite des moyennes.

On peut observer que la différence de production moyenne de NO_x entre les deux modes de fonctionnement est relativement faible. Ceci peut être dû au fait que, les conditions de fonctionnement de la chaudière n'ayant pas été changées entre les différents tests, les injections d'air dans le lit de granulés sont restées les mêmes pour les différentes conditions d'alimentation utilisées. La température du lit de granulés est donc pratiquement la même (autour de 750 à 900 °C). Comme observé précédemment, la production de NO_x est principalement due à la conversion de l'azote contenu dans le combustible, et donc si les conditions d'aération du système ne changent pas, les variations dans la conversion de NO_x seront probablement faibles. (Glarborg, 2003).

Toutefois pour les deux cas extrêmes, c'est-à-dire à 70% de puissance pour le mode pulsé et à 80% de puissance pour le mode continue, on observe associée à une légère augmentation d'émission NO_x. Cela pourrait s'expliquer par le fait que le débit d'air rentrant dans la chambre de combustion ayant été maintenu constant pour les différents cas, la combustion est plus pauvre, ce qui pourrait favoriser la formation de NO_x.

3.3.2. Emissions de CO avec une alimentation pulsée ou continue

La Figure 3-20 et le Tableau 3-7 présentent les résultats obtenus pour les concentrations et les facteurs d'émission de CO pour les deux modes d'alimentation. Le Tableau 3-7 présente les valeurs moyennes et les écarts types obtenus sur une durée de 20 min.

Puissance	Mode	Concentration moyenne et écart type (ppm)	Facteur émission et écart type (g/GJ)
100%	Continue	20±8	12±5
90%	Pulsé	42±20	25±12
80%	Pulsé	61±21	37±18
70%	Pulsé	69±59	42±35
90%	Continue	28±18	17±11
80%	Continue	45±13	27±8

Tableau 3-7. Concentration de CO corrigées à 13 % d'oxygène pour les différents modes d'alimentation. Les écarts types sont donnés à droite des moyennes.

Les émissions de CO présentées sur la Figure 3-20, sont très intermittentes, c'est-à-dire qu'il y a une émission régulière et continue assez faible et des pics très forts qui se produisent irrégulièrement dans le temps. On constate également que les écarts types sont un ordre de grandeur significativement plus important que pour les NO_x (Tableau 3-6). Ceci s'explique par l'apparition de pics plus importants pour le CO que pour les NO_x.

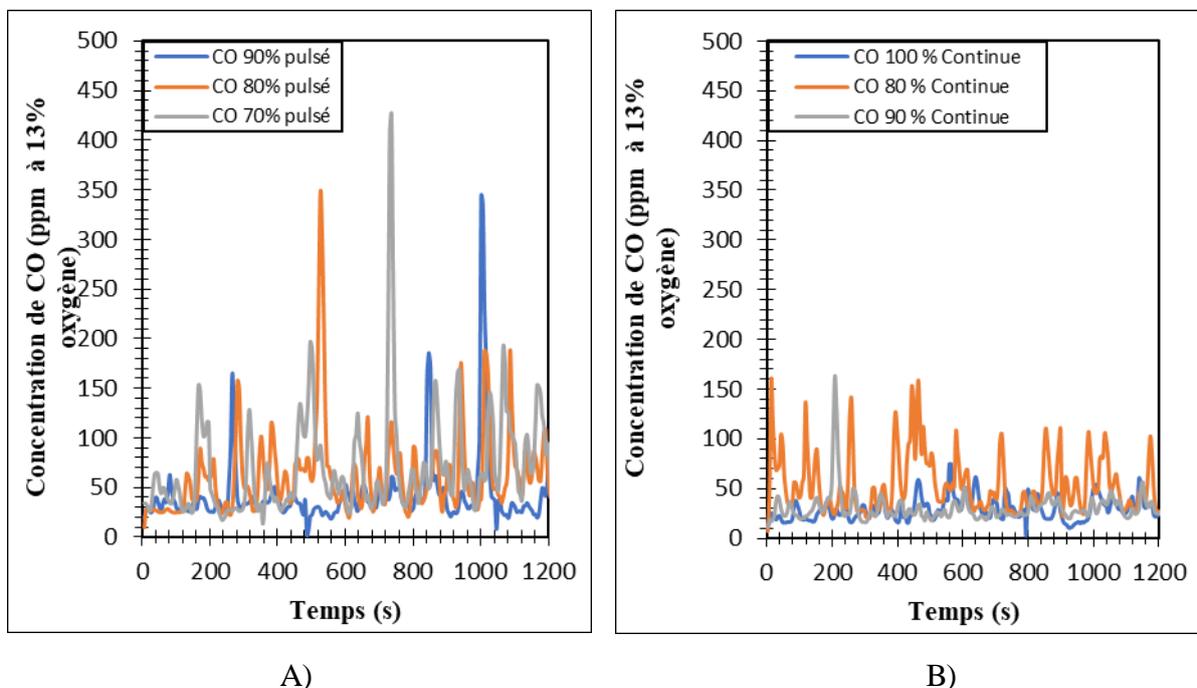


Figure 3-20. A) Concentrations de CO pour différents régimes d'alimentation en pulsé (valeurs corrigées pour 13% O₂) B). Concentrations de CO pour différents régimes d'alimentation en continu (valeurs corrigées pour 13% O₂)

Dans le cas du régime pulsé, et pour expliquer ce phénomène d'émission intermittente, les périodes d'alimentation ont été comparées avec les pics d'émission pour essayer de les corréler. Ceci est montré sur la Figure 3-21 pour une alimentation à 80%. Aucune relation claire entre ces deux variables n'a été constatée. Le temps entre deux pics d'émission est plus important que la période d'alimentation. On peut objecter qu'il existe un décalage temporel entre un ajout de granulés dans le lit de la chaudière, la formation d'un pic de CO dans le foyer, et la mesure de la concentration correspondante dans les fumées. Cependant, s'il y avait une corrélation, ce décalage temporel serait observé pour chaque période d'alimentation, ce qui n'est pas le cas comme on peut le voir sur la Figure 3-21.

Il est connu que les émissions de monoxyde de carbone produites dans le lit de granulés sont liées aux concentrations d'oxygène présentes (Warnatz, 2001). L'explication de cette émission intermittente est à rechercher du côté de l'influence de la disponibilité de l'air dans le lit de granulés. En effet, les granulés s'accumulent sur le haut du lit et, à certains moments, ce dernier peut s'effondrer sur lui-même à cause de l'avancement de la combustion du char en partie basse du lit et de l'empilement des particules de combustible modifiant la disponibilité de l'air à l'intérieur du lit. Cela provoquerait une baisse de l'oxygène disponible pour la combustion et, par conséquent, augmenterait la concentration de monoxyde de carbone en raison d'une combustion incomplète. Malheureusement il n'a pas été possible d'installer au cours de ce travail un endoscope et de visualiser le lit pendant sa combustion, cette hypothèse d'effondrement du lit n'a pas pu être validée.

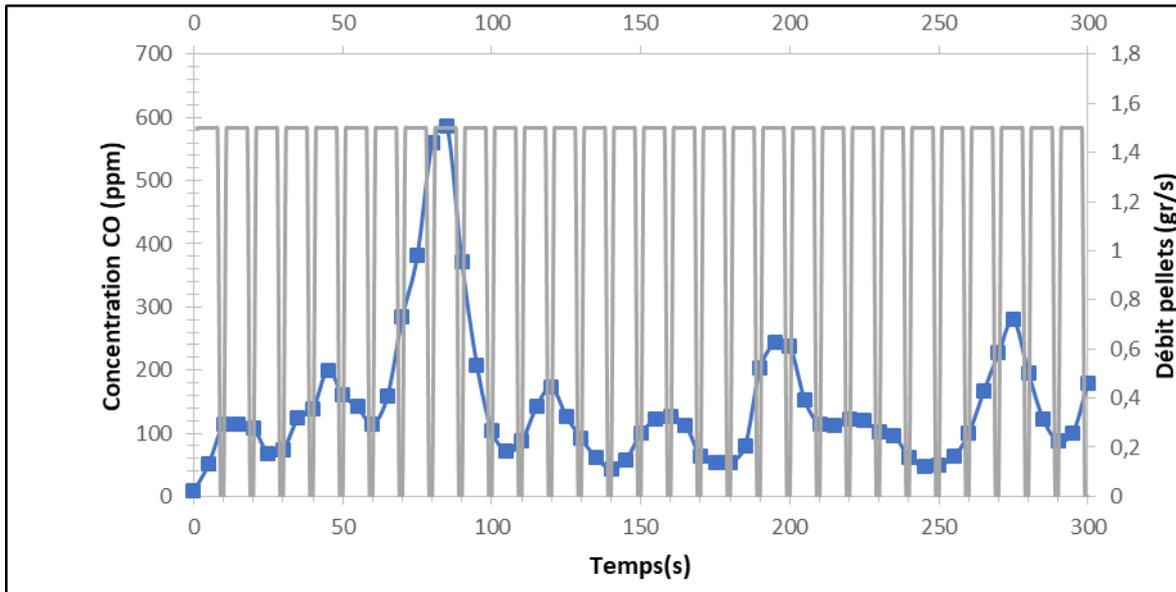


Figure 3-21. En gris les périodes d'alimentation pour le régime pulsé à 80%, en bleu les mesures de CO dans les fumées.

Comme pour les NO_x, il est difficile de dégager des tendances claires lorsque le mode d'alimentation change. Néanmoins, les valeurs moyennes reportées dans la Tableau 3-7 montrent que, pour un même mode d'alimentation, lorsque la puissance diminue, la concentration de CO augmente dans les fumées. Ceci est contre intuitif, car une alimentation en combustible faible se traduit par un foyer mieux ventilé (si l'alimentation en air reste la même, comme c'est le cas dans cette série d'expérience). De même, Il peut être constaté que les écarts-types ont une légère tendance à diminuer de 85% (70% pulsée) à environ 30% (100% continue).

3.3.3. Emissions des particules avec une alimentation pulsée ou continue

Dans cette partie, l'influence du mode d'alimentation en combustible sur 3 paramètres principaux que sont la concentration massique des particules, (PM), leur diamètre et le nombre total de particules (par unité de volume) seront abordés. Les valeurs ont été mesurées simultanément aux émissions de CO et NO_x au cours des expériences évoquées précédemment, donc avec les mêmes paramètres de fonctionnement, en particulier la même distribution en air.

La Figure 3-22 présente les concentrations en particules pour différents modes d'alimentation en combustible. Les fluctuations ne sont pas importantes, contrairement au cas

du CO. Ceci peut être expliqué par le rôle de l'échangeur interne qui capte une grande partie de particules par dépôts sur les parois, ce qui atténue les fluctuations des concentrations dans les fumées.

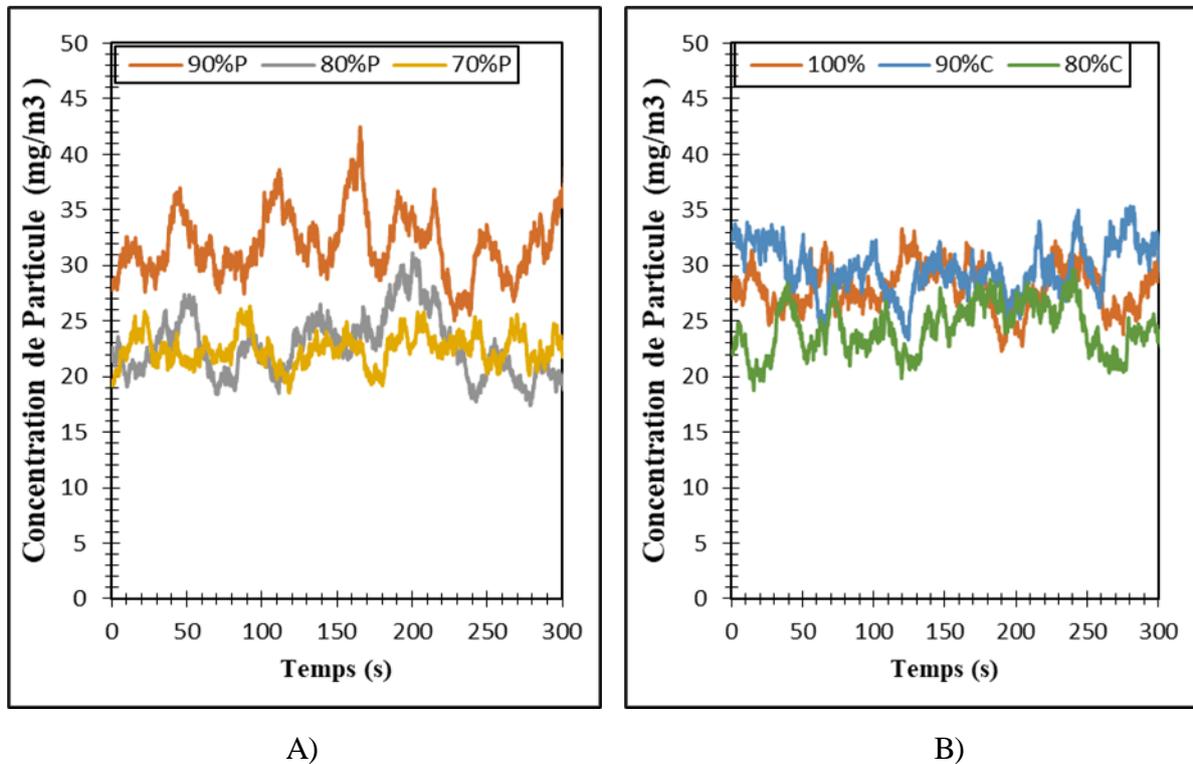


Figure 3-22.A) Concentration massique des particules pour différents régimes d'alimentation en pulsé (non corrigé) B). Concentration massique des particules pour différents régimes d'alimentation en continu (non corrigé)

Pour différents modes d'alimentation, les émissions moyennes de particules ne présentent pas de variations considérables. Toutefois pour les faibles puissances (80% et 70% en pulsé et 80% en continu), on constate que la concentration massique en particules est la plus faible.

La Figure 3-23 montre les distributions des diamètres réalisées pour la même condition d'alimentation en air (8,65g/s. Le nombre total des particules (part./m³) s'obtient en intégrant la distribution sur l'ensemble des diamètres, et il est représenté par la surface sous chaque courbe de la Figure 3.23. Le nombre total suit la même tendance pour les différentes modes d'alimentation en combustible et de puissance que pour les mesures de concentration massique faites avec le PPS. Les plus faibles valeurs du nombre total correspondent aux plus faibles puissances.

En ce qui concerne le CO, ce travail a montré que la concentration de CO dans les fumées augmente si la puissance demandée diminue, et donc qu'il y a une corrélation entre la quantité d'oxygène disponible dans le foyer et le CO émis par les fumées. Pour les concentrations massiques en particules, cette tendance n'est pas observée. Cela pourrait être dû au fait que le système d'échangeur de chaleur interne de la chaudière maintient les plus grosses particules dans le bac à cendres principal et, étant donné que les plus grosses cendres sont retenues à l'intérieur, il n'y a pas de différence notable dans les PM totales observées dans les fumées.

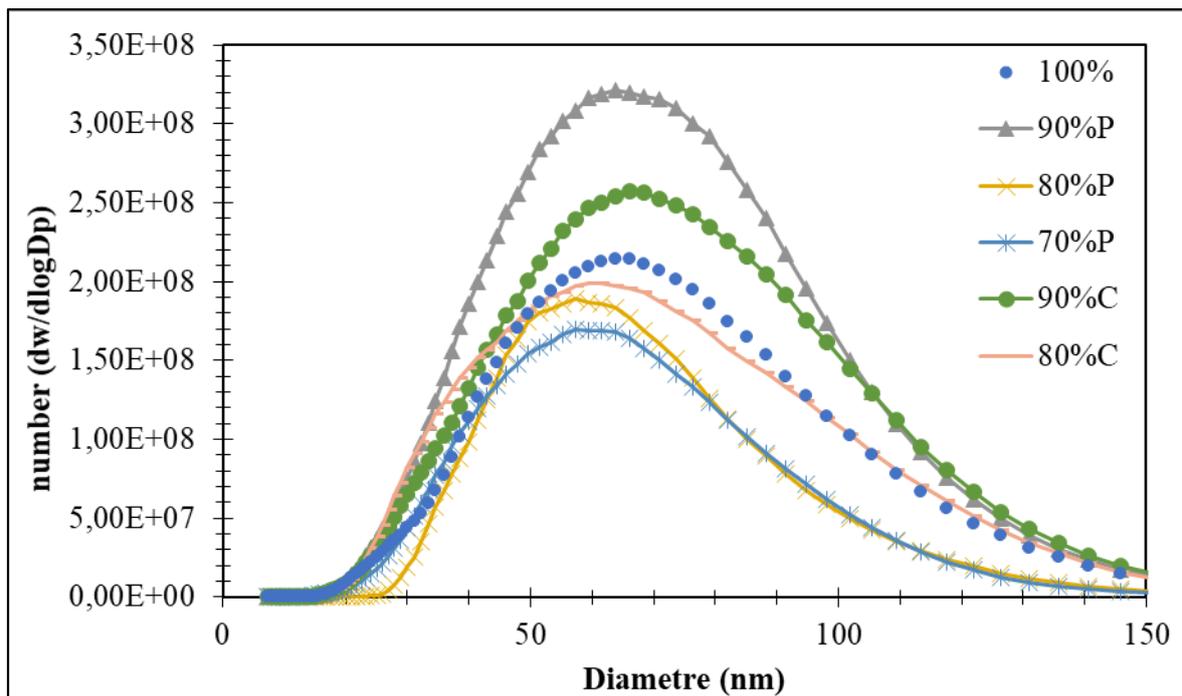


Figure 3-23. Courbes de distribution des diamètres des particules pour les différents modes d'alimentation de la chaudière avec un débit d'air d'entrée constant de 8,65 g/s.

3.3.4. Conclusions

L'influence du mode d'alimentation de combustible sur les émissions de la chaudière a été étudiée. Concernant les émissions de NO_x, des différences de concentration pour les différents modes d'alimentation ont été observés, cependant ces différences sont davantage liées aux conditions de fonctionnement (puissance) qu'à la nature de l'alimentation.

Pour le CO, il a été constaté qu'une alimentation continue diminue l'intermittence dans les concentrations observées dans les fumées. Cela pouvait être lié à un effet d'aération dans le

lit de granulés qui changerait lorsqu'il y a des effondrements soudains des combustibles dans le lit de granulés. Enfin, en ce qui concerne les émissions de particules, les variations d'émissions en fonction du mode d'alimentation et de la puissance ne sont pas aussi prononcées que pour celles du CO et des NO_x

3.4. Observation de la morphologie et mesure de la masse volumique effective des particules

Ce sous-chapitre se concentrera sur l'étude des particules envolées présentes dans les fumées, ce qui veut dire que les cendres « fixes », retenues dans la chaudière n'ont pas été analysées. Dans un premier temps, les expériences réalisées pour l'étude de la masse volumique effective des particules seront décrites. Ensuite les images MET réalisées sur ces particules seront présentées.

3.4.1. Masse volumique effective

Définition de la masse volumique effective.

La formule utilisée pour estimer la masse volumique effective (voir chapitre 2) :

$$\rho_{\text{eff}} = \frac{6m_p}{\pi d_{\text{me}}^3} \quad \text{Équation 3-3}$$

Où :

d_{me} = Diamètre de mobilité électrique (m).

m_p = Masse de la particule (kg).

Détermination de la masse volumique effective

Une vue schématique du dispositif expérimental a été présentée sur la Figure 2-14 et Figure 2-15. La masse volumique effective des particules a été mesurée avec la mise en place en série d'un CPMA (Combustion) et d'un SMPS (Composé d'un CPC 3772 et d'un DMA 3081). Le DMA a été utilisé pour classifier les particules en fonction de leur taille. Ensuite, le

CPMA a été utilisé pour classer les particules en fonction de leur masse (rapport masse/charge), et enfin, le CPC a servi à quantifier le nombre des particules appartenant à chacune de ces catégories. Le système des 3 équipements en série permet donc d'obtenir une distribution du nombre de particules en fonction de leur taille et pour une masse donnée. Plusieurs masses de particules ont été échantillonnées entre 0,01 fg et 2,0 fg afin que les particules étudiées aient un diamètre compris entre 30 et 150 nm.

Pour ces expériences, les résultats de masse volumique effective ont été obtenus avec un fonctionnement nominal de la chaudière défini au début du projet. Pour faciliter l'analyse, les distributions obtenues en sortie du DMA-CPC sont modélisées par une distribution log-normal, donnée par l'équation suivante :

$$\frac{dN(m_p)}{d \ln(d_{me})} = \frac{N_T(m_p)}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_{geo}(m_p)} \exp \left[\frac{-\left(\ln d_{me} - \ln d_{m,geo}(m_p)\right)^2}{2(\ln \sigma_{geo}(m_p))^2} \right] \quad \text{Équation 3-4}$$

Où $N_T(m_p)$ est le nombre total de particules $d_{m,geo}$ est le « *mode diameter* » (nm) et σ_{geo} est l'écart-type géométrique,

Un exemple d'application de l'équation 3-4 peut être vu sur la Figure 3-24. La ligne bleue continue représente les valeurs ajustées et les points noirs les valeurs mesurées à la sortie du DMA-CPC. Dans l'exemple de cette figure, la masse de particules sélectionnée par le CPMA est de 0,15 fg, ce qui correspond à une masse volumique de 1650 kg/m³. L'ajustement permet de déterminer les paramètres N_T , $d_{m,geo}$ et σ_{geo} .

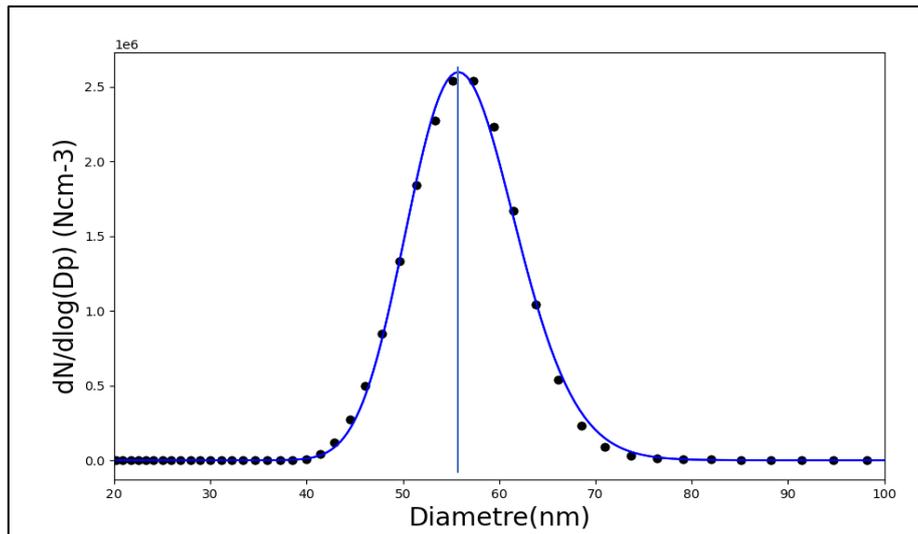


Figure 3-24. Exemple de distribution log-normale mesurée par le SMPS (points noirs) pour une sélection en masse $m_p = 0.15$ fg fixée par le CPMA. L'ajustement (courbe bleue continue) correspond à une distribution ayant un mode égal à 57,5 nm.

Dans certains cas, comme ceux étudiés par (Lefevre, 2019), il a été possible de trouver une bimodale. Celle-ci est liée au fait que certaines particules parvenant à traverser le CPMA sont chargées deux fois. Le CPMA laisse passer uniquement les particules qui ont un rapport masse/charge constant, en conséquence, les particules portant deux charges électriques détectées par le SMPS sont plus massives que celles n'ayant qu'une seule charge.

