CHAPITRE II :

FEUX DE BIOMASSE VEGETALE ET LEURS PRODUITS

L'objet de ce chapitre est de présenter les caractéristiques spécifiques des feux de biomasse végétale et celles des composés qu'ils produisent, en se fondant sur une synthèse des données expérimentales disponibles. Celles-ci sont obtenues par des expériences de terrain ou par des expérimentations en laboratoire. Cette présentation sert à documenter la relation observée entre les composés produits et les différents modes particuliers de combustion mis en jeu. Ceci a pour but de traduire la combustion de biomasse végétale en une somme de contributions identifiables et paramétrables afin de mieux cerner la formation des produits observés.

Pour ce faire, nous décrirons dans un premiers temps comment se déroule un feu de biomasse végétale en faisant ressortir les différentes phases spécifiques de combustion. Puis nous examinerons la nature des produits formés, en particulier celle des émissions gazeuses et particulaires, en fonction de la qualité de la combustion mise en jeu. Nous définirons notamment les rapports "inter-composés" qui caractérisent la composition relative des différentes fractions de matière produites par chaque type de combustion spécifique. Ceci a pour objectif de spécifier les relations quantitatives qui pourraient ou devraient exister entre le mode de combustion et la composition des produits.

1. Description du déroulement d'un feu de biomasse végétale :

Lors d'un feu de végétation naturelle, une succession d'étapes est descriptible : ignition, pyrolyse du combustible végétal, combustion avec la présence de flamme, combustion incandescente, combustion lente qui couve, et

extinction. Pour simplifier les expressions définissant ces phases caractéristiques, nous avons choisi d'employer, dans la suite de ce travail, les termes anglais qui sont généralement utilisés par toute la communauté scientifique pour expliciter le déroulement d'un feu en association avec ses émissions atmosphériques, à savoir :

- le "flaming" : phase du feu avec la présence de flammes ;
- le "glowing" : phase où le lit de combustible est incandescent ;
- le "smouldering" ou "smoldering" : phase de combustion lente qui couve en général sous les cendres en émettant une grande quantité de fumerolles blanchâtres.

Pour la caractérisation de ces différentes étapes, nous nous baserons sur les travaux de Ward (Ward, 1990) et Lobert et Warnatz (Lobert et Warnatz, 1993) qui ont décrit d'une manière relativement détaillée le déroulement d'un feu de biomasse végétale. Ces travaux ont indiqué que le flaming et le smoldering constituent les deux principales phases du feu de végétation. Nous nous focaliserons donc plus particulièrement sur ces deux modes de brûlage.

1. 1. Déclenchement d'un feu de biomasse végétale :

L'ignition d'un végétal dépend à la fois de la nature du combustible et des facteurs physiques qui gouvernent l'environnement dans lequel il se trouve : la teneur en eau ou le type du combustible, la température ambiante, l'humidité relative, et le vent. Après un allumage (par exemple : par des étincelles ou des éclairs), une surface incandescente limitée produit de petites flammes avec un taux de production de chaleur très réduit. Bien que ce processus d'initiation soit essentiel pour le développement d'un feu, il peut difficilement être traité comme un processus indépendant des autres. Certains travaux (Williams, 1977 ; Kanury, 1985) soulignent que cette étape initiale est un processus cinétiquement contrôlé,

qui peut s'achever avant même que le feu puisse se maintenir et se poursuivre par un mode de combustion de type smoldering ou flaming.

1. 2. Mode de combustion de type flaming :

Dans les conditions favorables pour la propagation du feu, celui-ci se développe en s'intensifiant. Ceci caractérise une combustion de type flaming. Bien que la flamme contienne potentiellement une quantité non négligeable de particules solides, le flaming peut-être représenté d'une manière simplifiée comme étant composé de deux phases physiques : l'une solide constituée du lit de combustible et des cendres produites par la combustion, l'autre gazeuse dans laquelle évolue la flamme (Figure 14).

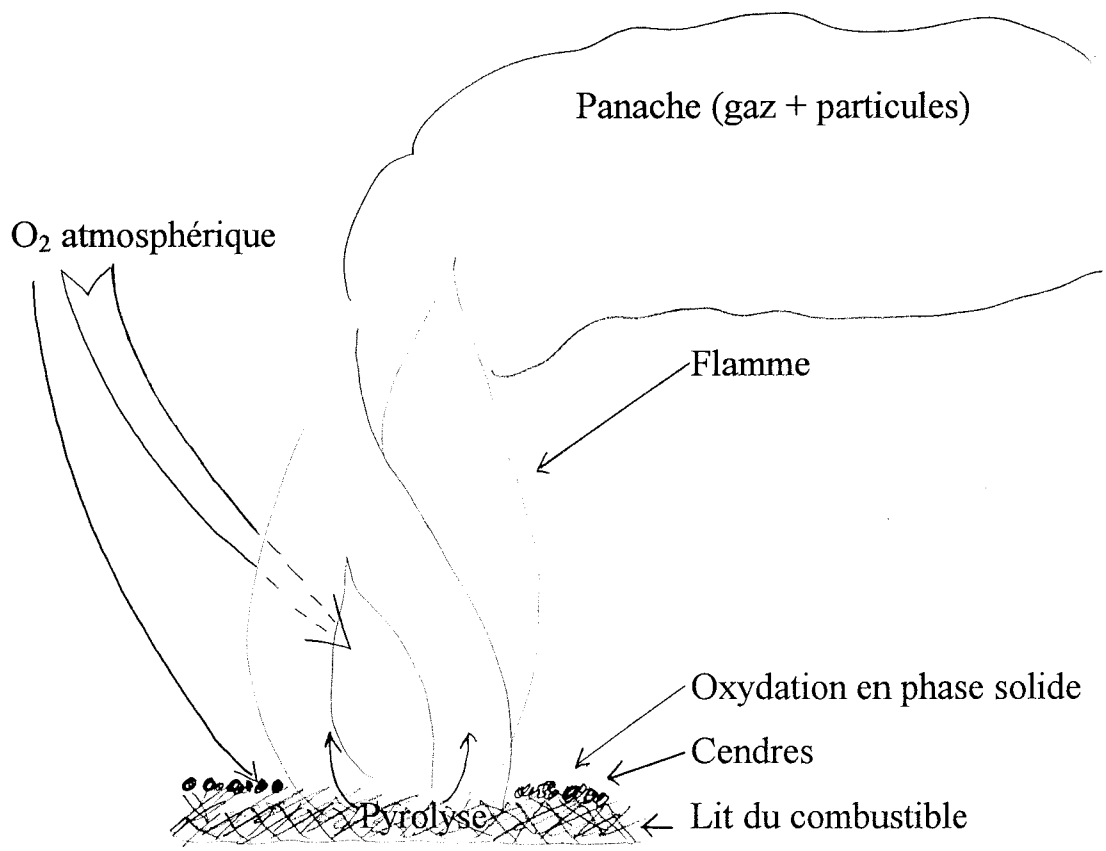

Figure 14 : Combustion de type flaming.

