



Dynamique de combustion des végétaux et analyse des fumées émises, effets de l'échelle et du système

Elodie Romagnoli

► To cite this version:

Elodie Romagnoli. Dynamique de combustion des végétaux et analyse des fumées émises, effets de l'échelle et du système. Chimie analytique. Université Pascal Paoli, 2014. Français. NNT : 2014CORT0011 . tel-01127945

HAL Id: tel-01127945

<https://theses.hal.science/tel-01127945>

Submitted on 9 Mar 2015

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.

Thèse présentée pour l'obtention du grade de
DOCTEUR EN CHIMIE

Mention : Chimie théorique, physique et analytique

Soutenue publiquement par

ELODIE ROMAGNOLI

le 11 Décembre 2014

**Dynamique de combustion des végétaux et analyse des fumées
émises : effets de l'échelle et du système**

Directeur(s) :

Mr Paul-Antoine SANTONI, Professeur, Université de Corse
Mme Nathalie CHIARAMONTI, Dr, Université de Corse

Rapporteurs :

Mr Laurent FERRY, Professeur, Ecole des Mines d'Alès
Mr Thomas ROGAUME, Dr-HDR, Université de Poitiers

Jury

Mr Toussaint BARBONI, Dr, Université de Corse
Mme Nathalie CHIARAMONTI, Dr, Université de Corse
Mr Michel FERRIOL, Professeur, Université de Lorraine
Mr Laurent FERRY, Professeur, Ecole des Mines d'Alès
Mr Thomas ROGAUME, Dr-HDR, Université de Poitiers
Mr Paul-Antoine SANTONI, Professeur, Université de Corse

*A la mémoire
de mes grands-parents*

Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire des Sciences pour l'Environnement- Unité Mixte de Recherche associée au CNRS 6134. Je tiens à remercier Monsieur Paul-Antoine Bisgambiglia, Professeur à l'Université de Corse et Directeur de l'UMR pour m'avoir accueillie au sein de ce laboratoire.

J'exprime mes sincères remerciements à Monsieur Paul Antoine Santoni, Professeur à l'Université de Corse et Directeur scientifique de ma thèse pour son soutien, ses conseils, sa grande disponibilité et sa patience qui ont permis la réalisation de cette thèse.

J'exprime toute ma reconnaissance à Madame Nathalie Chiaramonti, Maître de Conférences à l'Université de Corse, et co-directeur scientifique de ma thèse, pour son aide précieuse et ses encouragements qui ont permis le bon déroulement et l'aboutissement de ce travail de thèse.

Je suis très honorée que Messieurs Laurent Ferry et Thomas Rogaume aient accepté d'être rapporteurs pour ce travail de thèse. Je tiens à les remercier pour l'attention qu'ils témoignent pour ce travail. Je remercie également Monsieur Michel Ferriol qui me fait l'honneur de participer à mon jury.

Que Monsieur Toussaint Barboni, Maître de Conférences à l'Université de Corse, trouve ici l'expression de ma reconnaissance pour avoir accepté de juger ce travail et pour les nombreux conseils apportés au cours de cette thèse.

Que le Professeur Jean Costa, Directeur de l'école doctorale de l'Université de Corse trouve ici l'expression de ma respectueuse gratitude pour m'avoir accueillie dans son laboratoire « Chimie des produits naturels ».

Que Frédéric Morandini, Yolanda Perez-Ramirez, Jean-Marie Desjobert et Franck Renucci trouvent ici l'expression de mes remerciements pour l'aide précieuse et les conseils qu'ils m'ont apportés au cours de ce travail.

Que les membres de l'équipe Feux et du laboratoire « Chimie des produits naturels » trouvent ici l'expression de mes remerciements.

Une pensée particulière à mes collègues doctorants et à ceux du bâtiment 018, pour leur gentillesse et les bons moments passés ensemble, en formation ou ailleurs.

Que Marianne, Nelly, Sabrina et Magali trouvent ici l'expression de mon amitié et de mes remerciements pour leur soutien, leur bonne humeur et leur gentillesse. Enfin, j'exprime ma plus profonde gratitude à ma famille et à Romain, pour leur soutien permanent au cours de ces trois années.

Table des matières

Liste des tableaux	9
Liste des figures	13
Nomenclature	17
Chapitre 1 : Introduction	18
1.1. La combustion des végétaux	19
1.1.1. Constitution du combustible végétal	19
1.1.2. Dégradation thermique du végétal.....	19
1.1.3. Combustion en phase gazeuse	20
1.1.4. Combustion hétérogène	21
1.2. Etude de la dynamique de combustion.....	22
1.2.1. La « Flammability » du combustible.....	23
1.2.2. Puissance libérée.....	25
1.2.3. Efficacité de combustion.....	26
1.3. Etude des fumées issues de la combustion de végétaux.....	27
1.3.1. Analyses des fumées à grandes échelles (incendies et brûlages dirigés)...	27
1.3.2. Analyses des fumées à l'échelle du laboratoire	29
1.3.3. Composition des fumées et facteurs d'émissions	31
1.4. L'échelle de l'étude.....	35
1.4.1. Echelle matière.....	35
1.4.2. Echelle matériau	36
1.4.3. Echelle système	37
1.4.4. Echelle terrain	38
1.4.5. Problème du changement d'échelle.....	39

3.3.2.1. Etude des fumées à partir des analyseurs du cône Calorimètre	91
3.3.2.2. Etude des fumées par analyse IRTF	95
3.3.2.3. Bilan massique de carbone	96
Chapitre 4 : Dynamique de combustion et analyse des fumées à l'échelle du	
LSHR.....	98
4.1. Présentation du Large Scale Heat Release rate calorimeter (LSHR) et mise au point des conditions expérimentales	98
4.2. Etude des aiguilles de <i>Pinus pinaster</i>	100
4.2.1. Etude de la dynamique de combustion	100
4.2.2. Analyse des fumées	106
4.2.2.1. Etude des fumées à partir des analyseurs du cône Calorimètre	106
4.2.2.2. Etude des fumées par analyse CPG/SM et IRTF.....	109
4.2.2.3. Bilan massique de carbone	111
4.3. Analyse de l'effet d'échelle sur la combustion des aiguilles de <i>Pinus pinaster</i>	113
4.3.1. Analyse de l'effet du changement d'échelle sur la dynamique de combustion.....	113
4.3.2. Analyse de l'effet du changement d'échelle sur la production des fumées.....	116
4.3.3. Analyse de l'effet du changement d'échelle sur le bilan massique de carbone	122
4.4. Etude des aiguilles de <i>Pinus lacirio</i>	123
4.4.1. Etude de la dynamique de combustion	124
4.4.2. Analyse des fumées	128
4.4.2.1. Etude des fumées à partir des analyseurs du LSHR et de l'IRTF...	128
4.4.2.2. Bilan massique de carbone	133
4.5. Analyse de l'effet d'échelle sur la combustion des aiguilles de <i>Pinus laricio</i>	134
4.5.1. Analyse de l'effet d'échelle sur la dynamique de combustion	134
4.5.2. Analyse de l'effet du changement d'échelle sur la production des fumées.....	137
4.5.3. Analyse de l'effet d'échelle sur le bilan massique de carbone.....	143
Chapitre 5 : Dynamique de combustion et analyse des fumées à l'échelle de la	
propagation	145
5.1. Mise au point des conditions expérimentales	145

5.2. Etude de la dynamique de combustion	147
5.3. Analyse de fumées.....	152
5.3.1. Etude des fumées à partir des analyseurs du cône calorimètre	152
5.3.2. Etude des fumées par analyse DTA-CPG/SM et IRTF	156
5.3.3. Bilan massique de carbone	158
5.4. Analyse des effets du changement d'échelle et du système sur la combustion des aiguilles de pin maritime.....	159
5.4.1. Analyse des effets du changement d'échelle et du système sur la dynamique de combustion	160
5.4.2. Analyse des effets du changement d'échelle et du système sur la production des fumées	163
5.4.3. Analyse des effets du changement d'échelle et du système sur le bilan massique de carbone	181
5.4.4. Tableau de synthèse des effets du changement d'échelle et du système sur la combustion des aiguilles de <i>Pinus pinaster</i>	182
Conclusion	184
Bibliographie	190
Annexes.....	204
1. Comparaison des supports de prélèvement.....	204
2. Influence du panier de combustion	207
3. Méthodes statistiques	210
Résumé.....	213
Abstract	214

Liste des tableaux

I - I: Analyse constitutionnelle (%) de <i>Pinus pinaster</i> et <i>Pinus laricio</i> (d'après Barboni et coll., 2010 et Leroy et coll., 2009).....	19
II-I: Espèces végétales utilisées lors des expériences de combustion.....	42
II-II: Analyses élémentaires des combustibles étudiés.....	43
II- III: Pouvoirs calorifiques supérieurs et inférieurs des trois végétaux étudiés.....	44
II-IV: Rapports surface-volume (σ_{sv}) des particules végétales étudiées.....	45
II- V: Différents paramétrages des appareils.....	56
III - I: Coefficient stœchiométrique de l'oxygène et énergie dégagée par unité de masse d'oxygène consommée (MJ.kg^{-1}).....	69
III - II: Grandeurs énergétiques pour la combustion des échantillons (masse brûlée, énergie mesurée, énergie maximale théorique, efficacité de combustion et pic de puissance maximale)	72
III - III: Total de fumées produites, masse de suies et facteurs d'émissions de suies obtenus lors des combustions avec le cône calorimètre.....	77
III - IV: Quantités et facteurs d'émission de monoxyde et de dioxyde de carbone au cours de la combustion	78
III - V: Facteurs d'émission de CO et CO ₂ au cours des phases de combustion.....	79
III - VI: Facteurs d'émission des composés gazeux analysés par IRTF et CPG/SM.....	81
III - VII: Familles chimiques identifiées par CPG/SM et IRTF	82
III - VIII: Bilan massique de carbone pour la combustion de <i>Pinus pinaster</i>	85

III - IX: Grandeurs énergétiques telles que l'énergie mesurée, l'énergie maximales dégagées, l'efficacité de la combustion et la puissance maximale pour la combustion des échantillons	88
III - X: Total de fumées produites, masse de suies et facteurs d'émissions de suies obtenus lors des combustions avec le cône calorimètre	92
III - XI: Quantités et facteurs d'émission de monoxyde et de dioxyde de carbone.....	93
III - XII: Facteurs d'émissions CO et CO ₂ au cours des phases de combustion.....	94
III - XIII: Composés identifiées par IRTF.....	95
III - XIV: Bilan massique de carbone pour la combustion de <i>P. laricio</i>	97
IV - I: Grandeurs énergétiques pour la combustion des échantillons (masse brûlée, énergie mesurée, énergie maximale théorique, efficacité de combustion et pic de puissance maximale).....	102
IV - II: Mesure du TSP, de la masse de suies produites et du facteur d'émission des suies.....	107
IV - III: Quantités et facteurs d'émission de monoxyde et de dioxyde de carbone.....	107
IV - IV: Facteurs d'émission de CO et CO ₂ au cours des phases de combustion.....	108
IV - V: Facteurs d'émission des composés gazeux analysés par IRTF et DTA-CPG/SM.....	110
IV - VI: Familles chimiques de composés émis (en g par kg de végétal), identifiées par CPG/SM et FTIR.....	111
IV - VII: Bilan massique de carbone pour la combustion des aiguilles de pin maritime.....	112
IV - VIII: Grandeurs énergétiques pour les deux configurations expérimentales (énergie mesurée en fonction de la surface brûlée, efficacité de combustion)..	116
IV - IX: Mesures de la production des fumées et des facteurs d'émissions moyens des suies, du CO et du CO ₂ aux deux échelles de combustion.....	118
IV - X: Familles des composés identifiés aux deux échelles de combustion.....	120
IV - XI: Facteurs d'émissions du CO et du CO ₂ au cours des phases de combustion.....	121
IV - XII: Bilan massique de carbone par familles de composés aux deux échelles.....	123

IV - XIII: Grandeurs énergétiques : énergie mesurée, énergie théorique maximale, efficacité de la combustion et puissance maximale.....	125
IV - XIV: Total de fumées produites, masse et facteurs d'émissions des suies obtenus lors des combustions des aiguilles de <i>P. laricio</i> avec le LSHR.....	130
IV - XV: Quantité de monoxyde et de dioxyde de carbone mesurées lors de la combustion de <i>Pinus laricio</i> et facteurs d'émissions mesurés par analyseurs IRND et IRTF.....	130
IV - XVI: Facteurs d'émission de CO et CO ₂ au cours des phases de combustion.....	132
IV - XVII: Bilan massique en carbone pour la combustion des aiguilles pin laricio.....	133
IV - XVIII : Energies dégagées en fonction des surfaces brûlées et efficacité de combustion.....	136
IV - XIX: Mesure de l'opacité des fumées et des facteurs d'émissions moyens des suies, du CO et du CO ₂ aux deux échelles.....	138
IV - XX: Facteurs d'émissions du CO et du CO ₂ au cours des phases de combustion....	140
IV - XXI: Facteurs d'émissions des composés identifiés aux deux échelles.....	142
IV - XXII: Bilan massique de carbone par familles de composés aux deux échelles de combustion.....	144
V - I: Grandeurs énergétiques obtenues pour 5 expériences de propagation (masse brûlée, énergie mesurée, énergie maximale théorique, efficacité de combustion et pic de puissance maximale).....	148
V - II: Mesure du TSP, de la masse de suies produites et les facteurs d'émission des suies.....	154
V - III: Mesures du monoxyde et du dioxyde de carbone et leurs facteurs d'émission...	154
V - IV: Facteurs d'émissions du CO et du CO ₂ en fonction de la phase de combustion et de la masse totale de combustible brûlé.....	155
V - V: Facteurs d'émission des composés gazeux analysés par IRTF et CPG/SM.....	157
V - VI : Familles chimiques de composés émis (en g.kg ⁻¹), identifiées par CPG/SM et FTIR	158
V - VII: Bilan massique de carbone pour la combustion en propagation des aiguilles de pin maritime	159

V - VIII : Energies dégagées en fonction des surfaces brûlées et efficacité de combustion pour les trois configurations expérimentales.....	162
V - IX: Mesures de la production des fumées et des facteurs d'émissions moyens des suies, du CO et du CO ₂ pour les trois configurations expérimentales.....	166
V - X: Composés majoritaires produits pour les trois configurations expérimentales.....	169
V - XI: Familles des composés identifiés pour les trois configurations expérimentales...	169
V - XII: Résultats statistiques (ANOVA) de certains composés majoritaires identifiés par DTA-CPG/SM.....	173
V - XIII: Bilan massique en carbone par familles de composés pour les trois configurations expérimentales en $(g_c \cdot kg_{vb}^{-1})$	182
V - XIV: Synthèse des effets du changement d'échelle et du système sur la combustion des aiguilles de <i>Pinus pinaster</i>	183

Liste des figures

1 - 1 : Schéma de formation des suies (Bockhorn, 1994).....	35
2 - 1 : Photographie d'aiguilles de <i>Pinus laricio</i> et <i>Pinus pinaster</i>	42
2 - 2 : Photographie d'un analyseur Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF).....	52
2 - 3 : Tubes Tenax TA et sac Tedlar.....	53
2 - 4 : Désorbeur thermique automatique.....	54
2 - 5 : Appareil de CPG/SM, chromatogramme d'un échantillon de fumée.....	56
2 - 6 : Courbe d'étalonnage du benzène.....	59
2 - 7 : Paniers utilisés lors des combustions au cône calorimètre et au LSHR.....	64
2 - 8 : Photographie d'une litière de <i>Pinus pinaster</i> pour une charge de $1,2\text{kg.m}^{-2}$ pour une expérience de propagation.....	64
3 - 1 : Schéma de principe du cône calorimètre.....	67
3 - 2 : Photographie du panier de combustion (pin maritime).....	67
3 - 3 : Différence de puissance calorifique en fonction de la constante E_{O_2}	70
3 - 4 : Reproductibilité des expériences. Exemple de la puissance calorifique.....	71
3 - 5 : a-Evolution de la masse de PP au cours du temps, b-Puissance calorifique au cours du temps, c-Courbes de production de CO et CO ₂ au cours du temps, d-Courbes d'évolution de la masse et du THR au cours du temps	74
3 - 6 : a. Allumage du combustible, b. Combustion de la mèche imbibée d'éthanol et des aiguilles au centre du panier, c. Début de propagation dans le panier, d. Combustion des aiguilles sur toute la surface du panier, e. Diminution de la puissance de la flamme f. Combustion des résidus charbonneux.....	75
3 - 7 : a-Coefficient d'extinction et puissance calorifique au cours du temps, b-Production totale des fumées au cours du temps.....	76
3 - 8 : Evolution des facteurs d'émissions FECO et FECO ₂ au cours de la combustion.....	80

3 - 9: a- Production de méthane au cours du temps ; b- Productions de monoxyde et de dioxyde d'azote au cours des expériences de combustion de <i>Pinus pinaster</i>	84
3 - 10: Pourcentages de carbone analysé des principaux composés (CO ₂ , CO, suies) et pourcentage de carbone analysé par CPG/SM et IRTF.....	86
3 - 11: Reproductibilité des expériences de combustion de <i>Pinus laricio</i>	87
3 - 12: a-Evolution de la masse de <i>Pinus laricio</i> au cours du temps, b-Puissance calorifique au cours du temps, c-Courbes de production de CO et CO ₂ au cours du temps, d-Courbes d'évolution de la perte de masse et du THR au cours du temps. Le temps d'ignition est indiqué par un trait bleu et l'extinction de la flamme en rouge.....	90
3 - 13: a-Coefficient d'extinction et puissance calorifique au cours du temps, b- Production totale des fumées au cours du temps.....	91
3 - 14: Courbes de vitesse d'émission de CO et CO ₂ au cours de la combustion des aiguilles de <i>Pinus laricio</i>	94
3 - 15: Productions : a- de méthane, b- de monoxyde d'azote, c- de dioxyde d'azote et d- d'ammoniac au cours de la combustion de <i>P. laricio</i>	96
3 - 16: Pourcentages de carbone analysé des principaux composés (CO ₂ , CO, suies) et pourcentage de carbone analysé par IRTF.....	97
4 - 1: a- Vue d'ensemble du dispositif expérimental LSHR; b:Panier de combustion sur la cellule de pesée; c: Photographie du panier de combustion exemple de <i>Pinus pinaster</i>	99
4 - 2: Mesure de la puissance calorifique et détermination de la reproductibilité des expériences.....	101
4 - 3: a-Evolution de la masse des aiguilles de pin maritime, b-Puissance calorifique, c- Courbes de production de CO et CO ₂ , d-Courbes d'évolution de la masse et du THR.....	103
4 - 4: a. Allumage du combustible, b. Combustion de la mèche imbibée d'éthanol et des aiguilles au centre du panier, c. Début de propagation dans le panier, d. Combustion des aiguilles sur toute la surface du panier, e. Diminution de la puissance de la flamme, f. Combustion des résidus charbonneux après l'extinction de la flamme.....	105
4 - 5: a-Mesure du coefficient d'extinction et de la puissance calorifique durant la combustion, b-Evolution du TSP au cours du temps.....	106
4 - 6: Evolution des courbes des facteurs d'émission de CO et de CO ₂ au cours de la combustion des aiguilles de pin maritime.....	109
4 - 7: Pourcentages de carbone analysé des principaux composés (CO ₂ , CO, suies) et pourcentage de carbone analysé par CPG/SM et IRTF.....	112
4 - 8: Courbes moyennes (5 expériences). a-Puissance calorifique moyennée (5 expériences) à l'échelle du cône et du LSHR. b-Courbes de la perte de masse moyennée à l'échelle du cône et du LSHR.....	114
4 - 9: Courbes de RSR (en (m ² .s ⁻¹).m ⁻²) mesurés lors des expériences menées avec le cône et le LSHR.....	118