Dans le cas d'étude de cette thèse, les distributions sont principalement monomodales. Pour quelques-unes d'entre elles, cette mono-modalité n'est pas toujours observée. Par exemple sur la Figure 3-25-A, on voit un mode bien défini à 130 nm mais aussi un petit épaulement à 100nm. Parmi toutes les distributions étudiées, seules quelques-unes présentent ce phénomène. C'est pourquoi il a été décidé de ne prendre en compte que le pic principal, étant donné qu'un ajustement bimodal est difficile, tel que cela est mis en évidence sur la Figure 3-25 B).

Remarque importante : Dans le calcul de la masse volumique effective pour une sélection de masse, le diamètre de mobilité considéré est le diamètre modal (c.a.d. le diamètre du maximum de la distribution).

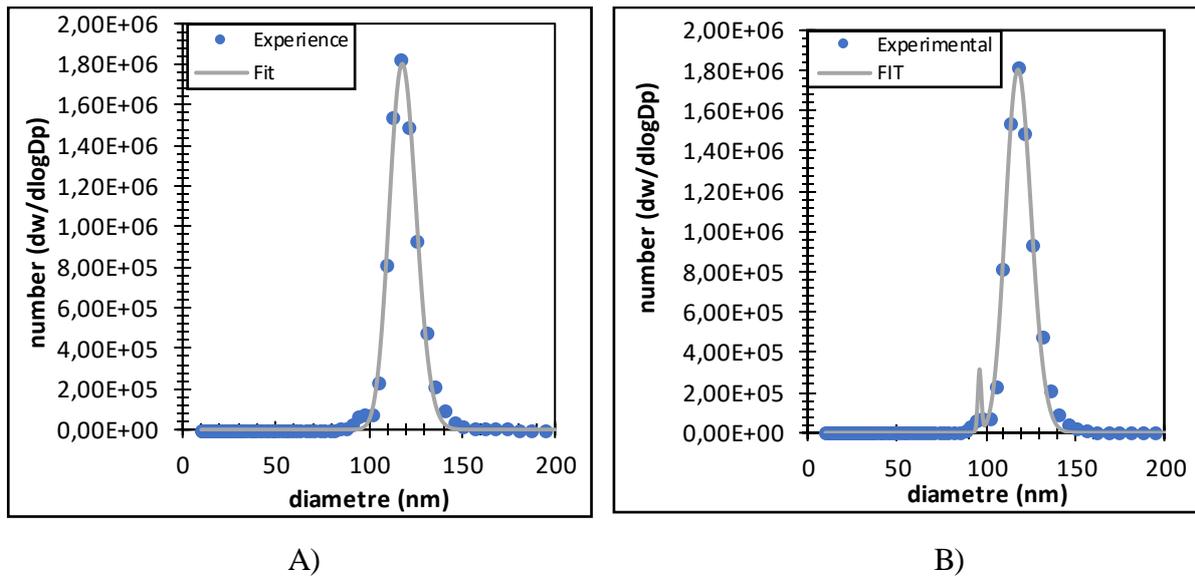


Figure 3-25. a) à gauche, courbe log normale ajustée monomodale b) courbe log normale ajustée avec une bimodale

Résultats obtenus

Par la suite, les valeurs obtenues pour la masse et le diamètre ont servi à faire les calculs de masse volumique effective (Équation 3-3) pour les particules produites par la combustion de la biomasse (bois). Les mesures ont été répétées pour trois tests réalisés sur des jours différents, afin de s'assurer de la répétabilité du fonctionnement de la chaudière et de la mesure. Les conditions de fonctionnement de la chaudière sont une alimentation de 1,5 gr/s et une puissance de 21kW. La masse volumique effective des particules peut être observée sur la Figure 3-26. On s'aperçoit que la masse volumique effective se comporte différemment en fonction du diamètre selon trois classes : 20-50nm; 50-80nm et > 80nm.

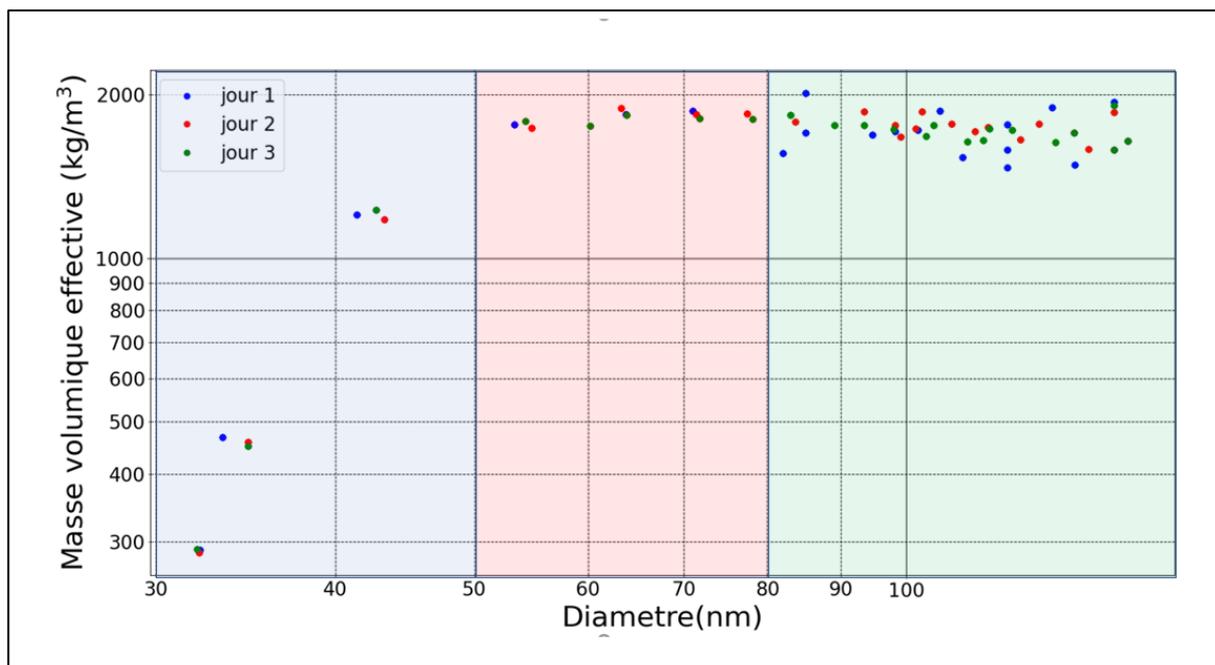


Figure 3-26. Valeurs de masse volumique effective calculées avec le couplage SMPS-CPMA-CPC pour les aérosols provenant de trois tests différents.

Classe des petits diamètres 20-50nm

Pour cette classe, on observe sur la Figure 3-26 un accroissement de la masse volumique effective avec le diamètre. Cela pourrait être expliqué par la composition et la nature des particules. Les aérosols provenant de la combustion de la biomasse sont un mélange de particules parmi lesquelles on trouve des sels, des suies et des composés organiques. Les sels (typiquement de potassium, sodium, chlore et sulfure (Kuuluvainen, 2015) ont des masses volumiques dans la gamme $1500 - 3000 \text{ kg/m}^3$. Ensuite, on trouve les suies dont les masses volumiques sont dans la gamme $1600-2000 \text{ kg/m}^3$ (Ouf, et al., 2019) et enfin des composant organiques de plus faibles masses volumiques ($790 \text{ kg/m}^3 - 1530\text{kg/m}^3$) (Chakrabarty, et al., 2010). Il est possible que pour les petits diamètres, il y ait une concentration forte en composés organiques qui diminuerait au fur et à mesure que le diamètre augmente, ce qui entrainerait une augmentation de la masse volumique effective avec la taille. Cependant, on relève sur la Figure. 3-26 des valeurs de masse volumique inférieures à 500 kg/m^3 , et donc bien plus faible que les valeurs des composés organiques telles que proposées par (Chakrabarty, et al., 2010).

La deuxième explication serait liée à un couplage taille-morphologie. En effet, la loi de Stokes, utilisée pour interpréter la sélection de diamètre de mobilité dans le DMA, est basée sur l'hypothèse de la forme sphérique de la particule. Pour les particules non sphériques, la force

de traînée dépend de la forme de la particule et de son orientation dans l'écoulement. Pour tenir compte de la non-sphéricité, on introduit un facteur de correction appelé facteur de forme dynamique X et donné par l'équation suivante :

$$X = \frac{F_D}{F_{DVE}} \quad \text{Équation 3-5}$$

Il est défini comme le rapport entre la force de traînée s'appliquant sur une particule non sphérique (F_D) et celle qui s'applique sur une sphère de même volume (de la particule non-sphérique) (F_{DVE}), pour une même vitesse relative de déplacement V .

Examinons si les plus faibles valeurs de masse volumique effective (observées autour de 290 kg/m^3) peuvent s'expliquer par une morphologie non sphérique. En considérant que les plus petites particules (ici 32 nm) sont majoritairement constituées des particules de plus faible masse volumique autour de 790 kg/m^3 et présentant une morphologie cylindrique de rapport d'aspect de 10 (longueur sur diamètre), ce qui correspond à un facteur de forme $X=1,5$, le diamètre de la section du cylindre associé à un diamètre de mobilité électrique de 32 nm serait $10,5 \text{ nm}$. Le volume de ce cylindre serait alors de 9150 nm^3 et sa masse serait alors de $0,08 \text{ fg}$. La masse volumique associée devrait donc être de 421 kg/m^3 . Ainsi, mêmes pour les composés les moins denses supposés très anisotropes, la masse volumique effective reste trop éloignée pour expliquer nos mesures. Pour les particules de plus grand diamètre, des travaux tels que ceux publiés par (Zhai, et al., 2017), montrent des facteurs de forme allant jusqu'à 2,2. Cependant, il semble peu probable que des composés organiques de si petite taille présentent de telles morphologies.

Enfin, la possibilité d'un « *coating* » organique sur les plus petites particules peut également être considérée. Considérant que les sphères sont constituées d'éléments de masse volumique ρ_e dont la fraction volumique est notée f_{ve} , encapsulés dans une enveloppe de masse volumique ρ_g . Dans ce cas, la masse volumique effective devrait suivre la relation suivante :

$$\rho_{\text{eff}} = f_{ve}(\rho_e - \rho_g) + \rho_g \quad \text{Équation 3-6}$$

Ce résultat indique que la masse volumique effective ne peut être inférieure à la masse volumique du composé le plus léger. Les faibles masses volumiques observées pour des diamètres inférieurs à 50 nm sont difficilement explicables par une gangue organique de faible

masse volumique. En effet, même les composés organiques présents ont une masse volumique supérieure à 290 kg/m^3 .

Pour conclure, soit les petites particules sont réellement sphériques et alors elles correspondent à des éléments plus légers que les composantes organiques, soit, il y a un effet morphologique tel que décrit précédemment. Pour aller plus loin dans cette analyse, un thermodenudeur avec une température de $200 \text{ }^\circ\text{C}$ a été placé avant le dispositif de prélèvement (FPS), de manière à éliminer en parties les composants organiques. L'ajout de ce thermodenudeur peut relever légèrement la masse volumique des plus petites particules, en évaporant les matières organiques condensées. La Figure 3-27 présente les résultats de masse volumiques effectives avec et sans thermodenudeur. Ils confirment l'existence d'éléments légers volatiles dans les particules. Cependant, même avec un thermodenudeur, des faibles masses volumiques sont toujours observées ainsi que leur croissance avec le diamètre de mobilité.

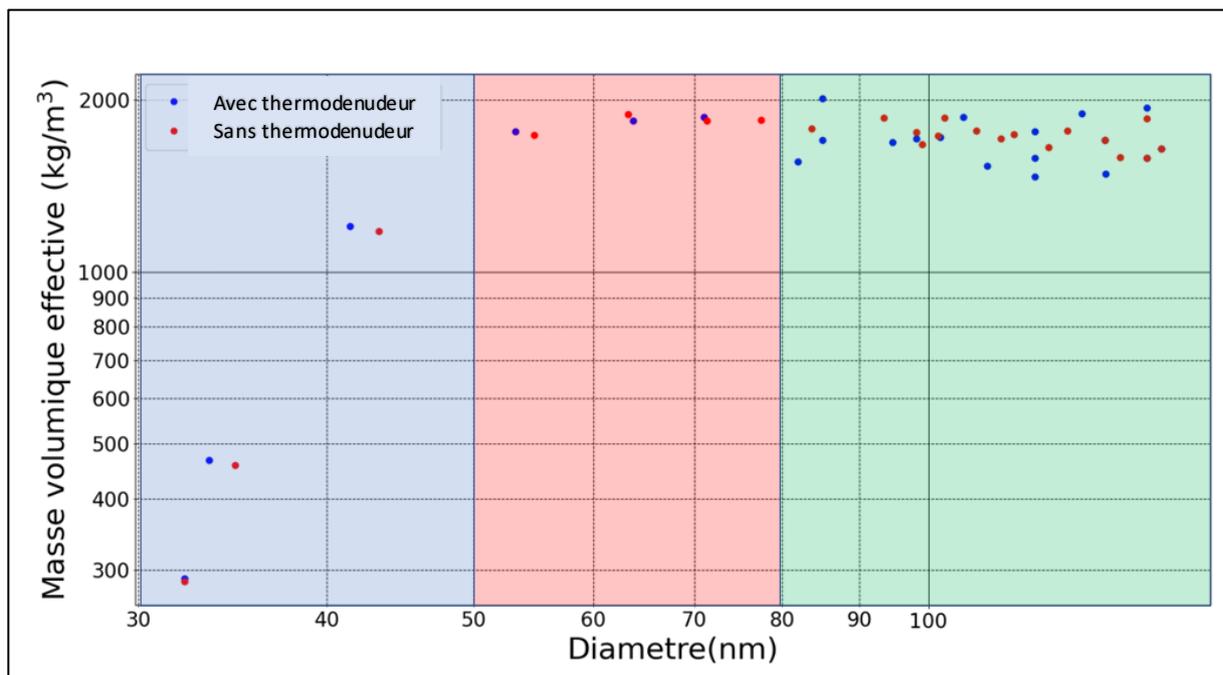


Figure 3-27. Valeurs de la masse volumique effective calculé avec les résultats du couplage SMPS-CPMA-CPC pour les aérosols provenant de la combustion de la biomasse en utilisant un thermodenudeur (points bleus) et sans utiliser un thermodenudeur (points rouges).

Bien sûr, il est également possible que les faibles masses volumiques soient dues à un problème de matériel ou de mesure. La calibration à l'aide des billes de latex a été menée à 200

nm, ce qui est pourrait être trop éloigné des plus petits diamètres mesurés. Cependant, d'autres auteurs ont relevé le même comportement et de faibles valeurs de masses volumiques effectives avec des protocoles de mesure différents. Leskinen. et al, (Leskinen, et al., 2014) et Tajima et al. (Tajima, Fukushima, Ehara, & Sakurai, 2011), ont utilisé un « *Automatic Particle Measurement* » (APM) à la place du CPMA, et concluent sur une mise en cause la validité de la mesure aux petits diamètres.

Cependant, cet artéfact aux petits diamètres semble être limité dans le cas d'un CPMA. En effet, ce dernier repose sur un principe de rotation différentielle des deux cylindres pour augmenter la précision aux plus petits diamètres mesurés. De plus, le même protocole de mesure a été appliqué pour la mesure des particules de suie avec un CPMA (Yon, Bescond, & Ouf, 2015) et aucune décroissance n'a été observée pour les diamètres inférieures à 50nm contrairement au comportement observé dans ce travail.

Classe des diamètres moyens 50-80nm

La deuxième zone de la courbe de masse volumique effective correspond à un plateau couvrant la gamme de 50 à 80 nm. L'existence d'une masse volumique effective constante est caractéristique des particules possédant une forme sphérique. Le plateau est associé à une masse volumique de l'ordre 1800 kg/m^3 . Cette valeur est proche de celle du graphite ou de la suie. (Zhai, et al., 2017) et (Lide, 2004) ont montré que cet ordre de grandeur de masse volumique effective est associé principalement à de cristaux de chlorure de potassium. Il est également possible qu'il s'agisse d'éléments plus denses (tels que des sels) enrobés dans une structure moins dense comme des composants organiques. Les illustrations MET présentées ci-après confirmeront la morphologie sphérique et l'hétérogénéité de la matière des particules.

Classes de diamètres supérieurs à 80nm

La troisième zone de la Figure 3-26 correspond à une décroissance linéaire en représentation log-log de la masse volumique effective en fonction du diamètre. Ce comportement peut correspondre à une morphologie fractale associée à l'observation d'agrégats de nanoparticules, Il est particulièrement bien documenté pour les particules de suie (Leskinen, et al., 2014), (Yon, Bescond, & Ouf, 2015). Cette décroissance pour les particules issues de la combustion de la biomasse a également été observée par d'autres auteurs (Peng, et al., 2021), (Spencer, Shields, & Prather, 2007). (Leskinen, et al., 2014), a en particulier pu

observer une décroissance encore plus marquée pour des particules de diamètres de mobilité supérieurs à 200 nm, gamme non observable dans la présente étude. Les analyses de clichés MET confirmeront cette hypothèse sur la morphologie d'agrégats pour les grands diamètres.

3.4.2. Validation des masses volumiques effectives mesurées grâce à la conversion Dm/Da

La section précédente a révélé des variations de la masse volumique effective avec des valeurs faibles par rapport à la composition attendue des particules issues de la combustion de la biomasse, notamment en ce qui concerne les petits diamètres. Quelques interrogations demeurent donc sur la validité de ces mesures. Afin de conforter nos résultats, nous avons entrepris une validation reposant sur la comparaison des distributions de taille obtenues avec le SMPS et l'ELPI.

Les diamètres de mobilité et aérodynamique ont été défini dans le chapitre 2. Ces deux diamètres peuvent être différents pour une même particule, l'écart étant expliqué par une masse volumique différente de la valeur de référence (1 g/cm^3) et par une morphologie non sphérique. Ces deux diamètres sont liés par la masse volumique effective et à partir de l'équation définissant le rapport entre Dm et Da (Yon, Bescond, & Ouf, 2015). On peut déduire l'équation suivante :

$$\rho_{\text{eff}} d_{\text{me}}^2 C_c(D_m) = \rho_0 d_a^2 C_c(D_a) \quad \text{Équation 3-7}$$

Où :

d_a est le diamètre aérodynamique de la particule (m).

d_{me} est le diamètre de mobilité (m).

$\rho_0 = 1 \text{ g/cm}^3$, est la valeur de référence de la masse volumique.

C_c est le facteur correctif de Cunningham.

Afin d'utiliser la formule de conversion Dm/Da donnée ci-dessus, il faut connaître les valeurs de ρ_{eff} . Pour déterminer les valeurs de ρ_{eff} , les valeurs expérimentales, données sur la Figure 3-26, ont été corrélées à l'aide de l'équation 3-8. La Figure 3-28 reporte les valeurs expérimentales et les valeurs calculées à partir de l'équation ci-dessus.

$$\rho_{\text{eff}} = \left(\frac{a * c * \sqrt{2\pi}}{2 * d * \text{EXP} \left(\frac{(b-x)}{d} + \frac{c^2}{2d^2} \right)} \right) \left(\frac{d}{|d|} - \text{erf} \left(\frac{(b-x)}{\frac{\sqrt{2}}{c} + \frac{\sqrt{2}}{d}} \right) \right)$$

Équation 3-8

avec a = 73907; b = 39,309 c = 7,4368 d=3,264

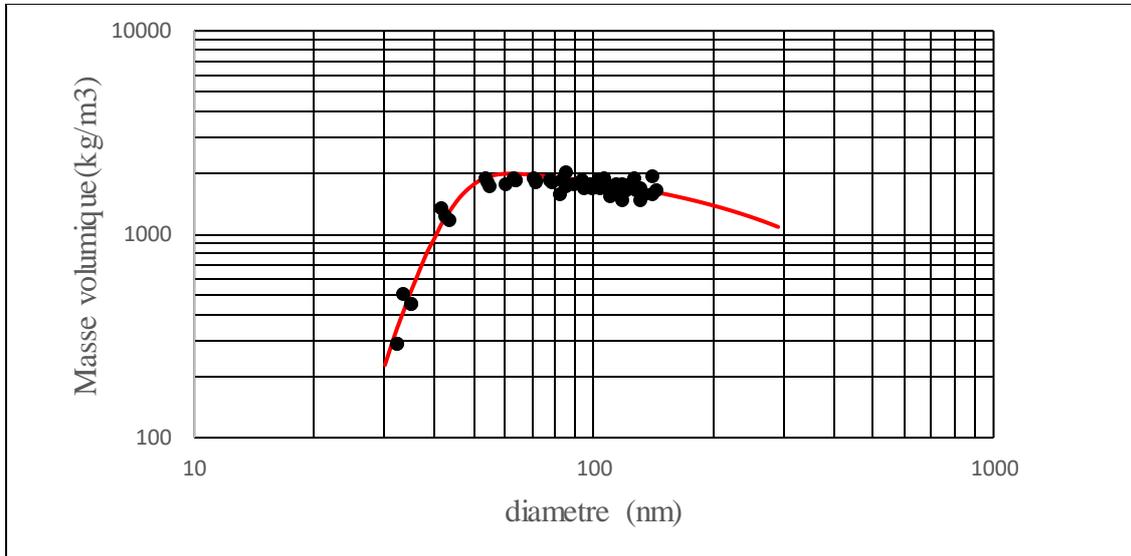


Figure 3-28. Masse volumique effective en fonction du diamètre des particules. La courbe rouge, correspond au modèle empirique utilisé pour l'estimation de la masse volumique effective; les points noirs, correspondent aux valeurs expérimentales

Sur la Figure 3-29 la distribution SMPS exprimée en diamètre de mobilité électrique (en vert), et la distribution mesurée à l'aide d'un ELPI exprimée en diamètre aérodynamique (avec les symboles) sont présentées. La courbe rouge représente quant à elle la conversion de la distribution SMPS en distribution ELPI à l'aide de l'équation Équation 3-7. On observe un très bon ajustement entre la mesure des diamètres aérodynamiques (symboles) et la conversion de la mesure SMPS (courbe rouge) pour les diamètres compris entre 10 et 160 nm. Cependant, à partir d'environ 160 nm, le modèle sous-estime les valeurs par rapport à la mesure ELPI. Au-delà de 160 nm, la queue de la distribution repose sur une extrapolation importante de la mesure de masse volumique effective. Mais malgré ce désaccord aux grands diamètres, cette analyse renforce la confiance que l'on peut avoir sur les résultats de masse volumique effective obtenus aux petits diamètres.

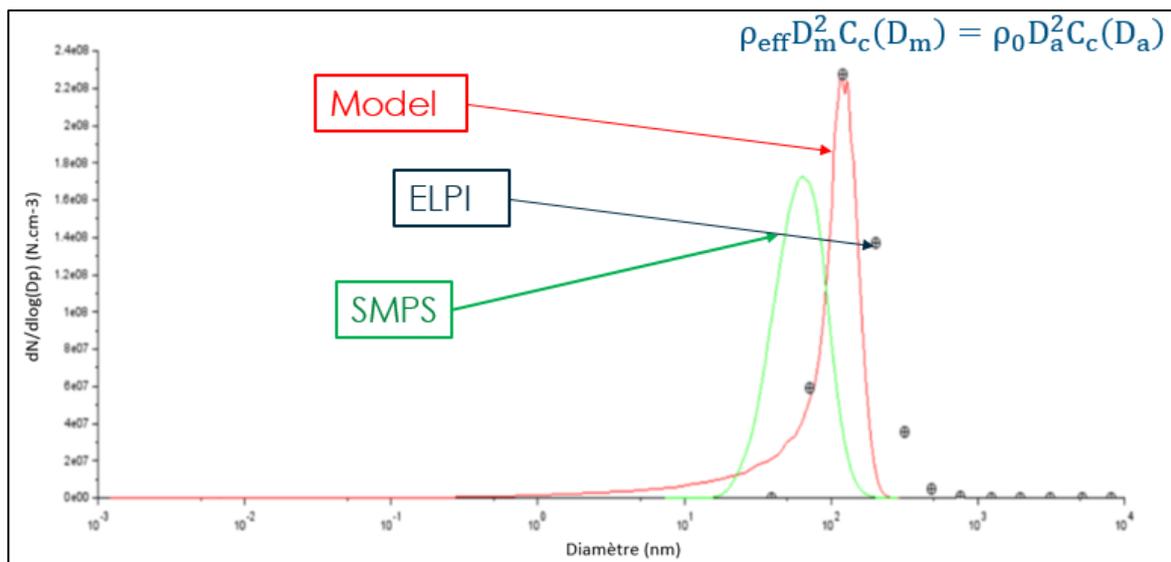


Figure 3-29. Valeurs du diamètre aérodynamique calculées avec le modèle de conversion (courbe rouge), à partir du diamètre de mobilité électrique mesuré par le SMPS (courbe verte) et comparées au diamètre aérodynamique mesuré par l'ELPI (points noirs).