Tout au long de ce type de combustion, le combustible végétal est dégradé thermiquement d'une façon extrêmement hétérogène. Dès son premier contact avec un corps à haute température, il est déshydraté et perd son contenu en composés les plus volatils (alcools, aldéhydes, volatils extractibles par divers solvants organiques, etc.). Immédiatement après cette étape initiale vient la pyrolyse, durant laquelle l'effet thermique de plus en plus intense détruit les molécules constitutives du végétal par craquage. Cette pyrolyse du végétal produit d'une part des composés gazeux et d'autre part des solides formés à haute température (charbon, oxydes minéraux, etc.). Ces derniers constituent la majeure partie des cendres qui restent préférentiellement au sol. Néanmoins, ils peuvent également être mobilisés dans l'atmosphère par turbulence, notamment lorsque l'intensité de la flamme et le vent y sont favorables.

Le spectre des composées gazeux émis par cette décomposition pyrolytique est extrêmement large et complexe puisqu'il inclut des composés riches en espèces réduites allant de celles présentes à l'état atomique jusqu'aux molécules à très longue chaîne et très polymérisées (CO, H_2, CH_4, C_2H_2, etc). Durant la pyrolyse se forme par exemple le goudron dont la valeur calorifique peut représenter jusqu'à 2/3 de l'énergie emmagasinée dans les gaz produits (Chandler et al., 1983).

En ce qui concerne la température maximale dans le lit du combustible qui représente approximativement la température de la pyrolyse, celle-ci peut atteindre une valeur aussi élevée que 1800 K (≈1500°C), quoiqu'elle se situe généralement plus bas. D'après les analyses thermogravimétriques (Ward, 1990), le processus pyrolytique démarre aux alentours de 500 K (≈200°C). En dessous de cette température, il est endothermique et nécessite une source importante extérieure de chaleur pour se maintenir (Kanury, 1985). Une pure pyrolyse conduirait au processus de type glowing dont la température se situe aux alentours de 800 K (≈500°C) en présence d'oxygène (Ward, 1990 ; Lobert et

Warnatz, 1993). En principe, un glowing conduit à l'oxydation du charbon en CO puis en CO_2.

Les gaz pyrolytiques s'échappant de la phase solide (constituée du lit de combustible et de cendres) sont dilués et oxydés par l'air ambiant pour former un mélange inflammable observable sous forme de flamme, dans laquelle les gaz pyrolytiques primaires sont convertis en produits secondaires de poids moléculaires moins élevés. Ainsi, la décomposition pyrolytique du combustible végétal solide produit des matières gazeuses de masse moléculaire intermédiaire qui alimentent la flamme. Le taux de pyrolyse détermine en conséquence la quantité de gaz inflammables disponibles, et donc la géométrie ainsi que l'intensité de la flamme. Une partie de la chaleur dégagée par celle-ci est ensuite retransférée à la phase solide par convection ou radiation. Ce phénomène permet alors à la pyrolyse du combustible végétal restant de se poursuivre.

La flamme produite par un feu de biomasse végétale est en fait un mélange de deux types de flammes primaires : laminaire de diffusion et laminaire prémélangé. Au sein de cette flamme, les gaz produits par pyrolyse s'échappent de la phase solide et diffusent du coeur vers l'extérieur de l'enveloppe pour se mélanger avec l'air ambiant qui parcourt le chemin inverse (Figure 14). Des réactions chimiques d'oxydation très exothermiques se produisent alors entre les gaz pyrolytiques et l'oxygène de l'air. Il existe donc des gradients à la fois de concentrations des espèces chimiques et de température dans l'enveloppe de la flamme constituée (Van Tiggelen, 1967). De par sa nature, celle-ci représente un système complexe qui nécessite une description à deux dimensions (2D), voire trois dimensions (3D), et une paramétrisation d'un fluide non-stationnaire. Une modélisation quantitative des processus qui la gouvernent à l'aide des simulations directes : c'est-à-dire résoudre des systèmes d'équations de type Navier-Stokes incluant une chimie détaillée avec le bilan d'énergie des réactions et la conservation du bilan matière comme contrainte, dépasserait largement la

capacité de calcul informatique actuelle (Van Tiggelen, 1967 ; Lobert et Warnatz, 1993).

La flamme résultant de la combustion en phase gazeuse des hydrocarbures plus ou moins complexes contient en général des espèces chimiques très diverses : des atomes isolés ou des radicaux tels que OH° formés dans la partie la plus chaude de la flamme, les hydrocarbures combustibles primaires tels que les constituants des gaz pyrolytiques, les produits d'oxydation, etc. (Van Tiggelen, 1967 ; Hucknall, 1985 ; Kanury, 1985, Haupais, 1992). Dans un premier temps les hydrocarbures combustibles primaires sont attaqués par des espèces réactives comme les atomes isolés ou les radicaux. Ceci donne naissance aux hydrocarbures radicaux de petites chaînes tels que $CH_3°$ ou $C_2H_5°$, qui sont ensuite oxydés en CO, et surtout en CO_2 et H_2O. Cette étape d'oxydation est une étape lente dans la formation des produits dans la flamme. La similitude des composés produits par toute sorte de combustion de matière organique, en majorité constitués de CO_2 et H_2O, peut sans doute être expliquée par la présence de cette étape déterminante dans le mécanisme chimique réactionnel. Ces attaques radicalaires et cette oxydation peuvent s'effectuer à des températures aux alentours de 1000 K (≈700°C). Plusieurs travaux indiquent qu'en dessous de cette température, des mécanismes spécifiques de décomposition thermique des molécules combustibles gazeuses plus complexes sont à prendre en compte (Van Tiggelen, 1967 ; Pollard, 1977 ; Hucknall, 1985).