4 - 10: Courbes de vitesse d'émission de CO et CO ₂ au cours de la combustion à l'échelle du cône (a) et du LSHR (b).....	122
4 - 11: Puissance calorifique mesuré et reproductibilité des expériences.....	124
4 - 12: a-Evolution de la masse de PP au cours du temps, b-Puissance calorifique au cours du temps, c-Courbes de production de CO et CO ₂ au cours du temps, d-Courbes d'évolution de la masse et du THR au cours du temps.....	128
4 - 13: a-Coefficient d'extinction et puissance calorifique au cours du temps, b-Production totale des fumées au cours du temps.....	129
4 - 14: Evolution des facteurs d'émissions FE CO et FE CO ₂ au cours de la combustion.....	132
4 - 15: Pourcentages de carbone analysé des principaux composés (CO ₂ , CO, suies) et pourcentage de carbone analysé par IRTF.....	134
4 - 16: Courbes moyennées (sur 5 expériences) pour la mesure de la puissance calorifique aux échelles du cône calorimètre et du LSHR.....	135
4 - 17: Courbes de perte de masse moyennée aux deux échelles.....	137
4 - 18 : Taux d'émission de fumées au cours des expériences (RSR en (m ² .s ⁻¹).m ⁻²) au moyen du cône et du LSHR.....	138
4 - 19: Courbes de vitesse d'émission de CO et CO ₂ lors de la combustion des aiguilles de pin laricio aux échelles du cône et du LSHR.....	140
4 - 20: Production de méthane et de monoxyde d'azote aux deux échelles de combustion.....	143
5 - 1: a- Schéma du LSHR lors des propagations ; b- Photographie montrant la disposition de la litière d'aiguille de <i>Pinus pinaster</i> avant l'expérience de propagation pour une charge de 1,2 kg.m ⁻²	146
5 - 2: Mesure de la puissance calorifique en kW et reproductibilité des expériences (5 expériences).....	147
5 - 3: a-Evolution de la perte de masse, b-Puissance calorifique au cours du temps, c-Courbes de production de CO et CO ₂ , d-Courbes d'évolution de la masse et du THR.....	149
5 - 4 : a. Allumage linéaire avec de l'éthanol, b. Installation du front de flamme, c. Front de flamme au milieu du banc de propagation et résidus charbonneux derrière celui-ci, d. Front de flamme en bout du banc de combustion, e. Extinction du front de flamme.....	152
5 - 5: a-Coefficient d'extinction (<i>k</i>) et puissance calorifique au cours du temps, b-Production totale des fumées lors de la propagation.....	153
5 - 6 : Courbes des facteurs d'émission de CO et de CO ₂ ainsi que de la dérivée de la perte de masse (MLR) lors de la propagation des aiguilles de pin maritime.....	156
5 - 7 : Pourcentages de carbone analysé des principaux composés (CO ₂ , CO, suies) et pourcentage de carbone analysé par CPG/SM et IRTF.....	158
5 - 8: Courbes de puissance calorifique aux trois échelles de combustion.....	160

5 - 9 : Courbes de taux de production de fumées pour le cône et le LSHR en mode statique et en propagation.....	165
5 - 10 : Productions au cours du temps de NO, NO ₂ , CH ₄ , C ₂ H ₂ et NH ₃ pour les trois configurations expérimentales.....	172
5 - 11: Cercle des corrélations des variables sur le plan 1-2 pour les trois types combustions de pin maritime.....	174
5 - 12: Représentation de l'ensemble des composés pour les expériences de combustion de pin maritime pour les trois configurations expérimentales.....	175
5 - 13: Cercle des corrélations des variables sur le plan 1-2 pour les combustions des aiguilles de pin maritime et de pin laricio.....	176
5 - 14: Représentation de l'ensemble des composés pour les expériences de combustion de pin maritime et de pin laricio.....	177
5 - 15: Facteurs d'émission dynamiques de CO et CO ₂ pour les trois configurations expérimentales.....	180

Nomenclature

A_λ	Absorbance du rayonnement infrarouge
BC	Bilan carbone
C	Concentration
COV	Composés Organiques Volatils
E_{O_2}	Constante calorifique
FE	Facteur d'émission
I	Intensité de la lumière
k	Coefficient d'extinction
l	Longueur du chemin optique
m	Masse
$\dot{m}$	Débit massique
$\dot{m}''$	Vitesse de vaporisation par unité de surface
M	Masse molaire
n	Coefficient stœchiométrique
$\dot{q}_{fr}''$	Densité de flux radiatif
PCI	Pouvoir Calorifique Inférieur
PCS	Pouvoir Calorifique Supérieur
$\dot{q}$	Puissance calorifique
$\dot{q}_{max}$	Puissance calorifique maximale
$\dot{q}_{fc}''$	Densité de flux convectif
$\dot{q}_{rr}''$	Densité de flux perdu
RSR	Rate of Smoke Release
T	Température

TSP	Total Smoke Production
V	Volume
X	Fraction massique
THR	
MLR	

Symboles grecs

ΔH_g	Enthalpie de changement de phase
ΔH_c	Enthalpie de combustion
ΔH_{eff}	Energie effectivement dégagée
ΔE	Energie dégagée
ΔE_{max}	Energie maximale dégagée
χ	Efficacité de combustion
σ_{sv}	Rapport surface volume
ϕ	Facteur d'épuisement
λ	Longueur d'onde
σ_s	Surface d'extinction spécifique par unité de masse de suies
ε	Coefficient d'extinction molaire
α	Facteur d'expansion

Exposants

A	Analyseurs
◦	Avant combustion

Chapitre 1 : Introduction

Chaque année, les feux de végétation parcourent des millions d'hectares dans le monde et provoquent des dégâts considérables dans les écosystèmes, des pertes économiques importantes et parfois des tragédies humaines. Au cours de ces incendies, de nombreuses émissions ont lieu, il s'agit principalement de dioxyde de carbone (CO_2) dont la quantité libérée représente de 12 à 14 % de la production de CO_2 générée par l'utilisation de combustibles fossiles (Barker et coll., 2007, Glover et Jessup, 2006). Face à cette problématique, les décideurs et les praticiens qui réclament des outils d'aide à la décision font appel à la science pour les éclairer. En réponse à ces sollicitations de nombreux scientifiques ont recours à la modélisation pour expliquer et simuler le phénomène des incendies (Porterie et coll., 2005 ; Mell et coll., 2007 ; Santoni et coll., 2011). Mais le développement et le test de ces modèles requièrent des données expérimentales permettant d'analyser et de comprendre les phénomènes mis en jeu. Ainsi, de nombreuses études ont été réalisées en laboratoire (Viegas et coll., 2013, 2014 ; Dupuy et coll., 2011 ; Tihay et coll., 2014) et sur le terrain pour confronter ces modèles à la réalité (Santoni et coll., 2006 ; Clements et coll., 2013). Toutefois, le coût et la non-reproductibilité des expériences de terrain poussent les chercheurs à trouver des solutions pour que les expériences réalisées en laboratoire soient représentatives des incendies. En d'autres termes, le problème consiste à déterminer quelle échelle de combustion permet une telle approche tout en étant réalisable en laboratoire.

Ce chapitre présente une introduction générale et regroupe les différents travaux réalisés dans le domaine des feux de végétation. Après avoir énoncé la description générale de la combustion du matériel végétal, nous nous sommes intéressés à l'état des connaissances dans les domaines de la dynamique de combustion des végétaux et de la production des fumées. Enfin, nous présentons les différentes échelles auxquelles la combustion peut être réalisée dans ces domaines.

1.1. La combustion des végétaux

1.1.1. Constitution du combustible végétal

Les émissions de combustion dépendent directement de la composition chimique du combustible et des conditions de la combustion. Le combustible végétal est décrit comme un bio-polymère complexe composé principalement de cellulose (40 à 45 %), de lignine (26 à 34%), d'hémicellulose (7 à 15%), de composés extractibles (<15%) et de matières minérales donnant naissance aux cendres lors de la combustion (Orfao et coll., 1999; Weiland et coll., 1998). Certains paramètres peuvent influencer la composition du combustible, comme par exemple sa dégradation ou du combustible mort et, ainsi engendrer un pourcentage de lignine plus important.

La composition des deux combustibles utilisés dans cette étude est la suivante :

Tableau I - I: Analyse constitutionnelle (%) de *Pinus pinaster* et *Pinus laricio* (d'après Barboni et coll., 2010 et Leroy et coll., 2009)

	Cellulose	Lignine	Hémicellulose	Extractibles
<i>Pinus laricio</i>	28,0 ± 0,3	43,1 ± 0,6	4,1 ± 0,3	20,4 ± 0,4
<i>Pinus pinaster</i>	38,3 ± 0,4	38,9 ± 0,4	5,1 ± 0,1	13,1 ± 0,2

1.1.2. Dégradation thermique du végétal

La combustion est un processus physico-chimique complexe, fortement exothermique, irréversible résultant de la combustion de l'oxygène de l'air et du combustible et pouvant être résumé à un mécanisme d'oxydoréduction où le dioxygène (O₂) de l'air joue le rôle d'oxydant et le végétal celui du combustible (Margossain, 2002).

Un feu de végétation est donc le résultat de l'interaction de trois éléments : le combustible, le dioxygène et l'énergie de combustion. Le principe de cette combustion est illustré par le triangle du feu, dont les trois côtés sont indispensables au maintien de la combustion (Statheropoulos et Karma, 2007).

Le processus de combustion d'un végétal peut être décomposé en une succession d'étapes. Au contact de la température (entre 50 et 200°C), le végétal se déshydrate et libère de la vapeur d'eau et des composés extractibles. Ensuite, lorsqu'il atteint sa température de pyrolyse (aux environs de 300°C), le phénomène de dégradation thermique apparaît (White et Dietenberger, 2001). Le végétal libère des gaz combustibles (monoxyde de carbone CO, méthane CH₄,...) et non combustible (CO₂) et génère des goudrons (dans le cas des incendies, ces goudrons sont rapidement craqués en gaz et sont quasiment imperceptibles) (Tihay 2007). Les gaz combustibles vont ensuite s'enflammer (auto-inflammation ou inflammation pilotée), au contact de l'air ambiant, c'est alors une combustion homogène. Lorsque le végétal se dégrade, il se transforme pour partie en charbon (environ 25%). Ce résidu charbonneux est ensuite oxydé au contact de l'air. Il s'agit de la phase de « smoldering » ou combustion sans flamme, c'est une combustion hétérogène gaz-solide. Enfin, l'extinction (« flame out ») survient si l'apport d'oxygène est insuffisant ou bien si tout le combustible a été consommé (Lobert et Warnatz, 1993).

Les gaz formés par la dégradation du végétal sont dépendants de la structure chimique de celui-ci. La dégradation thermique de la cellulose et de l'hémicellulose entraîne la formation de dérivés de polysaccharides alors que la dégradation de la lignine va engendrer la formation d'hydrocarbures et de composés phénoliques. Ces composés vont ainsi participer à la combustion et à la propagation du feu (Barboni et coll., 2010).

Pour les combustibles forestiers, le taux de gaz combustibles varie de 70 à 80% et le taux de charbon de 24 à 30% (Babrauskas, 2006 ; Leroy, 2007).

1.1.3. Combustion en phase gazeuse

Lors de la dégradation du végétal, des gaz combustibles (principalement du monoxyde et du dioxyde de carbone, et des hydrocarbures de faibles masses molaires (Tihay et coll., 2009) sont émis et se diffusent à la surface du végétal créant ainsi un mélange inflammable. Celui-ci va s'enflammer si la température atteint la température d'inflammation (ou en présence d'une source), créant une combustion entre les gaz combustibles et l'air ambiant. Une flamme de diffusion se développe alors à la surface de l'échantillon au niveau de la zone où le combustible et le comburant se mélangent, provoquant une importante augmentation de la température. La température des flammes obtenues en laboratoire a été estimée à environ

1000°C (Santoni et coll., 2002; Dupuy 2003). L'énergie produite par la flamme est alors retransmise au combustible par rayonnement et par convection ce qui permet d'entretenir l'émission de ces gaz (Lobert et Warnatz, 1993) et de poursuivre la combustion.

Ainsi, pour une flamme de diffusion la puissance de combustion est liée à la vitesse de production des gaz de dégradation qui est dépendante des transferts thermiques entre la flamme et le solide. Tewarson (2002) écrit donc que la vitesse de production des gaz est donnée par la mesure de la vitesse de perte de masse du combustible, $\dot{m}''$ (g.m⁻².s⁻¹), en régime stationnaire par :

$$\dot{m}'' = \frac{\dot{q}_{fr}'' + \dot{q}_{fc}'' - \dot{q}_{rr}''}{\Delta H_g} \quad (1.1)$$

où $\dot{q}_{fr}''$ et $\dot{q}_{fc}''$ sont les densités de flux radiatif et convectif fournies par la flamme au solide en kW.m⁻² ; $\dot{q}_{rr}''$ représente les pertes thermiques exprimées comme une densité de flux radiatif re-rayonné depuis la surface du combustible en kW.m⁻² et ΔH_g est l'enthalpie de changement de phase nécessaire pour produire les composés volatils en kJ.kg⁻¹.

1.1.4. Combustion hétérogène

Lorsque le combustible n'émet plus de gaz de combustion, le résidu charbonneux qui s'est formé se retrouve au contact de l'air ambiant, il s'agit principalement de carbone pur et de cendres (Benkoussas et coll., 2007). C'est la dernière étape de la combustion avant l'extinction. A ce stade, l'oxygène est en contact direct avec la surface du résidu charbonneux qui présente alors un rougeoiement caractéristique de cette étape. La combustion va se poursuivre tant que la température le permet (généralement supérieure à 260 °C ; Pastor et coll., 2010) en formant principalement du monoxyde de carbone et de faible quantité de dioxyde de carbone. La combustion du résidu charbonneux se déroulera de façon plus ou moins rapide en fonction de plusieurs critères, tels la concentration en oxygène, le ratio-surface volume, la porosité du résidu charbonneux et la température des gaz environnants.

La combustion hétérogène peut dans certaines conditions (apport suffisant de dioxygène au sein du combustible) avoir lieu de façon simultanée à la combustion en phase gazeuse (Schemel et coll., 2008).

A la fin de la combustion, il reste les cendres qui proviennent de l'oxydation des minéraux présents dans le combustible dont la composition varie suivant les végétaux et la température à laquelle est réalisée la combustion (Etiégni et Campbell, 1991). Les principaux oxydes pour les combustibles forestiers sont la silice SiO_2 , l'alumine Al_2O_3 , l'oxyde ferrique Fe_2O_3 , l'oxyde de calcium CaO , l'oxyde de magnésium MgO , l'oxyde de sodium Na_2O et l'oxyde de potassium K_2O (Koukoulas et coll., 2007)

1.2. Etude de la dynamique de combustion

De nombreux travaux ont été réalisés pour comprendre le comportement au feu des végétaux. Tout d'abord, les propriétés du combustible telles que l'humidité, la géométrie (épaisseur ou encore rapport surface volume) ont été étudiées car elles influencent l'intensité du feu, sa propagation, la hauteur de la flamme ou encore l'inflammation du combustible (Byram, 1959 ; Philpot, 1970, Daligault, 1991, Moro, 2006). Les propriétés thermiques (capacité calorifique, conductivité) et radiatives ont également été étudiées (Monod et coll., 2009 ; Tihay, 2007 ; Bartoli, 2011) ainsi que le pouvoir calorifique (Philpot, 1970 ; Babrauskas, 2006) car ces caractéristiques des végétaux permettent une meilleure interprétation des résultats expérimentaux. La dynamique de combustion a principalement été étudiée jusque dans les années 2000 par des forestiers (Martin et coll., 1994 ; Fonda et coll., 1998 ; Myers, 1985). Très récemment, la calorimétrie à consommation d'oxygène a été introduite comme un des outils les plus appropriés pour réaliser ces travaux (Weise et coll., 2005 ; Babrauskas, 2006 ; Dibble, 2007 ; Schemel et coll., 2008 ; Santoni et coll., 2010). Cette technique permet de quantifier l'énergie dégagée lors de la combustion des matériaux. Ainsi, l'utilisation du cône calorimètre et du FPA (Fire Propagation Apparatus) ont permis de mettre en évidence l'influence du combustible ou encore l'influence de l'apport d'air sur la dynamique de combustion des végétaux (Schemel et coll., 2008 ; Bartoli et coll., 2011). La calorimétrie par consommation d'oxygène permet d'étudier la dynamique de combustion à différentes échelles, ainsi Santoni et coll., (2010) ou encore Tihay et coll., 2014 ont mesuré la puissance de feux se propageant dans des litières en faisant varier notamment la pente et la charge des lits de combustibles.

Pour mieux comprendre ce que nous entendons par dynamique de combustion, nous nous référons aux travaux d'Anderson (1970) et de Martin et coll., (1994) qui ont défini la

« Flammability » des combustibles forestiers comme la combinaison de quatre caractéristiques : l'ignition, la durée de la combustion, la combustibilité et enfin la consumability.

1.2.1. La « Flammability » du combustible

La majorité des études réalisées sur ce sujet ont concerné des litières prenant ainsi en compte les caractéristiques du combustible telles que la composition, la profondeur de la litière ou encore la masse volumique apparente qui sont considérés comme les facteurs principaux influençant la « Flammability ». Il est important de caractériser la « Flammability » des litières des principaux écosystèmes forestiers car elles entretiennent les feux de surface et sont donc déterminantes pour évaluer le risque incendie (Hely et coll., 2000 ; Behm et coll., 2004 ; Dimitrakopoulos et Papaioannou, 2001).

Temps d'ignition

Le temps d'ignition d'un combustible (« ignitability ») peut être défini comme le temps nécessaire à un matériau exposé à une source de chaleur (généralement radiative) pour s'enflammer (Martin et coll., 1994). Plusieurs paramètres peuvent influencer le temps d'ignition tels que le taux d'humidité du combustible, sa masse volumique, sa capacité calorifique ou encore son rapport surface volume. Les études concernant le temps d'ignition sont principalement réalisées en prenant en compte le taux d'humidité considéré comme le principal facteur prédictif de l'inflammabilité car il affecte l'allumage et peut être facilement contrôlé expérimentalement (Plucinski et Anderson, 2008). Une majorité des travaux portant sur l'inflammabilité utilise des sources d'ignition ponctuelles tels que des morceaux de bois ou d'écorce (Guijarro et coll., 2002), du coton imbibé d'alcool (Plucinski et Anderson, 2008), des allumettes (Tanskanen, 2002), des cigarettes (Xanthopoulos et coll., 2006). L'ignition du combustible peut également être déclenchée par une étincelle comme dans le cas du cône calorimètre. Le temps d'ignition des feuilles ou des aiguilles de végétaux méditerranéens a été décrit dans de nombreux travaux (par exemple Valette, 1990; Dimitrakopoulos et Papaioannou, 2001; Petriccione et coll., 2006, Ganteaume et coll., 2011). Bartoli et coll. (2011) ont mesuré le temps nécessaire à l'établissement de la flamme en fonction du flux de

radiatif et de l'apport d'oxygène au sein de litières, ce qui leur a permis de déterminer le temps d'ignition pour les aiguilles de *Pinus pinaster* et *Pinus laricio*.

Durabilité du feu

Anderson (1970) introduit la notion de durabilité du feu, en faisant référence à la capacité d'un combustible à maintenir la flamme après l'ignition. Dans ce cas aussi, les caractéristiques du combustible comme la composition, la masse volumique et le rapport surface volume ainsi que les conditions environnementales jouent un rôle important (Martin et coll., 1994). D'un point de vue expérimental, la durabilité correspond donc à la persistance de la flamme dans un assemblage de particules combustibles. Il est donc indispensable que le dispositif expérimental représente au mieux le milieu naturel.

La durabilité du feu a été étudiée principalement à partir d'expériences réalisées sur des litières et des arbustes (Plucinski et Catchpole 2001 ; 2002, Weise et coll., 2005, Wotton et Beverly 2007). Il a été montré que les feux à grandes échelles permettent une meilleure étude des conditions (notamment environnementales) affectant la durabilité du feu (Marsden-Smedley et coll., 2001).

En effet, de nombreux facteurs peuvent affecter la durabilité du feu, tels que la teneur en eau du combustible, son rapport surface volume (Fernandes et coll., 1998), les conditions climatiques (le vent et la température ambiante) mais également la direction de la propagation du feu ainsi que la pente du terrain (Ganteaume et coll., 2011 ; Fernandes et coll., 2008).

Bartoli (2011) a montré que la durée de combustion des aiguilles de pin maritime et de pin laricio est affectée par le flux d'air pouvant pénétrer le lit de combustible.

Combustibilité

D'après Anderson (1970), la combustibilité d'un matériau peut être traduite par la rapidité et l'intensité d'un matériau à brûler. Il s'agit donc de la rapidité avec laquelle il va brûler (taux de propagation du feu) mais également de l'énergie libérée par le feu. Souvent, la combustibilité est déterminée par la hauteur et la température de la flamme (Behm et coll., 2004, Santana et Marrs, 2014).

La combustibilité d'un matériau peut être influencée par les caractéristiques structurelles du combustible. En effet, Behm et coll., (2004) ont montré que les combustibles

contenant davantage de feuillage mort, et ayant un feuillage plus fin produisent une énergie plus importante. La profondeur de la litière joue également un rôle sur la combustibilité en influençant la hauteur maximale et la température de la flamme (Ganteaume et coll., 2011). En effet, augmenter la profondeur du lit de combustible entraîne une augmentation de la température moyenne dans la flamme ainsi que la hauteur maximale de la flamme. Les litières contenant une végétation mixte (mélange de pin et de chêne) ont été caractérisées par de plus hautes valeurs de combustibilité (température de la flamme moyenne plus élevée, hauteur de flamme maximale plus importante, et vitesse de propagation plus grande) que celles observées pour une végétation constituée uniquement de pins (Ganteaume et coll., 2011). En milieu naturel, la récurrence des feux entraîne une diminution considérable de la combustibilité.