3.4.3. Analyse des clichés obtenus au microscope électronique à transmission

Comme présenté dans le chapitre 2, des prélèvements sur des grilles ont permis d'obtenir des clichés des particules au microscope électronique à transmission (TEM). Dans ce qui suit, une analyse des images obtenues séparées par taille sera effectuée. A travers l'analyse de ces images, nous allons essayer de comprendre le comportement de la masse volumique effective observée précédemment.

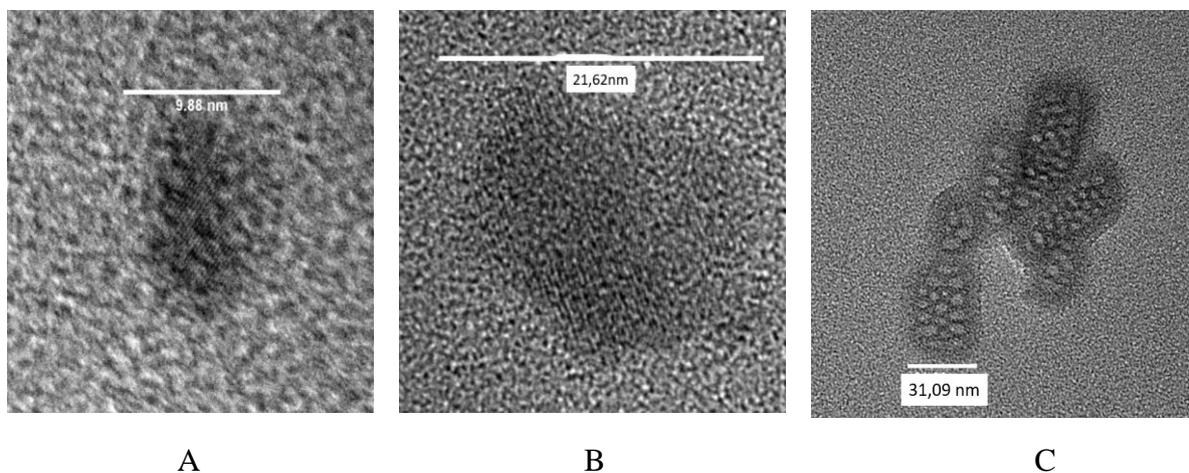


Figure 3-30. Image des particules de petite taille observées dans les images MET.

La Figure 3-30 présente les plus petites particules observées sur les images MET réalisées pendant cette thèse. On observe ici deux morphologies différentes. Des nano objets de taille variable présentant une certaine uniformité et un alignement atomique (lignes diagonales liées à la microstructure (sur les figures A et B). Ces particules sont observées par (Tissari, et al., 2008). Ces auteurs montrent que ce sont des sels avec (parfois) quelques nucléides de plusieurs oxydes (Zn, Fe, ...). Sur la Figure 3-30 C) on voit une structure qui semble être une agglomération de nanocristaux. Des structures similaires ont déjà été relevées et associées à des résidus de type cendre (Torvela, et al., 2014). Ces deux types de particules sont dans la gamme des diamètres où a été observée la croissance de la masse volumique effective avec le diamètre. On observe dans l'image C que les particules ne sont pas toujours sphériques. Cela confirme que la non-sphéricité peut avoir une influence sur les mesures de la masse volumique effective des particules de petits diamètres. L'analyse des mesures de masse volumique effective montre que ces particules sont constituées d'éléments légers et qui résistent au vide du microscope électronique.

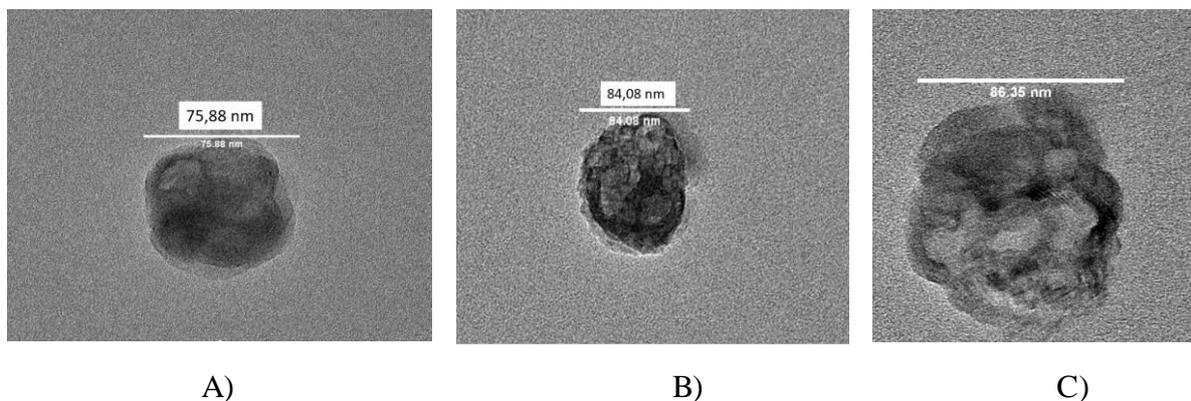


Figure 3-31. A) B) C) exemple de particules de taille intermédiaire - image MET.

La Figure 3-31 présente des particules correspondant à la taille intermédiaire (50-80 nm, seconde zone de la Figure 3-26). Ces particules sont en effet très nombreuses sur les grilles de prélèvement et correspondent aux diamètres modaux observés dans les distributions SMPS et ELPI. Tel qu'attendu lors de l'analyse de masse volumique effective (plateau de la zone 2), ces particules sont assez sphériques. Cependant, la composition semble variable. En effet, la particule de la Figure 3-31 A) semble relativement amorphe et homogène alors que l'image B révèle des hétérogénéités marquées par des objets clairs à facette (certainement des sels) encapsulés dans une phase plus sombre et amorphe.

Les images de la Figure 3-30 et 3-31 ressemblent à ce qui a été observé dans l'étude de Liu (Liu, et al., 2017) pour d'autres combustibles (*blé, maïs, coton, pommier,...*), ainsi que pour des particules prélevées dans l'atmosphère par Xu (Xu, et al., 2017).

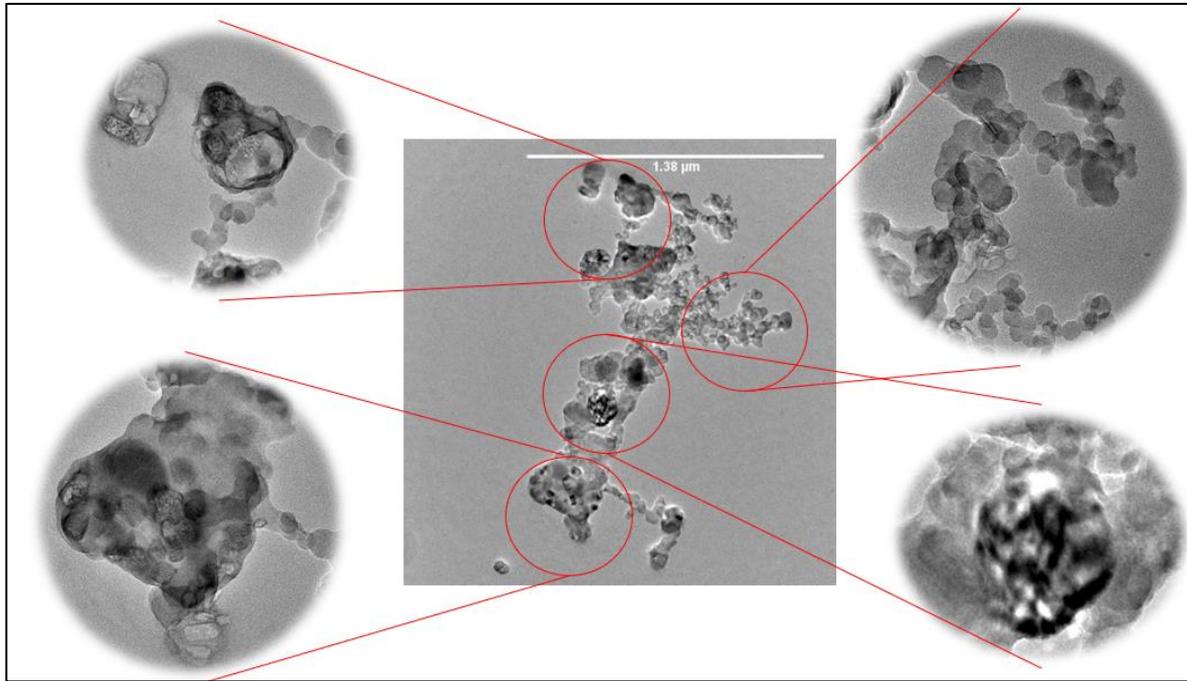


Figure 3-32. Un exemple de grosse particule recueillie sur les grilles TEM.

Enfin, la Figure 3-32 présente un exemple parmi les plus grosses particules prélevées. La taille de ces particules est bien supérieure à la gamme couverte par la mesure de masse volumique effective. Il s'agit d'un agrégat d'objets très hétérogènes. En effet, cette image peut être découpée en plusieurs parties telles que représentées par les cercles rouges sur la Figure 3-32. Dans la partie supérieure droite, on observe un agrégat typique de la suie, avec des sphérules primaires de diamètre de l'ordre 20 nm. Sur la partie supérieure gauche, on observe des structures plus cristallines et cubiques typiques des sels rencontrés dans les cendres (Liu, et al., 2017), (Xu, et al., 2017). En bas à droite, on retrouve des structures optiquement plus denses, également rencontrés dans les cendres. En effet, (Liu, et al., 2017) attribuent à ce type d'éléments une origine minérale ou du KCl pour son cas spécifique d'étude. Enfin, on retrouve dans la partie inférieure gauche des inclusions semblables à ce que nous avons observé dans la Figure 3-30 C) et qui se retrouvent encapsulées dans une sorte de gangue. L'ensemble forme un agrégat. Cette agrégation de structures plus fines correspond à la décroissance de la masse volumique effective dans la zone 3 du graphique de la Figure 3-26, c'est-à-dire pour des diamètres de mobilités supérieurs à 80 nm. En effet, pour les agrégats fractals, la masse

volumique effective décroît en loi de puissance de type $d_m^{\alpha-3}$ avec α le facteur d'échelle lié à la dimension fractale (Yon et al, 2014). Ces particules de grande taille présentent des masses importantes et sont largement déposées dans la chaudière par inertie sur les parois, sur les conduites, dans l'échangeur de chaleur ou finalement interceptées par le cendrier. Il est donc peu probable de les retrouver dans l'effluent gazeux en sortie de chaudière. Ceci explique qu'elles sont peu observées par le granulomètre ELPI (Figure 3-4).

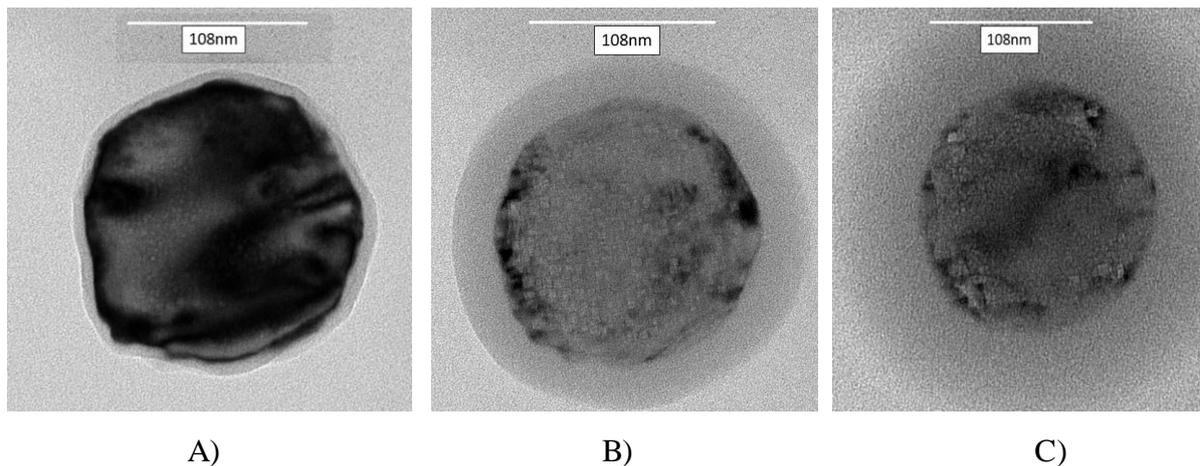


Figure 3-33. Image MET d'une même particule observée eu cours du temps. Figures A à C, on observe que le « coating » organique qui s'évapore au cours du temps.

Une gangue de composés organiques de quelques nanomètres d'épaisseur est fréquemment observée, par exemple sur la fig. 3-33 A, elle correspond à la mince zone gris clair enveloppant la particule. Si des composés organiques condensés sont présents sur les particules de petits diamètres, ils doivent résister au vide poussé du MET. Mais, elle n'est pas stable sous le faisceau d'électron à haute énergie (voir les trois clichés successifs A à C dans la Figure 3-33 pour une particule de l'ordre 100 nm de diamètre). On peut émettre l'hypothèse que cette gangue se forme probablement après la combustion des gaz dans les zones de plus faibles températures grâce à la condensation en surface des composés organiques imbrulés, avec une épaisseur de dépôt constante (de l'ordre de 1 à 6 nm). L'impact de cette gangue sur la masse volumique effective est d'autant plus important que les particules sont fines, ce qui peut conduire à une masse volumique proche de celle de la matière organique entre 700 et 1000 kg/m^3 (Équation 3-6). Ceci est en accord avec la discussion précédente sur la croissance de la masse volumique effective dans la zone 1 de la Figure 3-26.

3.4.4. Conclusions

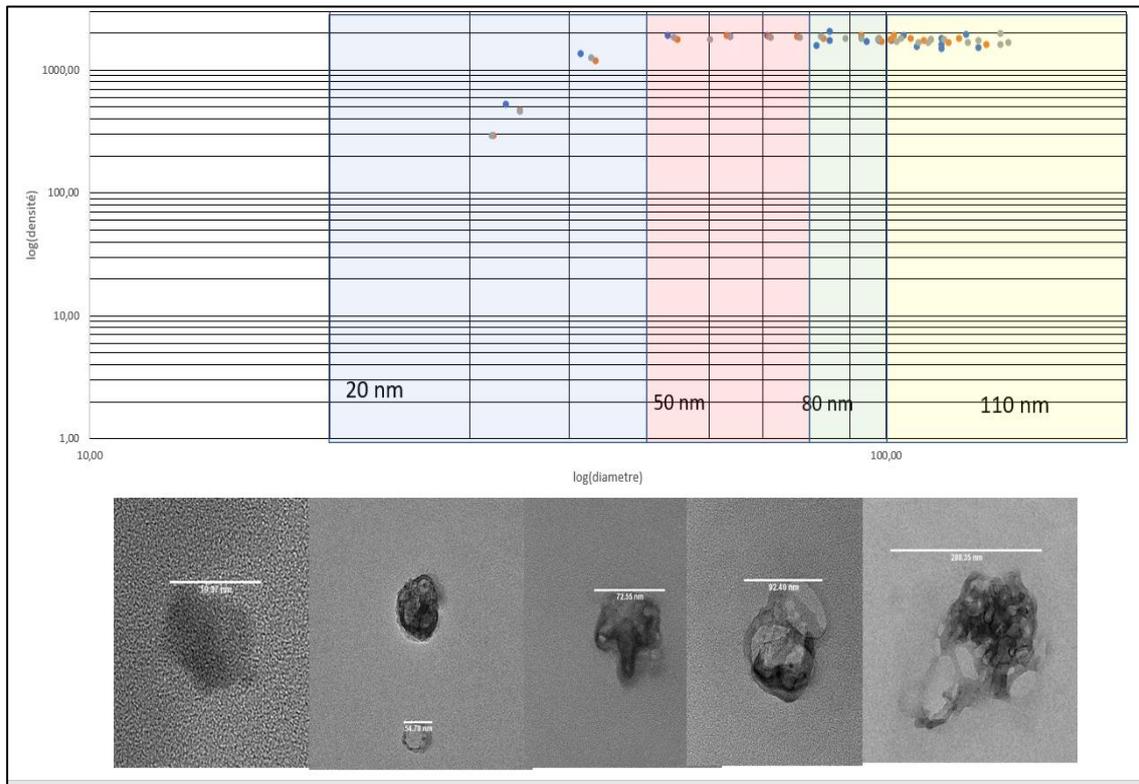


Figure 3-34. Morphologie des particules en fonction de leur masse volumique effective.

Dans cette section, nous nous sommes intéressés à la caractérisation des particules en sortie de chaudière lors de la combustion de pellets de bois. Cette caractérisation repose sur des mesures de distributions de taille avec un SMPS et un ELPI, sur la mesure de masse volumique effective et sur l'analyse de clichés MET. Ces trois approches sont complémentaires et permettent une bonne compréhension de la composition et de la structure des particules ainsi émises par les chaudières à pellets. On observe des distributions monomodales de type log-normale dont le mode est situé autour de 50 nm et 70 nm pour respectivement les diamètres de mobilité et aérodynamique. On n'observe pas dans l'effluent de particules de tailles supérieures au micron, si celles-ci sont formées dans le foyer de combustion, elles sont probablement déposées à l'intérieur de la chaudière dans le cendrier principal. Les images MET ont révélé une composition complexe constitué de trois éléments principaux du carbone suie, des cristaux sels et des nano-objets de taille typique 20 nm oblongs et hétérogènes. L'ensemble peut être recouvert d'un composé organique qui résiste au vide du microscope mais pas au flux d'électron. Les plus petites particules sont non sphériques et composées d'éléments légers. Les particules de tailles comprises entre 50 et 80 nm sont plutôt sphériques, mais peuvent présenter

des microstructures différentes, homogènes ou hétérogènes avec inclusions de cristaux. La masse volumique de ces objets est de l'ordre de 1800 kg/m^3 , résultant d'un mélange de composés organiques et de sels plus denses. Ces particules sont les plus abondamment rejetées par la chaudière. Au-delà de 80 nm, on rencontre des agrégats fractals constitués des éléments mentionnés ci-avant.

Chapitre 4 Utilisation d'autres biomasses (miscanthus et paille)

Dans ce chapitre, nous allons étudier la possibilité d'utiliser d'autres types de biomasse pour un usage domestique, le miscanthus et la paille. L'une est utilisée directement comme culture énergétique (miscanthus) et l'autre est un sous-produit d'une culture utilisée pour l'alimentation (paille). Elles pourraient être une alternative à l'utilisation du bois « énergie » comme combustible. Des études ont déjà montré que l'efficacité d'autres types de biomasse peut être comparable à celle du bois (Elmay, Trouvé, Jeguirim, & Said, 2013). Dans ce paragraphe, on présente les principales émissions produites dans les fumées issues de la combustion de ces biomasses. De même, les paramètres thermiques du fonctionnement de la chaudière avec ces combustibles sont présentés et étudiés. Enfin, une analyse des particules produites par la combustion du miscanthus sera effectuée (masse volumique effective et images MET).

4.1.Fonctionnement nominal de la chaudière avec le miscanthus, la paille et le bois.

Comme on l'a vu au début du chapitre 3, il est important d'analyser le fonctionnement de la chaudière dans des conditions nominales, ce qui permettra d'avoir une référence lorsqu'on fait varier des paramètres de fonctionnement. Il a été constaté que le fonctionnement avec le miscanthus a été réalisé sans problème dans cette chaudière domestique. Par contre, en utilisant la paille comme combustible, il est apparu plusieurs problèmes lors de la combustion et avec la formation de résidus correspondant à un processus de fusion des cendres, « *sintering* », dans la chambre de combustion de la chaudière (Llorente & García, 2005). Il est bien connu que l'apparition de ce phénomène est dû au point de fusion des cendres qui apparaît à des températures peu élevées (600-700 °C). Ce phénomène est dû au grand contenu d'alcalins dans les cendres et à la quantité importante de cendres produites comme vu dans les Tableau 4-1 et Tableau 4-2. Ces tableaux donnent un résumé des valeurs trouvées dans (Riaza, Ajmi, Gibbins, & Chalmers, 2017)(Colom-Díaz, Alzueta, Fernandes, & Costa, 2019), (Ge, Xu, Vasco-Correa, & Li, 2016), (Gonzales, 2011), (Kaczyński, Kaczyńska, & Pełka, 2007), (Sher, Pans, Sun,

Snape, & Liu, 2018), (Tumuluru, 2015), (Nelson, Park, & Hubbe, 2018) et (Moutsoglou, 2012), et en rouge les valeurs mesurées pour cette thèse. Dans ces tableaux, on peut voir un résumé de l'analyse de la composition de la biomasse, pour différents types de biomasses. Le fond bleu met en avant les biomasses utilisées dans ce travail et les valeurs en rouges, les grandeurs mesurées pendant cette thèse. Le problème avec la formation de fondant (mâchefer) a été découvert lors de l'inspection de la chambre de combustion de la chaudière (avec de la paille) après que la chaudière ait soudainement cessé de fonctionner (la flamme s'éteint). Hardy montre le même effet pour la combustion du miscanthus, signifiant qu'il est possible que ce phénomène se soit aussi produit avec le miscanthus dans la chaudière mais moins fortement comparé au cas de la paille: La Figure 4-1 (a-c) montre un résumé des résultats de (Hardy, 2012), et une image du type de résidu trouvé pour cette thèse (Figure 4-1 d).

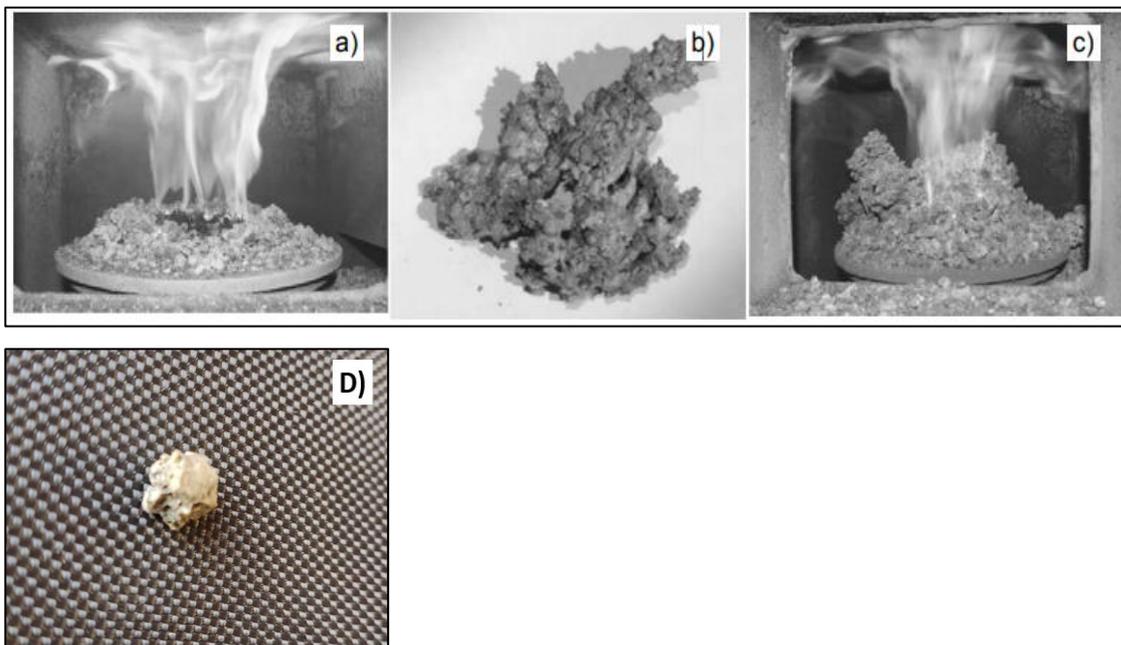


Figure 4-1. Images du four utilisé par (Hardy, 2012) avec différentes biomasses : A) granulés de blé, B) et C) granulés de miscanthus. D) Exemple de résidu trouvé dans la chaudière dans cette étude.