La quantité de chaleur dégagée par la flamme issue de la combustion totale des hydrocarbures purs peut faire augmenter sa température jusqu'à environ 2200 K (≈1900°C). Compte tenu du mélange complexe que constituent les gaz pyrolytiques, la température maximale de la flamme d'un feu de biomasse végétale devrait se situer à des centaines de degrés en dessous de cette température (Lobert et Warnatz, 1993). La quantité de chaleur dégagée par les réactions chimiques de la flamme est en fait fortement couplée à la formation de

CO et CO_2 à l'intérieur de celle-ci. Le monoxyde de carbone se forme préférentiellement dans la partie de la flamme riche en gaz combustibles primaires ou à des températures trop faibles pour produire OH° qui favoriserait sa conversion en CO_2 suivant la réaction : $CO + OH° \rightarrow CO_2 + H°$.

En sortant de la flamme, les produits secondaires gazeux riches en espèces oxydées (CO_2, H_2O, CO, NO_X, SO_2, etc.) sont en contact direct avec l'air ambiant, et observables sous forme de panache de fumée blanchâtre (Figure 14).

1. 3. Processus de combustion de type smoldering :

Lorsque la majeure partie de combustible végétal initial solide est consommée, ou encore lorsqu'il est trop compact ou recouvert d'une quantité importante de cendres, la pyrolyse laisse s'échapper moins de gaz inflammables de la phase solide pour alimenter la flamme. Ainsi, l'intensité de cette dernière diminue et devient peu à peu inobservable. Les gaz issus de la pyrolyse ne brûlent alors que partiellement avec l'oxygène de l'air, juste à la surface même de la phase solide. Une partie de la chaleur produite par cette combustion partielle diffuse dans la phase solide, et elle est utilisée par celle-ci comme source de chaleur pour maintenir la pyrolyse du combustible végétal restant. C'est ce qui caractérise une combustion appelée du type smoldering. Cette phase peut durer très longtemps au sein d'un feu si la quantité de chaleur dégagée par la combustion partielle compense suffisamment celle nécessaire à la pyrolyse pour se poursuivre. Ceci dépend fortement de la densité du combustible restant qui conditionne la diffusion de l'oxygène de l'air vers les gaz pyrolytiques au niveau de la surface de la phase solide. Si la température de celle-ci est inférieure à 850 K (≈600°C), c'est la réaction entre l'oxygène et le carbone pour former CO qui prédomine. A une température supérieure à 950 K (≈700°C), CO_2 est également

formé (Pascal, 1969 ; Kanury, 1985 ; Lobert et Warnatz, 1993). Le CO étant observé comme l'espèce carbonée majeure produite par le smoldering, ce type de combustion est pressenti correspondre à un mode ayant lieu à plus basse température que le flaming. Le smoldering émet en fait des composés peu oxydés à l'issue de la combustion partielle : ils sont comparables à ceux produits par la pyrolyse du végétal initial. L'absence de flamme apparente montre que ces composés ne sont plus soumis à une oxydation supplémentaire en sortant de la phase solide. Les émissions en contact direct avec l'air atmosphérique sont observables sous forme de fumerolle dense et légèrement jaunâtre (Figure 15). Le feu s'éteint lorsque la pyrolyse ne peut plus se maintenir (manque de combustible, insuffisance d'énergie fournie par la réaction entre l'oxygène et les gaz pyrolytiques, etc.).

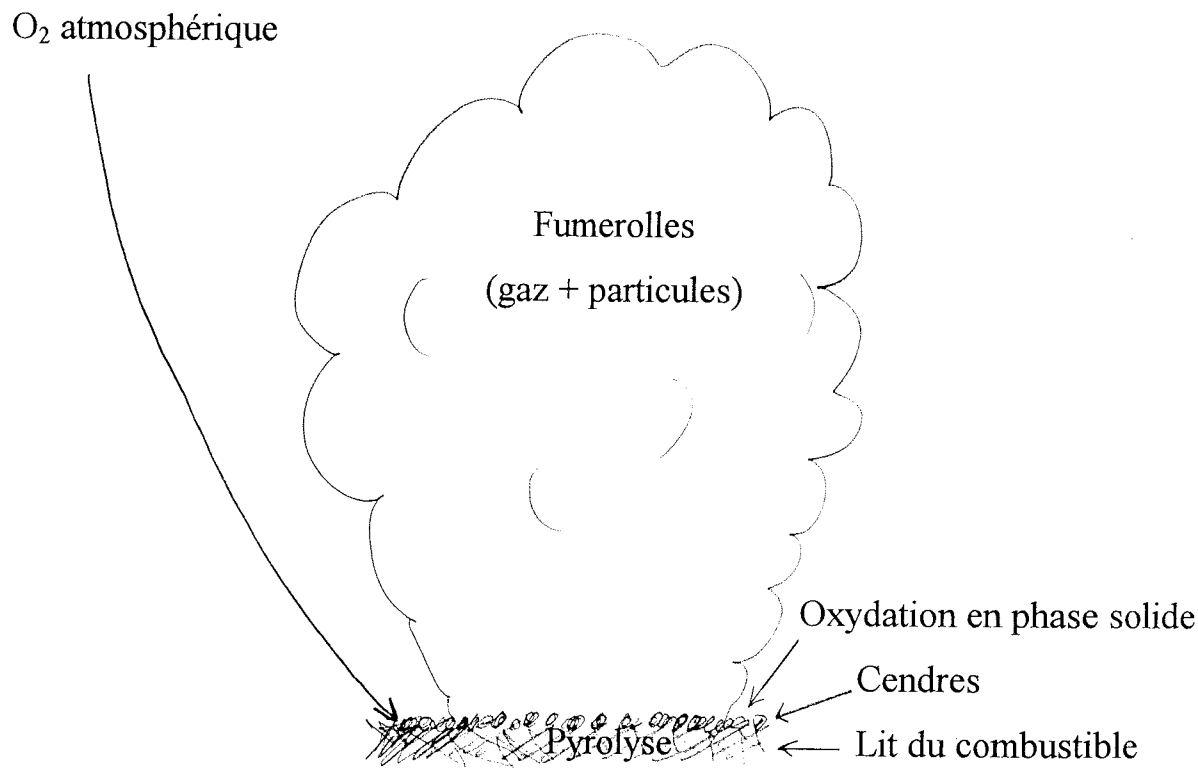

Figure 15 : Combustion de type smoldering.

Suivant cette description, le flaming et le smoldering peuvent être considérés comme deux modes spécifiques de combustion. Ils se succèdent dans un feu de végétation, et consomment le combustible végétal de départ par une transformation irréversible, dépendant fortement des conditions de température et d'oxygénation. Ce sont deux phénomènes très différents qui contribuent à la diversité des produits de combustion par les mécanismes réactionnels qu'ils engendrent. De toute évidence, la régulation de l'apport par diffusion de la quantité d'oxygène nécessaire pour le développement de chaque mode apparaît comme le paramètre qui détermine la prédominance d'un processus sur l'autre. Lobert et Warnatz (Lobert et Warnatz, 1993) soulignent qu'un smoldering demande seulement une concentration de 5% en oxygène dans le mélange pour se produire, alors que plus de 15% sont nécessaires pour un flaming. Ceci permet au smoldering de s'effectuer même lorsque le combustible est sous forme compacte, muni d'une grande densité volumique.