« Consumability »

Martin (1994) décrit la « consumability » comme étant la quantité de matériau consommé durant un feu. Pour cela, la mesure de la « consumability » est effectuée par la vitesse de perte de masse (« Mass loss rate ») (MLR) pouvant être exprimée en mg.min^{-1} ou encore la fraction de masse résiduelle c'est-à-dire le pourcentage de combustible restant après la combustion (Santana et Marrs, 2014). Le type de végétation peut affecter la « consumability » (Ganteaume et coll., 2011). En effet, des expériences de terrains ont montré que la perte de masse est maximale dans les zones arbustives hautes et moyennes, et minimale dans les zones arbustives basses (Curt et coll., 2011). Elle est également affectée par la teneur en eau présente au sein du combustible (Santana et Marrs, 2014).

1.2.2. Puissance libérée

La puissance libérée est un des principaux paramètres permettant de décrire le comportement au feu d'un matériau. Elle est décrite comme le paramètre le plus important par Tewardson (2002). La puissance libérée est assimilée à la vitesse à laquelle les réactions de combustion produisent de l'énergie, elle est mesurée en kilowatts (kW). Elle est principalement désignée sous le terme de HRR (Heat Release Rate). Elle peut être exprimée en fonction de la dérivée de la perte de masse (noté MLR) par :

$$\dot{q} = \Delta H_c \times MLR \quad (1.2)$$

Où ΔH_c est l'enthalpie effective de combustion (kJ.kg^{-1}) et MLR est la vitesse de perte de masse (kg.s^{-1}).

La mesure du HRR fait donc partie de l'étude de la combustibilité au sens de la définition de Martin et coll., (1994). Il existe différentes façons d'obtenir la puissance libérée lors de la combustion d'un échantillon, notamment en utilisant la calorimétrie par consommation d'oxygène dont le principe sera détaillé au chapitre 2.

1.2.3. Efficacité de combustion

La mesure de l'efficacité de la combustion, notée χ , permet de déterminer si celle-ci est complète ou incomplète. Elle représente le rapport entre l'énergie effective dégagée lors de la combustion (ΔH_{eff} en kJ.kg^{-1}) et l'énergie théorique de combustion (appelée aussi pouvoir calorifique de combustion en kJ.kg^{-1}):

$$\chi = \frac{\Delta H_{eff}}{\Delta H_c} \quad (1.3)$$

Dans le cas d'une combustion complète, tout le combustible va réagir avec le comburant et former ainsi des produits qui ne pourront plus être oxydés. Si la réaction est complète, cela permet d'obtenir l'énergie maximale disponible du combustible considéré, il s'agit alors du pouvoir calorifique du combustible. Dans le cas d'un combustible végétal, si celui-ci est soumis à une combustion complète, les produits de combustion seront alors uniquement du dioxyde de carbone et de l'eau. Cependant, la quantité de comburant peut être insuffisante ou la température de combustion trop faible, rendant ainsi la combustion incomplète. C'est généralement le cas de la combustion de végétaux. De plus, l'efficacité de la combustion peut également être influencée par l'humidité présente dans les végétaux. Il faudra alors une énergie plus importante pour que le combustible atteigne sa température de pyrolyse, les gaz de combustion pouvant être dilués par la vapeur d'eau (Countrytman et coll., 1976). Contrairement à la combustion complète, la combustion incomplète va produire de

nombreux composés tels que des hydrocarbures, des composés benzéniques, du monoxyde de carbone et des suies (Barboni et coll., 2010).

Selon le végétal étudié, son état (humide ou sec) et les conditions expérimentales, l'efficacité de combustion varie entre 70 et 90% (Babrauskas, 2006 ; Santoni et coll., 2010).

1.3. Etude des fumées issues de la combustion de végétaux

Lors de la combustion des végétaux dans des conditions non maîtrisées, de nombreux polluants sont formés (Van de Werd et coll., 2010 ; Wiedinmeyer et coll., 2011). Ces substances sont le dioxyde de carbone (CO_2), le monoxyde de carbone (CO), les composés organiques volatils (COV) et semi-volatils (COSV), les oxydes d'azote (NO_x) et les particules. Ces incendies sont causés à 90 % par les activités humaines et représentent globalement 50 % du monoxyde de carbone (CO), 40 % du dioxyde de carbone (CO_2) et 16 % du méthane (CH_4) des émissions anthropiques totales. Les conséquences de ces feux sont multiples : sur le climat, l'érosion des sols et la perte de biodiversité. Langmann et coll., (2009) ont estimé que les émissions dues à la combustion de la biomasse représentent près de 40% de CO , 35% de particules carbonées et 20% d'oxydes d'azote (NO_x) des émissions globales.

La composition des fumées est variable selon le combustible, sa charge, sa géométrie, son humidité ainsi que les conditions météorologiques. Du fait de l'importance de ces émissions et de leurs effets sur la santé, il est primordial de pouvoir quantifier ces fumées afin d'évaluer le risque potentiel qu'elles représentent pour les personnels intervenants et les populations exposées. Nous évoquerons dans cette partie les différentes analyses menées sur les fumées à l'échelle du terrain, lors d'incendies ou de brûlages dirigés ainsi qu'à l'échelle du laboratoire. Nous préciserons également les techniques d'analyses principalement utilisées pour leur caractérisation.

1.3.1. Analyses des fumées à grandes échelles (incendies et brûlages dirigés)

Les incendies de forêts sont des sources importantes de composés organiques dans l'atmosphère où ils peuvent jouer un rôle dans la chimie de la troposphère en contribuant

notamment à la formation d'ozone et d'aérosols organiques secondaires (Alvarado et Prinn, 2009; Yokelson et coll., 2009). De nombreuses études ont ainsi été menées sur les fumées lors des incendies de forêts ou de brûlages dirigés, en Grèce (Statheropoulos et Karma 2007) aux USA (Reinhardt et coll., 2000 ; Urbanski 2013), en Australie (Reisein et coll., 2009 ; 2011) et en Méditerranée (Barboni et coll., 2010 ; Alves et coll., 2010). Pio et coll., (2008) ont montré que les émissions sont totalement dépendantes du type de forêts brûlées, du processus de combustion et également des conditions météorologiques. La majeure partie des émissions provenant de la combustion de végétaux est retrouvée sous forme de composés carbonés. Le dioxyde et le monoxyde de carbone représentent environ 90 à 95% de la quantité totale de carbone émis (Andreae et Merlet, 2001). Le carbone restant est principalement sous forme de méthane et d'autres composés organiques volatils (COV). Enfin, moins de 5% du carbone est émis sous forme de particules (Reid et coll., 2005).

Andrea et Merlet (2001) ont étudié les émissions de fumées provenant de la combustion de forêt tropicale et extra-tropicale, de savane ou encore de prairies. Ils ont ainsi mis à jour plus de 100 composés notamment de gaz contenant du carbone tels que CO, CH₄, C₂H₆, C₂H₄, des alcanes et des alcènes supérieurs, du méthanol (CH₃OH), des alcools supérieurs, du formaldéhyde (HCHO) et autres aldéhydes, et des acides organiques. Plusieurs chercheurs ont décrit les émissions provenant de la combustion de savane et prairies d'Afrique (Ward et coll., 1996 ; Andrea et Merlet, 2001 ; Bertchi et coll., 2003) alors que Neto et coll., (2009) ont mené leurs études dans la forêt amazonienne. Urbanski (2013 ; 2014) et Yokelson et coll., (2009) ont pour leur part étudié les émissions provenant de la combustion d'écosystèmes tempérés (forêts de conifères) aux Etats-Unis à partir de brûlages dirigés ou d'incendies réels. Des études ont également été menées au Portugal afin d'identifier les émissions provenant de la combustion d'écosystème méditerranéen (Miranda et coll., 2004 ; Alves et coll., 2010). D'autre part, Barboni et coll., (2010) ont axé leur recherche sur l'identification des composés émis lors de brûlages dirigés en Corse en se concentrant principalement sur les composés organiques volatils et semi-volatils.

Les analyses effectuées sur le terrain lors d'incendie ou de brûlages dirigés sont majoritairement réalisés à partir d'analyseurs Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF) aéroportés (Alves et al. 2010 ; Andrea et Merlet 2001 ; Yokelson et coll., 2009 ; Urbanski 2013). D'autres chercheurs ont réalisé des prélèvements à partir de sac Tedlar ou de tubes Tenax, analysés par la suite en laboratoire par chromatographie en phase gazeuse couplée à un spectromètre de masse (Barboni et Chiaramonti 2010 ; Romagnoli et coll., 2014).

Les facteurs d'émission estimés au cours de ces études sont définis comme la quantité d'un composé émis en fonction de la quantité de combustible sec, consommé. Ils sont exprimés en gramme par kilogramme (g.kg^{-1}) (Alves et coll., 2010 ; Langman et coll., 2009 ; Urbanski, 2014). Nous détaillerons les principaux facteurs d'émissions retrouvés dans les fumées dans les paragraphes suivants.

1.3.2. Analyses des fumées à l'échelle du laboratoire

Même si les conditions expérimentales en laboratoire restent assez éloignées de celles d'un feu à grande échelle, les résultats obtenus, fortement dépendant des protocoles expérimentaux, demeurent une ressource importante d'information. Ils permettent de quantifier et d'identifier les composés présents dans les fumées, mais également de développer des protocoles pour comprendre les mécanismes de formation des composés (Pérez-Ramirez et coll., 2014).

On note tout d'abord une multitude d'analyses des gaz provenant de la dégradation thermique des végétaux. Ces dernières ont été conduites principalement à partir de pyrolyseurs couplés à des chromatographes en phase gazeuse (CPG). Ces analyses permettent de distinguer deux types de pyrolyse, la pyrolyse dite rapide (vitesse de chauffe supérieure à $1000^{\circ}\text{C.min}^{-1}$) qui favorise la formation de goudrons (Horne et Williams, 1996; Meier et Faix, 1999) et la pyrolyse lente (vitesse de chauffe inférieure à $1000^{\circ}\text{C.min}^{-1}$) étudiée sur différents types de bois (pin, chêne, etc.) (Grieco et Baldi 2011 ; Tihay et coll., 2010 ; DiBlasi et coll., 2008). Les principaux gaz émis sont alors le dioxyde de carbone, le monoxyde de carbone ainsi que des hydrocarbures de faibles masses moléculaires.

Les fumées issues de la combustion du matériel végétal ont également été abondamment étudiées. Elles sont le résultat d'une combustion incomplète, produisant à la fois des gaz de combustion et des suies. Christian et coll., (2003) ont étudié la combustion de végétaux provenant de la biomasse indonésienne et africaine. Le CO_2 , le CO, le CH_4 , l'ammoniac (NH_3), le cyanure d'hydrogène (HCN), le méthanol et l'acide acétique (CH_3COOH) sont les sept émissions les plus abondantes provenant de la combustion de tourbe indonésienne. Des composés tels que l'acétaldéhyde (ou éthanal CH_3CHO), le phénol (ou hydroxybenzène $\text{C}_6\text{H}_6\text{O}$), l'acétonitrile ($\text{C}_2\text{H}_3\text{N}$) sont mesurés lors de la combustion de la biomasse africaine. L'étude des émissions provenant de la combustion d'aiguilles de *Pinus ponderosa*, d'herbe et

de litière de pin Douglas a été réalisée en 1999 par Goode et coll., ils ont également distingué les émissions provenant de la phase de flamme (telles que du CO₂ et du NO) et celles provenant de la phase de smoldering (principalement du CO, CH₄ et du NH₃). Plus récemment, McMeeking et coll., (2009) ont décrit la combustion de 33 espèces végétales de forêts nord-américaines, ils identifient principalement du CO₂, du CO, du CH₄ ou encore des composés hydrocarbonés possédant de 2 à 4 atomes de carbone. Yokelson et coll., (1999 ; 2008 ; 2009 ; 2011 ; 2013) ont mené plusieurs campagnes de mesures d'émissions provenant de la combustion de divers types de végétaux issus de forêts tropicales, de savane, de forêts de pin et de chêne, etc...

Barboni et coll., (2010) ont quant à eux déterminé la composition en COV et COSV provenant de la combustion de végétaux méditerranéens tels que des aiguilles de différents pins, du ciste ou de la bruyère.

La composition chimique des émissions issues de la combustion de végétaux peut être influencé par divers paramètres tels la teneur en eau du combustible (Chen et coll., 2010, Andrea et Merlet 2001), la composition chimique du combustible mais également le processus de combustion (phase de flamme ou phase de smoldering) (Urbanski et coll., 2013 ; McMeeking et coll., 2009). Le mode de prélèvement et les techniques d'analyses peuvent également influencer les résultats obtenus. En effet, les techniques de combustion du végétal varient d'un laboratoire à l'autre. Ainsi, la majorité des études de laboratoire répertoriées ici a été réalisée dans une chambre de combustion mesurant 12,5 m × 12,5 m × 22 m surmontée d'une hotte d'extraction des fumées (Christian et coll., 2003 ; Hosseini et coll., 2013 ; Yokelson et coll., 2011 ; Bertschi et coll., 2003). Barboni et coll., (2010) ont utilisé un épi-radiateur pour réaliser la combustion des végétaux. Les fumées émises sont analysées principalement à partir d'un analyseur Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF) (Bertschi et coll., 2003 ; Christian et coll., 2003 ; Hosseini et coll., 2013 ; Goode et coll., 1999 ; Yokelson et coll., 2011) qui permet une analyse continue des gaz. Des prélèvements à partir de canisters sont également effectués puis analysés par chromatographie en phase gazeuse (CPG) couplée à un détecteur à ionisation de flamme (DIF) et/ou par un spectromètre de masse (SM) (Bertschi et coll., 2003 ; Christian et coll., 2003 ; Hosseini et coll., 2013 ; McMeeking et coll., 2009 ; Yokelson et coll., 2011). D'autres moyens de piégeage existent comme par exemple des tubes remplis d'adsorbant permettant la pré-concentration de molécules organiques volatiles et semi-volatiles dans un mélange d'air. Ces tubes sont ensuite analysés par CPG/DIF et CPG/SM après avoir été désorbés au moyen d'un désorbeur

thermique automatique (Barboni et coll., 2010 ; Miranda et coll. 2005). Les prélèvements de fumées peuvent également être effectués à partir de sac Tedlar (Alves et coll., 2010, Vicente et coll., 2013 ; Romagnoli et coll., 2014).

1.3.3. Composition des fumées et facteurs d'émissions

Les émissions provenant de la combustion de végétaux sont principalement :

- du dioxyde de carbone, qui est le composé le plus abondant. Il est principalement émis durant la phase de flamme (Burling et coll., 2010 ; Goode et coll., 1999). Lors des expériences réalisées sur des incendies ou des brûlages dirigés, il s'agit du facteur d'émission le plus important. Urbanski (2013) détermine des facteurs d'émission variant de 1598 à 1703 g.kg⁻¹ pour la combustion de différentes espèces végétales telles des sapins, ou des pins, lors d'expériences réalisées sur des brûlages de forêts de conifères. Ward et coll., (1996) rapportent des facteurs d'émission de 1701g.kg⁻¹ pour la combustion de prairies et d'écosystèmes forestiers de la savane. Il en est de même lors des mesures réalisées en laboratoire par Yokelson et coll., (2008) qui ont trouvé une valeur moyenne de 1677 ± 111 g.kg⁻¹ pour des expériences réalisées sur des combustibles issus de forêts tropicales. McMeeking et coll., (2009) ont déterminé des facteurs d'émission de 1579 ± 193 g.kg⁻¹, 1528 ± 106 g.kg⁻¹ et 1589 ± 89 g.kg⁻¹ lors des combustions respectives de sapin Douglas, de *Pinus contorta* et *Pinus ponderosa*. Burling et coll., (2010) ont estimé le facteur d'émission du CO₂ lors de la combustion des aiguilles de *Pinus ponderosa* à 1856 g.kg⁻¹.

- du monoxyde de carbone, il s'agit d'un produit issu principalement de la phase de smoldering. Lors de brûlages de forêts de conifère, Urbanski (2014) a déterminé des facteurs d'émissions variant de 76 à 105 g.kg⁻¹. Yokelson et coll., (2009) ont rapporté des valeurs de 83 ± 14 g.kg⁻¹ lors de mesures réalisées sur des incendies aux Etats-Unis. Lors de combustions réalisées en laboratoire, McMeeking et coll., (2009) obtiennent des facteurs d'émission de $84,6 \pm 38,8$ g.kg⁻¹ et $88,4 \pm 30,7$ g.kg⁻¹ pour les combustions de *Pinus contorta* et de *Pinus ponderosa*. Burling et coll., (2010) l'estiment quand à eux à 51 g.kg⁻¹ pour la combustion d'aiguilles de *Pinus ponderosa*.

- du méthane, qui est lui aussi un composé principalement émis durant la phase de smoldering. Christian et coll., (2003) déterminent le plus fort facteur d'émission pour la combustion de tourbe (20,80 g.kg⁻¹) alors que la combustion d'herbe a la plus faible émission

(0,90 g.kg⁻¹). La combustion de litière de pin émet des facteurs d'émission de 4,25 g.kg⁻¹ (Burling et coll., 2010). La combustion d'aiguilles de *Pinus ponderosa* produit des facteurs d'émissions de méthane variables : 1,21 g.kg⁻¹ (Burling et coll., 2010), $3,2 \pm 2,0$ g.kg⁻¹ (McMeeking et coll., 2009) ou encore 1,939 g.kg⁻¹ selon Goode et coll., 1999. McMeeking et coll., (2009) ont également déterminé les facteurs d'émission du méthane pour d'autres espèces de pin, *Pinus contorta* ($4,2 \pm 2,5$ g.kg⁻¹) et aussi lors de la combustion de sapin Douglas ($4,1 \pm 3,8$ g.kg⁻¹). D'après Koppmann et coll., (2005) les facteurs d'émission de méthane augmentent pour les combustions ayant des efficacités moins importantes. Le méthane est également retrouvé lors des expériences de terrains. En effet Urbanski, (2014) a déterminé des facteurs d'émission variant de 2,32 g.kg⁻¹ à 4,86 g.kg⁻¹ pour des combustions de forêts de conifères.

- du monoxyde et du dioxyde d'azote dont les émissions ont principalement lieu durant la phase de flamme (Burling et coll., 2010 ; Lobert, 1991). Les différences de facteurs d'émissions dépendent de la composition en azote des combustibles. En effet, lors des combustions du même type de forêts (forêts de conifères) les facteurs d'émission de monoxyde d'azote sont assez similaires. Ils varient de 1,70 à 2,06 g.kg⁻¹ (Urbanski et coll., 2014). McMeeking et coll., (2009) ont notamment étudié la combustion de trois espèces de pin différentes (*Pinus contorta*, *Pinus palustris* et *Pinus ponderosa*) dont les taux en azote varient respectivement de 0,3 à 1,2% dans le cas *P. contorta*, de 1,1% pour *P. palustris* et de 0,04% à 1,3% pour *P. ponderosa*. Leurs combustions produisent respectivement pour le NO et le NO₂ des facteurs d'émissions de $0,9 \pm 1,3$ g.kg⁻¹ et $0,4 \pm 0,2$ g.kg⁻¹ ; $3,2 \pm 1,5$ g.kg⁻¹ et 1,3 ; $0,9 \pm 1,3$ g.kg⁻¹ et $0,4 \pm 0,2$ g.kg⁻¹. Goode et coll., (1999) évaluent le facteur d'émission de NO pour *P. ponderosa* à 1,95 g.kg⁻¹.

- D'autres composés ont également été analysés lors des combustions de végétaux. L'ammoniac, est émis durant la phase de combustion des résidus charbonneux (Burling et coll., 2010 ; McMeeking et coll., 2009 ; Goode et coll., 1999). Certains comme le chlorure d'hydrogène HCl, le dioxyde de soufre SO₂, l'acide nitreux HONO ou encore l'oxyde nitreux N₂O sont principalement identifiés lors de la phase de flamme (Burling et coll., 2010 ; Lobert, 1991). Enfin, certains composés tels que l'acétylène C₂H₂, l'éthylène C₂H₄, CH₃COOH et HCHO sont présents à la fois durant les phases de flamme et de smoldering (Burling et coll., 2010 ; Lobert, 1991 ; Yokelson et coll., 1996).