Cependant, avec les pellets de paille, il a quand même été possible d'obtenir une moyenne des températures et des émissions pendant la période où le système a fonctionné de manière stable. Les valeurs des paramètres de fonctionnement et des émissions peuvent donc être présentées pour les trois biomasses, pour la vitesse maximale de la vis sans fin. Cette vitesse

maximale représente pour le bois 1,5 g/s, et pour le miscanthus 1,4 g/s. Ces valeurs sont proches car les masses volumiques des pellets sont proches (1250 kg/m³ bois et 1150 kg/m³ pour le miscanthus). Pour la paille, en raison de sa masse volumique légèrement inférieure (proche de 1000 kg/m³, la vitesse maximale de la vis sans fin permet d'alimenter la chaudière avec un débit massique de 1,2 g/s. Remarque : les valeurs de masse volumique ont été déterminées expérimentalement en mesurant pour plusieurs pellets leur masse et leur volume (diamètre de 6mm).

Comme on peut le voir sur la Figure 4-2. ou dans le Tableau 4-3, le bois occasionne les niveaux de température de sortie de l'eau de la chaudière les plus élevés pour la même vitesse de rotation de la vis sans fin (Maximale 100%). Ce résultat est attendu car la chaudière est conçue pour fonctionner avec des pellets de bois et c'est aussi la biomasse la plus utilisée pour cette application en raison de ses qualités. On peut observer de la même manière que les paramètres pour la paille ont des écarts types élevés par rapport aux autres. Cela pourrait être dû au fonctionnement difficile de la chaudière pendant les tests avec la paille. Il n'a pas été possible d'atteindre 30 minutes de régime permanent car la chaudière s'arrêtait avant, les valeurs présentées dans le Tableau 4-3 ont été obtenues sur une durée de fonctionnement de 20 minutes.

Les résultats montrent qu'il y a peu de différence entre les 3 biomasses concernant les températures de l'eau en entrée et sortie de chaudière. Les températures de sortie sont légèrement plus hautes pour le bois, puis le miscanthus et enfin plus faibles pour la paille. Cette tendance est en accord avec le PCI (donné dans le tableau 4.1) et le débit massique de chaque biomasse utilisée. En revanche, la tendance est différente pour la température des fumées. Pour la paille, la valeur est entre celles du bois et du miscanthus. Mais, comme on peut le voir sur la Figure 4-2 et le Tableau 4-3, l'écart type de cette valeur pour la paille est grand. Cela veut dire que la stabilité du fonctionnement de la chaudière avec la paille n'était pas aussi bonne que dans le cas du bois ou du miscanthus. En résumé, les fonctionnements de la chaudière avec des pellets de miscanthus et de bois sont assez stables. En revanche, le fonctionnement avec de la paille est un peu irrégulier, au point de créer des agglomérats dans la chambre de combustion d'un matériau vitrifié dans les cendres, dues principalement à la quantité initiale en alcalins dans le matériau

Analyse immédiate (« <i>Proximate analysis</i> ») (Base sèche)					
Basis	Base humide	Base sèche			
Matériel	Humidité (% wt)	Cendres (% Wt)	Volatiles (% wt)	Fines (% wt)	PCI (MJ/kg)
Canne de maïs	4,0-6,1	4,8-7,3	75,6-80,9	14,1-15,2	17,7-18,1
Black pellet	7,2	4,2	76,07	19,73	20
Saule	3,1-11,1	1,0-2,0	70,0-81,9	13,8-19,4	17,9-19,8
Bagasse	48-50	2,91-3,2	83,7-84,6	11,8-13,1	9,8-17
Pin	6,65-10	0,2-2,5	76,6-85,7	14,1-17,2	17,5-18,6
Switchgrass	6,0-13,7	4,01-6,5	72,7-79,2	13,7-16,6	17,8-18,9
Roseau géant	35,0-42,1	2,2-8	58,4-80	11,4-19,0	17,0-18,9
Paille de blé	5,0-8,0	4,4	75,15	17,5-19,8	15,7
Miscanthus	6,4-9,1	2,9	82,06	5,6-15,4	16,5
Bois	5,5-7,8	1,5	80,43	8,16-17	17,4
Coal	6,4-8	8,9-16,5	32,3-36,9	29,4-58,6	26,7-28,9

Tableau 4-1. Récapitulatif de l'analyse immédiate « *proximate analysis* » des différentes biomasses. Les valeurs sur fond bleu correspondent aux trois biomasses utilisées.

Analyse ultime (« <i>Ultimate analysis</i> »)					
Basis	Base sèche				
Matériel	C (% wt)	H (% wt)	O (% wt)	N (% wt)	S (% wt)
Canne de maïs	43,6-43,9	5,6-6,01	40,4-43,3	0,42-0,61	0,07-0,1
Black pellet	50,79	5,6	39,5	0,19	N/A
Saule	49,1-50,2	5,9-5,9	41,9-43,7	0,1-0,4	0,0-0,03
Bagasse	45,4-49,2	4,7-6,0	43,0-45,2	0,15-0,18	0,02-0,01
Pin	46,4-51,6	5,8-6,1	41,8-45,0	0,06-1,27	0,01-0,03
Switchgrass	42,8-47,5	4,8-5,7	31,9-42,1	0,36-0,74	0,05-0,11
Roseau géant	40,3-49,4	5,3-6,4	42,0-53,1	0,2-0,5	0,07
Paille de blé	41,8-45,6	5,0-6,8	35,5-39,4	0,6-0,7	0-0,6
Miscanthus	44,7-48,6	5,9-6,7	39,8-46,8	0,3-0,57	0,77-0,20
Bois	46,08	6,42	47,50	<0,40	<0,40
Coal	63,4-73,5	3,5-4,9	5,7-8,6	1,3-2,4	0,2-0,3

Tableau 4-2. valeurs caractéristiques des principaux éléments de la matière des différentes biomasses, Les valeurs sur fond bleu correspondent aux trois biomasses utilisées et les chiffres en rouge aux valeurs mesurées pour cette thèse.

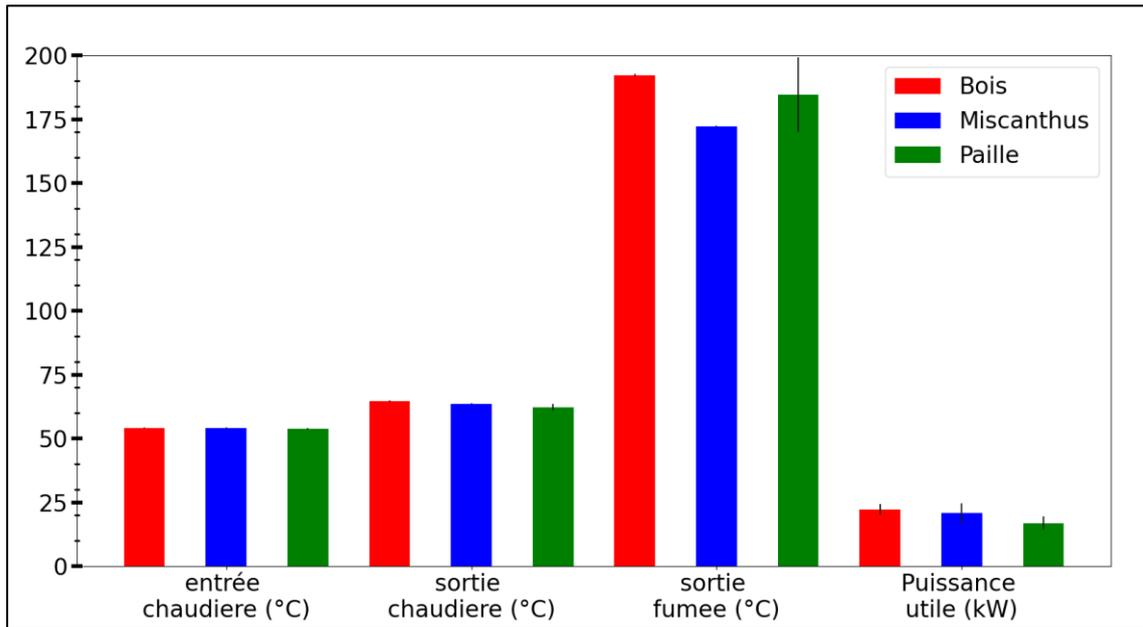


Figure 4-2. Valeurs obtenues pour les différents paramètres de la chaudière pour une alimentation à 100 % de la vis sans fin et avec les trois biomasses.

Variable	combustible	Valeur moyennes et écart type
Température entrée chaudière (°C)	bois	54 ± 1
	miscanthus	54 ± 1
	paille	54 ± 1
Température sortie chaudière (°C)	bois	65 ± 1
	miscanthus	64 ± 1
	paille	62 ± 1
Puissance utile (°C)	bois	22±1
	miscanthus	21 ± 0,5
	paille	17 ± 2
Température Fumées (°C)	bois	192 ± 2
	miscanthus	172± 4
	paille	190 ± 20

Tableau 4-3. Valeurs obtenues pour différents paramètres de la chaudière pour une alimentation à 100 % de la vis sans fin avec les trois biomasses.

4.2. Comparaison des émissions en CO et NOx

Dans ce paragraphe, les concentrations en NOx et CO provenant de la combustion des trois types de biomasse utilisés sont comparées. Tout d'abord, sur la Figure 4-3 et la Figure 4-5 une différence est clairement visible pour les moyennes des concentrations en CO; l'intermittence est plus élevée pour le miscanthus et la paille comparativement à celle observée pour le bois, qui a été étudié en détail dans le chapitre 3. L'intermittence et les variations du CO pour le bois, à 100 % de la puissance de la chaudière sont faibles par rapport aux cas des autres biomasses. Pour le miscanthus, l'écart-type devient plus grand que la moyenne. La production de CO est due à la distribution de l'air dans le lit de pellet, comme il a été vu dans le chapitre 3. Nous pourrions interpréter que, comme le montre le travail de (Hardy, 2012), le contenu en cendres du miscanthus est plus élevé que celle de bois, les hauts niveaux d'émission de CO du miscanthus peuvent être dus à la faible température de fusion de ses cendres (Monti, 2008). En produisant de cendres agglomérées qui, à leur tour, réduisent davantage les débits d'air et les températures dans la chambre de combustion, entraînant la perte de substances volatiles non brûlées (Jenkins, 1998). Comme montré par (Hardy, 2012), les teneurs en alcalins du miscanthus sont importantes et expliquent la production de CO en lien avec la formation des cendres. Ceci est moins évident pour la paille car les concentrations de CO dans les fumées sont moins intermittentes que celles pour le miscanthus, avec une concentration plus élevée en cendres. Un autre paramètre qui pourrait être lié à l'intermittence de la concentration de CO est la dureté des granulés de biomasse. En effet, la dureté des granulés de la paille est plus faible que celle des deux autres granulés, ce qui pourrait également favoriser la combustion en réduisant la taille des particules de combustible pendant qu'elles brûlent. En effet, les granulés se cassent et se décomposent plus facilement et la combustion des granulés se fait alors en plus petites grains. Comme indiqué au chapitre 1, la combustion des chars est un phénomène de surface et le fait d'avoir des particules plus petites favorise le dépôt d'oxygène à la surface et améliore la combustion du char. En résumé, en termes d'émissions de CO, le miscanthus se comporte moins bien que les autres biomasses tel que montré sur les Figure 4-3.

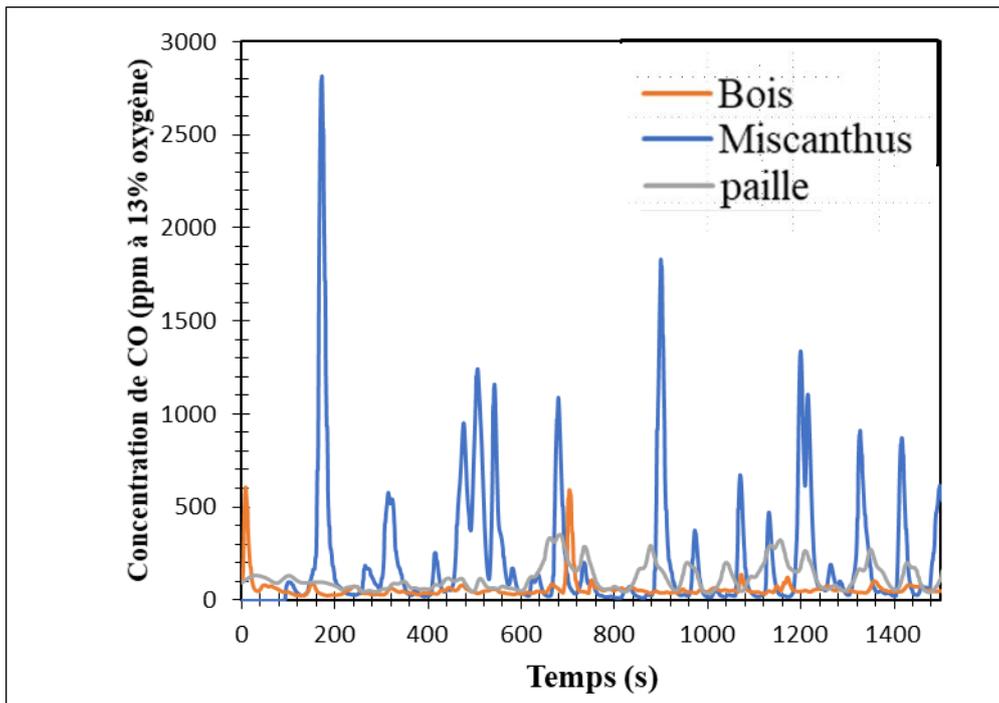


Figure 4-3. Concentration de CO en ppm corrigées à 13% pour les 3 différentes biomasses pour une alimentation en pellets de bois=1,5 g/s, miscanthus=1,4g/s et paille=1,2 g/s et un facteur d'air (λ) approximativement égal à 1,2 pour les 3 biomasses (Facteur d'air estimé à partir de l'air rentrant le foyer de combustion).

La Figure 4-4 et la Figure 4-5 présentent les émissions de NO_x. Les moyennes pour le miscanthus et la paille sont plus hautes que celles pour le bois. De plus, on observe des temps de stabilisation plus longs que pour le bois. Plusieurs facteurs peuvent influencer la production de NO_x dans les fumées. Comme nous l'avons déjà observé dans le chapitre 1 (Hewson & Bollig, 1996), l'un de ces facteurs est la température à laquelle la combustion a lieu. Les températures dans la chambre de combustion pour les biomasses de paille et de miscanthus sont inférieures à celle mesurée pour le bois. Cela pourrait réduire la quantité de NO_x-thermique produits. Mais, comme vu précédemment, la principale source de production de NO_x pour la combustion de la biomasse n'est pas le NO_x thermique, mais le NO_x-combustible, qui représente environ 80% de la valeur totale des NO_x produits dans les fumées (Glarborg, 2003). La concentration initiale d'azote dans les biomasses de paille et de miscanthus est plus élevée que pour le bois, comme ceci peut être vu dans le Tableau 4-2. Les valeurs du Tableau 4-2, pour le bois (en rouge) ont été mesurées dans cette thèse (comme mentionné dans le chapitre 2), mais pour le miscanthus et la paille nous n'avons pas eu l'opportunité de le faire et nous avons pris les données de la bibliographie. On peut voir qu'en moyenne, la concentration massique en

azote pour la paille et miscanthus est plus élevée que celle du bois. Cette augmentation de la quantité initiale de N dans la biomasse pourrait influencer les émissions de la même manière. La Figure 4-4 montre que les émissions moyennes du miscanthus (corrigées à 13% d'oxygène) sont les plus élevées et égales 502 mg/m^3 et correspondent à $281 \pm 6 \text{ g/GJ}$. Par ordre décroissant, la deuxième valeur est pour la paille et est égale à 474 mg/m^3 (corrigées à 13% d'oxygène) et correspondant à $265, \pm 60 \text{ g/GJ}$. Comme le montre la Figure 4-4, les valeurs pour le bois sont 290 mg/m^3 et 152 g/GJ . On s'aperçoit que les concentrations et les facteurs d'émissions varient dans le même sens que la teneur initiale en N dans la matière. Toutefois, Il n'y a pas de relation directe entre la quantité d'azote contenue dans la biomasse et les émissions de NOx en raison des autres facteurs qui influencent la production de NOx, par exemple la température dans le foyer est plus élevée pour le miscanthus que pour la paille comme on l'a vu dans la première partie de ce chapitre et cela influence également la concentration finale de NOx.

Finalement, les résultats obtenus montrent que les émissions en polluants gazeux (NOx, CO) liées à la combustion du miscanthus sont plus élevées que pour le bois. Cependant, la combustion de la paille est difficile du fait des problèmes de l'alimentation en pellets et de l'agglomération des cendres formées à cause de leur fusibilité. Seules des durées courtes de fonctionnement ont été possibles avec la paille. On peut donc estimer que la chaudière est mieux adaptée à la combustion du miscanthus qu'à celle de la paille. En résumé, la fumée produite par la combustion du miscanthus a une concentration en NOx plus élevée que celle des autres biomasses.

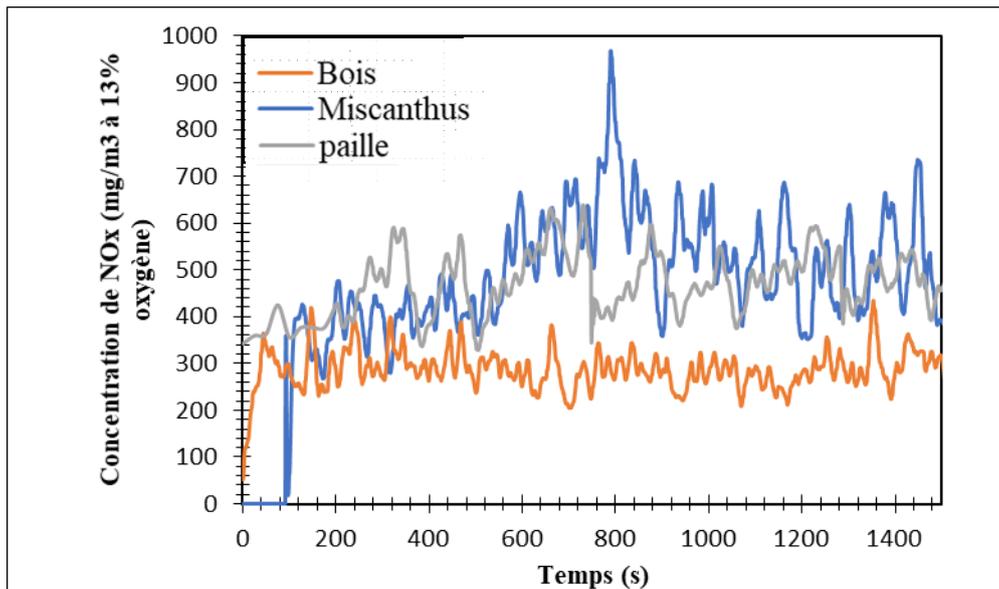


Figure 4-4. Concentration de NO_x en mg/m³ corrigées à 13% pour les 3 différentes biomasses pour une alimentation avec des pellets de bois=1,5 g/s, miscanthus=1,4g/s et paille=1,2 g/s et un facteur d'air (λ) approximativement égal à 1,2 pour les 3 biomasses.

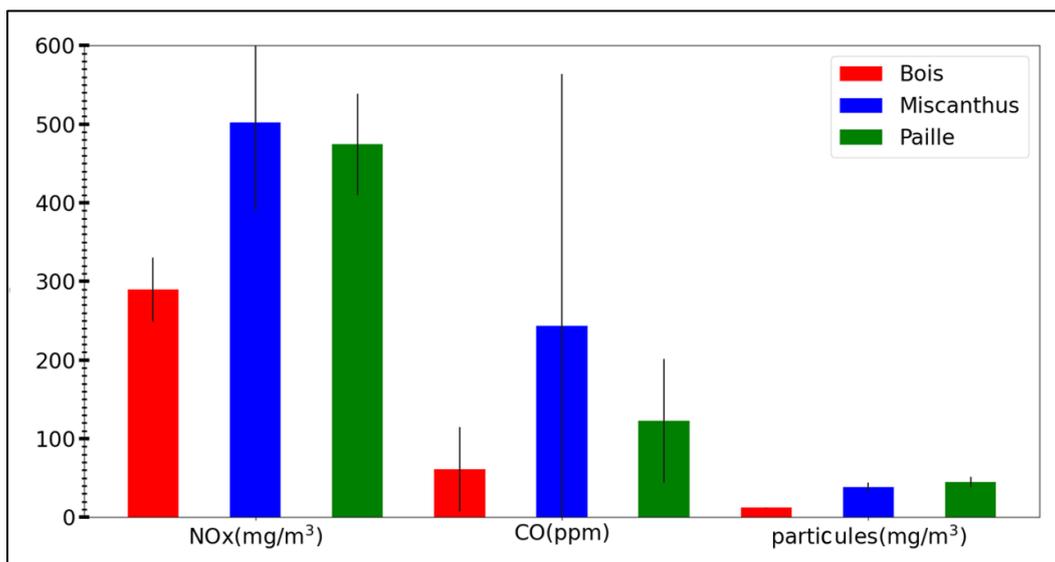


Figure 4-5. Concentration moyenne de NO_x, de CO et des particules dans les fumées pour un débit des pellets de bois égal à 1,5 g/s, de miscanthus à 1,4g/s et de la paille à 1,2 g/s et un facteur d'air (λ) approximativement égale à 1,2 pour les 3 biomasses corrigées à 13% d'oxygène (Facteur d'air estimé à partir de l'air rentrant le foyer de combustion).

4.3. Comparaison des émissions en particules

Comme indiqué au chapitre 2, nous avons utilisé l'équipement PPS pour les mesures de concentrations massiques des particules dans les fumées. Le même équipement a été utilisé pour les expériences effectuées avec les trois combustibles. Mais nous avons estimé nécessaire

de faire à nouveau l'étalonnage de cet équipement pour le cas du miscanthus et de la paille. En effet, les tailles des particules sont différentes et supérieures à celles du bois comme le montre la Figure 4-6. Les particules issues de la combustion du miscanthus présentent un diamètre de mobilité de 121 nm par rapport à 68 nm obtenu pour le bois. En raison de l'instabilité de la chaudière avec la combustion de la paille, il n'a pas été possible de faire des distributions en taille avec le SMPS pour cette biomasse. Il a été discuté dans le chapitre 2 que le diamètre des particules avait une influence importante sur coefficient K pour le PPS (voir chap. 2). Pour cette raison, il a été nécessaire de calibrer à nouveau le PPS avec la même méthode. Finalement, Dans cette étude, il a été trouvé que la valeur de K pour le miscanthus et la paille est de 2,95 et 3,92 respectivement, alors que pour le bois il vaut 0,86 (voir paragraphe 2.3.2.).