Le taux d'oxygénation d'une combustion est en fait influencé par plusieurs facteurs tels que la dynamique du feu, les caractéristiques physico-chimiques du végétal initial (comprenant son arrangement, sa distribution en taille, sa composition chimique et sa teneur en eau), les facteurs environnementaux comme la topographie ou encore les conditions météorologiques ou climatiques comme la présence de vent, de pluies, etc. Ces facteurs sont d'ailleurs mentionnés par plusieurs travaux comme étant les facteurs influençant les émissions des feux de végétation (Ward, 1990 ; Lobert et al., 1991 ; Lobert et Warnatz, 1993 ; Albini, 1993 ; Ward et Radke, 1993).

2. Nature des produits de combustion de biomasse végétale :

Les observations menées jusqu'à présent sur les feux de végétation se sont surtout orientées vers l'étude des émissions de gaz et de particules. En effet, seuls quelques travaux (Menaut et al., 1991 ; Menaut, 1993) mentionnent une composition partielle des cendres, afin d'évaluer l'effet du feu sur le déstockage instantané de l'écosystème pour certains éléments : le carbone représenterait, par exemple, environ 10% du poids sec des cendres produites par les feux de savanes humides de l'Afrique de l'Ouest (Menaut et al., 1991). Néanmoins, ces résidus de combustion peuvent représenter une fraction non négligeable dans le bilan global des produits issus des feux de biomasse végétale. Il est donc nécessaire de les prendre en compte dans la quantification des flux d'émission de cette source, et ce d'autant plus que suivant l'intensité du feu et de la présence du vent, ils sont susceptibles d'être remobilisés dans l'atmosphère. Nous développerons l'étude de ces cendres dans le chapitre suivant de ce mémoire.

Dans cette partie, nous nous focaliserons plus particulièrement notre synthèse sur la nature des gaz et des particules émis par la combustion de biomasse végétale pour lesquels nous disposons de relativement nombreuses observations tant qualitatives que quantitatives.

2. 1. Composés gazeux :

D'après la description phénoménologique d'un feu de combustible végétal, le smoldering produirait, suivant sa qualité de combustion, un grand nombre de composés peu oxydés ou réduits : CO, H_2, CH_4, C_2H_2, C_2H_4, etc. Par contre le flaming, qui est le processus de combustion prédominant surtout au début d'un feu, émettrait en conséquence de sa bonne condition d'oxygénation une grande quantité de composés oxydées : CO_2, H_2O, NO_X, N_2, SO_2, etc. A partir de ces

constatations Lobert et al. (Lobert et al., 1991) ont réalisé un suivi des émissions des feux de biomasse végétale reconstitués dans une chambre de combustion. Ils ont montré que la composition des gaz émis peut être expliquée par la différence de qualité de combustion qui existe entre le flaming et le smoldering (Figure 16).

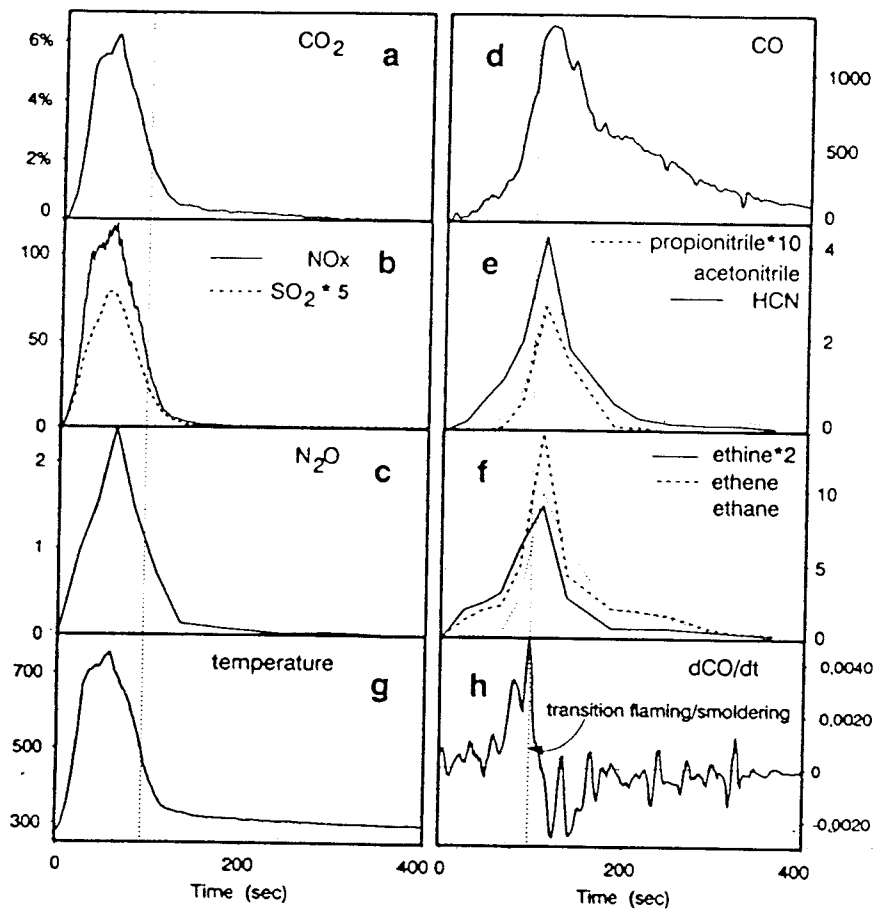

Figure 16 : Rapports de mélange soustraits des bruits de fond en % pour CO2 et ppmv pour les autres gaz, les températures des gaz échantillonnés en Kelvin, et la courbe de dCO/dt pendant les 400 premières secondes, le maximum de dCO/dt est prise comme référence pour définir la transition entre flaming et smoldering, (d'après Lobert et al., 1991).