De nombreux autres composés organiques ont également été identifiés tels que des alcanes, des alcènes et des alcynes (Statheropoulos et Karma, 2007 ; Yokelson et coll., 2011 ;

Ward et Smith, 2001). On retrouve également de nombreux composés hydrocarbonés aromatiques, principalement le benzène, le toluène, l'éthylbenzène, et les xylènes (Barboni et coll., 2010 ; Barboni et Chiaramonti 2010 ; Christian et coll., 2003 ; Miranda et coll., 2004 ; Yokelson et coll., 2008). Les COV émis par la fumée contiennent également des composés oxygénés comme des alcools (méthanol, phénol, etc.) des aldéhydes (benzaldéhyde, l'acroléine et l'acétaldéhyde, etc.) des cétones, des furanes, des acides carboxyliques, des esters (Barboni et coll., 2010 ; Christian et coll., 2003 ; Statheropoulos et Karma, 2007 ; Yokelson et coll., 2008 ; Warneke et coll., 2011). Des composés semi-volatils (VOSC) peuvent également être identifiés dans la fumée des feux de végétation principalement des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) tel le benzo-(a)-pyrène ou encore le naphthalène (Barboni et coll., 2010 ; Booze et coll., 2004 ; Warneke et coll., 2011).

Des traces de certains éléments peuvent également être retrouvées dans les émissions issues de la combustion de forêts sous forme d'ions tels que Na^+ , K^+ , NH_4^+ , Cl^- , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Mn^{2+} , Zn^{2+} , Br^- (Alves et coll., 2010 ; McMeeking et coll., 2009 ; Muraleedharan et coll., 2000 ; Radojevic, 2003 ; Ward et Smith 2001).

Les suies

Les fumées des feux de végétation contiennent également des particules de taille variable (appelées en anglais Particulate Matter (PM)), pouvant être fines ($\text{PM}_{2.5}$) ou plus grosses ($>\text{PM}_{10}$). Elles peuvent être primaires, c'est-à-dire libérées dans l'atmosphère lors de la combustion où alors issues de transformations physiques ou chimiques. Il s'agit principalement de carbone élémentaire ou de carbone organique. Le carbone élémentaire, ou suies, est un produit de la combustion incomplète des combustibles à base de carbone. Il s'agit d'un composé purement primaire apparenté à du graphite pur. Le carbone organique provient soit de la combustion soit de composés organiques qui s'adsorbent sur la particule déjà formée. Ces particules ($\text{PM}_{2.5}$ et $>\text{PM}_{10}$) ont été évaluées dans plusieurs incendies (Alves et coll., 2010 ; Miranda et coll., 2005 ; Statheropoulos et Karma, 2007, Ward et Smith 2001) mais également lors de combustion en laboratoire (McMeeking et coll., 2009).

En fonction de la source de combustion, les suies peuvent prendre différentes formes (sphériques ou bien des agglomérats de chaînes). Elles peuvent également contenir différentes espèces chimiques adsorbées (Ndiema et coll., 1998). La formation des suies provenant de la combustion de biomasse a été peu étudiée (Evans et coll., 1981) comparativement à la

formation de suies dans les flammes d'hydrocarbures (Richter et Howard, 2000; Smedley et coll., 1992). Cependant, la formation des particules de suies dans les flammes peut être expliquée par la succession de cinq phénomènes clés : la nucléation, la croissance de surface, la coagulation, l'agglomération et l'oxydation. Ces étapes sont représentées sur la figure 1-2.

La nucléation est la formation de particules primaires se produisant dans la zone de flamme. Il s'agit du noyau de la particule de suie. Différentes molécules peuvent être à l'origine de ce noyau comme le butadiène, le benzène, l'acétylène, les radicaux Lorsque le premier noyau aromatique est produit, il va y avoir formation d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). Le benzène joue un rôle important dans leur formation durant la combustion. Il peut être produit par différentes voies réactionnelles (l'addition d'acétylène sur des cycles radicalaires, recombinaison de radicaux) (McEnally et coll., 2006; Wang et Frenklach, 1997). Les HAP sont ensuite formés par « arrachage » d'un atome d'hydrogène suivi de l'addition d'acétylène. Il s'agit du mécanisme réactionnel introduit par Frenklach et coll., en 2002 connu sous le nom de « Hydrogen Abstraction-Carbon Addition » (HACA).

Le phénomène de croissance de surface va ensuite avoir lieu. Au cours de cette étape, les particules, produites en quantité importante, vont grossir. Les espèces gazeuses émises au cours de la combustion vont réagir à la surface des noyaux et s'y incorporer (particulièrement les espèces fortement hydrogénées). Ce processus se déroule jusqu'à ce que les particules atteignent une forme quasi sphérique. La taille des noyaux augmentent rapidement passant de quelques nanomètres à une dizaine de nanomètres.

Les particules de faible diamètre (environ 10 nm) peuvent entrer en collision et fusionner grâce à la forte concentration de particules présentes et au fort mouvement brownien dû à la température dans la flamme. Il s'agit du phénomène de coagulation. Dans le cas de particules de diamètre plus important, c'est-à-dire supérieur à 10 nm, on assiste à un phénomène d'agglomération. Les particules ne peuvent pas fusionner, elles vont se coller les unes aux autres. Lors de ce processus, les particules de suies vont acquérir leurs morphologies.

Les particules de suies peuvent être oxydées soit par l'oxygène qui va avoir tendance à casser la particule, soit par le radical $\text{OH}^\bullet$, qui va réduire la masse d'agrégat, dans les zones peu réactives de la flamme où l'oxygène est plus présent (Richter et Howard, 2000).

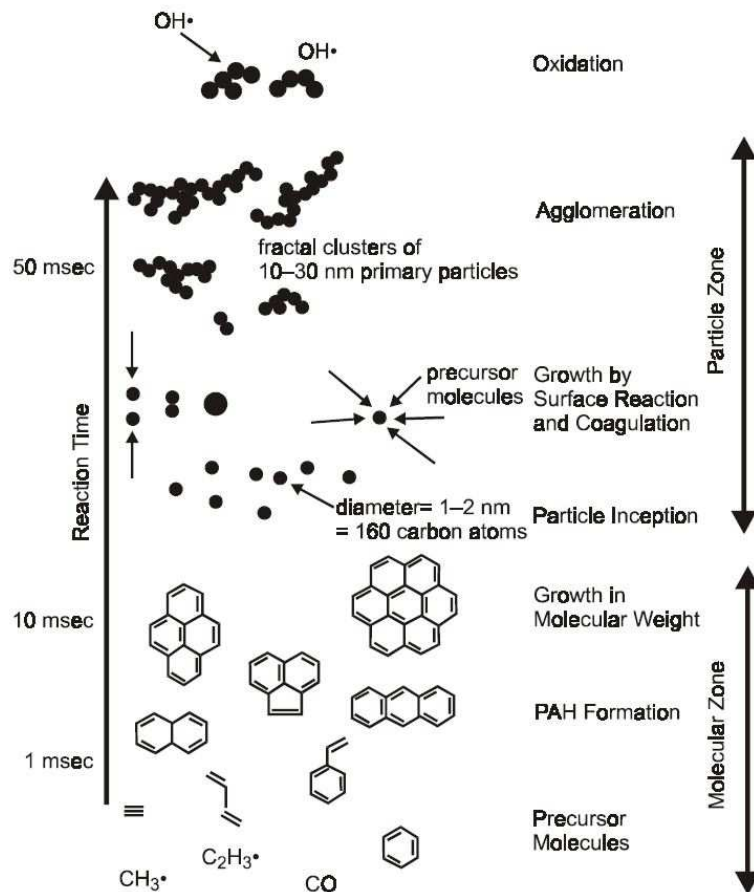


Figure 1 - 1: Schéma de formation des suies (Bockhorn, 1994).

1.4. L'échelle de l'étude

L'échelle d'étude est un paramètre important qui peut influencer sur les résultats obtenus. De nombreux travaux portant sur la dégradation des végétaux ont été réalisés à différentes échelles de combustion, telles que l'échelle matière, l'échelle matériau, l'échelle système et enfin l'échelle terrain. Nous allons préciser ces différentes notions dans les paragraphes suivants.

1.4.1. Echelle matière

Cette échelle de combustion permet d'étudier la dégradation thermique des végétaux ainsi que leur cinétique de combustion ou encore de caractériser chimiquement les végétaux (analyses élémentaire et constitutionnelle). Ces études sont principalement réalisées par

analyse thermogravimétrique ou bien par analyse enthalpique différentielle. Les expériences sont réalisées sur une quantité de broyats de l'ordre du milligramme soumis à un flux thermique et subissent des changements de propriétés.

Les premiers travaux utilisant la thermogravimétrie sur les combustibles forestiers ont été réalisés par Philpot (1970). Cette méthode analytique permet l'étude de la dynamique de combustion par analyse de la perte de masse du combustible (Ghetti et coll., 1996 ; Safi et coll., 2004). Elle a également été utilisée pour caractériser l'inflammabilité des végétaux (Dimitrakopoulos et Papaioannou, 2001; Liodakis et Kakardakis, 2006). Ces analyses s'avèrent également utiles pour déterminer les paramètres cinétiques de la dégradation thermique des végétaux (Dibiasi, 2008 ; Ghetti et coll., 1996 ; Leroy et coll., 2006 ; Fateh et coll., 2013 ; Zaida 2012). Elles peuvent être réalisées sous atmosphère inerte ou oxydante (Orfao et coll., 1999). Toutefois, la quantité d'échantillon analysé peut impacter les résultats obtenus notamment pour les combustibles constitués d'une part importante de cellulose (Stenseng et coll., 2001).

La caractérisation des produits issus de la dégradation thermique des végétaux peut être réalisée principalement à l'aide d'un pyrolyseur couplé à des chromatographes en phase gazeuse, des spectromètres de masse ou bien à un spectromètre infrarouge à Transformée de Fourier. Ces études ont été réalisées sur plusieurs végétaux tels que les aiguilles de pin (*Pinus sylvestris*) (Alén et coll., 1996 ; Statheropoulos et coll., 1997 ; Zaida 2012) ou certaines espèces végétales méditerranéennes (Tihay et coll., 2010). Il a été montré que les conditions expérimentales de la pyrolyse influencent la proportion des produits issus de la combustion ainsi que les cinétiques de décomposition (DiBlasi, 1998).

1.4.2. Echelle matériau

L'échelle du matériau va permettre de considérer et d'étudier les propriétés du combustible sur lequel l'étude est conduite. Le matériau est ainsi étudié dans son ensemble. Pour cela, le principal appareil de mesure permettant ce type d'étude est le cône calorimètre (qui est un appareil normalisé ISO 5660) ainsi que ses dérivés comme par exemple le Fire Propagation Apparatus (FPA ATSM E-2058). Le cône calorimètre a été développé par Babrauskas en 1984 au National Institute of Standards and Technology (NIST). Il s'agit d'un dispositif permettant d'étudier la combustion d'un matériau en fournissant différentes mesures

telles que le taux de dégagement d'énergie (ou puissance calorifique, HRR pour heat release rate), la vitesse de perte de masse, le coefficient d'extinction k . Le principe de ce dispositif sera plus amplement détaillé dans le chapitre 3.

De nombreuses études ont été réalisées à cette échelle pour caractériser les propriétés thermiques du poly(méthacrylate de méthyle) (PMMA), qui est un matériau de référence, ou encore des matériaux de type contre-plaqué et d'analyser leur combustion notamment par l'étude de la vitesse de perte de masse (MLR) et par la mesure de la puissance calorifique (HRR) (Rhodes et Quintiere 1996 ; Tewarson 2002 ; Gentilhomme et coll., 2005 ; Fateh et coll., 2014). Les gaz issus de la combustion de matériaux peuvent également être étudiés avec le cône calorimètre par couplage d'analyseurs comme par exemple l'IRTF (Luche et coll., 2011 ; Fateh et coll., 2014).

Des études sur les combustibles végétaux ont été réalisés à partir de ce dispositif expérimental pour déterminer leur enthalpie effective de combustion (Babrauskas 2006 ; Dibble, 2007) et pour étudier leur dynamique de combustion (Schemel et coll., 2008, Bartoli et coll., 2011 ; Simeoni et coll., 2012 ; Zaida 2012). Sur la base des travaux de Schemel et coll., (2008), Bartoli et coll., (2011) ont mis au point les conditions expérimentales permettant l'étude de la dynamique de combustion de litières d'aiguilles de pin (*Pinus pinaster*, *Pinus laricio*, *Pinus halepensis*). Ces travaux ont conduit à mettre à jour les facteurs influençant la dynamique de combustion et l'inflammabilité des litières (Santoni et coll., 2014).

Des adaptations peuvent également être apportées au cône calorimètre, comme l'ajout d'une chambre à atmosphère contrôlée permettant de varier les conditions de ventilation dans la chambre d'essais et ainsi d'étudier l'influence de la richesse sur le processus de dégradation thermique et sur la combustion (Leonard et coll., 2000 ; Hietaniemi et coll., 1999 ; Babrauskas et coll., 1992).

1.4.3. Echelle système

Il s'agit de combustions réalisées en laboratoire mais à une échelle où la flamme peut atteindre une hauteur de l'ordre du mètre. Pour les végétaux, il peut s'agir de travaux sur des foyers statiques ou bien d'études sur la propagation des feux. Dupuy et coll., (2003) ont notamment utilisé des paniers de combustion de diamètres variables pour simuler et étudier, dans des conditions de laboratoire, la flamme et le panache issus de la combustion de

combustibles végétaux. Les premières études de propagation remontent aux années 1960 (Rothermel et Anderson, 1966) et sont depuis très répandues dans le domaine de la recherche incendies. Ces études permettent de mesurer plusieurs grandeurs relatives à la propagation du feu, notamment des grandeurs géométriques comme la vitesse de propagation du front de flamme, la hauteur, la profondeur ou encore l'inclinaison du front de feu (Mendes lopes 2003 ; Santoni et coll., 2010 ; Viegas et coll., 2002). Les effets de la pente et du vent (vitesse et direction) sur les vitesses de propagation ont également été abondamment étudiés (Dupuy et coll., 2011 ; Mendes-Lopes et coll., 2003 ; Morandini et coll., 2002 ; 2006 ; Tihay et coll., 2014). Des études plus fines sur les grandeurs thermodynamiques ont également été conduites. L'étude de la distribution de température et de la vitesse des gaz dans le panache thermique des fronts de feu a par exemple été réalisée (Marcelli et coll., 2004). Plus récemment, la mesure de la puissance de ces feux a été réalisée à l'aide d'un grand calorimètre à consommation d'oxygène (Santoni et coll., 2011).

1.4.4. Echelle terrain

Il s'agit de l'échelle la plus proche des conditions réelles d'incendies. Les expériences réalisées à cette échelle permettent aussi bien d'étudier le comportement du feu que les fumées émises ou bien des grandeurs thermodynamiques (température, densité de flux radiatifs), (Santoni et coll., 2006).

En ce qui concerne le comportement du feu, de nombreuses études ont été réalisées par la communauté scientifique qui a principalement axé les recherches sur la géométrie et le temps de résidence des flammes, la forme du front de flamme, la vitesse de la propagation (Viegas et coll., 2002 ; Marsden-Smedley et coll., 2001 ; Silvani et Morandini 2009 ; Fernandes et coll, 2002). De nombreux paramètres peuvent influencer le comportement du feu tels que les conditions météorologiques, l'espèce végétale brûlée ainsi que son état (vivante ou morte) ou encore sa teneur en eau (Ganteaume et coll., 2011 ; Santoni et coll., 2006 ; Silvani et Morandini, 2006 ; Wotton 2007).

Comme nous l'avons développé en amont dans ce chapitre, de nombreuses études ont été menées sur l'analyse des fumées lors de brûlages à grandes échelles sur différents types de végétaux (Alves et coll., 2010 ; Andreae et Merlet, 2001 ; Urbanski, 2014, Langman et coll., 2009).

1.4.5. Problématique du changement d'échelle

De part la dimension des dispositifs expérimentaux, il est difficile d'extrapoler les résultats obtenus en laboratoire aux phénomènes se produisant lors d'incendies réels. La multitude d'études disponibles pour appréhender le phénomène de combustion en termes de dynamique de combustion et d'analyses des fumées nous incite à nous demander quelle est l'échelle qui permet une « bonne » représentation de l'incendie ? Il est ainsi fondamental de déterminer si les résultats obtenus à une certaine échelle peuvent être extrapolés à une autre (Mendes-Lopez et coll., 2010 ; Perez et coll., 2006). L'importance du changement d'échelle concerne tous les types de matériaux. Ainsi Marquis (2010) a étudié le comportement au feu d'un sandwich composite de l'échelle de la matière jusqu'à l'échelle d'un démonstrateur. La combustion à chacune des échelles permet un apport d'informations complémentaires sur le comportement au feu du produit étudié et ainsi d'affiner la simulation numérique du développement d'un incendie à échelle réelle (Marquis, 2010). Fateh et coll., (2014) proposent une approche multi-échelle afin d'établir le mécanisme cinétique de dégradation thermique pour la combustion de contre-plaqué ignifugé par analyse thermogravimétrique qui représente une petite échelle, et à partir du cône calorimètre pour représenter une échelle supérieure. Cependant, à ce jour il existe peu de travaux portant sur les effets d'échelles dans le cas de la combustion des végétaux (Perez et coll., 2006).

Structure du manuscrit de thèse

Le but de notre travail est de déterminer quelle échelle de laboratoire est la plus appropriée pour que les expériences réalisées traduisent au mieux le phénomène de combustion rencontré dans les incendies de végétation. Pour cela, notre étude a consisté à analyser l'influence de l'échelle et du système sur la dynamique de combustion de litières et sur la production des fumées. Des descripteurs de la dynamique de combustion (HRR, efficacité de combustion,...) ont ainsi été mesurés et les fumées produites ont été analysées pour différentes configurations expérimentales et pour deux types de litières forestières, à savoir les aiguilles de *Pinus pinaster* et de *Pinus laricio*. Le chapitre 2 de ce manuscrit, présente les combustibles étudiés ainsi que les techniques mises en œuvre pour réaliser les expériences de combustion et les analyses des fumées. Nous présentons également différentes

notions sur les variables étudiées au cours de cette étude : le calcul de la puissance calorifique par consommation d'oxygène, l'estimation des suies ou encore le calcul des facteurs d'émission. Le chapitre 3 concerne l'étude de la dynamique de combustion et de la production des fumées à l'échelle matériau. Pour cela, nous avons utilisé le cône calorimètre comme moyen de combustion. Le chapitre 4 est consacré aux résultats obtenus pour une première échelle système dans le cas de feux quasi-statiques réalisés dans un panier sous un grand calorimètre, appelé Large Scale Heat Release Rate Calorimeter (LSHR). Enfin, dans le chapitre 5, nous présentons les résultats obtenus pour une seconde échelle système associée à la propagation d'un front de feu au travers d'une litière de pin maritime. L'ensemble des résultats obtenus pour les trois configurations expérimentales (cône, LSHR panier, LSHR propagation) sont discutés dans les chapitres 4 et 5 pour les deux végétaux étudiés. Nous montrons alors l'influence des systèmes de combustion mais également celle de l'échelle de combustion sur la dynamique de combustion des végétaux et la composition des fumées émises.

Chapitre 2 : Matériels et méthodes

2.1. Les combustibles

Le matériel végétal provient de deux espèces représentatives du couvert végétal Corse, à savoir le pin maritime et le pin laricio (strate arborescente).

2.1.1. Description générale

Pinus pinaster

Le pin maritime est un conifère de la famille des *Pinaceae* très répandu aux étages méso et supra méditerranéens. Il mesure en moyenne 25 mètres de haut. Le tronc est recouvert d'une écorce épaisse à forte odeur de résine qui le rend facilement reconnaissable. Les branches les plus basses sont nues et sa cime est touffue. Les aiguilles épaisses et rigides sont regroupées par deux et mesurent de 15 à 25 centimètres de long. Elles sont persistantes et de couleur gris vert virant peu à peu au vert foncé. Lors de leur dégénérescence, elles deviennent de couleur brune et tombent au sol où elles se décomposent lentement en formant une litière au pied de l'arbre. C'est une espèce commune des côtes Atlantique et de la Méditerranée. En France, elle occupe plus de 10% de la surface boisée. Elle est exigeante en lumière, en chaleur et ne supporte pas les hivers rigoureux.

Le pin maritime a besoin d'une certaine humidité, il se développe bien dans les sols suffisamment profonds et sablonneux car c'est une espèce calcifuge. Il est fortement pyrophyte (Gamisans, 1996).

Pinus laricio

Pinus nigra subsp. *laricio* var. *corsicana* appartient au groupe des *Pinaceae*. Il est présent depuis l'étage supra méditerranéen jusqu'au montagnard, soit de 700 à 1800 m d'altitude. Il est abondant en Corse (il couvre 21000 ha de surface, soit 2,4% de la surface totale de la Corse) mais est retrouvé aussi dans des formes taxinomiques voisines en Italie du Sud. Son tronc est droit et ses branches s'étagent régulièrement. Il peut atteindre jusqu'à 50 m de hauteur. Son écorce gris argenté se présente sous forme de grandes plaques irrégulières. Son port est élancé, de forme pyramidale. Il porte des aiguilles insérées par deux, de manière assez clairsemée. Longues (de 12 à 15 cm), elles sont souples et non piquantes. Ses cônes restent sur les rameaux longtemps après avoir libéré leurs graines. Ils sont ovoïdes et de couleur brun clair, sans pédoncule et mesurent entre 5 et 8 cm. Le pin laricio supporte bien la sécheresse estivale car il profite de la bonne pluviosité annuelle des montagnes corses. Sur les versants ensoleillés, il y règne de 1000 à 1800 m. Sur les pentes exposées au Nord, plus sombres et fraîches, il s'associe aux futaies de hêtres, sapins et houx. En descendant vers le littoral, il se « mélange » puis cède la place aux bois de Chêne vert ou de Pin maritime.