La Figure 4-7 montre que les concentrations massiques des particules dans les fumées pour la combustion des biomasses de paille et de miscanthus sont beaucoup plus élevées que pour le bois. Les fluctuations des concentrations de particules ainsi que les autres émissions (CO, NO_x) sont plus fortes pour le miscanthus et la paille. Plus spécifiquement, on constate que la concentration massique moyenne pour la paille est plus élevée que pour le miscanthus ce qui peut être dû au taux de cendres. On constate que la concentration maximale de particules suit une tendance similaire à celle du taux de cendre (voir tableau 4-1). Ceci est logique même si nous savons que les cendres totales de la biomasse sont subdivisées en cendres volantes et en cendres lourdes. Il faut rappeler que le système limite la sortie des cendres lourdes, que l'on retrouve dans le cendrier entre le foyer et l'échangeur de chaleur (voir chap. 2). Mais comme le montre les distributions en taille de la Figure 4-6, la quantité des particules fines émises semble être un peu plus grande pour le miscanthus. Les aérosols mesurés dans les fumées ont des diamètres plus importants dans le cas du miscanthus, et donc à masse volumique égale, la concentration massique sera plus grande pour le miscanthus comme montré sur la Figure 4-7.

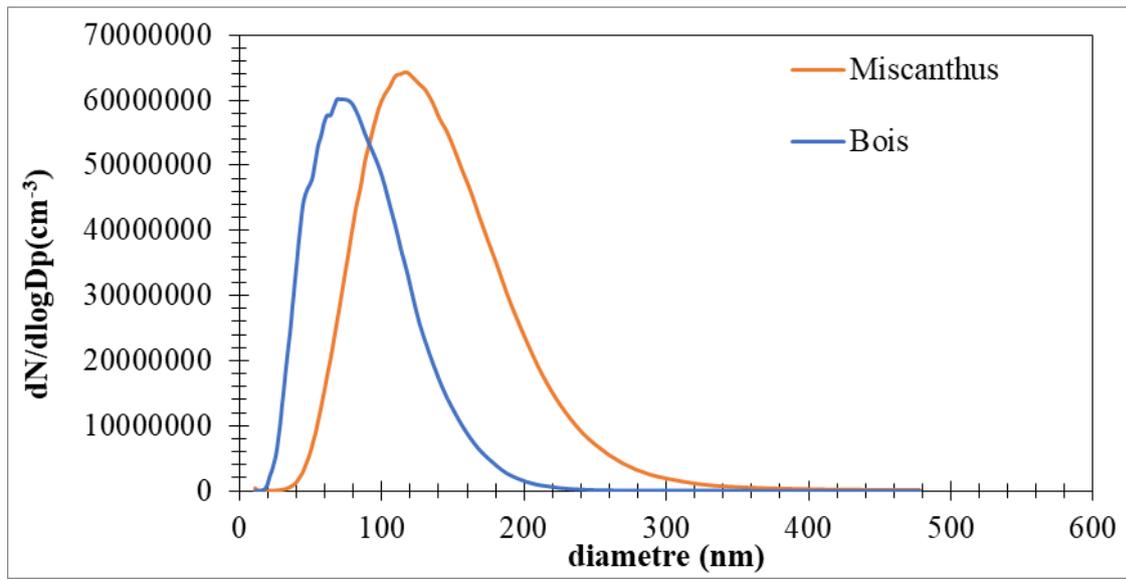


Figure 4-6. Distribution en taille des particules corrigé pour la dilution (dilution=80) pour les pellets de bois et de miscanthus et pour une alimentation en bois égale à 1,5gr/s et en miscanthus égale à 1,4 g/s de combustible et le même facteur d'air $\lambda=1,2$ (Facteur d'air estimé à partir de l'air rentrant le foyer de combustion).

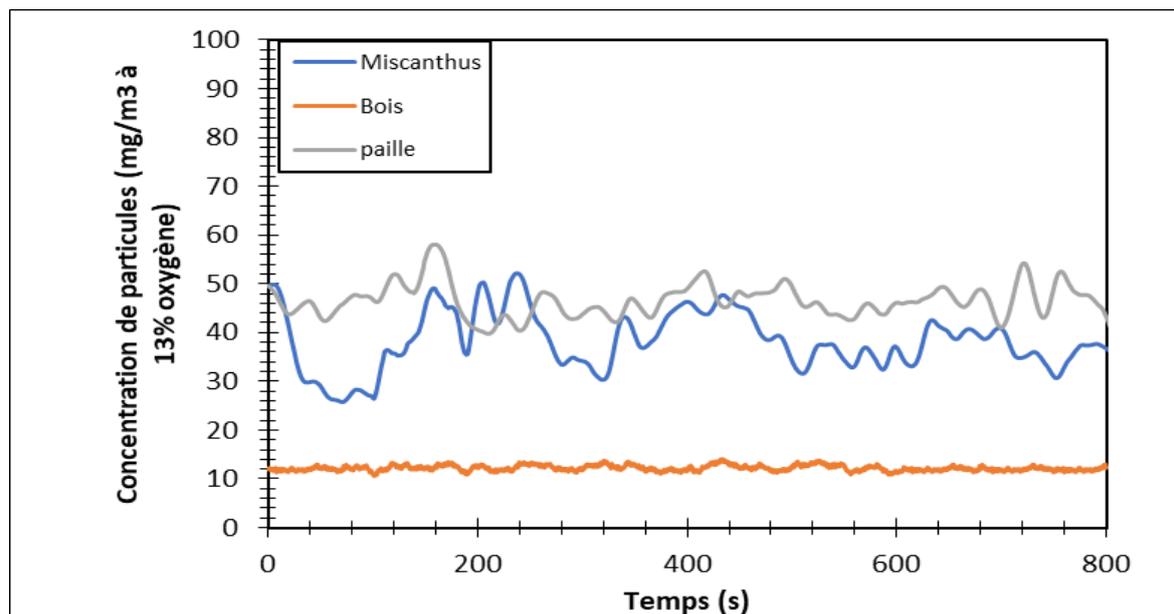


Figure 4-7. Concentration massique des particules dans les fumées pour les 3 biomasses et pour une alimentation de bois de 1,5 g/s, de miscanthus de 1,4g/s et de paille de 1,2 g/s et un facteur d'air (λ) approximativement égale à 1,2 pour les 3 biomasses (Facteur d'air estimé à partir de l'air rentrant le foyer de combustion).

4.4. Conclusion sur les émissions de la combustion de pellets de bois, de paille et de miscanthus.

Selon la norme NF EN 303-5, relative aux chaudières spéciales pour combustibles solides, à chargement manuel et automatique, avec une puissance utile inférieure ou égale à 500 kW, les valeurs limites d'émission (VLE) pour les chaudières du même type que celle utilisée dans cette thèse sont les suivantes : 200 mg/m³ de NO_x, 500 mg/m³ de CO et 40 mg/m³ de poussières, toutes ces valeurs étant corrigées à 10% d'oxygène. Sur la base des données obtenues pour les différentes biomasses, qui sont résumées dans le Tableau 4-4, on constate que l'utilisation des pellets de bois comme combustible est l'option la plus efficace en termes d'émissions polluantes. L'utilisation du bois comme combustible, en raison de ses propriétés, a été largement répandue au fil des ans, comme mentionné précédemment dans le chapitre 1. On analysera donc l'utilisation des autres biomasses (paille et miscanthus) en utilisant le bois comme source de comparaison. Le choix de la meilleure biomasse à utiliser après le bois peut être différent en fonction du polluant observé. Pour notre système, les valeurs les plus élevées de NO_x et de CO ont été trouvées pour le miscanthus, ce qui correspond à ce qui a été trouvé par (Forbes, Easson, Lyons, & McRoberts, 2014). De même, les valeurs obtenues ont été comparées à celles de (Carroll, Finnan, Biedermann, Brunner, & Obernberger, 2015) qui EST trouvé des valeurs beaucoup plus faibles pour les émissions de NO_x que notre étude ; il a trouvé des valeurs d'environ 300 mg/m³ à 13% d'oxygène par rapport aux 502 mg/m³ trouvés pour notre étude. Cependant, les valeurs obtenues pour les PM totales autour de 150 mg/m³ sont plus élevées que les PM totaux mesurées pour cette étude (50 mg/m³). Les concentrations de polluants pour la paille ont également été observées. Les valeurs obtenues par (Krugly, et al., 2014) pour le CO (355 g/GJ) sont plus élevés que celles trouvées pour nos expériences (qui sont de 263 g/GJ). Pour les émissions de NO_x, elles sont légèrement plus faibles : Krugly a trouvé 200 g/GJ alors que pour notre système, on a trouvé une moyenne de 265 g/GJ. Il est important de rappeler que les valeurs de concentrations de N initial dans les biomasses utilisées (valeurs trouvées dans la littérature) est importante. Il est possible que les différences constatées entre certaines émissions soient dues à ces variations de la concentration initiale de N. Mais cette mesure n'ayant pas été effectuée pour cette thèse, il est difficile d'aller plus loin dans l'analyse. Il est important de noter que les biomasses de miscanthus et de paille ne remplissent pas les conditions pour être utilisées directement dans ce type de chaudière. Une possibilité

serait l'utilisation de mélanges de biomasse mais cette possibilité n'a pas été étudiée dans cette thèse.

Emission		Bois	Miscanthus	Paille	NFEN 303-5
NO _x	concentration (mg/m ³)	300	688	653	200
CO	concentration (mg/m ³)	61	344	172	500
Particules	concentration (mg/m ³)	14	55	26	40

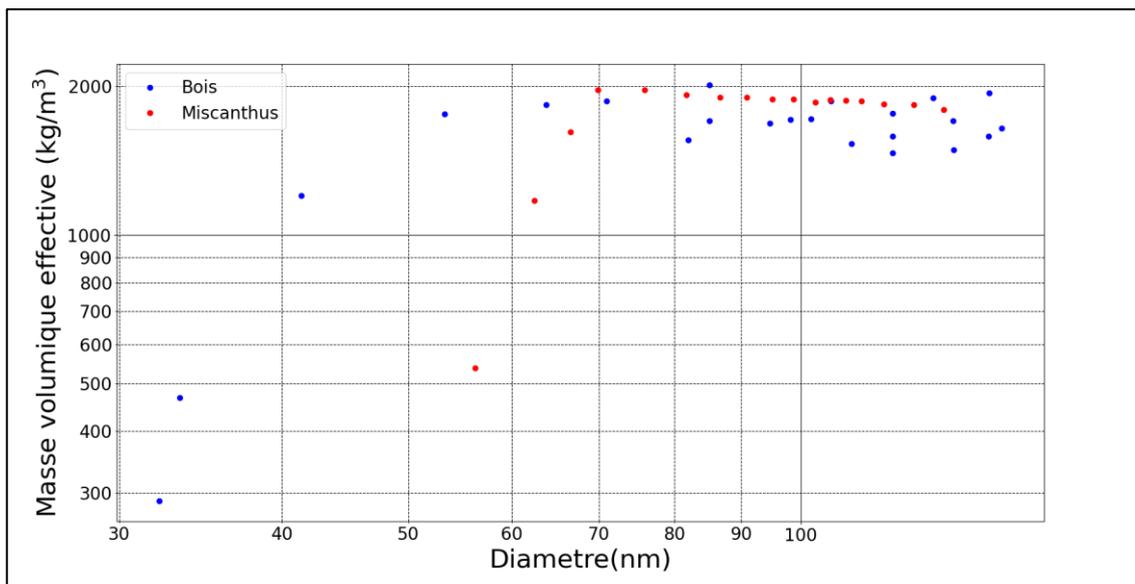
Tableau 4-4. Valeurs des concentrations polluantes pour les différents types de biomasse, corrigées à 10% d'oxygène pour comparer avec la norme NFEN 303-5 (chaudières spéciales pour combustibles solides, à chargement manuel et automatique, puissance utile inférieure ou égale à 500 kW - Définitions, exigences, essais et marquage).

4.5. Comparaison de la masse volumique effective et de la morphologie des particules émises par la combustion des pellets de bois et de miscanthus.

Dans cette partie, les résultats de masse volumique effective et les images MET obtenus pour le miscanthus sont analysés. Sur la Figure 4-8, on peut voir la comparaison des masses volumiques effectives en rouge pour le miscanthus et en bleu pour le bois. Les deux courbes ont la même tendance pour les petits diamètres (< 70 nm), une augmentation de la masse volumique effective avec le diamètre. On peut observer que pour un même diamètre inférieur à 70 nm, le miscanthus a une masse volumique spécifique inférieure à celle du bois. (Kasurinen, et al., 2015), a montré que les PM produits par la combustion sont différentes (taille, composition, concentration) pour le miscanthus et le bois. Cela pourrait contribuer aux différences constatées dans la masse volumique effective pour les diamètres de particules plus petites. Il est important de se rappeler que cette augmentation de la masse volumique effective peut être liée à plusieurs facteurs. Le facteur de forme reste également une des possibilités importantes pour expliquer cette augmentation pour les particules issues de la combustion du

miscanthus. Nous avons déjà vu que la masse volumique des matériaux organiques peut être faible (Chakrabarty, et al., 2010) et cette combinaison de facteurs peut contribuer à cette augmentation de la masse volumique effective aux petits diamètres. La différence entre les deux courbes pour les petits diamètres peut être liée aux différentes concentrations ou composition des particules (Kasurinen, et al., 2015).

Pour les diamètres supérieurs à 70 nm, il y a une zone de décroissance avec une pente peu prononcée, ce qui indique qu'il y a des particules quasi-sphériques, ces particules seront observées plus tard dans les images MET.



homogène. La Figure 4-9 D) montre une particule ayant une composition qui semble un peu différente des autres présentées sur la Figure 4-9. Il s'agit peut-être d'un composé organique mélangé avec des sels. Selon le type de particules observées et leur taille, la composition des particules semble être un mélange de matériaux organiques avec quelques sels au centre des particules comme observé par (Liu, et al., 2017).

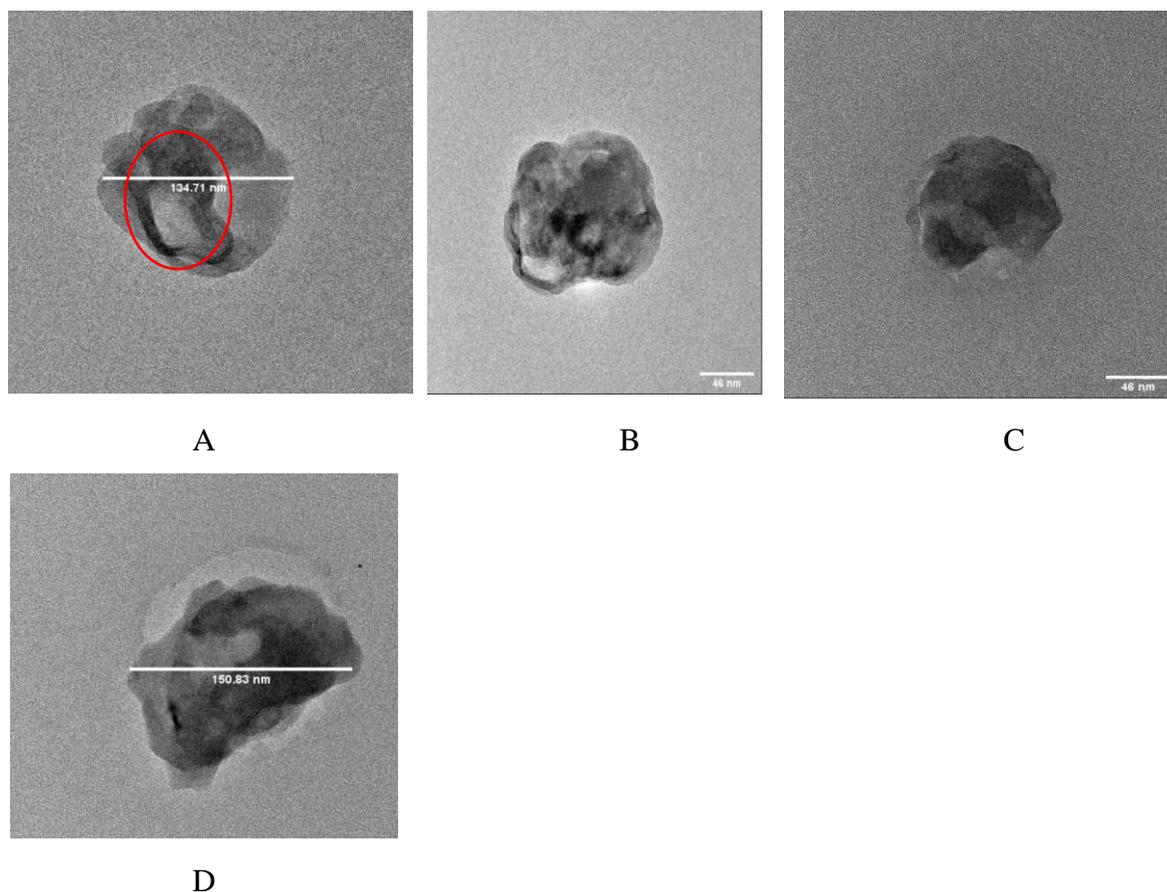


Figure 4-9. Images obtenues au MET de particules générées par la combustion du miscanthus (grande taille).

Torvela et al. a constaté que, pour une combustion efficace, les plus petites particules posséderaient une forme irrégulière mais fermée (Torvela, et al., 2014). Presque toutes les particules seraient identifiées comme des cendres. Ils ont identifié plusieurs nucléides cristallins qui se sont avérés être de l'oxyde de Zinc, mais toutes les particules ne possèdent pas un nucléide de ce type. Pour les plus grands diamètres, ils ont observé un frittage des cendres qui crée des particules de morphologie plus complexe. En utilisant ces publications comme référence, on constate que notre système présente un mélange de particules, certaines d'origine organique, d'autres principalement des cendres et très peu de suie. Un mélange des

deux types de particules peut être observé, comme nous le verrons plus loin. La Figure 4-10 montré deux images trouvées par (Torvela, et al., 2014) et (Liu, et al., 2017) qui montrent les principaux éléments qu'ils ont trouvés dans ce type de particules.

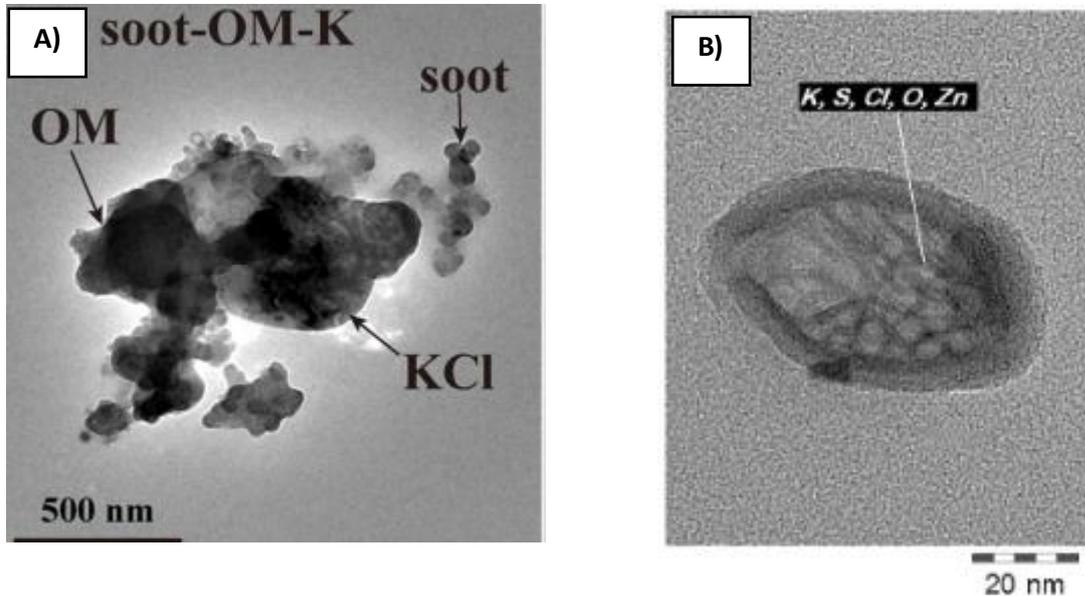


Figure 4-10. A) Exemples d'image obtenues au MET par (Liu, et al., 2017). B) Exemple d'image obtenues au MET par (Torvela, et al., 2014).

La Figure 4-11 montre les particules les plus souvent trouvées dans les images MET. Ils existent d'autres types de particules mais plus difficiles à voir que les images MET. La Figure 4-11 A) montre une particule de forme carrée. Comme l'ont constaté (Li & Shao, 2009) et (Liu, et al., 2017), ces particules sont généralement des sels (KCl et KSO₄ dans leurs travaux). L'ombre autour de la particule pourrait indiquer un autre matériau, généralement un revêtement organique, comme déjà mentionné et comme observé par (Li & Shao, 2009). La particule de la Figure 4-11 B) montre une particule de forme rectangulaire d'environ 100 nm. Cette particule présente une structure interne contenant d'autres formes rectangulaires qui pourraient s'avérer être des particules riches en silicium, comme observé dans (Li & Shao, 2009). Autour de cette structure, on peut observer qu'elle est entourée d'autres matériaux probablement organiques. La Figure 4-11 C) montre une particule de forme cubique d'un diamètre équivalent d'environ 70 nm. La particule de la Figure 4-11 C) présente les mêmes caractéristiques que les deux autres particules, à l'exception de la partie située à l'intérieur du cercle rouge qui pourrait être un nucléide d'oxyde comme l'a observé (Torvela, et al., 2014). Toutes ces analyses sur les compositions et les structures possibles des particules sur des

hypothèses et des comparaisons avec d'autres publications, puisque dans ce travail il n'a pas été possible de réaliser une analyse EDX (Spectroscopie de rayons X), permettant de connaître la composition des particules.

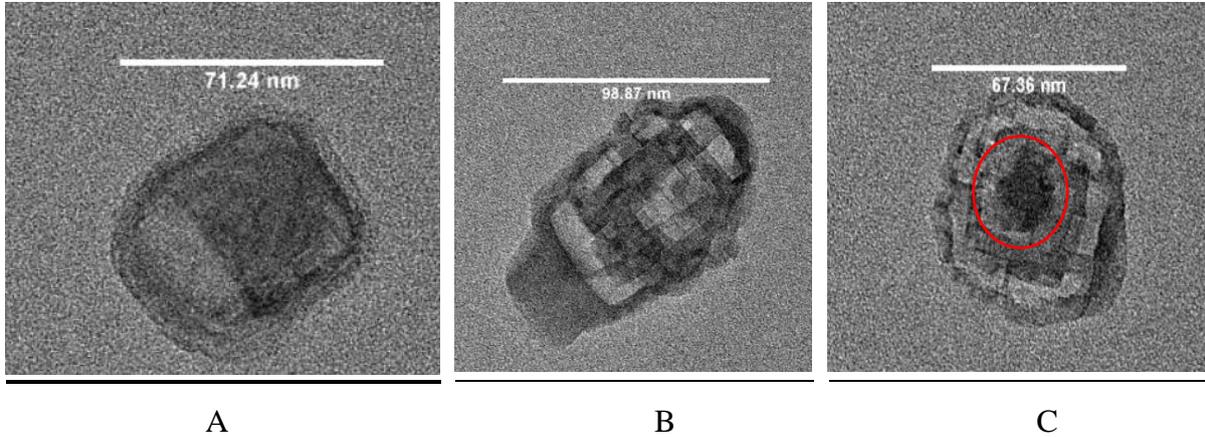


Figure 4-11. Images obtenues au MET de particules générées par la combustion du miscanthus (petite taille).

Enfin, la Figure 4-12 montre une image dans laquelle on peut voir des particules de différentes origines. Sur cette image, on peut voir une particule dans le coin inférieur gauche, qui consiste en un agglomérat de petites sphères présentant une structure « *onion-like* » similaire à celle des suies. On peut donc penser qu'elles font partie de ce type de particule. Mais, comme il a été trouvé par (Li & Shao, 2009), la plus grande partie des particules de suies trouvées sont mélangées avec des particules riches en S ou K. En haut à gauche se trouve une particule qui semble être un sel et qui pourrait être du KCl, ayant un revêtement organique. Cette description est inspirée par les analyses d'image faites par (Liu, et al., 2017). En bas à droite se trouve une particule avec des structures internes rectangulaires bordées par d'autres matériaux moins denses. En haut à droite se trouve, une particule qui pourrait être entièrement composée de matériaux organiques. Cette image résume l'ensemble des types de particules qui ont été trouvées dans les fumées produites par la combustion du miscanthus.