Sur les Figures 16 a, b, c, d, e et f, Lobert et al. (Lobert et al., 1991) ont reporté la durée du feu en abscisses et le rapport de mélange en volume des différents gaz mesurés en ordonnées. La ligne pointillée verticale marque la transition du flaming au smoldering qui coïncide avec la disparition de la flamme, définie comme référence reproductible par le maximum de dCO/dt. Le flaming émet simultanément CO_2, SO_2, NO_2 et N_2O (Figures 16 a,b et c). Ces gaz gardent une température élevée même à une distance non négligeable du feu, compte tenu du fait qu'ils ont été mesurés à 2 m. au-dessus de celui-ci (Figure 16 g). Par contre, le smoldering produit en même temps du CO, C_2H_2, C_2H_4, C_2H_6, HCN, CH_3CN, etc. (Figure 16 d,e et f). D'après cette observation, il a été établi que pour un feu d'un végétal donné, des tendances corrélatives d'émission existent entre les composés générés par le même mode de combustion : NO_x, N_2O et SO_2 avec CO_2 ; et C_2H_2, CH_3CN et d'autres composés réduits avec CO (Figure 17). Par contre, des espèces produites par deux modes différents sont anti-corrélées (Figures 17). Il est à noter qu'au cours de ces expériences en chambre de combustion, Lobert et al. (Lobert et al., 1991) ont brûlé plusieurs sortes de combustibles : herbes de savane, herbes fraîches, aiguilles de pin, etc. A partir de l'ensemble des résultats obtenus pour ces différentes espèces végétales, pour lesquelles seules les teneurs en carbone, en azote et en eau ont été déterminées (Tableau 3), ils ont proposé les valeurs maximales de rapports de mélange typiques de plusieurs gaz en fonction du mode spécifique de combustion (Tableau 4). Considérant les corrélations entre les composés émis par le même mode, nous avons calculé à partir de ces valeurs maximales, les rapports normalisés au CO_2 pour le flaming, et au CO pour le smoldering, afin d'établir les proportions relatives typiques de l'émission produite par chacun des deux modes spécifiques de combustion (Tableau 5). Ceci pourrait servir à identifier la spécificité de formation de chaque composé gazeux.

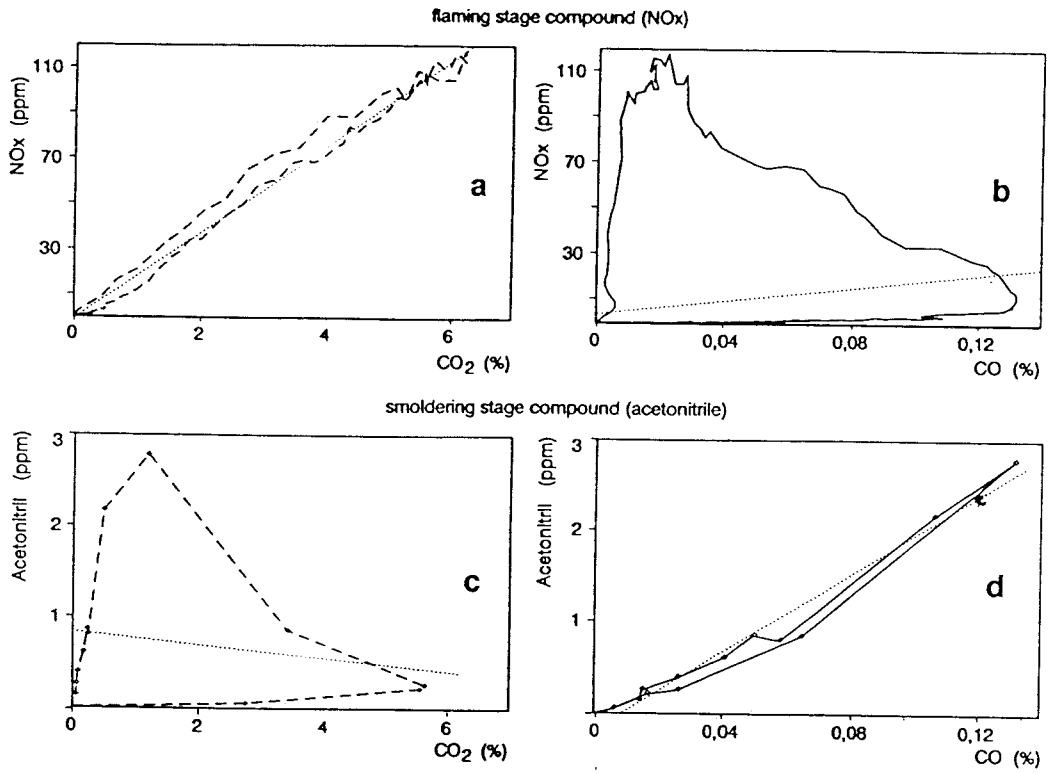

Figure 17 : Si des composés sont produits par le même processus de combustion, ils montrent une bonne corrélation linéaire (a et d), sinon une anti-corrélation significative est observable (b et c). Les facteurs d'émission ne pourraient être calculés que si une tendance corrélative linéaire et positive est obtenue, (d'après Lobert et al., 1991).

	C-content (%)	N-content (%)	Moisture (%)	N/C molar (%)
Savanna grass (Australian)	45.7 ± 0.1 (3)	0.15 ± 0.02 (3)	2.0 (1)	0.29 ± 0.04 (3)
Straw	45.0 ± 0.4 (15)	0.19 ± 0.08 (15)	4.1 ± 2.1 (5)	0.35 ± 0.15 (15)
Deciduous wood	48.3 ± 0.1 (3)	0.23 ± 0.02 (3)	3.4 (1)	0.47 ± 0.04 (3)
Savanna grass (Venezuelan)	44.1 ± 0.6 (24)	0.48 ± 0.06 (24)	5.2 ± 1.9 (7)	0.94 ± 0.12 (24)
Needle litter	48.1 ± 2.8 (9)	1.24 ± 0.46 (9)	8.7 ± 0.8 (2)	2.18 ± 0.69 (9)
Hay	42.0 ± 1.1 (18)	1.12 ± 0.14 (18)	6.7 ± 1.6 (4)	2.29 ± 0.29 (18)
Pine needles	49.5 ± 0.5 (24)	1.33 ± 0.22 (24)	8.7 ± 4.1 (3)	2.31 ± 0.38 (24)
Green grass	37.2 ± 0.1 (3)	2.13 ± 0.04 (3)	n.b.	4.92 ± 0.10 (3)
Tobacco	40.6 ± 0.0 (3)	2.37 ± 0.05 (3)	11.0 (1)	5.01 ± 0.09 (3)
Total average, fuels without tobacco	45.5 ± 3.3 (99)	0.86 ± 0.54 (99)	5.8 ± 2.7 (23)	1.63 ± 1.06 (99)
Total average, ashes	19.7 ± 13.8 (162)	0.58 ± 0.47 (162)	2.8 ± 1.4 (162)	2.73 ± 1.55 (162)

Note: Average ± standard deviation is followed by number of observations in parentheses.