Son couvert peu dense favorise le développement d'une végétation basse très sensible au feu. D'une longévité exceptionnelle, sa durée de vie se compte en centaines d'années (Gamisans, 1996).



Figure 2 - 1 : Photographie d'aiguilles de *Pinus laricio* (en haut) et *Pinus pinaster* (en bas)

Tableau II - I: Espèces végétales utilisées lors des expériences de combustion

Espèce végétale	Partie du végétal étudiée	Lieu de récolte
<i>Pinus pinaster</i>	Aiguilles	Restonica, Corse
<i>Pinus laricio</i>	Aiguilles	Vivario, Corse

2.1.2. L'analyse élémentaire

Les analyses élémentaires des deux végétaux ont été effectuées par les sociétés SOCOR¹ et NEOTIM². Les résultats sont présentés dans le tableau II-II en pourcentage massique pour les végétaux secs (c'est-à-dire préalablement passés à l'étuve). Il s'agit des moyennes correspondant aux analyses des deux prestataires.

Tableau II - II: Analyses élémentaires des combustibles étudiés

Espèce végétale	Carbone (%)	Hydrogène (%)	Oxygène (%)	Azote (%)
<i>Pinus pinaster</i>	53,05	6,33	39,35	<0,3
<i>Pinus laricio</i>	50,39	6,72	39,65	<0,30

2.1.3. Pouvoirs calorifiques inférieur et supérieur

Le pouvoir calorifique d'un matériau combustible exprimé généralement en kJ.kg^{-1} , correspond à l'enthalpie de réaction de combustion par unité de masse dans des conditions normales de température et de pression. Il existe deux types de pouvoir calorifique. Le pouvoir calorifique inférieur (PCI) et le pouvoir calorifique supérieur (PCS).

Le PCI représente l'énergie libérée par la combustion d'un kilogramme de combustible sous forme de chaleur sensible, à l'exclusion de l'énergie de vaporisation de l'eau en fin de réaction. Le PCS est l'énergie libérée par la combustion d'un kilogramme de combustible. Elle comprend la chaleur sensible et la chaleur latente de vaporisation de l'eau produite par la combustion. Cette énergie est entièrement récupérée si la vapeur d'eau émise est condensée. Les PCI et PCS des végétaux étudiés ont été mesurés par les sociétés SOCOR et NEOTIM.

Les végétaux sont préalablement broyés, les analyses sont réalisées selon la norme XP CEN/TS 14918. L'échantillon est brûlé au moyen d'une bombe calorimétrique en présence de dioxygène à haute pression. La capacité de chaleur efficace du calorimètre est déterminée lors d'expériences de calibrages par la combustion de l'acide benzoïque dans les mêmes conditions opératoires. Le pouvoir calorifique supérieur (PCS) déterminé dans ces conditions (c'est-à-dire à volume constant) se calcule à partir de l'élévation constatée de la température

¹ SOCOR, ZAC de Luc, 59187 DECHY

² NEOTIM, - 54, Rue Gustave EIFFEL, 81000 ALBI

de l'eau, compte tenu des réactions chimiques secondaires et des pertes thermiques éventuelles. Le pouvoir calorifique inférieur (PCI) est ensuite calculé à partir du PCS et de la composition élémentaire en hydrogène des broyats. Les moyennes des pouvoirs calorifiques supérieurs et inférieurs des analyses provenant des deux sociétés sont données dans le tableau II-III.

Tableau II - III: Pouvoirs calorifiques supérieurs et inférieurs des trois végétaux étudiés

Espèce végétale	PCS (kJ.kg ⁻¹)	PCI (kJ.kg ⁻¹)
<i>Pinus pinaster</i>	21604	20302
<i>Pinus laricio</i>	22684	21214

2.1.4. Le ratio surface volume

Le ratio surface volume est un paramètre important pour la détermination du potentiel d'inflammabilité et de combustion d'une particule végétale et donc de l'espèce végétale associée. (Anderson 1970 ; Sylvestre et Wein 1981 ; Martin et coll., 1994 ; Hogenbirk et Sarrazin-Delay 1995).

Il a été démontré que les combustibles présentant des valeurs hautes de ce ratio favorisent les échanges d'énergie et de matière avec la phase gazeuse, ce qui réduit les délais d'ignition et augmente la vitesse de propagation du feu (Chandler 1983).

Ce rapport est la propriété du combustible décrivant le plus précisément la géométrie des particules et les dimensions des éléments combustibles complexes. Il est également un paramètre de base de plusieurs simulateurs d'incendies tels que FARSITE (Finney 1998 ; Rothermel 1972), FIRETEC (Linn et coll., 2002 ; Lin et Cunningham, 2005), BEHAVE PLUS (Andrews et coll., 2003) et FOREFIRE (Filippi et coll., 2011).

Ce paramètre varie fortement selon l'espèce étudiée et la taille des particules (Montgomery and Cheo 1971, van Wagtendonk 1996). Les rapports surface volume des particules végétales étudiées lors de cette thèse ont été déterminés expérimentalement selon les protocoles préconisés par Daligault (1991) et Moro (2006). Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau (II-IV) suivant :

Tableau II - IV: Rapports surface-volume (σ_{sv}) des particules végétales étudiées

Espèces	Rapport surface-volume (m^{-1})
<i>Pinus pinaster</i>	3057 ± 40
<i>Pinus laricio</i>	4360 ± 46

2.2. Principe de la mesure calorimétrique par consommation d'oxygène

Il existe différentes façons d'obtenir la puissance calorifique libérée lors de la combustion d'un échantillon. Longtemps, cette mesure était obtenue uniquement à partir d'une combustion effectuée grâce à la bombe calorimétrique. Cette méthode consistait à placer le combustible en milieu hyperbare avec une atmosphère saturée en dioxygène assurant une combustion complète de l'échantillon. Cependant, le phénomène qui se produit alors ne représente pas la réalité des conditions d'un feu à pression atmosphérique. En effet, la bombe calorimétrique va permettre de mesurer l'énergie maximale pouvant être dégagée par l'échantillon dans les conditions décrites précédemment. Ce résultat n'est approprié que si la décomposition thermique de la substance est telle qu'une seule décomposition chimique est prise en considération. Or, ce n'est pas le cas lors de la combustion des végétaux (bois, aiguilles de pin, ...) au cours d'un incendie. Afin de mesurer correctement la puissance calorifique dégagée au cours d'un feu expérimental, nous utilisons la calorimétrie basée sur la consommation de dioxygène au cours de la réaction.

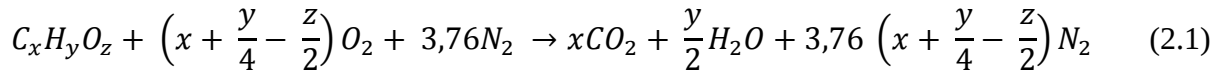
En 1917, Thornton montra que lors de la combustion complète de composés organiques, liquides ou gazeux, l'énergie libérée par unité de masse de dioxygène est équivalente. L'utilisation de la variation de la concentration de dioxygène pour évaluer la puissance calorifique des réactions de combustion a été proposée en 1968 par Hinkley et coll..

Entre 1970 et 1980, cette technique de mesure a été affinée par le National Bureau of Standards devenu aujourd'hui NIST. Parker en 1977, fut le premier à utiliser cette technique pour des expériences à l'échelle du laboratoire.

En 1980 Huggett, démontra que le phénomène décrit par Thornton est applicable également aux matières organiques solides et il proposa pour valeur moyenne $E_{O_2} = 13,1 \text{ MJ.kg}^{-1}$ d'oxygène consommé. Ainsi, il suffit de mesurer la consommation de dioxygène lors d'une combustion pour déterminer l'énergie qui en résulte. Cette technique qui est aujourd'hui éprouvée est la plus précise et la plus pratique pour mesurer les puissances

calorifiques de feux expérimentaux. Elle est basée sur l'évolution de la concentration des gaz de combustion au cours de la réaction et elle nécessite donc de mesurer la composition et la concentration des produits de combustion.

Dans le cas d'une combustion complète d'un composé $C_xH_yO_z$, la réaction stœchiométrique s'écrit :



L'énergie dégagée par la combustion est liée à la quantité de dioxygène consommée. La puissance calorifique $\dot{q}$ est obtenue en multipliant la constante calorifique E_{O_2} par le débit de dioxygène consommé durant la combustion. Le débit de dioxygène consommé est donné par la différence entre le débit massique de dioxygène mesuré sans combustion ($\dot{m}_{O_2}^0$) et celui mesuré lors de la combustion ($\dot{m}_{O_2}$).

$$\dot{q} = E_{O_2} (\dot{m}_{O_2}^0 - \dot{m}_{O_2}) \quad (2.2)$$

Le débit massique de dioxygène est obtenu à partir des mesures du débit massique des gaz d'extraction et de la fraction molaire d'oxygène dans ces gaz. Le débit massique est mesuré à l'aide d'un diaphragme situé dans le conduit d'évacuation des gaz de combustion. L'expression du débit massique est la suivante :

$$\dot{m}_e = C \sqrt{\frac{\Delta P}{T_e}} \quad (2.3)$$

où ΔP est le saut de pression, T_e , la température des gaz et C une constante déterminée lors d'une procédure de calibration au méthane.

La fraction molaire de dioxygène mesurée au niveau des analyseurs notée $X_{O_2}^A$ est liée au débit d'oxygène. Sans combustion son expression est :

$$X_{O_2}^{A_0} = \frac{\frac{\dot{m}_{O_2}^0}{M_{O_2}}}{\frac{\dot{m}_{O_2}^0}{M_{O_2}} + \frac{\dot{m}_{CO_2}^0}{M_{CO_2}} + \frac{\dot{m}_{N_2}^0}{M_{N_2}}} \quad (2.4)$$

Et la fraction molaire d'oxygène au cours de la combustion a pour expression :

$$X_{O_2}^A = \frac{\frac{\dot{m}_{O_2}}{M_{O_2}}}{\frac{\dot{m}_{O_2}}{M_{O_2}} + \frac{\dot{m}_{CO_2}}{M_{CO_2}} + \frac{\dot{m}_{CO}}{M_{CO}} + \frac{\dot{m}_{N_2}}{M_{N_2}}} \quad (2.5)$$

Ces expressions permettent de déterminer les débits massiques d'oxygène correspondants, c'est-à-dire :

$$\dot{m}_{O_2}^0 = \frac{X_{O_2}^{A_0}}{(1 - X_{CO_2}^{A_0} - X_{O_2}^{A_0})} \frac{M_{O_2}}{M_{N_2}} \dot{m}_{N_2}^0 \quad (2.6)$$

et

$$\dot{m}_{O_2} = \frac{X_{O_2}^A}{(1 - X_{CO}^A - X_{CO_2}^A - X_{O_2}^A)} \frac{M_{O_2}}{M_{N_2}} \dot{m}_{N_2} \quad (2.7)$$

de ce fait on peut exprimer :

$$\dot{m}_{O_2}^0 - \dot{m}_{O_2} = \frac{X_{O_2}^{A_0} (1 - X_{CO}^A - X_{CO_2}^A) - X_{O_2}^A (1 - X_{CO_2}^{A_0})}{(1 - X_{CO_2}^{A_0} - X_{O_2}^{A_0}) (1 - X_{CO}^A - X_{CO_2}^A - X_{O_2}^A)} \frac{M_{O_2}}{M_{N_2}} \dot{m}_{N_2} \quad (2.8)$$

d'où

$$\dot{q} = E_{O_2} \frac{X_{O_2}^{A_0} (1 - X_{CO}^A - X_{CO_2}^A) - X_{O_2}^A (1 - X_{CO_2}^{A_0})}{(1 - X_{CO_2}^{A_0} - X_{O_2}^{A_0}) (1 - X_{CO}^A - X_{CO_2}^A - X_{O_2}^A)} \frac{M_{O_2}}{M_{N_2}} \dot{m}_{N_2} \quad (2.9)$$

On peut alors introduire le facteur de consommation ϕ qui permet de simplifier l'écriture de $\dot{q}$

$$\phi = \frac{\dot{m}_{O_2}^0 - \dot{m}_{O_2}}{\dot{m}_{O_2}^0} \quad (2.10)$$

alors

$$\phi = \frac{X_{O_2}^{A_0} (1 - X_{CO}^A - X_{CO_2}^A) - X_{O_2}^A (1 - X_{CO_2}^{A_0})}{X_{O_2}^{A_0} (1 - X_{CO}^A - X_{CO_2}^A - X_{O_2}^A)} \quad (2.11)$$

On obtient donc :

$$\dot{q} = \frac{E_{O_2} \phi X_{O_2}^{A_0}}{(1 - X_{CO_2}^{A_0} - X_{O_2}^{A_0})} \frac{M_{O_2}}{M_{N_2}} \dot{m}_{N_2} \quad (2.12)$$

L'expression de $\dot{m}_{N_2}$ est inconnue et doit être établie. On a

$$\dot{m}_{N_2} = \dot{m}_a X_{N_2}^0 \frac{M_{N_2}}{M_a} \quad (2.13)$$

Où $\dot{m}_a$ représente le débit massique d'air entrant (kg.s^{-1}) et M_a est la masse molaire de l'air entrant.

Comme les gaz mesurés sont asséchés, on ne peut pas mesurer directement $X_{N_2}^0$. Mais on montre que

$$X_{N_2}^0 = (1 - X_{H_2O}^0) (1 - X_{CO_2}^{A_0} - X_{O_2}^{A_0}) \quad (2.14)$$

En portant ces deux résultats dans l'expression de la puissance, on obtient :

$$\dot{q} = E_{O_2} \phi X_{O_2}^{A_0} \dot{m}_a (1 - X_{H_2O}^0) \frac{M_{O_2}}{M_a} \quad (2.15)$$

Lors des réactions de combustion, le nombre de moles d'une fraction de l'air pour lequel l'oxygène serait totalement consommé et le nombre de moles de produit de combustion sont liés par le facteur d'expansion α (rapport des deux quantités). Il est recommandé d'utiliser la valeur 1,105 pour α (Janssens et Babrauskas, 1992). On montre alors que les débits d'entrée d'air et des produits de combustion sont liés par la relation suivante :

$$\frac{\dot{m}_e}{M_e} = \frac{\dot{m}_a}{M_a} (1 - \phi) + \frac{\dot{m}_a}{M_a} \alpha \phi \quad (2.16)$$

Avec $M_e \approx M_a$, cette expression se simplifie en :

$$\dot{m}_a = \frac{\dot{m}_e}{1 + \phi (\alpha - 1)} \quad (2.17)$$

De ce fait, l'expression de la puissance calorifique est :

$$\dot{q} = E_{O_2} \frac{\phi}{1 + \phi (\alpha - 1)} \dot{m}_e \frac{M_{O_2}}{M_a} (1 - X_{H_2O}^0) X_{O_2}^{A_0} \quad (2.18)$$

Lorsque la production de monoxyde de carbone ne peut pas être négligée (cas typique des réactions de combustion sous ventilées), il est nécessaire d'effectuer une correction de la valeur de E_{O_2} qui est déterminée pour une combustion complète. Le calcul de la puissance s'écrit en tenant compte de la quantité de CO non consommée :

$$\dot{q} = E_{O_2} (\dot{m}_{O_2}^0 - \dot{m}_{O_2}) - (E_{CO} - E_{O_2}) (\Delta \dot{m}_{O_2})_{CO \rightarrow CO_2} \quad (2.19)$$

Avec

$$(\Delta \dot{m}_{O_2})_{CO \rightarrow CO_2} = \frac{1}{2} (1 - \phi) \frac{X_{CO}^A M_{O_2}}{X_{O_2}^A M_a} \dot{m}_a X_{O_2}^{A_0} \quad (2.20)$$

E_{CO} est l'énergie dégagée par unité de masse de dioxygène consommé pour la combustion de CO en CO_2 (17,6 MJ.kg⁻¹). En prenant en compte cette correction, l'expression de la puissance calorifique devient :

$$\dot{q} = \left(E_{O_2} \phi - (E_{CO} - E_{O_2}) \frac{1 - \phi}{2} \frac{X_{CO}^A}{X_{O_2}^A} \right) \frac{\dot{m}_e}{1 + \phi (\alpha - 1)} \frac{M_{O_2}}{M_a} (1 - X_{H_2O}^0) X_{O_2}^{A_0} \quad (2.21)$$

Les données obtenues avec le Cône calorimètre permettent suite à un traitement sous le logiciel Excel®, de déterminer la puissance calorifique obtenue lors de la combustion des végétaux en utilisant les calculs de la calorimétrie par consommation d'oxygène présentés ci-dessus.

2.3. Etude des fumées

Nous avons choisi d'étudier les fumées issues de la combustion incomplète de végétaux. Les fumées contiennent une grande variété de composés organiques. Il s'agit principalement des gaz permanents (monoxyde et dioxyde de carbone, composés azotés (les NO_x), méthane), mais également de molécules possédant des masses moléculaires plus élevées comme les composés organiques volatils (COV) et les composés organiques semi-volatils (COSV). Les COV et COSV sont par définition des composés qui à température ambiante se trouvent sous forme liquide ou gazeuse.

Afin de détecter la présence et de déterminer la quantité des ces différents composés, nous avons utilisé diverses techniques. Les quantités de monoxyde et de dioxyde de carbone ont été déterminées à partir des analyseurs du calorimètre. Les autres gaz permanents, (le méthane et les oxydes d'azotes (NO et NO₂)) ont été obtenus par un analyseur Infrarouge à Transformée de Fourier. Les COV et COSV ont été analysés grâce au couplage d'un désorbeur thermique automatique (DTA) et d'un chromatographe en phase gazeuse munie d'un détecteur à ionisation de flamme (FID) associé à un détecteur à spectrométrie de masse (CPG-FID/SM).

Enfin, la production des fumées, l'opacité qui en résulte, ainsi que les suies générées par les combustions des végétaux ont également été étudiés à partir des mesures du coefficient d'extinction émettant dans le rouge à la longueur d'onde de 632,8 nm d'un laser à hélium-néon (He-Ne) de 0,5 mW, avec photodétecteurs principaux et de référence (de compensation).

Dans cette partie, nous décrivons les techniques mises en œuvre pour réaliser ces analyses.

2.3.1. L'analyse des composés de faible masse moléculaire

2.3.1.1. L'analyseur des calorimètres

Le monoxyde et le dioxyde de carbone émis lors des combustions de deux variétés de pin (*Pinus pinaster* et *Pinus laricio*) ont été quantifiés à partir de la baie d'analyse des calorimètres. En effet, celle-ci est équipée d'un analyseur de gaz infrarouge non dispersif (IRND).

Une calibration des analyseurs est effectuée lors de la mise en place des expériences. Les gaz de calibration utilisés ont des concentrations de 2500 ppm pour le CO et de 8% pour le CO₂.

2.3.1.2. L’Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF)

Afin d’analyser la composition des fumées en molécules ayant des masses moléculaires faibles (le méthane, les oxydes d’azote,...) au cours du temps, le laboratoire est équipé d’un spectromètre infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF) (figure 2-2). Ce dispositif est relié au conduit d’évacuation des fumées des calorimètres par une ligne chauffée à 160 °C ce qui permet d’éviter la condensation des composés. Il permet une analyse directe et au cours du temps des composés. L’appareil utilisé est (Antaris IGS) de Thermofisher. Il permet d’introduire le mélange gazeux dans une cellule analytique dont le chemin optique fixe mesure 2 mètres à une pression de 650 mBar.

La spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF) mesure sur l’interaction du matériau avec le rayonnement infrarouge. Il s’agit d’une technique d’identification et de quantification de la composition chimique d’un échantillon. Cette méthode est basée sur l’étude de l’absorption des radiations électromagnétiques comprises entre 10000 cm⁻¹ et 10 cm⁻¹. C’est dans le domaine de l’infrarouge moyen compris entre 4000 cm⁻¹ et 400 cm⁻¹ que les liaisons chimiques entrent en vibration ce qui permet l’interprétation des fonctions chimique présente.