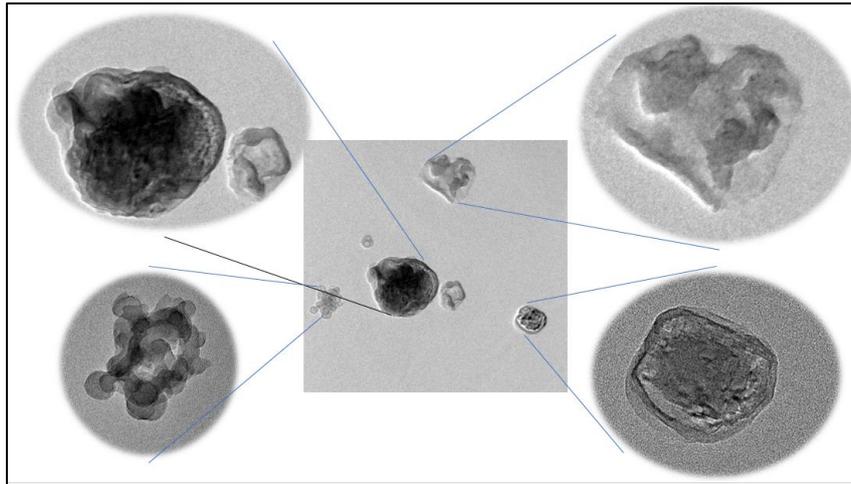


Figure 4-12. Image MET qui présente les différents types de particules produites lors de la combustion du miscanthus.

4.6.Conclusion

Dans cette partie, les masses volumiques effectives trouvées pour le bois et le miscanthus ont été comparées. Il a été observé qu'il y a des similitudes entre les deux courbes de variations de la masse volumique effective en fonction du diamètre, en particulier la croissance pour les petits diamètres. Mais le miscanthus présente une masse volumique effective plus faible pour cette gamme des petits diamètres. On a constaté, comme pour le bois, qu'autour des diamètres de 50-70 nm, il y a un point d'inflexion dans la courbe de la masse volumique effective. Dans la zone des particules de plus de 70 nm de diamètre, on observe une légère diminution de la masse volumique, ce qui implique des particules presque sphériques. Ces mesures ont été mises en relation avec les images TEM qui montrent qu'il existe un mélange de particules de morphologies différentes et éventuellement de compositions différentes.

Conclusion générale et perspectives

Conclusion générale

L'objectif de ce travail de thèse était d'étudier l'influence des différents paramètres de fonctionnement d'une chaudière domestique à pellet sur les émissions polluantes. Bien que les chaudières domestiques aient déjà été étudiées auparavant, il reste des nombreuses questions non résolues.

Dans un premier temps, une étude bibliographique a mis en évidence que les émissions polluantes issues de la combustion de la biomasse dépendent des conditions dans lesquelles les réactions de dégradation et de combustion ont lieu. Ainsi, la disponibilité de l'oxygène dans le lit de combustible et la température à laquelle se déroule la combustion (température du lit combustible et de la flamme) joueraient un rôle primordial sur les émissions polluantes produites.

L'impact des conditions de distribution d'air et d'alimentation du combustible sur les émissions polluantes font partie des sujets déjà traités mais dont une étude approfondie reste nécessaire. En effet, la recherche bibliographique montre que les investigations réalisées sur le sujet arrivent parfois à des conclusions différentes sur les mêmes cas d'étude.

Les équipements utilisés pour la combustion de la biomasse (chaudières, poêles, ...) et leurs paramètres de fonctionnement ont donc des caractéristiques qui vont agir directement sur les émissions polluantes.

Afin d'étudier l'effet de plusieurs paramètres de fonctionnement sur les émissions polluantes, des modifications ont été réalisées sur l'équipement utilisé. La régulation de l'alimentation du combustible et de l'air du lit de granulés ainsi que la réalisation des mesures en ligne ont ainsi été une priorité lors de la conception du banc de test de la chaudière domestique.

L'analyse des résultats des expériences a montré l'influence de la distribution d'air d'alimentation du foyer sur les émissions de CO et NO_x pour ce type d'application domestique. Un minimum d'émissions de CO et NO_x a été trouvé en régulant la distribution du débit d'air entrant par les différents orifices d'alimentation. Les émissions de CO observées ont montré que l'air total introduit dans la chambre de combustion joue un rôle important, avec une

influence prépondérante de l'air introduit dans le lit de combustible. Ainsi, lorsqu'une quantité d'oxygène supérieure à la valeur stœchiométrique est introduite directement dans le lit de pellets, une diminution des émissions de CO a été observée, pouvant atteindre 65% de réduction.

En ce qui concerne les émissions de NO_x, une quasi-indépendance à l'air introduit au pied de la zone de la flamme (à la surface du lit de combustible) a été mise en évidence. En revanche, l'air introduit dans la partie inférieure du lit combustible (Ob + Om) a montré une diminution des émissions en NO_x d'environ 30%.

Concernant les émissions des particules, malgré la précision des mesures réalisées grâce à l'ensemble des appareils de mesure installés sur le banc expérimental (ainsi qu'aux étalonnages de l'analyseur des concentrations massiques), les expériences n'ont pas permis d'en tirer de conclusions définitives sur l'influence de la variation de la distribution de l'air au niveau du foyer.

Par la suite, le mode d'alimentation du combustible dans la chambre de combustion de la chaudière a également été étudié. Un mode d'alimentation continu a été testé grâce à des modifications réalisées sur la vis sans fin alimentant la chaudière. D'après les expériences conduites, ce paramètre a un impact significatif sur les émissions de CO : un mode d'alimentation continu permet d'avoir des émissions plus stables, tandis que le mode pulsé présente des pics intermittents qui augmentent la production totale de CO. Par ailleurs, à puissance constante, une diminution du CO est observée pour le mode continu par rapport au mode pulsé.

Les résultats des émissions de NO_x et des particules quant à eux, ne permettent pas de conclure sur l'influence du mode d'alimentation du combustible sur les concentrations de ces polluants. Bien que des différences soient observées, il n'est pas possible de les relier au mode continu ou pulsé.

Pour approfondir l'étude sur les particules, des mesures de masse volumique effective ont été réalisées grâce au couplage des appareils SMPS-CPMA-CPC. Des valeurs de masses volumiques comparables à celles d'autres auteurs ont été retrouvées. Cependant, il a été observé que, pour les diamètres les plus faibles, la masse volumique effective augmente avec le diamètre. Ces résultats ont été complétés par la réalisation d'images au Microscope Electronique à Transmission (MET) afin de comprendre ce phénomène. La morphologie des particules issues de la combustion de bois a pu ainsi être étudiée. Grâce à l'analyse de ces images MET, différentes possibilités pour expliquer le phénomène d'augmentation de la masse

volumique effective aux petits diamètres ont été proposées. Un effet couplé de la morphologie et de la nature des particules est suspecté comme étant responsable de cette variation.

Enfin, l'utilisation d'autres types de biomasse que le bois pour les chaudières domestiques reste toujours l'un des principaux axes des recherches actuelles. C'est pourquoi, deux autres types de biomasse (la paille et le miscanthus) ont été utilisés pour évaluer l'impact du type de combustible. L'utilisation de ces biomasses peut déclencher des phénomènes physiques qui perturbent le fonctionnement normal de la chaudière à la suite du design du foyer et des conditions de fonctionnement. La fusibilité des cendres, par exemple, a été constatée avec la combustion de la paille et du miscanthus, c'est-à-dire, une agglomération des cendres dans le foyer qui empêche le bon déroulement de la combustion (observé notamment dans les phases de démarrage et d'arrêt mais présent également tout au long du fonctionnement de la chaudière). Il est donc important d'améliorer le design du foyer pour pouvoir utiliser ces biomasses non conventionnelles. Il faut par exemple un dispositif mécanique qui broie de temps en temps les scories accumulées. De plus la combustion du miscanthus et de la paille a montré des niveaux d'émissions (CO, NOx et particules) très élevés par rapport au bois. Les études réalisées corroborent donc que l'utilisation de bois permet d'obtenir les niveaux les plus faibles d'émissions polluantes.

Perspectives

Certains sujets abordés pendant ce travail restent à approfondir. Les mesures d'efficacité thermique réalisées pendant la combustion du miscanthus par exemple ont montré des résultats très prometteurs. Le phénomène de fusibilité des cendres reste un problème pour les combustibles utilisés, cependant, ces mesures ont été réalisées seulement pour le miscanthus et la paille. Une analyse approfondie sur la combustion d'autres types de biomasse ayant des compositions variées et pouvant diminuer l'effet de la fusibilité des cendres pourrait donc être judicieuse. D'autres combustibles tels que des déchets de bois (agriculture, construction, meubles) ainsi que d'autres déchets agricoles pourraient donc être étudiés.

Les mélanges des biomasses peuvent également être une solution à étudier pour la diminution du phénomène de fusibilité de cendres. Par exemple, en dosant plus ou moins des pellets de bois avec des pellets issus de culture, comme la paille ou le miscanthus, on peut espérer obtenir une composition optimale permettant une utilisation efficace des chaudières du même type que celle utilisée dans ce travail.

Par ailleurs, la présente étude a été réalisée sur une chaudière domestique avec une alimentation par chute. L'analyse des émissions polluantes ou de la disposition des agglomérats des cendres produites par la fusibilité pour d'autres configurations de chaudières permettrait également d'apporter des solutions probablement aussi efficaces. L'utilisation des chaudières ayant une alimentation par le coté ou par le bas compléterait les résultats obtenus dans ce travail. Bien entendu, ces modes d'alimentation pourraient également avoir des effets différents en fonction du type de biomasses.

Les mesures de masse volumique effective quant à elles ont mis en évidence une augmentation de celle-ci. Pour une augmentation du diamètre, les petits diamètres de particules (de 20 nm à 70 nm) montrent une augmentation de la masse volumique avec le diamètre pour le bois et le miscanthus. Les images MET réalisées ont montré différents types de particules issues de la combustion, cependant une analyse EDX afin d'estimer précisément le type et la composition de particules n'a pas pu être réalisé. Cette analyse apporterait des informations afin de mieux expliquer l'augmentation de la masse volumique des particules. Par ailleurs, afin d'améliorer la caractérisation de la biomasse, des analyses élémentaires sur les composés inorganiques contenus dans le pellet et les cendres fixes (cendres restant dans la chaudière après la combustion) apporteraient des informations complémentaires.

En accord avec les études bibliographiques, la production des NO_x issue de la combustion de la biomasse a été attribuée majoritairement aux NO_x-combustible. Cependant, il est important d'étudier aussi la contribution des NO_x-thermiques sur les émissions de NO_x dans les fumées. Seules les émissions polluantes NO_x, CO et particules ont été étudiées dans cette thèse, cependant une analyse plus générale pourrait arriver à des conclusions différentes, c'est le cas de certains travaux tels que vus avec l'étude bibliographique. Ils ont montré le besoin de connaître d'autres types des émissions polluantes (HAP, COV, ...). Cela nécessitera des collaborations avec des laboratoires compétents dans l'analyse chimique des gaz et des particules.

Il faut rappeler que la mesure des émissions polluantes a été réalisée sur des échantillons pris juste en sortie de chaudière. Il serait important de faire les mêmes analyses dans le conduit de cheminée ou à sa sortie, afin de regarder ce qui est réellement émis dans l'atmosphère. En effet, il est bien connu que le refroidissement et la dilution des fumées induisent des transformations sur les particules (Brandelet, 2016).

Enfin, le système étudié ne permet pas l'observation des phénomènes ayant lieu dans la chambre de combustion. Afin de mieux les visualiser, une modélisation de la combustion de la biomasse sera effectuée par la suite. Tout d'abord, la modélisation d'un seul pellet sera réalisée dans le but de comprendre les phénomènes physiques et en s'appuyant sur des expériences réalisées dans le cadre d'une autre thèse réalisée au sein du laboratoire CORIA. Cette modélisation devra prendre en compte les transferts de masse et de chaleur dans le pellet compte tenu de sa nature poreuse, mais aussi utiliser des schémas de pyrolyse permettant de reproduire les phénomènes observés. Ensuite, une estimation du fonctionnement du foyer de combustion sera réalisée en faisant un effort pour modéliser les écoulements dans des milieux granulaire et hétérogènes.

Annexes.

Annexe A. glossaire des abréviations

COC :	Composé Organique Condensable
COSV :	Composant organique semi-volatil
COTV :	Composés organiques très volatils
COV:	Composés organiques volatils
$C_{p_{eau}}$:	Cp de l'eau dans la chaudière.
C_s :	Concentration massique PPS.
d_a :	Diamètre aérodynamique de la particule
D_g :	Diamètre de giration (diamètre global de l'agrégat)
D_f :	Dimension fractale.
d_{me} :	Diamètre de mobilité électrique.
D_{pp} :	Diamètre des particules primaires
EJ :	Exajoule
EnR :	Energie renouvelables
HAP:	Hydrocarbures aromatiques polycycliques
I :	Courant.
IEA :	International Energy Agency.
K :	Constante PPS.
kf :	Préfacteur déterminé expérimentalement
Kt:	Kiloton
kW :	kilowatts
$\dot{m}_{air,Oroifice}$:	Débit massique d'air entrant par chaque ligne d'orifices
$\dot{m}_{air,stoéchiométrie}$:	Débit massique d'air nécessaire pour faire une oxydation complète de la biomasse introduit dans la chaudière.
$\dot{m}_{air\ total}$:	Débit massique d'air entrant la chambre de combustion.
$\dot{m}_{combustible}$:	Débit combustible. Introduit dans la chaudière
\dot{m}_{eau} :	Débit d'eau passant la chaudière.
m_p :	Masse particule
Mtep :	Mégatonne équivalent pétrole.
N_p :	Nombre de particules primaires dans une agglomération sphérique

η_{th} :	Efficacité chaudière
Ob :	Ligne d'orifices à la base du lit de combustible
Om :	Ligne d'orifices en partie centrale du lit de combustible.
Os :	Ligne d'orifices à la surface du lit de combustible
OWD :	Our World in Data
PCDDIF:	Dioxines et furannes
PM :	Particule matter
PM ₁₀	Particules de diamètre inférieur à 10, 2,5, 1 ou 0,1 μm
PM _{2.5}	
PM _{1.0}	
PM _{0.1}	
ρ_{eff} :	Masse volumique effective
Q _{alimentée} :	Puissance alimentée.
Q _{utile} :	Puissance Utile
Q _v :	Débit prélèvement PPS.
T _{entre} :	Température à l'entrée de la chaudière.
Tep :	Tonne d'équivalent pétrole.
T _{sortie} :	Température à la sortie de la chaudière.
TWh :	Térawatt-heure,
UE :	Union Européen.
VLE :	Valeur limite d'émissions
ΔH :	Pouvoir calorifique combustible (PCI).

Annexe B. Calculs de base des bilans de masse et d'énergie.

Besoin en O₂ :

$$\bar{m}_{O_2,AIR} \left[\frac{kg O_2}{kg fuel (waf)} \right] = \left(X_c \frac{M_{O_2}}{M_C} + \frac{X_H}{4} \frac{M_{O_2}}{M_H} + X_s \frac{M_{O_2}}{M_S} - X_o \right) (1 - X_{H_2O}) \lambda$$

Où :

$M_i \left[\frac{kg}{kmole} \right]$: Masse molaire (g/mol) d'élément.

$M_{O_2}=31,9988$ g/mol, $M_C=12,01115$ g/mol, $M_H=1,00797$ g/mol, $M_S=32,064$ g/mol

X_i : Fraction massique de l'élément i en un base sans cendre (« *daf* »)

X_{H_2O} =Fraction massique de H₂O en base humide sans cendre (« *waf* »)

λ : facteur d'air

N₂ provenant de l'air :

$$\bar{m}_{N_2,AIR} \left[\frac{kg N_2}{kg fuel (waf)} \right] = \bar{m}_{O_2,AIR} \frac{Y_{N_2,AIR} M_{N_2}}{Y_{O_2,AIR} M_{O_2}}$$

$Y_{O_2,AIR}$ = Fraction volume O₂ dans l'air

$$Y_{N_2,AIR} = 1 - Y_{O_2,AIR}$$

$M_{N_2}=28,0134$ g/mol

Quantité d'air :

$$\bar{m}_{AIR} \left[\frac{kg air}{kg fuel (waf)} \right] = \bar{m}_{N_2,AIR} + \bar{m}_{O_2,AIR}$$

Gaz brûlés

$$\bar{m}_{FG} \left[\frac{kg fumée}{kg fuel (waf)} \right] = \bar{m}_{AIR} + 1$$

Masse des éléments dans les fumées :

$$\bar{m}_{CO_2} \left[\frac{kg \ i}{kg \ fuel \ (waf)} \right] = X_C \frac{M_{CO_2}}{M_C} (1 - X_{H_2O})$$

$$\bar{m}_{H_2O} \left[\frac{kg \ i}{kg \ fuel \ (waf)} \right] = X_H \frac{M_{H_2O}}{M_H} (1 - X_{H_2O}) + X_{H_2O}$$

$$\bar{m}_{SO_2} \left[\frac{kg \ i}{kg \ fuel \ (waf)} \right] = X_S \frac{M_{SO_2}}{M_S} (1 - X_{H_2O})$$

$$\bar{m}_{N_2} \left[\frac{kg \ i}{kg \ fuel \ (waf)} \right] = \bar{m}_{N_2, AIR} + X_N (1 - X_{H_2O})$$

$$\bar{m}_{O_2} \left[\frac{kg \ i}{kg \ fuel \ (waf)} \right] = \frac{\bar{m}_{O_2, AIR}}{\lambda} (\lambda - 1)$$

$$M_{CO_2} = 44,00995 \text{ g/mol}, \quad M_{H_2O} = 18,01534 \text{ g/mol}, \quad M_{H_2} = 2,01594 \text{ g/mol}, \quad M_{SO_2} = 64,0628 \text{ g/mol}$$

Calcul du Volume Fumées

La fraction Y_i (fraction volume) est définie par :

$$Y_i = \frac{\frac{x_i}{M_i}}{\sum_i \frac{x_i}{M_i}}, \quad i = CO_2, H_2O, SO_2, N_2, O_2$$

Masse molaire des fumées :

$$M_{FG} \left[\frac{kg}{kmole} \right] = \sum_i Y_i M_i, \quad i = CO_2, H_2O, SO_2, N_2, O_2$$

Masse volumique des fumées :

$$\rho_{FG} \left[\frac{kg}{Nm^3} \right] = \frac{p_0}{\frac{R_{ij}}{M_{FG}} T_0}$$

Où

p_0 = Pression à condition normal = 101325 Pa

T_0 = Temperature à condition normal = 273,15 K

R_{ij} = Constante de gaz parfait = 8314,32 J/kmole.K

Masse volumique d'air :

$$\rho_{Air} \left[\frac{kg}{Nm^3} \right] = \frac{p_0}{\frac{R_{ij}}{M_{Air}} T_0}$$

Débit massique des fumées :

$$\dot{m}_{FG} \left[\frac{kg}{h} \right] = \dot{m}_F \cdot \bar{m}_{FG}$$

Où :

\dot{m}_F = Consommation de combustible en base humide et sans cendre

Volume des fumées :

$$\bar{V}_{FG} \left[\frac{Nm^3}{kg \text{ combustible (waf)}} \right] = \frac{\bar{m}_{FG}}{\rho_{FG}}$$

Débit volumique des fumées

$$\dot{V}_{FG} \left[\frac{Nm^3}{h} \right] = \frac{\dot{m}_{FG}}{\rho_{FG}}$$

Débit massique d'air

$$\dot{m}_{Air} \left[\frac{kg}{h} \right] = \dot{m}_F \cdot \bar{m}_{Air}$$

Débit volumique d'air

$$V_{Air} \left[\frac{Nm^3}{h} \right] = \frac{\dot{m}_{Air}}{\rho_{Air}}$$

Annexe C : Diamètre aérodynamique et diamètre de mobilité électrique

Il existe un certain nombre de définitions du diamètre utilisées pour décrire les particules mesurées par microscopie. Dans notre thèse, nous utiliserons deux principaux diamètres équivalents, aérodynamique et mobilité.

Diamètre aérodynamique

Le diamètre aérodynamique est défini comme le diamètre d'une particule sphérique de masse volumique unitaire ayant la même vitesse terminale de sédimentation que celle de la particule en question. Le diamètre aérodynamique est utile pour les particules ayant une inertie appréciable, c'est-à-dire celles qui sont plus grandes que 0,5 mm environ. (Les particules inférieures à environ 0,5 mm subissent un mouvement brownien et sont caractérisées par le diamètre de diffusion, le diamètre d'une particule qui a le même coefficient de diffusion que la particule en question).

La vitesse de sédimentation terminale (v_{TS}) est une mesure des propriétés aérodynamiques de la particule. La vitesse terminale est obtenue lorsque la force gravitationnelle (F_G) est égale et opposée à la force de traînée de l'équation :

$$F_G = m_p g = \rho_p \frac{\pi}{6} d_{ve}^3 g = \frac{3\pi \eta v_{TS} d_{ve} \chi}{C_c(d_{ve})} = F_{drag}.$$

Comme indiqué ci-dessus, le diamètre aérodynamique est défini comme le diamètre d'une sphère de masse volumique standard (ρ_0) ayant le même v_{TS} que la particule. C'est-à-dire que dans l'équation précédente, ρ_p est la masse volumique standard (ρ_0), $\chi = 1$, et le diamètre équivalent en volume $d_{ve} = d_a$. L'équilibre des forces dans l'équation peut alors être exprimé comme suit :

$$F_G = m_p g = \rho_0 \frac{\pi}{6} d_a^3 \cdot g = \frac{3\pi \eta v_{TS} d_a}{C_c(d_a)}.$$

Diamètre de mobilité électrique

Le diamètre de mobilité électrique est le diamètre d'une particule sphérique ayant la même mobilité électrique et la même vitesse de migration dans un champ électrique constant que celle de la particule en question (Flagan, 2001). Des instruments tels que l'OMA et le SMPS mesurent le diamètre. Cette mesure est obtenue par un bilan de force entre la force électrique d'un champ électrique constant sur les charges nettes de la particule et la force de traînée subie par la particule. La force électrique sur la particule est :

$$F_{elect} = neE$$

Ici, n est le nombre de charges sur la particule, e est l'unité élémentaire de charge, et E est l'intensité du champ électrique. Dans des conditions typiques de DMA, une particule atteint très rapidement une vitesse de migration terminale, à laquelle les forces électriques et de traînée sont égales et opposées. La relation entre le diamètre équivalent en volume (d_{ve}) et d_m , est obtenue à partir de la mobilité électrique, Z_p , définie comme la vitesse de migration en régime permanent d'une particule par unité de champ électrique. En appliquant cette définition à la force de traînée dans l'équation

$$F_{drag} = \frac{3\pi\eta v \chi d_{ve}}{C_c(d_{ve})}$$

et la force électrique telle que définie précédemment (F_{elect}), on obtient :

$$Z_p = \frac{neC_c(d_{ve})}{3\pi\eta\chi d_{ve}} = \frac{neC_c(d_m)}{3\pi\eta d_m}$$

Diamètre de Stokes

Le diamètre de Stokes est le diamètre d'une particule sphérique ayant la même masse volumique et la même vitesse de sédimentation que la particule en question. La figure suivante

montre la différence entre 2 diamètres équivalents différents : le diamètre aérodynamique (d_a) et le diamètre de Stokes.

	Real particle	Stokes Diameter	Aerodynamic Diameter
			
V_{TS}	= 0.22 cm/s	= 0.22 cm/s	= 0.22 cm/s
D_p	= app. 3-5 μm	= 4.3 μm	= 8.6 μm
ρ_p	= 4 g/cm ³	= 4 g/cm ³	= 1 g/cm ³

Diamètre optique

Le diamètre optique est défini comme le diamètre d'une particule ayant la même réponse dans un instrument qui détecte les particules par leur interaction avec la lumière.