Tableau 3 : Composition élémentaire des combustibles végétaux et des cendres des différentes expérimentations de Lobert et al., (d'après Lobert et al., 1991).

Compound	Maximum mixing ratio during fire (ppmv)	Corresponding burning stage
CO_2	60,000–100,000	Flaming
CO	1500–3000	Smoldering
CH_4	43–350	Smoldering
$HC{\equiv}CH$	4–36	Flaming
$H_2C{=}CH_2$	11–46	Smoldering
$H_3C\text{-}CH_3$	5–36	Smoldering
NO_x	100–160	Flaming
N_2O	2–19	Flaming
NH_3	Avg ~5	Smoldering
HCN	4–30	Smoldering
CH_3CN	2–10	Smoldering
SO_2	20–30	Flaming

Tableau 4 : Valeurs maximales des rapports de mélange volumique de plusieurs composés gazeux et les types spécifiques de combustion correspondants, (d'après Lobert et al., 1991).

FLAMING

Composés gazeux émis (X)	*X/CO_2 (%)*
C_2H_2	$7\ 10^{-3}$ - $4\ 10^{-2}$
NO_x	0,1 - 0,2
N_2O	$3\ 10^{-3}$ - $2\ 10^{-2}$
SO_2	0,03

SMOLDERING

Composés gazeux émis (X)	*X/CO (%)*
CH_4	3 - 12
C_2H_4	0,8 - 1,5
C_2H_6	0,3 - 1,2
NH_3	0,2 - 0,3
HCN	0,26 - 1,00
CH_3CN	0,1 - 0,3

Tableau 5 : Proportions relatives typiques des émissions gazeuses de chaque mode spécifique de combustion, (d'après les données de Lobert et al., 1991).

A partir de ces données, Lobert et al. ont estimé des facteurs d'émission des différents composés carbonés et azotés d'intérêt (Lobert et al., 1991). L'inconvénient majeur de ces estimations repose sur le fait que toutes les mesures sont relatives à celles de CO et surtout CO_2. Or, ces dernières peuvent varier de plus d'un facteur deux d'une expérience à l'autre (Tableau 4). De plus, on ne connaît pas la contribution propre de chaque mode spécifique de combustion,

puisque les mesures d'émission ont été effectuées en suivant l'évolution temporelle du feu. Pour un composé donné, on a donc un mélange d'émission contribué d'une part par le flaming, et d'autre part par le smoldering. Il en découle que, pour estimer le facteur d'émission de ce composé, il a fallu pondérer approximativement la fraction émise par chacun des deux modes de combustion.

En ce qui concerne la qualité de combustion d'un feu, celle-ci peut être déterminée théoriquement par le rapport $[CO_2]_a/[CO_2]_t$, appelé l'efficacité de combustion (Ward et Radke, 1993), $[CO_2]_a$ désignant la quantité de CO_2 réellement émis par le feu, et $[CO_2]_t$ la quantité de CO_2 théorique si tout le carbone du combustible de départ était converti en CO_2. Dans la pratique, les expériences de feux reconstitués expérimentalement en chambre de combustion nous montrent que si CO est préférentiellement produit par le smoldering, il est aussi émis en quantité non négligeable durant le flaming (Figure 18). Ainsi, l'évolution temporelle de la concentration de ce composé par rapport à celle du CO_2 permet de rendre compte de la prédominance d'un mode spécifique de combustion sur l'autre au cours d'un feu de biomasse végétale. Le rapport CO/CO_2 peut donc servir comme l'indicateur de la qualité de combustion aussi bien du mode flaming, du smoldering, que du feu global (Lobert et al., 1991). En général, ce rapport se situe à environ 5% durant la phase flaming du feu, et aux alentours de 20% pendant le smoldering (Lobert et al., 1991 ; Lacaux, communication personnel).

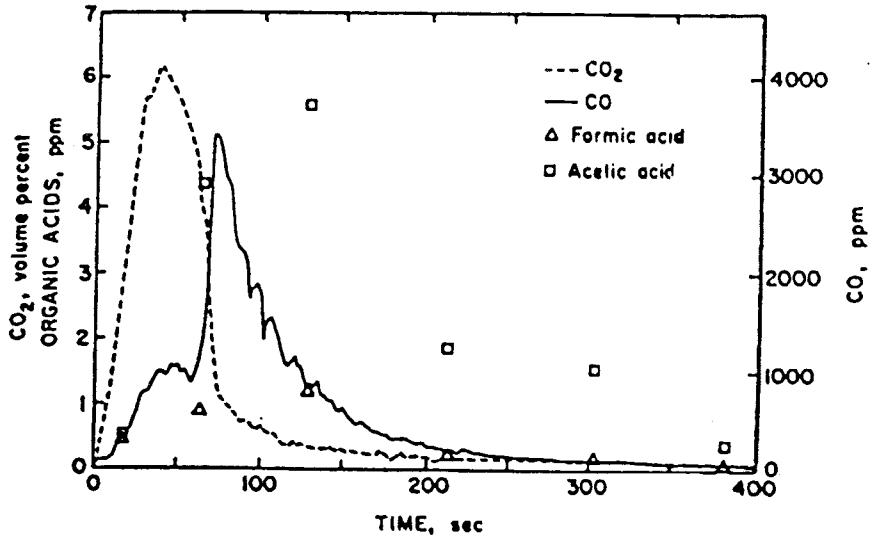

Figure 18 : Concentrations de CO et CO_2 obtenues d'un feu simulé en chambre de combustion, (d'après Andreae, 1991).

2. 2. Composés particulaires :

Les études concernant les particules émises par les feux de biomasse végétale ont été menées essentiellement durant les expériences de terrain (Crutzen et Andreae, 1990 ; Ward, 1990 ; Cachier et al., 1991 ; Lacaux et al., 1993 ; Gaudichet et al, 1995 ; Cachier et al., 1995). Elles ont montré qu'en plus des gaz, tout comme les combustions de combustibles fossiles, ces feux produisent une grande quantité de particules, majoritairement carbonées composées de deux fractions principales - carbone organique et carbone suie - qui constituent plus de 60% de la masse totale de matière particulaire (Crutzen et Andreae, 1990 ; Lacaux et al., 1993). Les différentes observations ont permis de constater que les particules émises par un smoldering sont riches en carbone organique visible par l'aspect même des filtres collectés qui sont généralement de couleurs brunâtres ou jaunâtres, alors que le carbone suie semble être quasi-exclusivement produit par un flaming : les filtres collectés sont alors plutôt gris ou noirs (Lacaux et al., 1993 ; Cachier et al., 1995). Ceci est probablement à relier à la différence de conditions d'oxygénation et de température qui existe entre un flaming et un smoldering. Toutefois, il n'existe actuellement aucune relation quantitative permettant d'expliquer cette observation. En effet, les caractéristiques de chacun des modes de combustion ont été peu documentées.