Avec un IRTF, l’échantillon est illuminé par un faisceau contenant une combinaison de multiples fréquences de la lumière. Ce faisceau est produit à partir d’une source de lumière à large bande, contenant l’ensemble du spectre des longueurs d’onde à mesurer. La lumière passe par un interféromètre de Michelson, il s’agit d’un ensemble de miroirs réfléchissants, dont un motorisé. Au fur et à mesure que le miroir bouge, chaque longueur d’onde se trouve périodiquement bloquée ou transmise par l’interféromètre, par interférences. Différentes longueurs d’onde sont ainsi modulées à des vitesses différentes, de sorte que, à chaque instant, le faisceau sortant de l’interféromètre possède un spectre différent.

Le faisceau infrarouge apporte une énergie voisine de l’énergie de vibration de la molécule à identifier. La molécule absorbe alors le rayonnement infrarouge et celui-ci dépend de sa géométrie et en particulier de sa symétrie. De ce fait, chaque molécule possède une

bande d'absorption caractéristique qui permet son identification (Colthup et coll., 1975). Le faisceau arrive sur le détecteur pour être transformé en signal électrique, l'interférogramme. Ce dernier est la somme de toutes les fréquences du faisceau, il est ensuite converti en un spectre infrarouge par une opération mathématique appelée Transformée de Fourier.

Un traitement numérique est nécessaire pour convertir les données brutes en données directement exploitables.



Figure 2 - 2 : Photographie d'un analyseur Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF)

Dans notre cas, les spectres IRTF des composés présents dans les fumées ont été réalisés en mode transmission. Sur tous les spectres, la correction de la ligne de base a été effectuée afin de soustraire l'eau et le dioxyde de carbone présents dans l'air.

2.3.2. L'analyse des composés de masse moléculaire élevée

2.3.2.1. Les techniques de capture

Plusieurs méthodes de prélèvement de fumées existent, elles peuvent être prélevées dans des sacs Tedlar ou Téflon (figure 2-3), pour un prélèvement global de volume important ou bien, elles peuvent être piégées sur des tubes remplis de différentes phases stationnaires. Afin de déterminer quelle méthode était la mieux adaptée à notre étude, nous avons réalisé plusieurs essais sur les différents types de support.

Ainsi, des prélèvements ont été effectués avec des tubes Tenax TA (figure 2-3) et des tubes Tri-phases. Les tubes Tenax TA sont des polymères organiques relativement inertes et moins polaires que les adsorbants inorganiques et permettant le piégeage d'une large gamme de composés organiques volatiles et semi-volatiles dans un mélange d'air pouvant contenir une grande quantité d'eau (importante surface spécifique de l'adsorbant, grande stabilité thermique $\approx 350^{\circ}\text{C}$).

Les tubes tri-phases sont constitués de Tenax TA, de Carbograph 1TD (carbone graphitisé piégeant les cétones, les alcools, les aldéhydes, le benzène, le toluène et les xylènes) et de Carboxen 1000 (tamis moléculaires carbonés pour piéger les composés très volatils, les hydrocarbures, ...). Généralement, les fixations de fumée sont réalisées sur des tubes Tenax TA, cependant, les débits d'extractions des appareils sont limitant pour le prélèvement de ces fumées. En effet, pour un résultat de prélèvement optimal sur le cône calorimètre, le débit d'extraction doit être réglé à 7 L.s^{-1} , cependant pour des calculs optimaux en calorimétrie, le débit doit être de 24 L.s^{-1} (Annexe 1). De plus, l'utilisation des tubes est impossible sur le grand calorimètre du fait d'un débit d'extraction de $1 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$.

Au travers de l'étude des supports de captures des fumées, il est plus avantageux pour l'étude menée dans ce travail d'utiliser des sacs Tedlar pour les prélèvements des fumées issues de la combustion des végétaux étudiés.

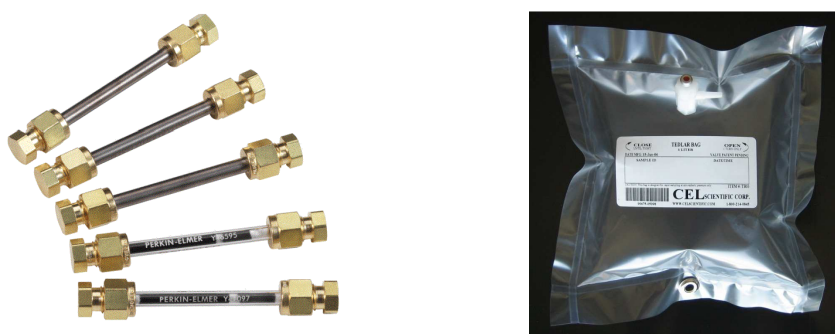


Figure 2 - 3: Tubes Tenax TA et sac Tedlar

2.3.2.2. DTA-CPG/SM

Le DTA (Perkin Elmer, Turbomatrix 400)

Le principe du désorbeur thermique automatique (figure 2-4) est une désorption à deux étages. Le prélèvement des fumées étant effectué sur des sacs Tedlar, ces derniers sont

introduits dans le DTA au moyen d'une pompe. Ainsi, les molécules sont désorbées et entraînées vers le piège à froid. Il s'agit d'un tube rempli de phase adsorbante ce qui permet de cryofocaliser les substances à partir d'un refroidissement constant par effet Peltier.

Lors de la deuxième étape, le cryopiège est chauffé rapidement et est balayé par le gaz vecteur qui est de l'hélium. Cette étape permet la désorption et la libération des molécules. Celles-ci sont ensuite transportées par le gaz vecteur via une ligne de transfert chauffée en tête de colonne du CPG/SM.

Ce système à deux étages confère une bonne résolution des chromatogrammes (pics fins, retour à la ligne de base,...) et limite donc les phénomènes de coélutions rencontrés lors d'une désorption classique.



Figure 2 - 4: Désorbeur thermique automatique

La CPG/SM (CPG/FID/SM Perkin Elmer Clarus 500)

Le couplage de la chromatographie en phase gazeuse avec la spectrométrie de masse (CPG/SM) (figure 2-5) permet d'effectuer simultanément la séparation et l'analyse des différents constituants d'un mélange complexe. La CPG est une technique permettant la séparation de molécules d'un mélange complexe. Elle s'applique principalement aux composés gazeux ou susceptibles d'être vaporisés par chauffage sans entraîner de décomposition. L'appareil est muni d'un système d'injection permettant d'introduire et de rendre volatil l'échantillon analysé. L'injection peut être effectuée manuellement ou automatisée, comme dans notre cas, via le désorbeur thermique automatique.

L'injection a lieu à l'entrée d'une colonne capillaire ou remplie contenant une phase stationnaire (Tableau II-V) et permettant la séparation des composés qui vont être poussés par

un gaz vecteur, l'hélium. Les composés vont être élués et séparés en fonction de leur affinité avec la phase stationnaire. La colonne se trouve dans un four permettant une programmation de température variant de 20 à 450 °C.

A la sortie de la colonne les molécules passent à travers le système de détection, dans notre cas un détecteur à ionisation de flamme (FID), qui enregistre la mesure du signal émis par les différentes molécules. Lorsque les molécules traversent la flamme, elles sont ionisées ce qui provoque un courant électrique (entre la buse de la flamme du FID et une électrode entourant cette dernière) qui est ensuite amplifié. Le FID permet la quantification et l'identification des composés grâce aux indices de rétentions des molécules. Les indices de rétentions peuvent être déterminés de deux façons. Si la chromatographie est effectuée à température constante, les indices sont alors calculés à partir d'une gamme d'alcanes, ce sont les indices de Kováts. Si l'analyse est effectuée en programmation de température on parle alors d'indices de rétention. Les temps de rétention sont spécifiques, dans des conditions d'analyses précises, d'un composé mais ils ont tendance à varier d'une analyse à l'autre, (vieillissement des colonnes...)

Afin d'améliorer l'identification des composés, la CPG peut être couplée à un spectromètre de masse. La spectrométrie de masse (SM), est une technique physique d'analyse permettant la détection et l'identification des molécules par mesure de leur masse. Les molécules composant le mélange passent dans la colonne identique à celle utilisée en CPG, puis traversent la source d'ionisation qui consiste à vaporiser les molécules et à les ioniser. Plusieurs types de sources existent. Nous disposons au laboratoire d'une source à ionisation électronique. Lors de leur passage à travers la source, les molécules sont brisées en fragments ionisés et séparés par l'analyseur en fonction de leur rapport masse/charge (m/z). Les analyseurs les plus fréquents sont le « quadripôle » et le piège à ions ou « ion trap ». Tous deux utilisent la stabilité des trajectoires pour séparer les ions selon le rapport masse sur charge m/z (De Hoffmann et coll., 1999 ; McLafferty et Tureček, 1993). Les analyseurs quadripolaires sont constitués de quatre barres cylindriques. Un cation pénétrant entre les barres sera attiré vers une barre négative. Dans les appareils à quadripôle, les potentiels sont réglés de manière telle que seuls les ions d'une fourchette de masses déterminées traversent les barres. Le faisceau d'ions ayant traversé l'analyseur de masse, est ensuite détecté et transformé en un signal utilisable. Les impacts ioniques sont convertis en signaux par les détecteurs (chaletrons (multiplicateurs d'électrons) et les photomultiplicateurs). L'ordinateur enregistre les signaux visualisés sous forme de pics d'intensités variables, rangés sur une

2.3.3. Les mesures obtenues à partir de l'opacimètre laser

L'étude de la fumée est importante pour la protection contre les incendies. La fumée obscurcit la visibilité, de plus les particules représentent également une source de rayonnement thermique. Les fumées d'incendie peuvent varier en composition et en coloration. Les fumées de couleur noire sont chargées de particules solides très carbonées alors que les fumées incolores ou de couleur blanche peuvent être constituées en grande partie de particules liquides. Elles peuvent donc avoir des propriétés optiques différentes (Babrauskas et Mulholland, 1987).

L'opacité des fumées est mesurée dans l'écoulement des fumées au moyen d'un laser He-Ne de 0,5 mW émettant dans le rouge à une longueur d'onde de 632,8 nm. Le laser est placé dans le conduit d'évacuation au côté d'un thermocouple qui permet de déterminer la température des fumées et d'en déduire le débit volumique à l'emplacement exacte du laser. La lumière du laser passe par l'intermédiaire de diviseurs de faisceaux dans deux détecteurs. La lumière atteignant le premier détecteur, dit de compensation, n'est pas atténuée par la fumée. Son signal sert de référence afin de neutraliser les fluctuations en sortie du laser. Le détecteur principal mesure un signal atténué par la fumée. Le trajet optique est purgé par un courant grâce à un système de purge. Cet écoulement est maintenu par la différence de pression dans le conduit d'écoulement (Babrauskas 2002).

La mesure la plus répandue concernant la propriété de la fumée est le coefficient d'extinction. L'équation fondamentale pour mesurer ce coefficient est basée sur la loi de Bouguer qui concerne l'intensité I_λ° , de la lumière incidente monochromatique de longueur d'onde λ et l'intensité de la lumière, I_λ , transmise à travers la longueur du trajet de la fumée (Babrauskas et Mulholland, 1987).

$$\frac{I_\lambda}{I_\lambda^\circ} = e^{-kL} \quad (2.22)$$

Où k est le coefficient d'extinction, m^{-1} .

Le coefficient d'extinction permet d'exprimer plusieurs autres mesures, telles que la concentration massique des particules de suies C_s , ou encore la production totale de fumée au cours des expériences, par Total Smoke Production (TSP).

En ce qui concerne la concentration massique des particules de suies, le coefficient d'extinction peut être exprimé comme le produit de la surface d'extinction spécifique par unité de masse de suies σ_s ($\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$) et la concentration massique des particules de suies C_{suies} ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$).

$$k = \sigma_s C_s \quad (2.23)$$

La quantité σ_s dépend de la distribution de la taille et des propriétés optiques des particules de suies présentes dans la fumée. Dans la littérature, la surface d'extinction spécifique par unité de masse de suies pour le bois varie de 8200 à 8500 $\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$ (Gerber et Hindman, 1982). Nous avons décidé d'estimer la masse de suies pour chacune de nos expériences à partir de la mesure de k . Pour cela, nous utilisons dans nos calculs une valeur moyenne de 8300 $\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$ pour valeur de la surface d'extinction spécifique (Babrauskas et Mulholland, 1987). La masse de suies est déterminée à partir du produit du débit massique de fumées par le rapport du coefficient d'extinction k (m^{-1}) à la surface d'extinction spécifique par unité de masse de suie. Elle est calculée à partir de la relation suivante :

$$m_s = \int_0^T \left[\frac{k}{\sigma_s} \dot{V}_{smoke} \right] dt \quad (2.24)$$

Où $\dot{V}_{smoke}$ est le débit massique de fumées en $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ et T le temps de combustion.

La production totale de fumée au cours de l'expérience, noté TSP (m^3), est donnée par :

$$TSP = \int_0^T (k \dot{V}_{smoke}) dt \quad (2.25)$$

2.3.4. Quantifications

L'objectif de l'analyse des composés émis lors de la combustion des végétaux étudiés est de déterminer les facteurs d'émissions utilisés dans les modèles incendies et dans les analyses de risques. Nous établirons également un bilan massique de carbone pour évaluer la qualité des mesures chimiques et énergétiques. Il est donc nécessaire de quantifier les

composés identifiés avec les deux méthodes analytiques utilisées. Nous décrivons ici les moyens de quantification utilisés pour la CPG/SM et pour le FTIR.

2.3.4.1. Quantification pour les analyses en CPG-FID

La quantification des composés obtenus par CPG-FID a été réalisée par étalonnage externe. Différents volumes (0,1, 0,3 et 0,5 μL) d'une solution de Benzène, Toluène, Ethylbenzène, Xylènes (BTEX) à 2000 $\mu\text{g.g}^{-1}$ (Supelco) ont été introduits dans un tube Tenax et analysés suivant les paramètres exposés au paragraphe 2.3.2.2. Les masses correspondantes ont été calculées, elles varient de 0,2 à 1 μg . Nous avons effectué cette quantification au moyen d'un tube Tenax pour des raisons pratiques de mises en œuvre.

Nous avons choisi de donner les concentrations des composés identifiés en équivalent benzène car il s'agit d'un composé retrouvé de façon systématique dans les fumées des végétaux, de plus ce composé est le squelette de base de nombreuses molécules présentes dans les fumées.

Pour assurer une bonne répétabilité des mesures, celles-ci ont été réalisées trois fois. La courbe d'étalonnage correspondant est donnée en figure 2-6. A partir de l'équation de cette courbe, nous pouvons quantifier les composés identifiés dans les fumées des végétaux étudiés.

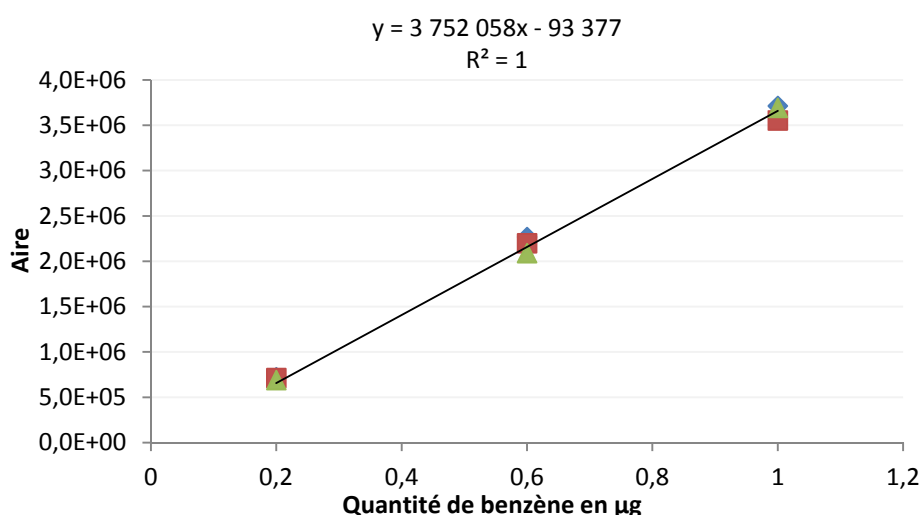


Figure 2 - 6: Courbe d'étalonnage du benzène

2.3.4.2. Quantification pour l’Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF)

La quantification des composés identifiés lors d’une analyse par infrarouge à transformée de Fourier est basée sur la loi de Beer-Lambert. L’absorbance du rayonnement infrarouge A_λ est obtenue par la mesure des intensités infrarouge I à la longueur d’onde λ dans l’échantillon à analyser et I_0 qui est l’intensité du rayonnement incident à la longueur d’onde incidente λ dans le spectre du bruit de fond appelé background.

L’équation de la loi de Beer-Lambert, permet d’obtenir la concentration du composé grâce à la mesure expérimentale de l’absorbance à une longueur d’onde λ .

$$A_\lambda = -\log\left(\frac{I}{I_0}\right) = \varepsilon_\lambda \times l \times C \quad (2.26)$$

Où, ε_λ : coefficient d’extinction molaire du composé à la longueur d’onde λ ; l : longueur du chemin optique dans l’échantillon à analyser (2 m) ; C : concentration du composé.

Le spectromètre infrarouge à Transformée de Fourier a été optimisé et calibré par le fournisseur de l’appareil pour la quantification simultanée des émissions gazeuses suivantes : les oxydes de carbone (CO et CO₂) et d’azote (NO et NO₂), l’ammoniac (NH₃), le méthane (CH₄), l’éthane (C₂H₆), l’éthylène (C₂H₄), l’acétylène (C₂H₂), le propane (C₃H₈), le propène (C₃H₆), le dioxyde de soufre (SO₂) et la vapeur d’eau (H₂O).

A partir des données brutes obtenues en ppm, nous avons calculé les quantités des composés identifiés par cette voie d’analyse lors des expériences de combustion. Par exemple pour le NO, on a :

$$\dot{m}_{NO} = \dot{m}_e Y_{NO}^{FTIR} = \dot{m}_e X_{NO}^{FTIR} \frac{M_{NO}}{M} \quad (2.27)$$

Où $\dot{m}_e$ est le débit massique en kg.s⁻¹ et M est la masse molaire du mélange identifié dans par IRTF.

$$M = X_{H_2O}^{FTIR} M_{H_2O} + X_{CO}^{FTIR} M_{CO} + X_{CO_2}^{FTIR} M_{CO_2} + X_{NO}^{FTIR} M_{NO} + X_{N_2} M_{N_2} + X_{O_2}^{FTIR} M_{O_2} + \dots \quad (2.28)$$

La masse totale de NO émise lors d'une expérience de combustion est alors donnée par :

$$m_{NO} = \int_0^T \dot{m}_{NO} dt \quad (2.29)$$

Cependant, l'oxygène et le diazote ne peuvent pas être identifiés par infrarouge à transformée de Fourier. L'oxygène est obtenu par l'analyseur paramagnétique (noté para) du calorimètre. Une correction est introduite pour tenir compte du fait que l'analyseur paramagnétique détermine la fraction molaire de l'oxygène pour l'air sec.

Ainsi, l'oxygène est calculé selon l'équation :

$$X_{O_2}^{FTIR} = X_{O_2}^{para} \times (1 - X_{H_2O}^{FTIR}) \quad (2.30)$$

La fraction molaire de diazote est calculée selon l'équation suivante :

$$X_{N_2}^{FTIR} = 1 - (X_{O_2}^{FTIR} + X_{H_2O}^{FTIR} + X_{CO}^{FTIR} + X_{CO_2}^{FTIR} + X_{NO}^{FTIR}) \quad (2.31)$$

2.4. Facteurs d'émission et bilan massique de carbone

Le risque incendie est caractérisé par la production d'énergie calorifique qui est le danger principal mais aussi par les produits émis lors des réactions chimiques entre les combustibles et l'oxygène de l'air. Ces produits (particules, gaz) sont définis comme un risque non thermique. Il est important d'évaluer les risques causés par ces produits de combustion en raison de la visibilité réduite et des dommages qu'ils entraînent (Tewarson, 2002).

A partir des résultats obtenus par la chromatographie en phase gazeuse avec spectrométrie de masse, par l'analyseur infrarouge non dispersif (IRND) du calorimètre, et par l'IRTF, nous pouvons calculer les facteurs d'émission des composés identifiés lors des combustions des végétaux étudiés. Les facteurs d'émission sont définis par l'agence de protection environnementale Américaine l'US-EPA (US-EPA, 1999) comme des valeurs représentatives qui concernent la quantité de polluants (de produits issus de la combustion dans notre cas)

rejetés dans l'atmosphère. Leurs calculs facilitent l'estimation des émissions des différents produits émis lors de situations réelles d'incendie.

Ces facteurs d'émissions sont le rapport entre la masse de produit identifiée lors de la combustion et la masse exacte de végétal brûlé. Ils sont exprimé en gramme par kilogramme (g.kg^{-1}) (Alves et coll., 2010 ; Langman et coll., 2009 ; Urbanski, 2014).