Annexe D. Analyse thermogravimétrique des pellets de bois, miscanthus et paille.

Une analyse TGA a également été réalisée sur les matières premières utilisées au cours de cette thèse. Ces analyses ont été réalisées dans le cadre d'une thèse actuellement menée au laboratoire CORIA sur la combustion d'un granulé de biomasse. Ces informations permettent d'analyser les phénomènes observés lors de la combustion de ces biomasses. Sur la figure A l'évolution de la masse du poids en fonction de la température est présentée, on peut observer le comportement typique de la réaction de combustion pour chaque biomasse utilisée. La Figure B) quant à elle montre les courbes de vitesse de réaction en fonction du temps pour chaque biomasse utilisée. Ces informations sont utiles pour comprendre les temps de séjour de base, les temps de flamme et autres paramètres physiques. Une analyse approfondie de ces données peut être effectuée pour trouver les valeurs cinétiques de la combustion de la cellulose, de l'hémicellulose et de la lignine. Pour l'instant, ces informations seront utilisées pour comprendre les phénomènes physiques observés pendant la combustion et les lier aux temps et concentrations caractéristiques de chaque biomasse. Les mesures TGA ont été fait avec une rampe de 10 °C/min sur des échantillons de 100 mg. Sous O₂

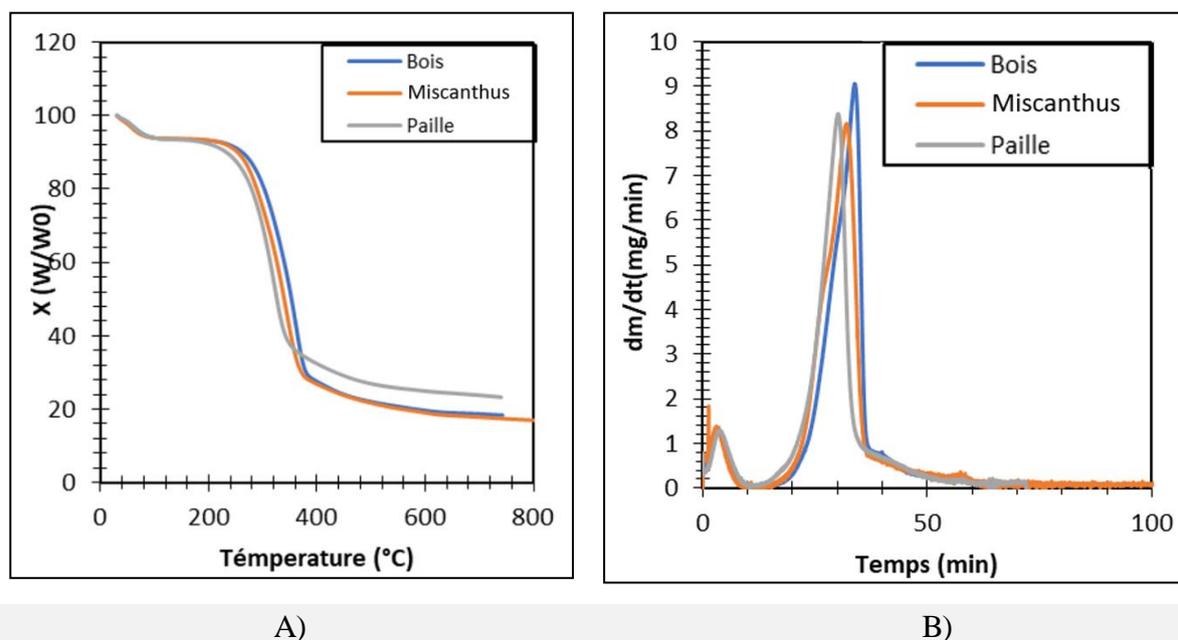


Figure A) Evolution de la masse normalisée en fonction de la température, pour les 3 types de biomasse utilisée. B) Vitesse de réaction en fonction du temps pour chaque type de biomasse utilisée.

Références

Allemand, N. (2003). Estimation des émissions de polluants liées à la combustion du bois en France. *Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique (CITEPA)*. 40p.

Allen, G., Sioutas, C., Koutrakis, P., Reiss, R., Lurmann, F. W., & Roberts, P. T. (1997, June). Evaluation of the TEOM® Method for Measurement of Ambient Particulate Mass in Urban Areas. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 47, 682–689. doi:10.1080/10473289.1997.10463923

Amanatidis, S., Maricq, M. M., Ntziachristos, L., & Samaras, Z. (2016, February). Measuring number, mass, and size of exhaust particles with diffusion chargers: The dual Pegasor Particle Sensor. *Journal of Aerosol Science*, 92, 1–15. doi:10.1016/j.jaerosci.2015.10.005

Anca-Couce, A. (2016, March). Reaction mechanisms and multi-scale modelling of lignocellulosic biomass pyrolysis. *Progress in Energy and Combustion Science*, 53, 41–79. doi:10.1016/j.pecs.2015.10.002

Appel, B. R., Tokiwa, Y., & Kothny, E. L. (1983, January). Sampling of carbonaceous particles in the atmosphere. *Atmospheric Environment (1967)*, 17, 1787–1796. doi:10.1016/0004-6981(83)90186-5

Babu, B. V., & Chaurasia, A. S. (2004, May). Heat transfer and kinetics in the pyrolysis of shrinking biomass particle. *Chemical Engineering Science*, 59, 1999–2012. doi:10.1016/j.ces.2004.01.050

Baum, M. M., Moss, J. A., Pastel, S. H., & Poskrebyshev, G. A. (2007, February). Hydrogen Cyanide Exhaust Emissions from In-Use Motor Vehicles. *Environmental Science & Technology*, 41, 857–862. doi:10.1021/es061402v

Beér, J. M. (1994). Minimizing {NO_x} emissions from stationary combustion reaction engineering methodology. *Chemical Engineering Science*, 49, 4067–4083. doi:10.1016/s0009-2509(05)80006-5

Bejaoui, S., Creyx, M., Delacourt, E., Morin, C., & Therssen, E. (2020). Particulate emissions measurements by laser-based techniques in a boiler fueled by wood pellets. *Applied Physics B*, 126(1), 1-12.

Bell, R. (2007). *La bulle verte : la ruée vers l'or des énergies renouvelables*. Paris: Scali.

Bigg, E. K. (1997, January). A mechanism for the formation of new particles in the atmosphere. *Atmospheric Research*, 43, 129–137. doi:10.1016/s0169-8095(96)00020-8

Bockhorn, H. (Éd.). (1994). *Soot Formation in Combustion*. Springer Berlin Heidelberg. doi:10.1007/978-3-642-85167-4

Boisgibault, L. (2011). *L'énergie solaire après Fukushima : la nouvelle donne*. Paris: Medicilline.

Boman, C., Nordin, A., Boström, D., & Öhman, M. (2004, March). Characterization of Inorganic Particulate Matter from Residential Combustion of Pelletized Biomass Fuels. *Energy & Fuels*, 18, 338–348. doi:10.1021/ef034028i

Boman, C., Pettersson, E., Westerholm, R., Boström, D., & Nordin, A. (2011, January). Stove Performance and Emission Characteristics in Residential Wood Log and Pellet Combustion, Part 1: Pellet Stoves. *Energy & Fuels*, 25, 307–314. doi:10.1021/ef100774x

Bond, T. C., Charlson, R. J., & Heintzenberg, J. (1998, February). Quantifying the emission of light-absorbing particles: Measurements tailored to climate studies. *Geophysical Research Letters*, 25, 337–340. doi:10.1029/98gl00039

Bowman, C. T. (1992, January). Control of combustion-generated nitrogen oxide emissions: Technology driven by regulation. *Symposium (International) on Combustion*, 24, 859–878. doi:10.1016/s0082-0784(06)80104-9

Brandelet, B. (2016). *Caractérisation physico-chimique des particules issues du chauffage domestique au bois* (Doctoral dissertation, Université de Lorraine).

Buchmayr, M., Gruber, J., Hargassner, M., & Hochenauer, C. (2016, May). A computationally inexpensive CFD approach for small-scale biomass burners equipped with enhanced air staging. *Energy Conversion and Management*, 115, 32–42. doi:10.1016/j.enconman.2016.02.038

Burhenne, L., Messmer, J., Aicher, T., & Laborie, M.-P. (2013, May). The effect of the biomass components lignin, cellulose and hemicellulose on TGA and fixed bed pyrolysis. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 101, 177–184. doi:10.1016/j.jaap.2013.01.012

Calvo, A. I., Martins, V., Nunes, T., Duarte, M., Hillamo, R., Teinilä, K., Alves, C. (2015, September). Residential wood combustion in two domestic devices: Relationship of different parameters throughout the combustion cycle. *Atmospheric Environment*, 116, 72–82. doi:10.1016/j.atmosenv.2015.06.012

Calvo, A. I., Tarelho, L. A., Alves, C. A., Duarte, M., & Nunes, T. (2014, October). Characterization of operating conditions of two residential wood combustion appliances. *Fuel Processing Technology*, 126, 222–232. doi:10.1016/j.fuproc.2014.05.001

Carroll, J. P., Finnan, J. M., Biedermann, F., Brunner, T., & Obernberger, I. (2015, September). Air staging to reduce emissions from energy crop combustion in small scale applications. *Fuel*, 155, 37–43. doi:10.1016/j.fuel.2015.04.008

Cass, G. R. (1998, June). Organic molecular tracers for particulate air pollution sources. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 17, 356–366. doi:10.1016/s0165-9936(98)00040-5

Chakrabarty, R. K., Moosmüller, H., Chen, L.-W. A., Lewis, K., Arnott, W. P., Mazzoleni, C., Kreidenweis, S. M. (2010, July). Brown carbon in tar balls from smoldering

biomass combustion. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 6363–6370. doi:10.5194/acp-10-6363-2010

Chornet, E., & Overend, R. P. (1985). Biomass liquefaction: an overview. *Fundamentals of thermochemical biomass conversion*, 967-1002.

Chow, J. C., Watson, J. G., Pritchett, L. C., Pierson, W. R., Frazier, C. A., & Purcell, R. G. (1993, June). The dri thermal/optical reflectance carbon analysis system: description, evaluation and applications in U.S. Air quality studies. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 27, 1185–1201. doi:10.1016/0960-1686(93)90245-t

Claassen, P. A., van Lier, J. B., Contreras, A. M., van Niel, E. W., Sijtsma, L., Stams, A. J., Weusthuis, R. A. (1999, November). Utilisation of biomass for the supply of energy carriers. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 52, 741–755. doi:10.1007/s002530051586

Collard, F.-X., & Blin, J. (2014, October). A review on pyrolysis of biomass constituents: Mechanisms and composition of the products obtained from the conversion of cellulose, hemicelluloses and lignin. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 38, 594–608. doi:10.1016/j.rser.2014.06.013

Collazo, J., Porteiro, J., Míguez, J. L., Granada, E., & Gómez, M. A. (2012, December). Numerical simulation of a small-scale biomass boiler. *Energy Conversion and Management*, 64, 87–96. doi:10.1016/j.enconman.2012.05.020

Colom-Díaz, J. M., Alzueta, M. U., Fernandes, U., & Costa, M. (2019, July). Emissions of polycyclic aromatic hydrocarbons from a domestic pellets-fired boiler. *Fuel*, 247, 108–112. doi:10.1016/j.fuel.2019.03.049

Council, E. R. (2010). *Renewable energy in Europe : markets, trends, and technologies*. London, Washington, DC: Earthscan.

de Souza-Santos, M. L. (1989, December). Comprehensive modelling and simulation of fluidized bed boilers and gasifiers. *Fuel*, 68, 1507–1521. doi:10.1016/0016-2361(89)90288-3

DeCarlo, P. F., Slowik, J. G., Worsnop, D. R., Davidovits, P., & Jimenez, J. L. (2004, January). Particle Morphology and Density Characterization by Combined Mobility and Aerodynamic Diameter Measurements. Part 1: Theory. *Aerosol Science and Technology*, 38, 1185–1205. doi:10.1080/027868290903907

Di Blasi, C. (1996). Heat, momentum and mass transport through a shrinking biomass particle exposed to thermal radiation. *Chemical engineering science*, 51(7), 1121-1132 doi:10.1016/S0009-2509(96)80011-X

Dryer, F. L., & Glassman, I. (1973, January). High-temperature oxidation of CO and CH₄. In *Symposium (International) on combustion* (Vol. 14, No. 1, pp. 987-1003). Elsevier.

Dupont, C., Nocquet, T., Costa, J. A., & Verne-Tournon, C. (2011). Kinetic modelling of steam gasification of various woody biomass chars: Influence of inorganic elements. *Bioresource Technology*, 9743-9748.

Dye, C., & Yttri, K. E. (2005, March). Determination of Monosaccharide Anhydrides in Atmospheric Aerosols by Use of High-Performance Liquid Chromatography Combined with

High-Resolution Mass Spectrometry. *Analytical Chemistry*, 77, 1853–1858. doi:10.1021/ac049461j

Eggersdorfer, M. L., Kadau, D., Herrmann, H. J., & Pratsinis, S. E. (2012, April). Aggregate morphology evolution by sintering: Number and diameter of primary particles. *Journal of Aerosol Science*, 46, 7–19. doi:10.1016/j.jaerosci.2011.11.005

Elmay, Y., Trouvé, G., Jeguirim, M., & Said, R. (2013). Energy recovery of date palm residues in a domestic pellet boiler. *Fuel Processing Technology*, 12-18, doi: 10.1016/j.fuproc.2013.02.015

Englert, N. (2004, April). Fine particles and human health—a review of epidemiological studies. *Toxicology Letters*, 149, 235–242. doi:10.1016/j.toxlet.2003.12.035

Eskilsson, D., Rönnbäck, M., Samuelsson, J., & Tullin, C. (2004, December). Optimisation of efficiency and emissions in pellet burners. *Biomass and Bioenergy*, 27, 541–546. doi:10.1016/j.biombioe.2003.09.008

European Renewable Energy Council (EREC). (2010). *Renewable Energy in Europe: Markets, Trends and Technologies*. Earthscan.

Fenimore, C. P. (1971, January). Formation of nitric oxide in premixed hydrocarbon flames. *Symposium (International) on Combustion*, 13, 373–380. doi:10.1016/s0082-0784(71)80040-1

Fiedler, F. (2004, June). The state of the art of small-scale pellet-based heating systems and relevant regulations in Sweden, Austria and Germany. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 8, 201–221. doi:10.1016/j.rser.2003.11.002

Fitzpatrick, E. M., Jones, J. M., Pourkashanian, M., Ross, A. B., Williams, A., & Bartle, K. D. (2008, November). Mechanistic Aspects of Soot Formation from the Combustion of Pine Wood. *Energy & Fuels*, 22, 3771–3778. doi:10.1021/ef800456k

Forbes, E., Easson, D., Lyons, G., & McRoberts, W. (2014). Physico-chemical characteristics of eight different biomass fuels and comparison of combustion and emission results in a small scale multi-fuel boiler. *Energy Conversion and Management*, 1162-1169.

Friedlander, S. K., & Marlow, W. H. (1977, September). Smoke, Dust and Haze: Fundamentals of Aerosol Behavior. *Physics Today*, 30, 58–59. doi:10.1063/1.3037714

Gaegauf, C., Wieser, U., & Macquat, Y. (2001). Field investigation of nanoparticle emissions from various biomass combustion systems. *Aerosols from Biomass*, 81-85.

Galgano, A., & Blasi, C. D. (2003, May). Modeling Wood Degradation by the Unreacted-Core-Shrinking Approximation. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 42, 2101–2111. doi:10.1021/ie020939o

García-Maraver, A., Popov, V., & Zamorano, M. (2011, December). A review of European standards for pellet quality. *Renewable Energy*, 36, 3537–3540. doi:10.1016/j.renene.2011.05.013

Ge, J. M., Su, J., Ackerman, T. P., Fu, Q., Huang, J. P., & Shi, J. S. (2010, July). Dust aerosol optical properties retrieval and radiative forcing over northwestern China during the

2008 China-U.S. joint field experiment. *Journal of Geophysical Research*, 115. doi:10.1029/2009jd013263

Ge, X., Xu, F., Vasco-Correa, J., & Li, Y. (2016, February). Giant reed: A competitive energy crop in comparison with miscanthus. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 54, 350–362. doi:10.1016/j.rser.2015.10.010

Glarborg, P. (2003). Fuel nitrogen conversion in solid fuel fired systems. *Progress in Energy and Combustion Science*, 29, 89–113. doi:10.1016/s0360-1285(02)00031-x

Gómez, M. A., Porteiro, J., de la Cuesta, D., Patiño, D., & Míguez, J. L. (2016, November). Numerical simulation of the combustion process of a pellet-drop-feed boiler. *Fuel*, 184, 987–999. doi:10.1016/j.fuel.2015.11.082

González, J. F., Ledesma, B., Alkassir, A., & González, J. (2011, October). Study of the influence of the composition of several biomass pellets on the drying process. *Biomass and Bioenergy*, 35, 4399–4406. doi:10.1016/j.biombioe.2011.08.019

Grønli, M. G., & Melaaen, M. C. (2000, July). Mathematical Model for Wood Pyrolysis Comparison of Experimental Measurements with Model Predictions. *Energy & Fuels*, 14, 791–800. doi:10.1021/e990176q

Hamilton, J. F., Webb, P. J., Lewis, A. C., Hopkins, J. R., Smith, S., & Davy, P. (2004, August). Partially oxidised organic components in urban aerosol using GCXGC-TOF/MS. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4, 1279–1290. doi:10.5194/acp-4-1279-2004

Hardy, T., Musialik-Piotrowska, A., Ciolek, J., Moscicki, K., & Kordylewski, W. L. O. D. Z. I. M. I. E. R. Z. (2012). Negative effects of biomass combustion and co-combustion in boilers. *Environment Protection Engineering*, 38(1), 25–33..

Haseli, Y. Y. (2012). Modeling combustion of single biomass particle. *Modeling combustion of single biomass particle*. Technische Universiteit Eindhoven. doi:10.6100/IR735438

Hayes, D. J. (2013). Biomass Composition and Its Relevance to Biorefining. Dans *The Role of Catalysis for the Sustainable Production of Bio-fuels and Bio-chemicals* (pp. 27–65). Elsevier. doi:10.1016/b978-0-444-56330-9.00002-4

Hewson, J. C., & Bollig, M. (1996). Reduced mechanisms for NO_x emissions from hydrocarbon diffusion flames. *Symposium (International) on Combustion*, 26, 2171–2179. doi:10.1016/s0082-0784(96)80043-9

Houshfar, E., Skreiberg, Ø., Todorović, D., Skreiberg, A., Løvås, T., Jovović, A., & Sørum, L. (2012, August). NO_x emission reduction by staged combustion in grate combustion of biomass fuels and fuel mixtures. *Fuel*, 98, 29–40. doi:10.1016/j.fuel.2012.03.044

Howard, J. B., Williams, G. C., & Fine, D. H. (1973, January). Kinetics of carbon monoxide oxidation in postflame gases. *Symposium (International) on Combustion*, 14, 975–986. doi:10.1016/s0082-0784(73)80089-x

Saastamoinen, J. J., Aho, M. J., & Linna, V. L. (1993). Simultaneous pyrolysis and char combustion. *Fuel*, 72(5), 599–609, doi: 10.1016/0016-2361(93)90571-I.

Jaworek, A., Sobczyk, A. T., Marchewicz, A., Krupa, A., & Czech, T. (2021, March). Particulate matter emission control from small residential boilers after biomass combustion. A review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, *137*, 110446. doi:10.1016/j.rser.2020.110446

Jenkins, B., Baxter, L. L., Miles Jr, T. R., & Miles, T. R. (1998). Combustion properties of biomass. *Fuel processing technology*, *54*(1-3), 17-46, doi: 10.1016/S0378-3820(97)00059-3

Jeong, C.-H., & Evans, G. J. (2009, March). Inter-Comparison of a Fast Mobility Particle Sizer and a Scanning Mobility Particle Sizer Incorporating an Ultrafine Water-Based Condensation Particle Counter. *Aerosol Science and Technology*, *43*, 364–373. doi:10.1080/02786820802662939

Johansson, L. S., Leckner, B., Gustavsson, L., Cooper, D., Tullin, C., & Potter, A. (2004, August). Emission characteristics of modern and old-type residential boilers fired with wood logs and wood pellets. *Atmospheric Environment*, *38*, 4183–4195. doi:10.1016/j.atmosenv.2004.04.020

Johansson, L. S., Tullin, C., Leckner, B., & Sjövall, P. (2003, October). Particle emissions from biomass combustion in small combustors. *Biomass and Bioenergy*, *25*, 435–446. doi:10.1016/s0961-9534(03)00036-9

Kaczyński, K., Kaczyńska, K., & Pełka, P. (2007). Comparison of combusting pellets of agro and wood biomass in different fluidized bed conditions. *Journal of Physics: Conference Series*.

Kannosto, J., Virtanen, A., Lemmetty, M., aˆ1, J. M., Keskinen, J., Junninen, H., and M. Kulmala. (2008). Mode resolved density of atmospheric aerosol particles. *Atmospheric Chemistry and Physics*.

Kantová, N. Ā., Sládek, S., Jandačka, J., Āaja, A., & Nosek, R. (2021, January). Simulation of Biomass Combustion with Modified Flue Gas Tract. *Applied Sciences*, *11*, 1278. doi:10.3390/app11031278

Karmakar, M., & Datta, A. (2011). Generation of hydrogen rich gas through fluidized bed gasification of biomass. *Bioresource Technology*, 1907-1913.

Kasurinen, S., Jalava, P. I., Uski, O., Happonen, M. S., Brunner, T., Mäki-Paakkanen, J., . . . Hirvonen, M.-R. (2015, November). Toxicological characterization of particulate emissions from straw, Miscanthus, and poplar pellet combustion in residential boilers. *Aerosol Science and Technology*, *50*, 41–51. doi:10.1080/02786826.2015.1121198

Khila, Z. (2014). *Analyse de cycle de vie émergétique de système de valorisation de biomasse* (Doctoral dissertation, Université de Lorraine).

Khodaei, H., Guzzomi, F., Patiño, D., Rashidian, B., & Yeoh, G. H. (2017, March). Air staging strategies in biomass combustion-gaseous and particulate emission reduction potentials. *Fuel Processing Technology*, *157*, 29–41. doi:10.1016/j.fuproc.2016.11.007

Kleinhans, U., Wieland, C., Frandsen, F. J., & Spliethoff, H. (2018, September). Ash formation and deposition in coal and biomass fired combustion systems: Progress and

challenges in the field of ash particle sticking and rebound behavior. *Progress in Energy and Combustion Science*, 68, 65–168. doi:10.1016/j.pecs.2018.02.001

Koufopoulos, C. A., Papayannakos, N., Maschio, G., & Lucchesi, A. (1991). Modelling of the pyrolysis of biomass particles. Studies on kinetics, thermal and heat transfer effects. *The Canadian journal of chemical engineering*, 69(4), 907-915.

Koufopoulos, C. A., Lucchesi, A., & Maschio, G. (1989). Kinetic modelling of the pyrolysis of biomass and biomass components. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 67(1), 75-84.

Krugly, E., Martuzevicius, D., Puida, E., Buinevicius, K., Stasiulaitiene, I., Radziunienė, I., ... Kliucininkas, L. (2014, July). Characterization of Gaseous- and Particle-Phase Emissions from the Combustion of Biomass-Residue-Derived Fuels in a Small Residential Boiler. *Energy & Fuels*, 28, 5057–5066. doi:10.1021/ef500420t

Křůmal, K., Mikuška, P., & Večeřa, Z. (2015, November). Monosaccharide anhydrides, monocarboxylic acids and OC/EC in PM1 aerosols in urban areas in the Czech Republic. *Atmospheric Pollution Research*, 6, 917–927. doi:10.1016/j.apr.2015.04.001

Kuuluvainen, H., Karjalainen, P., Bajamundi, C. J., Maunula, J., Vainikka, P., Roppo, J., Rönkkö, T. (2015, January). Physical properties of aerosol particles measured from a bubbling fluidized bed boiler. *Fuel*, 139, 144–153. doi:10.1016/j.fuel.2014.08.048

Lamberg, H., Sippula, O., Tissari, J., & Jokiniemi, J. (2011, November). Effects of Air Staging and Load on Fine-Particle and Gaseous Emissions from a Small-Scale Pellet Boiler. *Energy & Fuels*, 25, 4952–4960. doi:10.1021/ef2010578

Lefevre, G. (2018). *Caractérisation des propriétés radiatives des nanoparticules de suie en présence de composés organiques* (Doctoral dissertation, Normandie Université).