Afin de distinguer les particules émises de celles produites par les combustions de fuels fossiles, les analyses des composés de trace ont été effectuées, en particulier celles des éléments minéraux. La Figure 19 montre un exemple du profil typique en éléments minéraux des particules produites par des feux de végétation. L'étude de la composition minérale a permis de mettre en évidence que les sources de combustion de biomasse végétale émettent aussi bien les particules qu'elles génèrent que celles d'une autre provenance. En effet, de par leurs intensités qui peuvent induire une grande turbulence, elles sont susceptibles

d'engendrer le soulèvement des particules d'origine crustale, ainsi que celles issues des cendres (Gaudichet et al., 1995). Ce point reste cependant peu documenté à l'heure actuelle.

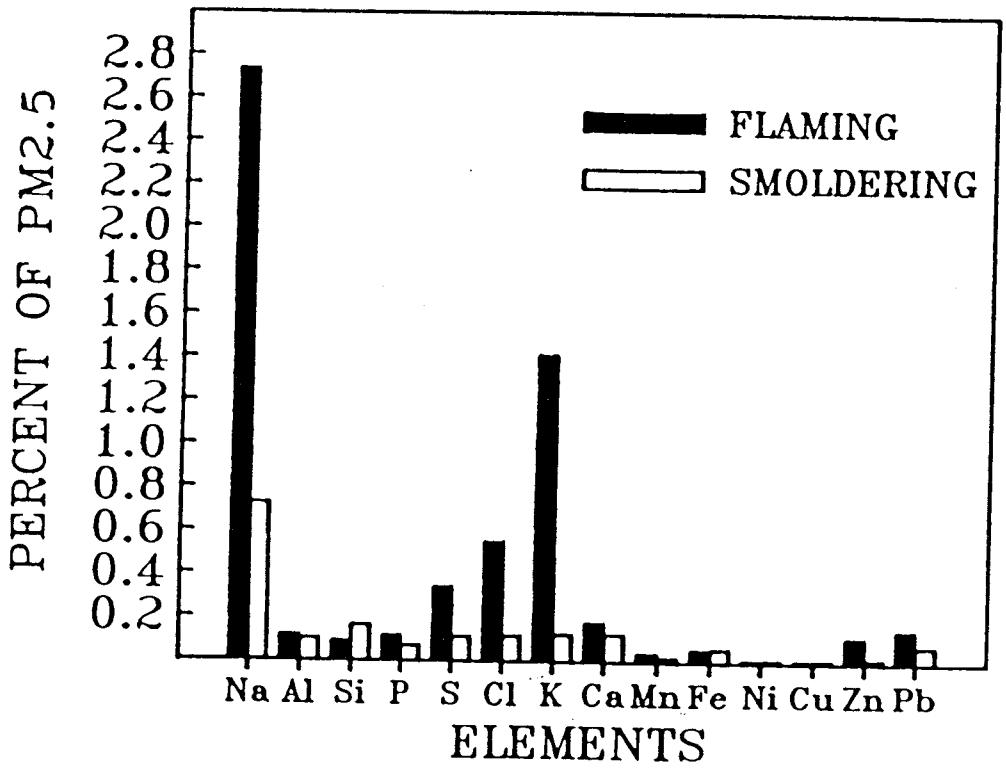

Figure 19 : Composition en pourcentage des particules dont le diamètre est inférieur à 2,5 µm dans la fumée des feux de bois coupés dans l'ouest des Etats-Unis, (d'après Ward, 1990).

D'autre part, les analyses de la composition minérale indiquent que les particules carbonées émises par les feux de végétation sont enrichies en particulier en potassium par rapport à celles produites par les combustions de combustibles fossiles, qui sont plutôt marquées par la présence du soufre sous forme de sulfate (Andreae, 1983 ; Ward, 1990 ; Cachier et al., 1995 ; Gaudichet et al., 1995). Cette distinction est sans doute due en grande partie à la différence de composition chimique qui existe entre les deux combustibles (Gaudichet et al., 1995). Toutefois, Ward et Hardy (Ward et Hardy, 1984) ont trouvé qu'il existe quantitativement une corrélation ($r = 0,92$) entre la somme des composants (S+Cl+K) et la quantité de chaleur dégagée.

Par ailleurs, Ward (Ward, 1990) mentionne qu'il y a une nette différence du contenu en potassium entre les particules produites par le smoldering et celles issues du flaming (Figure 19), et qu'en conséquence le rapport K/C peut être indicateur du mode de combustion qui donne naissance à ces particules, sachant que l'émission du potassium est proportionnelle à la quantité de chaleur émise.

Les études concernant les composés particulaires des feux de végétation révèlent également qu'un smoldering émet, en nombre ou en masse, beaucoup plus de particules qu'un flaming. Ward (Ward, 1990) estime à partir de ces mesures, sans tenir compte de la granulométrie spécifique, que le facteur d'émission des particules dont le diamètre est inférieur à 10 µm est de 4 à 40 g/kg de combustible (exprimé sur une base de matière sèche) avec une combustion du type flaming ; alors qu'il est de 5 à 50 g/kg de combustible pour un smoldering. De plus, Ward indique que 40 à 95% de la masse de la matière particulaire sont constitués de particules dont le diamètre est inférieur 2,5 µm, et que celles dont le diamètre est comprise entre 2,5 et 10 µm ne représentent qu'environ 10% de la masse totale. Ceci montre que les feux de végétation produisent essentiellement des particules dont la taille se situe dans le mode d'accumulation, même si leur distribution granulométrique est bimodale (Figure 20).