Pour un composé x, émis avec une masse m_x , on a :

$$FE_x = \frac{m_x}{m_{\text{végétal}}} \quad (2.32)$$

A partir du calcul des facteurs d'émission des composés identifiés lors de la combustion de végétaux, un bilan massique de carbone a été déterminé. Celui-ci permet de vérifier la cohérence des résultats concernant la quantité de gaz émis. En effet, lors de la quantification des composés identifiés, le taux de carbone analysé ne peut pas dépasser celui retrouvé dans la plante grâce à l'analyse élémentaire. Ainsi, le calcul du carbone retrouvé dans chaque composé analysé sera donné en milligrammes de carbone (g.kg^{-1}) par kilogramme de végétal selon l'équation :

$$BC_x = FE_x \times \frac{M_C \times n_C}{M_x} \quad (2.33)$$

Où M_C et M_x représentent respectivement la masse molaire du carbone et du composé x et n_C est le nombre d'atomes de carbones présents dans la molécule du composé x.

2.5. Adaptations expérimentales à la problématique du changement d'échelle

Afin d'expliquer au mieux le phénomène de combustion des végétaux, il est important que les expériences menées en laboratoire se rapprochent des conditions du terrain. A travers cette étude, nous cherchons à déterminer l'échelle la plus appropriée afin que les expériences traduisent les conditions réelles d'incendie tout en étant facilement réalisables. Il s'agit donc de déterminer quel protocole expérimental et plus particulièrement quelle échelle de combustion nous permettra de caractériser au mieux la combustion des végétaux en terme de dynamique de combustion mais également en terme de production des fumées.

Trois échelles expérimentales ont été étudiées au cours de cette thèse :

- L'échelle du cône calorimètre pour laquelle un support de type panier adapté (cf. figure 2-7) aux combustibles végétaux a été réalisé.
- L'échelle du grand calorimètre appelé par la suite Large Scale Heat Release (LSHR). Un support de type panier a également été réalisé de diamètre trois fois plus grand que celui utilisé avec le cône calorimètre pour étudier la combustion de masses plus importantes donnant des flammes de plus grandes tailles (cf. figure 2-7).
- La troisième échelle est associée à la dynamique de la propagation permettant la combustion d'une litière (figure 2-8). En effet, pour les deux échelles précédentes la combustion donne lieu à des flammes cylindriques quasi statiques. Le but dans ce troisième cas est d'étudier l'effet de la propagation sur la dynamique de la combustion et sur la production des fumées.

Ces dispositifs expérimentaux et les protocoles associés seront détaillés dans les autres chapitres de la thèse. Ils sont donc présentés ici de manière sommaire.

Afin d'effectuer des comparaisons entre les échelles, les protocoles expérimentaux ont dû être adaptés. En effet, certains paramètres tels que le support de la combustion, il s'agit d'un panier contenant les aiguilles de pin, et l'allumage ont été modifiés par rapport à de précédentes études concernant la combustion des végétaux (Bartoli, 2011).

Le panier utilisé lors de précédentes études (Bartoli, 2011) pour les combustions au cône calorimètre s'est avéré limitant pour notre étude à cause de sa masse thermique (cf. annexe 2). De ce fait, un nouveau panier grillagé a été fabriqué. Ce panier dispose d'une surface de 126 cm². Il respecte les dimensions de paniers utilisés lors d'études précédentes et possède un diamètre de 12,6 cm correspondant à celui de la résistance chauffante du cône.

En ce qui concerne le LSHR, nous avons utilisé un panier de forme cylindrique pour obtenir une forme de flamme semblable à celle du cône. Des tests de différentes tailles de panier ont été effectués pour à la fois observer un changement notable de taille des flammes et de durée de combustion tout en évitant un phénomène de propagation dans le panier. Ainsi un panier de diamètre 35 cm nous a permis de réaliser une combustion de l'échantillon dans son ensemble en limitant d'éventuelles propagations tout en modifiant notablement la taille des flammes (1m dans le LSHR pour 30 cm dans le cône calorimètre).

La masse de combustible brûlée aux différentes échelles a également été adaptée afin de conserver une même charge de 1,2 kg.m⁻². Les végétaux étudiés ont été préalablement séchés durant 24h à 60°C dans une étuve avant la réalisation des expériences.

Le même type d'allumage a été réalisé pour les trois échelles. En effet, si le cône calorimètre dispose d'une résistance chauffante réglable, ce n'est pas le cas du LSHR. De ce fait nous avons choisi d'allumer le combustible au moyen d'une mèche imbibée d'éthanol.

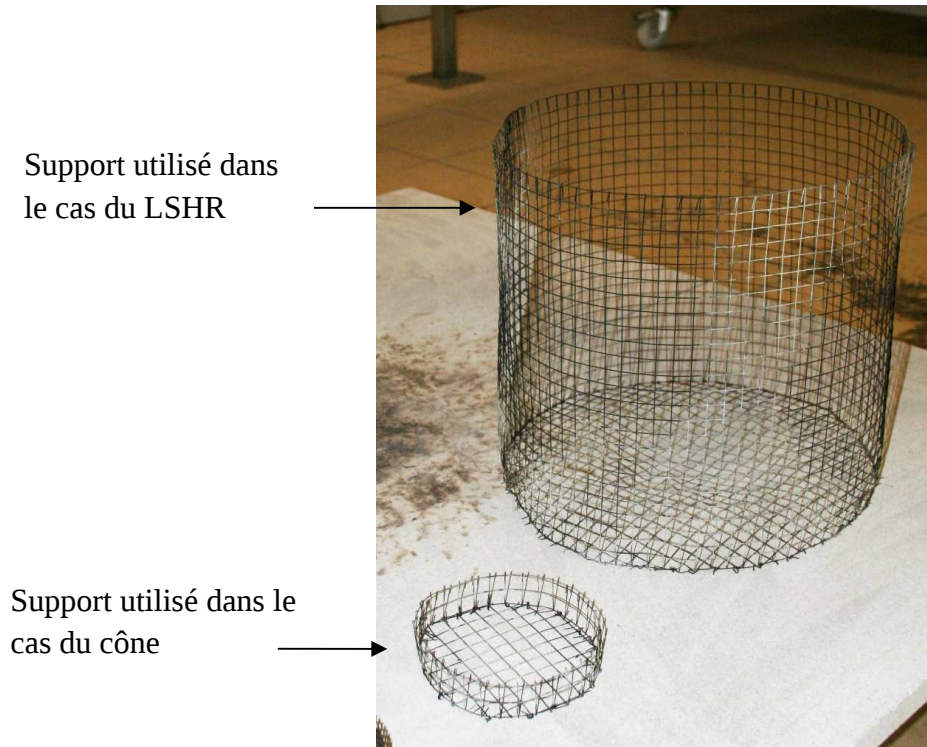


Figure 2 - 7: Paniers utilisés lors des combustions au cône calorimètre et au LSHR



Figure 2 - 8: Photographie d'une litière de *Pinus pinaster* pour une charge de $1,2\text{kg.m}^{-2}$ pour une expérience de propagation

Chapitre 3 : Dynamique de combustion et analyse des fumées à l'échelle du cône calorimètre

Les études sur le comportement au feu des litières d'aiguilles de pin sont nombreuses pour plusieurs raisons (Schemel et coll., 2008 ; Bartoli, 2011, Tihay et coll., 2014). D'une part, les futaies de pin (tels *P. pinaster* et *P. laricio*) représentent un enjeu patrimonial fort et un enjeu économique important. D'autre part, les incendies dans les futaies de pin sont dévastateurs en raison de la forte combustibilité de ces espèces végétales. Une partie du comportement au feu des futaies de pin réside dans la présence de litières d'aiguilles. Ces dernières entretiennent la dynamique de combustion du complexe végétal en assurant la propagation d'un feu de surface qui peut passer ensuite aux étages supérieurs des strates arborées. La présente étude n'a pas la prétention d'expliquer la combustibilité d'une futaie dans son ensemble. Notre travail se situe à l'échelle de la litière avec l'objectif d'analyser le comportement au feu des aiguilles de deux espèces de pin, disposées sous forme de litière, en utilisant deux dispositifs le cône calorimètre et le LSHR. Dans un premier temps, nous avons mené notre étude à l'échelle du cône calorimètre.

Ainsi, ce chapitre, présente la dynamique de combustion des litières de ces deux espèces de pin et l'analyse des fumées résultantes de celle-ci.

3.1. Présentation du cône calorimètre et mise au point des conditions expérimentales

Le cône calorimètre

Les expériences de combustion, ont été réalisées à l'aide d'un cône calorimètre de la société FTT® (ISO 5660).

Il s'agit d'un équipement très répandu pour étudier la combustion des matériaux en sécurité incendie. Cet appareil répond à la norme ISO 5560. Il permet de mesurer le temps d'inflammation, la perte de masse, la production de fumées, de monoxyde et de dioxyde de carbone ainsi que la consommation d'oxygène lors d'une expérience de combustion. Ces dernières mesures sont ensuite utilisées pour déterminer la puissance calorifique et l'enthalpie effective de combustion du matériau considéré (cf. chapitre 2).

Le dispositif expérimental se compose d'un cône rayonnant pouvant délivrer une densité de flux radiatif allant jusqu'à 100 kW.m^{-2} surmontant une cellule de pesée sur laquelle repose l'échantillon (figure 3-1). Une source d'ignition est fournie à l'échantillon sous la forme d'une étincelle. Une hotte permet d'aspirer l'ensemble des gaz de combustion dans un conduit d'évacuation au niveau duquel la température et la pression des gaz sont mesurées au moyen d'un thermocouple et d'un diaphragme. Ces mesures permettent d'obtenir le débit massique des gaz d'extraction. Une partie des gaz, prélevée dans le conduit d'extraction, est passée par un filtre à suies et un piège à froid puis asséchée à l'aide d'un dessicant (carbonate de calcium CaCO_3) avant d'être acheminée vers les analyseurs. La composition en oxygène est déterminée au moyen d'un analyseur paramagnétique. Les teneurs en monoxyde et dioxyde de carbone sont mesurées par technologie infrarouge (IRND). L'ensemble de cette analyse permet de mesurer l'énergie dégagée à l'aide de la mesure de la consommation en oxygène.

Un laser à hélium-néon de 0,5 mW, émettant dans le rouge à la longueur d'onde de 632,8 nm avec photodétecteurs principaux et de référence (de compensation) permet de mesurer l'opacité due à la fumée, d'en déduire le coefficient d'extinction et ainsi d'évaluer la production des fumées et la teneur en suies.

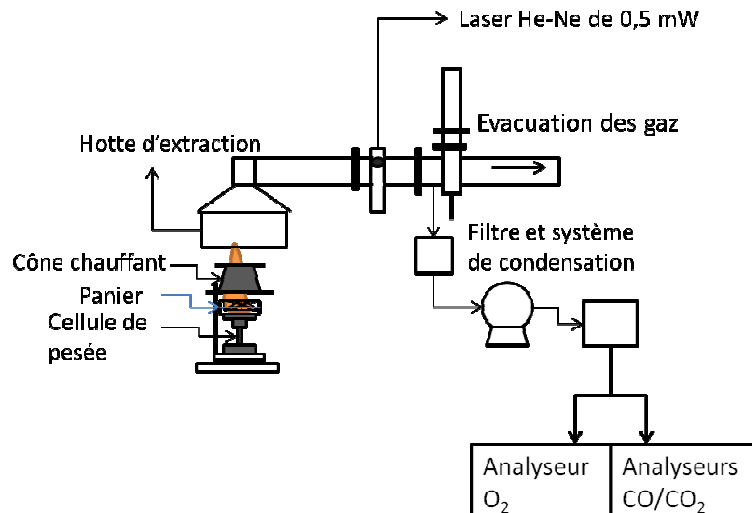


Figure 3 - 1 : Schéma de principe du cône calorimètre

Mise au point des conditions expérimentales

Cet appareil n'étant pas initialement prévu pour l'étude de combustibles forestiers, la norme a été adaptée lors de travaux précédents (Bartoli, 2011). Cette adaptation consiste en l'utilisation de panier circulaire de 12,6 cm de diamètre et de 3,1 cm de hauteur. Par rapport à la précédente étude, nous avons utilisé un panier grillagé dont l'ouverture est de 99,75% permettant ainsi un écoulement d'air quasi-naturel dans le combustible (figure 3-2). En effet, lors d'une approche préliminaire, nous avons démontré l'influence importante du panier faiblement aéré sur la dynamique de combustion des aiguilles (annexe 2). Comme nous l'avons précisé au chapitre 2, pour notre étude, le cône chauffant n'a pas été utilisé, une mèche en papier fin (0,01 g) imbibée d'éthanol (200 μ L) a été placée au centre du végétal et allumée pour enflammer le combustible (afin d'être cohérent avec les expériences conduites sous le LSHR).



Figure 3 - 2: Photographie du panier de combustion (pin maritime)

Les conditions d'allumage nous ont conduits à prendre en compte dans nos calculs l'énergie dégagée par le papier et l'éthanol. Ainsi, l'énergie totale ΔE libérée lors de la combustion des végétaux a été déterminée pour chacune des expériences de la façon suivante :

$$\Delta E = \int_0^{t_f} \dot{q} dt - (m_{\text{papier}} \Delta H_{\text{papier}}) - (m_{\text{ethanol}} \Delta H_{\text{ethanol}}) \quad (3.1)$$

Où, ΔH_{papier} est le PCI du papier (14000 kJ.kg⁻¹), m_{papier} est la masse de papier utilisé, $\Delta H_{\text{ethanol}}$ est le PCI de l'éthanol (21300 kJ.kg⁻¹) et m_{ethanol} la masse d'éthanol utilisée.

Afin d'assurer une bonne reproductibilité, les combustibles ont été placés de façon identique pour chacune des expériences réalisées. La combustion du pin maritime a été effectuée avec 15 g d'aiguilles alors que celle du pin laricio a été effectuée avec 13 g d'aiguilles afin de conserver la même perméabilité dans les deux litières (Bartoli, 2011).

Pour augmenter la précision de nos résultats, la constante E_{O_2} a été déterminée pour chaque combustible étudié. En effet, la valeur de 13,1 MJ.kg⁻¹ a été proposée par Huggett (1980) lorsque les caractéristiques d'un combustible ne sont pas connues. Cependant, cette constante peut être calculée si on connaît les propriétés du combustible étudié. Ce calcul se fait à partir de l'équation stœchiométrique (2.1) et est basé sur la méthode énoncée par Biteau et coll., (2009). A partir de cette équation, la relation entre la vitesse de combustion du combustible et celle de consommation de l'oxygène est donnée par l'équation suivante :

$$\dot{m}_c = \frac{\Delta \dot{m}_{O_2} M_c}{n_{O_2} M_{O_2}} \quad (3.2)$$

Où, M_{O_2} est la masse molaire de O₂, M_c la masse molaire du combustible, $\Delta \dot{m}_{O_2} = (\dot{m}_{O_2}^0 - \dot{m}_{O_2})$ représente la différence entre le débit massique d'oxygène avant la combustion $\dot{m}_{O_2}^0$ et celui au cours de l'expérience $\dot{m}_{O_2}$ et n_{O_2} est le coefficient stœchiométrique de l'oxygène, donné par :

$$n_{O_2} = x + \frac{y}{4} - \frac{z}{2} \quad (3.3)$$

D'après l'équation de la puissance calorifique, on a dans le cas d'une combustion complète

$$\dot{q} = E_{O_2}(\dot{m}_{O_2}^0 - \dot{m}_{O_2}) = \dot{m}_c \Delta H_c \quad (3.4)$$

On en déduit alors la valeur de E_{O_2} par :

$$E_{O_2} = \frac{\Delta H_c M_c}{n_{O_2} M_{O_2}} \quad (3.5)$$

La constante calorimétrique E_{O_2} peut être déterminée à partir de l'analyse élémentaire et du pouvoir calorifique inférieur du combustible sec ΔH_c .

Les coefficients stœchiométriques du dioxygène, pour une combustion complète, et les constantes E_{O_2} ont été calculés pour les deux végétaux étudiés, les résultats sont regroupés dans le tableau III-I.

Tableau III - I: Coefficient stœchiométrique du dioxygène et énergie dégagée par unité de masse de dioxygène consommée (MJ.kg⁻¹)

Combustibles	Coefficient stœchiométrique de dioxygène O ₂	Energie dégagée par unité de masse d'oxygène consommée (MJ.kg ⁻¹)
<i>Pinus pinaster</i>	4,75	13,34
<i>Pinus laricio</i>	4,62	13,76

L'utilisation de la constante de Huggett dans le calcul de la puissance calorifique engendre une incertitude non négligeable qui sous-estime cette mesure. Cette différence entre les deux mesures est présentée sur la figure 3-3 au travers d'expériences réalisées avec le pin maritime.

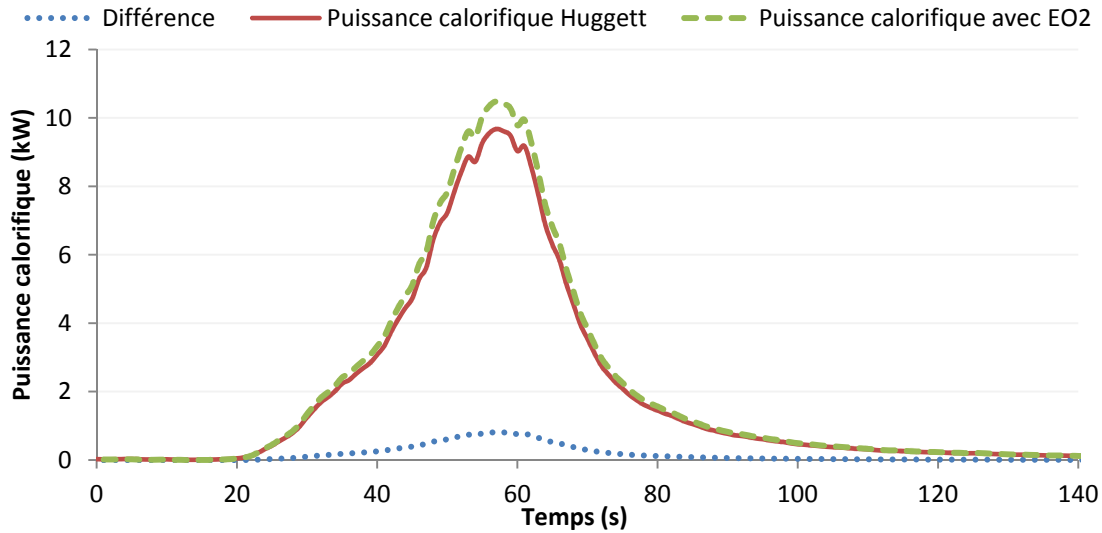


Figure 3 - 3: Différence de puissance calorifique en fonction de la constante E_{O_2}

Nous observons une différence entre la mesure de la puissance calorifique calculée à partir de l'énergie dégagée par unité de masse de dioxygène consommée propre à chaque combustible étudié et celle obtenue à partir de la constante de Huggett. Cette différence est en moyenne de 4% pour *P. pinaster* et 6% en moyenne pour *P. laricio*. De ce fait l'étude de la puissance calorifique ne sera pas estimée de façon exacte si on utilise la constante de Huggett. Elle sera dans les deux cas sous-estimée, de manière plus importante pour le pin laricio.

3.2. Etude des aiguilles de *Pinus pinaster*

Dans cette partie, nous exposons les résultats obtenus lors de la combustion des aiguilles de *P. pinaster* (PP) à l'échelle du cône calorimètre. Ces résultats permettent dans un premier temps d'étudier la dynamique de combustion puis de fournir une analyse des fumées générées.

3.2.1. Etude de la dynamique de combustion

Nous avons réalisé plusieurs expériences en utilisant 15 g d'aiguilles de pin maritime réparties de manière identique dans le support de combustion (panier). Nous avons retenu pour conduire l'analyse les cinq expériences qui présentaient la meilleure reproductibilité (cf.

figure 3-4). Toutefois, dans la suite de ce chapitre nous présentons généralement les résultats d'une de ces cinq expériences pour des raisons de lisibilité.