Lelynx. (2021, 08 17). *lelynx*. Récupéré sur [lelynx.fr/](https://www.lelynx.fr/energie/guide/types-energies/energies-renouvelables/france/): <https://www.lelynx.fr/energie/guide/types-energies/energies-renouvelables/france/>

Leskinen, J., Tissari, J., Uski, O., Virén, A., Torvela, T., Kaivosoja, T., Jokiniemi, J. (2014, April). Fine particle emissions in three different combustion conditions of a wood chip-fired appliance – Particulate physico-chemical properties and induced cell death. *Atmospheric Environment*, 86, 129–139. doi:10.1016/j.atmosenv.2013.12.012

Levin, E. J., McMeeking, G. R., Carrico, C. M., Mack, L. E., Kreidenweis, S. M., Wold, C. E., ... Malm, W. C. (2010, September). Biomass burning smoke aerosol properties measured during Fire Laboratory at Missoula Experiments (FLAME). *Journal of Geophysical Research*, 115. doi:10.1029/2009jd013601

Li, W., & Shao, L. (2009, May). Transmission electron microscopy study of aerosol particles from the brown hazes in northern China. *Journal of Geophysical Research*, 114. doi:10.1029/2008jd011285

Li, X., & Yin, C. (2019, February). A drying model for thermally large biomass particle pyrolysis. *Energy Procedia*, 158, 1294–1302. doi:10.1016/j.egypro.2019.01.322

Lide, D. (2004). *CRC handbook of chemistry and physics : a ready-reference book of chemical and physical data*. Boca, Raton, Fla: CRC Press.

Liu, H., Chaney, J., Li, J., & Sun, C. (2013, January). Control of NO_x emissions of a domestic/small-scale biomass pellet boiler by air staging. *Fuel*, *103*, 792–798. doi:10.1016/j.fuel.2012.10.028

Liu, L., Kong, S., Zhang, Y., Wang, Y., Xu, L., Yan, Q., Li, W. (2017, July). Morphology, composition, and mixing state of primary particles from combustion sources — crop residue, wood, and solid waste. *Scientific Reports*, *7*. doi:10.1038/s41598-017-05357-2

Llorente, M. J., & García, J. E. (2005, October). Comparing methods for predicting the sintering of biomass ash in combustion. *Fuel*, *84*, 1893–1900. doi:10.1016/j.fuel.2005.04.010

Lu, H., Robert, W., Peirce, G., Ripa, B., & Baxter, L. L. (2008, July). Comprehensive Study of Biomass Particle Combustion. *Energy & Fuels*, *22*, 2826–2839. doi:10.1021/ef800006z

Ma, W., Ma, C., Liu, X., Gu, T., Thengane, S. K., Bourtsalas, A., & Chen, G. (2021, April). Nox formation in fixed-bed biomass combustion: Chemistry and modeling. *Fuel*, *290*, 119694. doi:10.1016/j.fuel.2020.119694

Marangwanda, G. T., Madyira, D. M., & Babarinde, T. O. (2020, February). Combustion models for biomass: A review. *Energy Reports*, *6*, 664–672. doi:10.1016/j.egyr.2019.11.135

Maricq, M. M., Podsiadlik, D. H., & Chase, R. E. (2000, September). Size Distributions of Motor Vehicle Exhaust PM: A Comparison Between ELPI and SMPS Measurements. *Aerosol Science and Technology*, *33*, 239–260. doi:10.1080/027868200416231

Martínez, M. G., Floquet, P., Dupont, C., da Silva Perez, D., & Meyer, X. M. (2020). Assessing the impact of woody and agricultural biomass variability on its behaviour in torrefaction through Principal Component Analysis. *Biomass and Bioenergy*, *134*, 105474.

Matsakas, L., Gao, Q., Jansson, S., Rova, U., & Christakopoulos, P. (2017, March). Green conversion of municipal solid wastes into fuels and chemicals. *Electronic Journal of Biotechnology*, *26*, 69–83. doi:10.1016/j.ejbt.2017.01.004

Miller, J. A., & Bowman, C. T. (1989, January). Mechanism and modeling of nitrogen chemistry in combustion. *Progress in Energy and Combustion Science*, *15*, 287–338. doi:10.1016/0360-1285(89)90017-8

Ministère de la Transition Ecologique et Solidaire, M. (2019). *Chiffres clés de l'énergie*. Commissariat général au développement durable.

Mohr, A., & Raman, S. (2013). Lessons from first generation biofuels and implications for the sustainability appraisal of second generation biofuels. *Energy Policy*, 114–122.

Molina, A., Eddings, E. G., Pershing, D. W., & Sarofim, A. F. (2000, August). Char nitrogen conversion: implications to emissions from coal-fired utility boilers. *Progress in Energy and Combustion Science*, *26*, 507–531. doi:10.1016/s0360-1285(00)00010-1

Moutsoglou, A. (2012, May). A comparison of prairie cordgrass and switchgrass as a biomass for syngas production. *Fuel*, *95*, 573–577. doi:10.1016/j.fuel.2011.12.016

Nelson, L., Park, S., & Hubbe, M. A. (2018). Thermal depolymerization of biomass with emphasis on gasifier design and best method for catalytic hot gas conditioning. *BioResources*, *13*, 4630-4727.

Obaidullah, M., Bram, S., Verma, V. K., & De Ruyck, J. (2012). A review on particle emissions from small scale biomass combustion. *International Journal of Renewable Energy Research (IJRER)*, 147-159.

Obernberger, I., Biedermann, F., Widmann, W., & Riedl, R. (1997, January). Concentrations of inorganic elements in biomass fuels and recovery in the different ash fractions. *Biomass and Bioenergy*, *12*, 211–224. doi:10.1016/s0961-9534(96)00051-7.

Oser, M., Nussbaumer, T., Schweizer, B., Mohr, M., & Figi, R. (2001). Influences on aerosol formation in an automatic wood furnace. *Aerosols from Biomass Combustion*, 59-64.

Ouf, F. X., Coursil, C., Géhin, E., & Vendel, J. (2005). Comparaison de différentes méthodes de détermination des caractéristiques fractales d'agrégats de suie. *21ième Congrès Français sur les Aérosols*.

Ouf, F.-X., Bourrous, S., Fauvel, S., Kort, A., Lintis, L., Nuvoli, J., & Yon, J. (2019, August). True density of combustion emitted particles: A comparison of results highlighting the influence of the organic contents. *Journal of Aerosol Science*, *134*, 1–13. doi:10.1016/j.jaerosci.2019.04.007

OWD, O. W. (2021, 08 17). <https://ourworldindata.org/>. Récupéré sur <https://ourworldindata.org/renewable-energy>

Ozgen, S., Caserini, S., Galante, S., Giugliano, M., Angelino, E., Marongiu, A., Morreale, C. (2014, September). Emission factors from small scale appliances burning wood and pellets. *Atmospheric Environment*, *94*, 144–153. doi:10.1016/j.atmosenv.2014.05.032

Park, K., Cao, F., Kittelson, D. B., & McMurry, P. H. (2003). Relationship between particle mass and mobility for diesel exhaust particles. *Environmental science & technology*, *37*(3), 577-583.

Patiño, D., Pérez-Orozco, R., Porteiro, J., & Lapuerta, M. (2019, January). Characterization of biomass PM emissions using thermophoretic sampling: Composition and morphological description of the carbonaceous residues. *Journal of Aerosol Science*, *127*, 49–62. doi:10.1016/j.jaerosci.2018.10.005

Peng, L., Li, Z., Zhang, G., Bi, X., Hu, W., Tang, M., Sheng, G. (2021, July). A review of measurement techniques for aerosol effective density. *Science of The Total Environment*, *778*, 146248. doi:10.1016/j.scitotenv.2021.146248

Pettersen, R. C. (1984, May). The Chemical Composition of Wood. Dans *Advances in Chemistry* (pp. 57–126). American Chemical Society. doi:10.1021/ba-1984-0207.ch002

Pham, X.-H., Piriou, B., Salvador, S., Valette, J., & de Steene, L. V. (2018). Oxidative pyrolysis of pine wood, wheat straw and miscanthus pellets in a fixed bed. *Fuel Processing Technology*, 226-235.

- Pollex, A., Zeng, T., Khalsa, J., Erler, U., Schmersahl, R., Schön, C., Nelles, M. (2018, November). Content of potassium and other aerosol forming elements in commercially available wood pellet batches. *Fuel*, 232, 384–394. doi:10.1016/j.fuel.2018.06.001
- Porteiro, J., Collazo, J., Patiño, D., Granada, E., Gonzalez, J. C., & Míguez, J. L. (2009, January). Numerical Modeling of a Biomass Pellet Domestic Boiler. *Energy & Fuels*, 23, 1067–1075. doi:10.1021/ef8008458
- Porteiro, J., Míguez, J. L., Granada, E., & Moran, J. C. (2006, January). Mathematical modelling of the combustion of a single wood particle. *Fuel Processing Technology*, 87, 169–175. doi:10.1016/j.fuproc.2005.08.012
- Purvis, M. R., Tadulan, E. L., & Tariq, A. S. (2000). NO_x control by air staging in a small biomass fuelled underfeed stoker. *International journal of energy research*, 917-933.
- Qiu, G. (2013, February). Testing of flue gas emissions of a biomass pellet boiler and abatement of particle emissions. *Renewable Energy*, 50, 94–102. doi:10.1016/j.renene.2012.06.045
- Ouedraogo, A., Mulligan, J. C., & Cleland, J. G. (1998). A quasi-steady shrinking core analysis of wood combustion. *Combustion and Flame*, 114(1-2), 1-12.
- Rabaçal, M., Fernandes, U., & Costa, M. (2013, March). Combustion and emission characteristics of a domestic boiler fired with pellets of pine, industrial wood wastes and peach stones. *Renewable Energy*, 51, 220–226. doi:10.1016/j.renene.2012.09.020
- Rath, J., & Staudinger, G. (2001). Cracking reactions of tar from pyrolysis of spruce wood. *Fuel*, 80(10), 1379-1389.
- Reid, J. S., Eck, T. F., Christopher, S. A., Koppmann, R., Dubovik, O., Eleuterio, D. P., & Zhang, J. (2005). A review of biomass burning emissions part III: intensive optical properties of biomass burning particles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(3), 827-849.
- Riaza, J., Ajmi, M., Gibbins, J., & Chalmers, H. (2017, July). Ignition and Combustion of Single Particles of Coal and Biomass under O₂/CO₂ Atmospheres. *Energy Procedia*, 114, 6067–6073. doi:10.1016/j.egypro.2017.03.1743
- Ristimäki, J., Virtanen, A., Marjamäki, M., Rostedt, A., & Keskinen, J. (2002, November). On-line measurement of size distribution and effective density of submicron aerosol particles. *Journal of Aerosol Science*, 33, 1541–1557. doi:10.1016/s0021-8502(02)00106-4
- Saastamoinen, J., Aho, M., Moilanen, A., Sørensen, L. H., Clausen, S., & Berg, M. (2010, May). Burnout of pulverized biomass particles in large scale boiler – Single particle model approach. *Biomass and Bioenergy*, 34, 728–736. doi:10.1016/j.biombioe.2010.01.015
- Sadhukhan, A. K., Gupta, P., & Saha, R. K. (2009, June). Modelling of pyrolysis of large wood particles. *Bioresource Technology*, 100, 3134–3139. doi:10.1016/j.biortech.2009.01.007
- Salzmann, R., & Nussbaumer, T. (2001, May). Fuel Staging for {NO_xReduction} in Biomass Combustion, Experiments and Modeling. *Energy & Fuels*, 15, 575–582. doi:10.1021/ef0001383

Schofield, K. (2020). *Combustion Emissions: Formation, Reaction, and Removal of Trace Metals in Combustion Products*. Academic Press.

Steinfeld, J. I. (1998). Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change. *Environment: Science and Policy for Sustainable Development*, 40(7), 26-26.

Serrano, C., Portero, H., & Monedero, E. (2013, September). Pine chips combustion in a 50kW domestic biomass boiler. *Fuel*, 111, 564–573. doi:10.1016/j.fuel.2013.02.068

SFPE. (2002). *SFPE Handbook of Fire Protection Engineering* (éd. 3). Massachusetts: National Fire Protection Association.

Sher, F., Pans, M. A., Sun, C., Snape, C., & Liu, H. (2018, March). Oxy-fuel combustion study of biomass fuels in a 20 kWth fluidized bed combustor. *Fuel*, 215, 778–786. doi:10.1016/j.fuel.2017.11.039

Shi, S., Cheng, T., Gu, X., Guo, H., Wu, Y., & Wang, Y. (2019, May). Biomass burning aerosol characteristics for different vegetation types in different aging periods. *Environment International*, 126, 504–511. doi:10.1016/j.envint.2019.02.073

Shin, W. G., Wang, J., Mertler, M., Sachweh, B., Fissan, H., & Pui, D. Y. (2010, November). The effect of particle morphology on unipolar diffusion charging of nanoparticle agglomerates in the transition regime. *Journal of Aerosol Science*, 41, 975–986. doi:10.1016/j.jaerosci.2010.07.004

Simoneit, B. R. (2002, March). Biomass burning — a review of organic tracers for smoke from incomplete combustion. *Applied Geochemistry*, 17, 129–162. doi:10.1016/s0883-2927(01)00061-0

Simoneit, B. R., Rogge, W. F., Mazurek, M. A., Standley, L. J., Hildemann, L. M., & Cass, G. R. (1993, November). Lignin pyrolysis products, lignans, and resin acids as specific tracers of plant classes in emissions from biomass combustion. *Environmental Science & Technology*, 27, 2533–2541. doi:10.1021/es00048a034

Sippula, O. L. L. I. (2010). Fine particle formation and emissions in biomass combustion. *Report series in aerosol science*, 108.

Sitek, T., Pospíšil, J., Poláčik, J., Špiláček, M., & Varbanov, P. (2019, September). Fine combustion particles released during combustion of unit mass of beechwood. *Renewable Energy*, 140, 390–396. doi:10.1016/j.renene.2019.03.089

Smoot, L. D., & Smith, P. J. (1985). *Coal Combustion and Gasification*. Plenum Press.

Soete, G. G. (1991, January). Heterogeneous N₂O and NO formation from bound nitrogen atoms during coal char combustion. *Symposium (International) on Combustion*, 23, 1257–1264. doi:10.1016/s0082-0784(06)80388-7

Solomon, P. A., & Sioutas, C. (2008, February). Continuous and Semicontinuous Monitoring Techniques for Particulate Matter Mass and Chemical Components: A Synthesis of Findings from EPA's Particulate Matter Supersites Program and Related Studies. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 58, 164–195. doi:10.3155/1047-3289.58.2.164

Sorensen, C. M. (2011, July). The Mobility of Fractal Aggregates: A Review. *Aerosol Science and Technology*, 45, 765–779. doi:10.1080/02786826.2011.560909

Spencer, M. T., Shields, L. G., & Prather, K. A. (2007). Simultaneous Measurement of the Effective Density and Chemical Composition of Ambient Aerosol Particles. *Environmental Science & Technology*.

Stimely, G. L., & Blankenhorn, P. R. (1985). Effects of species, specimen size, and heating rate on char yield and fuel properties. *Wood and Fiber Science*.

Stolarski, M. J., Krzyżaniak, M., Warmiński, K., & Śnieg, M. (2013, November). Energy, economic and environmental assessment of heating a family house with biomass. *Energy and Buildings*, 66, 395–404. doi:10.1016/j.enbuild.2013.07.050

Streets, D. G. (2004). On the future of carbonaceous aerosol emissions. *Journal of Geophysical Research*, 109. doi:10.1029/2004jd004902

Tabet, F., & Gökalp, I. (2015, November). Review on CFD based models for co-firing coal and biomass. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 51, 1101–1114. doi:10.1016/j.rser.2015.07.045

Tajima, N., Fukushima, N., Ehara, K., & Sakurai, H. (2011, February). Mass Range and Optimized Operation of the Aerosol Particle Mass Analyzer. *Aerosol Science and Technology*, 45, 196–214. doi:10.1080/02786826.2010.530625

TISSARI, J. A. (2008). Fine Particle Emissions from Residential Wood Combustion. *Kuopion Yllipisto*.

Tissari, J., Lyyränen, J., Hytönen, K., Sippula, O., Tapper, U., Frey, A., Jokiniemi, J. (2008, November). Fine particle and gaseous emissions from normal and smouldering wood combustion in a conventional masonry heater. *Atmospheric Environment*, 42, 7862–7873. doi:10.1016/j.atmosenv.2008.07.019

Tolocka, M. P., Solomon, P. A., Mitchell, W., Norris, G. A., Gemmill, D. B., Wiener, R. W., . . . Rice, J. (2001, January). East versus West in the US: Chemical Characteristics of PM_{2.5} during the Winter of 1999. *Aerosol Science and Technology*, 34, 88–96. doi:10.1080/02786820118957

Torvela, T., Tissari, J., Sippula, O., Kaivosoja, T., Leskinen, J., Virén, A., Jokiniemi, J. (2014, April). Effect of wood combustion conditions on the morphology of freshly emitted fine particles. *Atmospheric Environment*, 87, 65–76. doi:10.1016/j.atmosenv.2014.01.028

Trojanowski, R., & Fthenakis, V. (2019, April). Nanoparticle emissions from residential wood combustion: A critical literature review, characterization, and recommendations. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 103, 515–528. doi:10.1016/j.rser.2019.01.007

Tumuluru, J. S. (2015, November). Comparison of Chemical Composition and Energy Property of Torrefied Switchgrass and Corn Stover. *Frontiers in Energy Research*, 3. doi:10.3389/feenrg.2015.00046

Vakkilainen, E. (2017). *Steam generation from biomass : construction and design of large boilers*. Amsterdam: Butterworth-Heinemann.

Valerio Cozzani, M., & Leonardo Tognotti, (1996). Modeling and Experimental Verification of Physical and Chemical Processes during Pyrolysis of a Refuse-Derived Fuel. *Ind. Eng. Chem.*

van Loo, S., & Koppejan, J. (2007, March 1). *The Handbook of Biomass Combustion and Co-firing*. Taylor & Francis Ltd.

Vassilev, S. V., Baxter, D., Andersen, L. K., & Vassileva, C. G. (2010, May). An overview of the chemical composition of biomass. *Fuel*, 89, 913–933. doi:10.1016/j.fuel.2009.10.022

Vicente, E. D., & Alves, C. A. (2018, January). An overview of particulate emissions from residential biomass combustion. *Atmospheric Research*, 199, 159–185. doi:10.1016/j.atmosres.2017.08.027

Vicente, E. D., Duarte, M. A., Calvo, A. I., Nunes, T. F., Tarelho, L. A., Custódio, D., . . . Alves, C. A. (2015, December). Influence of operating conditions on chemical composition of particulate matter emissions from residential combustion. *Atmospheric Research*, 166, 92–100. doi:10.1016/j.atmosres.2015.06.016

Vovelle, C., Mellottée, H., & Delbourgo, R. (1982, January). Kinetics of the thermal degradation of cellulose and wood in inert and oxidative atmospheres. *Symposium (International) on Combustion*, 19, 797–805. doi:10.1016/s0082-0784(82)80255-5

Wan, K., Wang, Z., He, Y., Xia, J., Zhou, Z., Zhou, J., & Cen, K. (2015, January). Experimental and modeling study of pyrolysis of coal, biomass and blended coal–biomass particles. *Fuel*, 139, 356–364. doi:10.1016/j.fuel.2014.08.069

Warnatz, J. (2001). *Combustion : physical and chemical fundamentals, modeling and simulation, experiments, pollutant formation*. Berlin New York: Springer.

Weast, R. (1988). *CRC handbook of chemistry and physics*. Boca, Raton, FL: CRC Press.

Werther, J., Saenger, M., Hartge, E.-U., Ogada, T., & Siagi, Z. (2000, February). Combustion of agricultural residues. *Progress in Energy and Combustion Science*, 26, 1–27. doi:10.1016/s0360-1285(99)00005-2

Wierzbicka, A., Nilsson, P. T., Rissler, J., Sallsten, G., Xu, Y., Pagels, J. H., Gudmundsson, A. (2014, April). Detailed diesel exhaust characteristics including particle surface area and lung deposited dose for better understanding of health effects in human chamber exposure studies. *Atmospheric Environment*, 86, 212–219. doi:10.1016/j.atmosenv.2013.11.025

Wiinikka, h. e., & gebart, r. i. (2005, September). The influence of air distribution rate on particle emissions in fixed bed combustion of biomass. *Combustion Science and Technology*, 177, 1747–1766. doi:10.1080/00102200590959468

Kulkarni, P., Baron, P. A., & Willeke, K. (Eds.). (2011). *Aerosol measurement: principles, techniques, and applications*. John Wiley & Sons Willeke, K. (1993). *Aerosol measurement : principles, techniques and applications*. New York: Wiley.

Wilson, B., Williams, N., Liss, B., & Wilson, B. (2013). A comparative assessment of commercial technologies for conversion of solid waste to energy. *EnviroPower Renewable: Boca Raton, FL, USA*.

Win, K. M., & Persson, T. (2014, March). Emissions from Residential Wood Pellet Boilers and Stove Characterized into Start-up, Steady Operation, and Stop Emissions. *Energy & Fuels*, 28, 2496–2505. doi:10.1021/ef4016894

Wornat, M. J., Sarofim, A. F., & Longwell, J. P. (1987). Changes in the degree of substitution of polycyclic aromatic compounds from pyrolysis of a high-volatile bituminous coal. *Energy & fuels*, 1(5), 431-437.

Xu, L., Liu, L., Zhang, J., Zhang, Y., Ren, Y., Wang, X., & Li, W. (2017, February). Morphology, Composition, and Mixing State of Individual Aerosol Particles in Northeast China during Wintertime. *Atmosphere*, 8, 47. doi:10.3390/atmos8030047

Yon, J., Bescond, A., & Ouf, F.-X. (2015, September). A simple semi-empirical model for effective density measurements of fractal aggregates. *Journal of Aerosol Science*, 87, 28–37. doi:10.1016/j.jaerosci.2015.05.003

Yon, J., Bellivier, A., Ouf, F. X., Bescond, A., Dreuille, N, et al. Etude expérimentale de la réponse du PPS Pegasor à la nature et au diamètre des agrégats de suie. *CFA*, 2015, Paris, Région indéterminée

Zabetta, E. C., Hupa, M., & Saviharju, K. (2005, June). Reducing NO_x Emissions Using Fuel Staging, Air Staging, and Selective Noncatalytic Reduction in Synergy. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 44, 4552–4561. doi:10.1021/ie050051a

Zamir, E., Frey, C., Weiss, M., Antona, S., Frohnmayr, J. P., Janiesch, J.-W., Spatz, J. P. (2017, October). Reconceptualizing Fluorescence Correlation Spectroscopy for Monitoring and Analyzing Periodically Passing Objects. *Analytical Chemistry*, 89, 11672–11678. doi:10.1021/acs.analchem.7b03108

Zhai, J., Lu, X., Li, L., Zhang, Q., Zhang, C., Chen, H., Chen, J. (2017, June). Size-resolved chemical composition, effective density, and optical properties of biomass burning particles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17, 7481–7493. doi:10.5194/acp-17-7481-2017

Zhang, M., Wang, X., Li, C., Bai, Y., Cheng, B., & Li, Z. (2016). Effects of hydrogen bonding between MWCNT and PPS on the properties of PPS/MWCNT composites. *RSC Advances*, 6, 92378–92386. doi:10.1039/c6ra19119c