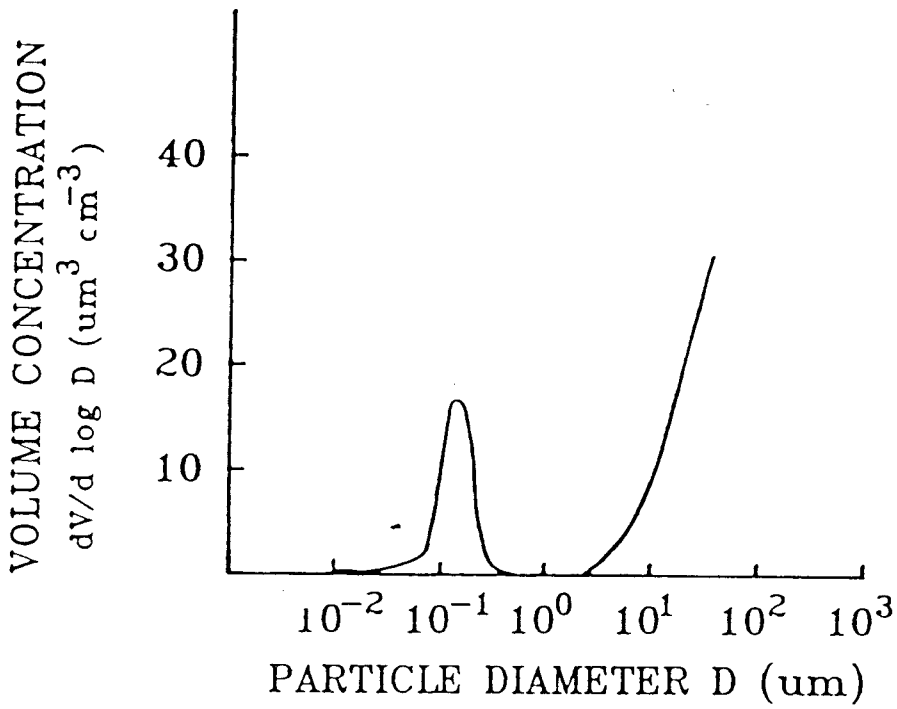

Figure 20 : Concentration volumique des particules émises par les feux de bois coupés dans l'ouest des Etats-Unis, (d'après Radke et al., 1990).

Considérant d'une part que les caractéristiques d'émission de matière totale particulaire (TPM) sont étroitement liées à la différence existante entre flaming et smoldering ; et d'autre part que l'émission du potassium particulaire est linéairement proportionnelle à la quantité de chaleur dégagée par le feu, qui est elle-même fonction du mode de combustion, nous pouvons supposer que le rapport K/TPM peut être considéré comme indicateur du mode spécifique de combustion qui donne naissance à la formation des particules émises. Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons calculés ce rapport pour des feux en phase flaming et smoldering ayant lieu dans les différents types de végétation (Tableau 6).

TYPE DE VEGETATION	FLAMING	SMOLDERING
Savane sud africaine	3,1 - 5,2	0,3 - 1,6
Savane guinéenne (Côte d'Ivoire)	3,2 - 5,5	-
Savane brésilienne	2,8 - 3,1	0,1 - 1,0
Forêt amazonienne	-	0,2 - 0,5

Tableau 6 : Rapport K/TPM (exprimé en %) des feux de différents types de végétation, (d'après les données non publiées d'Echalar)

Les résultats obtenus montrent que le rapport K/TPM reste à peu près constant pour un mode donné. De plus, quel que soit le type de végétation, ce rapport pour un smoldering est nettement plus faible comparativement à celui du flaming. Il serait donc légitime de le considérer comme un indicateur du mode de combustion, en complément de ce qui a été établi pour le rapport CO/CO_2. Du point de vue expérimental, les mesures permettant de calculer les rapports K/TPM et CO/CO_2 sont très différentes. En effet, les mesures des gaz s'effectuent

par une méthode *in-situ* : on peut donc établir leurs profils temporels. Une technique d'analyse directe étant inexistante, les mesures chimiques des particules sont toujours menées au laboratoire sur les échantillons prélevés pendant un intervalle de temps bien défini durant un feu. La composition représente donc celle qui est "ponctuelle" et moyennée sur un intervalle de temps. Par ailleurs, il est à noter que les mesures des gaz et des particules ne sont pas forcément faites au même point (spatial, temporel et de température). Compte tenu de cette différence de protocoles de mesures, le rapport K/TPM en tant qu'indicateur de mode de combustion peut apporter des informations qui complètent celles fournies par l'indicateur classique que constitue CO/CO_2.

Nous avons essayé, à travers cette présentation synthétique des données de la littérature, de mieux cerner les différents aspects phénoménologiques des feux de biomasse végétale. En mettant en parallèle les observations concernant les émissions et celles sur le déroulement du feu lui-même, nous avons pu montrer que la nature des composés produits dépend fortement des conditions physiques et chimiques de la combustion. En effet, les émissions observées proviennent du mélange de gaz et de particules générés par deux principaux modes de combustion que sont le flaming et le smoldering. Ceux-ci sont phénoménologiquement très distincts : le flaming se produit en développant des flammes, contrairement au smoldering durant lequel la combustion s'effectue essentiellement en phase solide.

Du point de vue chimique, les émissions issues de chacun des modes se distinguent par les proportions relatives du mélange gazeux et particulaire produit. On observe une tendance corrélative des gaz émis par un flaming avec le CO_2 produit, et ceux issus d'un smoldering avec le CO. En ce qui concerne les caractéristiques physico-chimiques de chaque mode de combustion, ceci pourrait

s'évaluer expérimentalement par deux rapports spécifiques de mélange : CO/CO_2 et K/TPM.

Certes, ces données expérimentales nous ont aidés à mieux identifier phénoménologiquement les caractéristiques des composés produits par les feux de biomasse végétale. Elles ne sont néanmoins pas suffisamment quantitatives pour permettre une modélisation qui expliquerait à terme la formation des espèces observées. En effet, elles ont été acquises au moyen d'un suivi de l'évolution temporelle du feu. Elles intègrent donc aussi bien la contribution du flaming que celle du smoldering. Bien que certains composés aient été identifés comme étant spécifiques du flaming et certains autres du smoldering, tout ou partie des espèces observées est en fait produit par les deux modes de combustion. Par exemple, le CO est en majeure partie émis durant la phase smoldering du feu, mais son émission par le flaming est loin d'être négligeable. De plus, un feu naturel de végétation constitue un phénomène physiquement hétérogène. En effet, au cours de ce type de combustion, il y a toujours une partie du combustible qui est brûlée par un mode particulier, par exemple par un flaming, alors que l'autre partie est consumée suivant le mode smoldering. Les données disponibles ne permettent donc pas de quantifier correctement la fraction émise par chaque mode de combustion en fonction de la quantité de biomasse combustible de départ.

Pour construire un modèle théorique de compréhension de la formation des composés produits par les feux de végétation, il nous faut donc acquérir des données qui soient propres à chacun des modes de combustion.