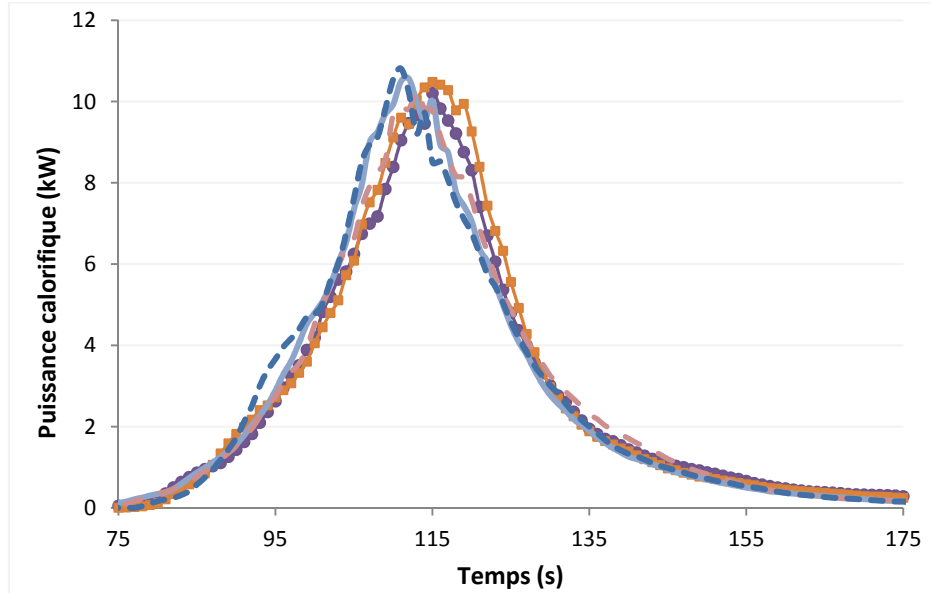


Figure 3 - 4: Reproductibilité des expériences. Exemple de la puissance calorifique

Plusieurs paramètres permettent de discuter la dynamique de combustion d'un combustible. Les deux principaux sont la perte de masse au cours de la combustion et la puissance calorifique qui en résulte. Le calcul de l'énergie dégagée au cours de l'expérience permet de déterminer l'efficacité de la combustion.

Afin de calculer cette efficacité de combustion et l'enthalpie effective de combustion, nous avons déterminé l'énergie maximale qui pourrait être dégagée lors de chaque expérience. Pour cela, nous avons utilisé la masse exacte de combustible qui a été brûlée m_b , c'est-à-dire la masse de départ (qui s'élève en moyenne à 15,18 g) à laquelle nous avons soustrait la masse de combustibles imbrûlés. Ces imbrûlés sont les aiguilles tombant du panier pendant l'expérience. La masse d'imbrûlés s'élève en moyenne à 0,3 g. Le pourcentage de réhydratation du végétal se produisant durant la préparation de l'expérience est également pris en compte. Ce pourcentage de réhydratation est de 1,5% pour le pin maritime. L'énergie maximale ΔE_{max} qui pourrait être dégagée lors de chaque expérience est donnée par :

$$\Delta E_{max} = m_b \Delta H_c \quad (3.6)$$

La masse de végétal réellement brûlée s'élève en moyenne à 14,65 g et le PCI sec de *Pinus pinaster* est de 20302 kJ.kg⁻¹ (cf. chapitre 2). Ces grandeurs regroupées dans le tableau

III-II nous permettent de calculer l'efficacité de la combustion χ pour chaque expérience, définie par :

$$\chi = \frac{\Delta E}{\Delta E_{max}} \times 100 \quad (3.7)$$

Où ΔE représente l'énergie mesurée lors de la combustion des échantillons.

Tableau III - II: Grandeurs énergétiques pour la combustion des échantillons (masse brûlée, énergie mesurée, énergie maximale théorique, efficacité de combustion et pic de puissance maximale).

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
m_b (g)	14,62	14,77	14,98	14,58	14,28	14,65 ± 0,26
ΔE (kJ)	288,19	288,86	293,28	287,71	282,49	288,11 ± 3,84
ΔE_{max} (kJ)	296,86	299,96	304,07	296,04	289,98	297,39 ± 5,21
χ (%)	97,08	96,30	96,45	97,19	97,42	96,89 ± 0,49
$\dot{q}_{max}$ (kW)	10,396	8,492	10,484	10,564	10,813	10,150 ± 0,940

Afin d'expliquer la combustion des 15 g de pin maritime à l'échelle du cône calorimètre, nous nous appuyons sur les figures 3-5a-d et 3-6a-f. La figure 3-5a représente la perte de masse. On remarque que la masse décroît lentement au moment de l'allumage du combustible. Cette phase d'allumage dure environ 10 secondes (figure 3-6a). Au cours de cette phase, la flamme augmente progressivement au centre du panier (figure 3-6b). Puis pendant environ 50 secondes, la masse décroît apparemment de façon linéaire jusqu'à atteindre 0,8 g. La flamme prend alors une forme quasi constante (figure 3-6d) puis décroît rapidement avant extinction (figure 3-6e). Le végétal continue toutefois à être consommé (figure 3-6f). Il s'agit de la phase de combustion du résidu charbonneux (phase de smoldering). Cette phase durera jusqu'à ce que la masse atteigne environ 0,2 g représentant les cendres à la fin de l'expérience.

La combustion (lors des expériences avec *P. pinaster*) peut être considérée comme quasi-complète, puisque l'efficacité de combustion est en moyenne de 96,89% (Tab. III-II). L'apport du dioxygène au sein du panier est important, ce qui favorise la combustion des aiguilles de pin. A la fin de l'expérience, il ne reste plus que les cendres dans le panier. Elles représentent en moyenne 1,4 % de la masse initiale.

Lors de la combustion, la durée de flamme est d'environ 50 secondes, une légère propagation est observée au sein du panier, elle est due au moyen utilisé pour enflammer le combustible. En effet, ce phénomène se produit du centre du panier où est placé le papier imbibé d'éthanol vers l'extérieur du panier.

Lors de l'inflammation du combustible (figure 3-6a), nous observons une augmentation de la puissance calorifique (figure 3-5b). Le maximum de la puissance calorifique est obtenu environ 35 secondes après l'inflammation et atteint en moyenne 10,15 kW. Puis après une courte phase stationnaire, la puissance diminue progressivement jusqu'à l'extinction de la flamme. A cet instant (90 s après l'inflammation) la puissance calorifique n'arrive pas encore à 0 kW puisque les résidus charbonneux continuent à se consumer progressivement. Cette phase de combustion (phase de smoldering) dure alors environ 60 secondes. Ce phénomène est visible sur la figure 3-6f, où nous observons la combustion des résidus charbonneux après l'extinction de la flamme.

La production d'énergie au cours de la combustion est liée à la production du dioxyde et du monoxyde de carbone. La figure 3-5c montre l'évolution du CO/CO_2 . Au moment de l'ignition, la production de CO_2 augmente de façon brutale durant environ 30 secondes. Une fois le pic de CO_2 atteint, la production diminue progressivement. Cette courbe suit celle de la puissance calorifique. Ainsi, la courbe de la puissance calorifique et celle de la production de CO_2 sont superposables. La production de CO , quant à elle, augmente plus progressivement. On note que c'est au moment où le CO_2 commence à diminuer que la courbe de CO augmente, pour atteindre son maximum au moment de l'extinction de la flamme c'est-à-dire au bout de 90 s. Après l'extinction de la flamme, on observe une légère augmentation de production de CO . Cette production est due aux résidus charbonneux. Ce pic est faible car la propagation se fait du centre vers l'extérieur ce qui signifie qu'une partie des résidus charbonneux est consommée en même temps que le gaz durant la phase de flamme. Enfin, la production de CO diminue progressivement pendant environ 100 s.

Le total heat release (THR) qui représente l'intégrale de la puissance calorifique au cours du temps (cf. chapitre 2) est fournie sur la figure 3-5d avec la perte de masse au cours de l'expérience. Nous constatons que le THR augmente lorsque la masse de combustible diminue. L'augmentation se poursuit légèrement lors de la combustion du résidu charbonneux puis le THR atteint un palier correspondant à la fin de l'expérience (fin de la production d'énergie).

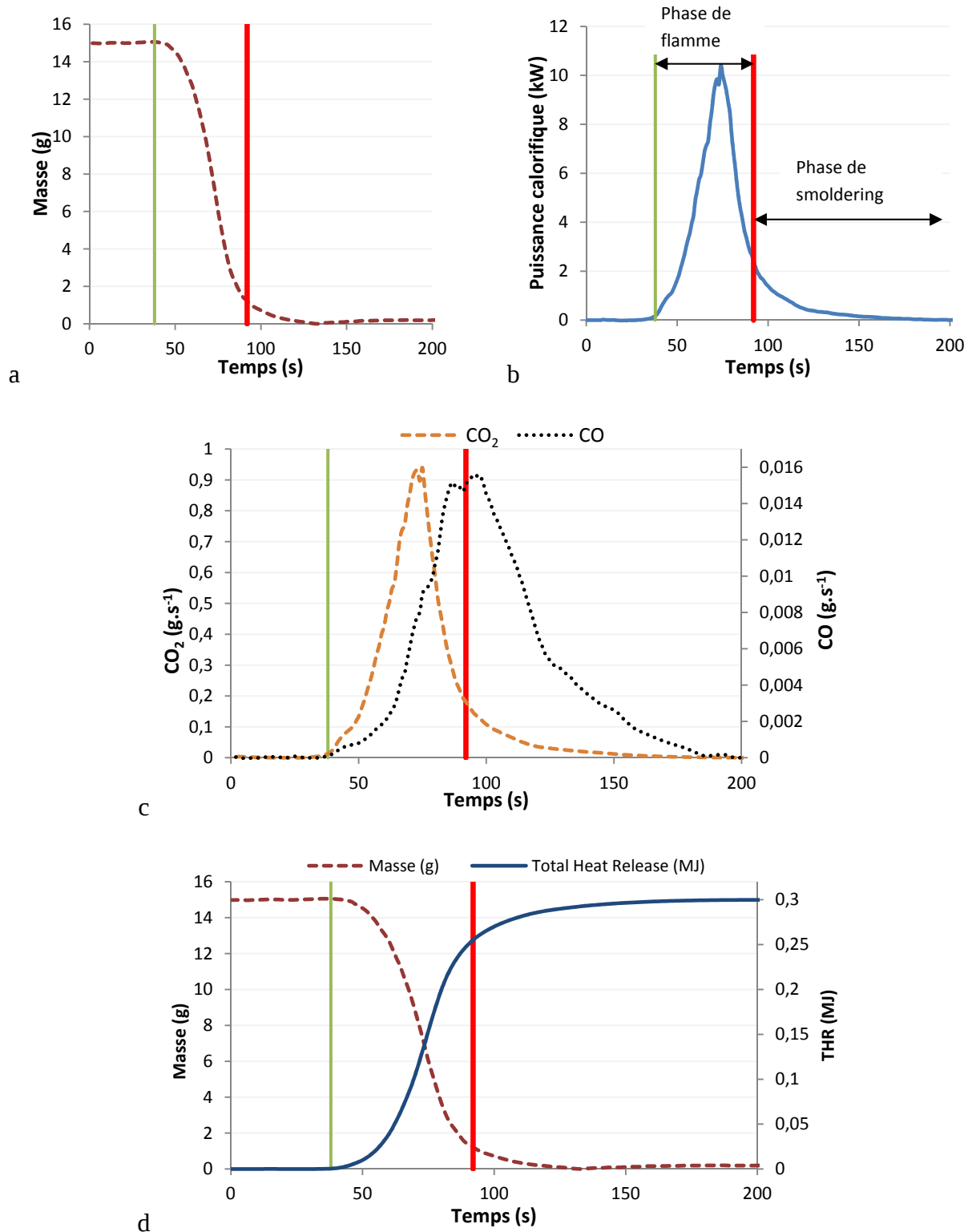


Figure 3 - 5: a. Evolution de la masse de PP au cours du temps, b. Puissance calorifique au cours du temps, c. Courbes de production de CO et CO₂ au cours du temps, d. Courbes d'évolution de la masse et du THR au cours du temps. Les temps d'ignition et de fin de flamme sont indiqués par des traits verticaux (vert et rouge).

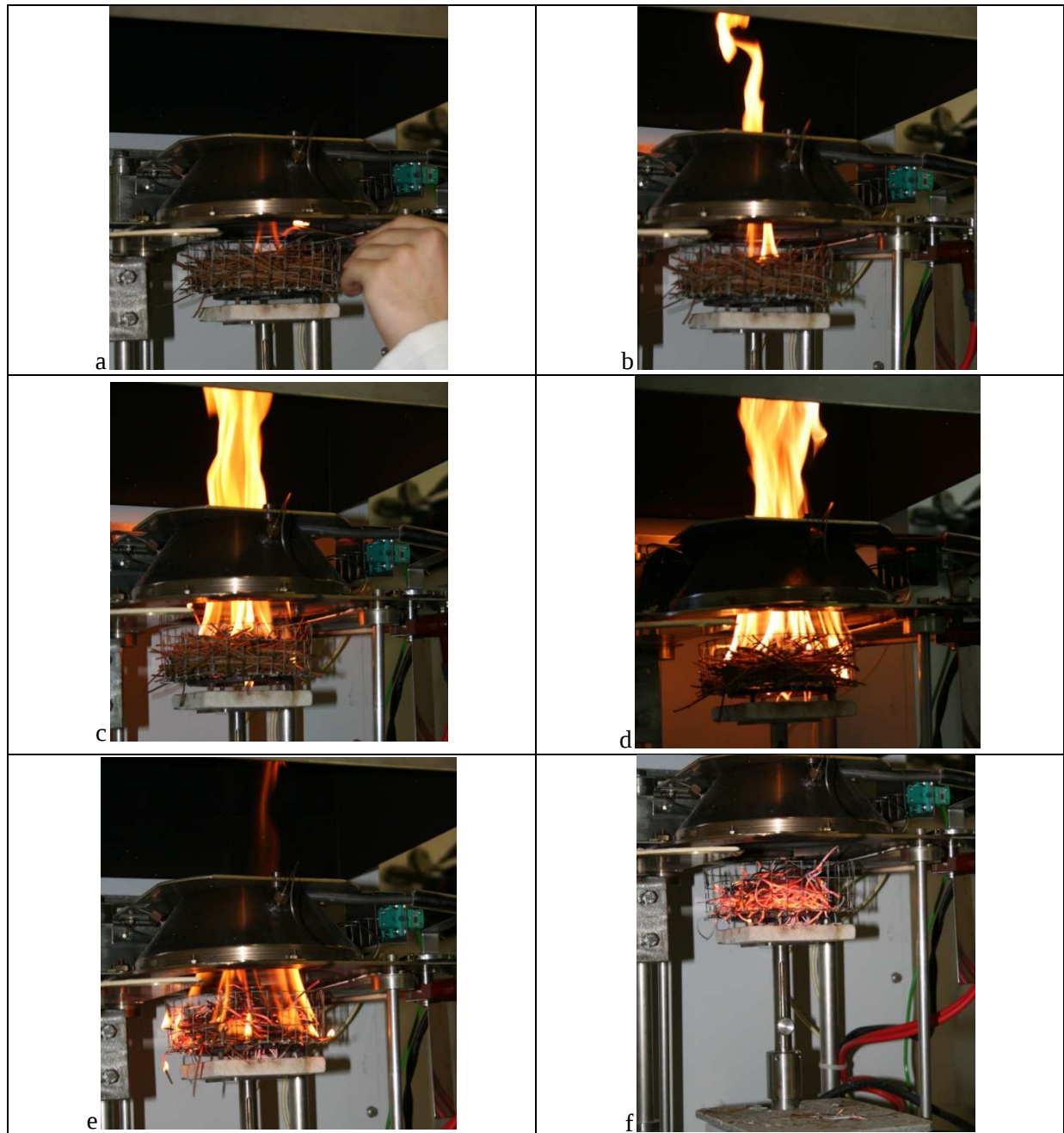


Figure 3 - 6: a. Allumage du combustible, b. Combustion de la mèche imbibée d'éthanol et des aiguilles au centre du panier, c. Début de propagation dans le panier, d. Combustion des aiguilles sur toute la surface du panier, e. Diminution de la puissance de la flamme f. Combustion des résidus carbonneux

3.2.2. Analyse des fumées

3.2.2.1. Etude des fumées à partir des analyseurs du cône calorimètre

Le cône calorimètre permet de suivre l'évolution de l'opacité des fumées au cours de l'expérience. Le paramètre prédominant dans cette étude est le coefficient d'extinction k

défini dans le chapitre 2. Il mesure l'opacité que créent les fumées lorsqu'elles passent dans le conduit d'extraction.

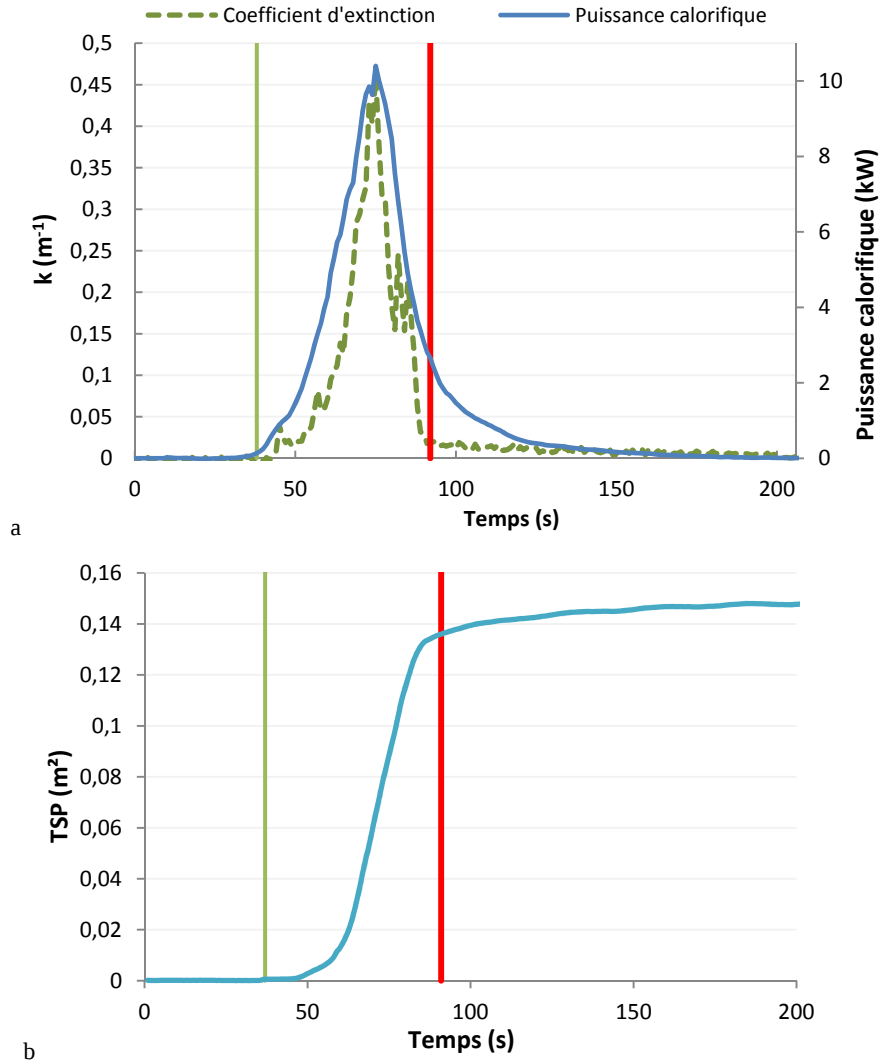


Figure 3 - 7: a-Coefficient d'extinction et puissance calorifique au cours du temps, b-Production totale des fumées au cours du temps

La figure 3-7a montre l'évolution du coefficient d'extinction au cours de l'expérience. La valeur de k augmente de façon progressive depuis l'inflammation du combustible en suivant l'augmentation de la puissance calorifique.

Le maximum d'opacité est atteint au moment où la puissance calorifique est maximale c'est-à-dire 35 secondes après l'inflammation. C'est au cours de la phase de flamme que le maximum de suies est émis. Puis, la courbe diminue progressivement jusqu'à l'extinction de la flamme. A ce stade, le coefficient d'extinction atteint 0 m⁻¹ alors que se produit la

combustion des résidus charbonneux. Ceux-ci n'émettent donc pas de suies durant leur combustion dans les conditions surventilées.

Comme nous l'avons décrit au chapitre 2, le coefficient d'extinction permet de calculer la production totale des fumées (TSP) au cours de l'expérience (Equation 2.25). Le TSP est représenté sur la figure 3-7b. On observe une augmentation de la production des fumées depuis l'inflammation jusqu'à l'extinction du combustible. Après la disparition de la flamme, la courbe se stabilise jusqu'à la fin de l'expérience.

A partir du coefficient d'extinction mesurant l'opacité des fumées nous avons estimé la masse de suies issues de la combustion de *P. pinaster* à partir de l'équation 2.24. Les valeurs obtenues sont regroupées dans le tableau III-III. La masse de suies moyenne s'élève à 0,019 g.

Tableau III - III: Total de fumées produites, masse de suies et facteurs d'émissions de suies obtenus lors des combustions avec le cône calorimètre

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
TSP (m²)	0,174	0,190	0,146	0,136	0,144	0,158 ± 0,023
m_{suies} (g)	0,021	0,023	0,018	0,017	0,017	0,019 ± 0,003
FE_{suies} (g/kg)	1,469	1,578	1,201	1,137	1,206	1,318 ± 0,193

Cette donnée nous permet de déterminer le facteur d'émission correspondant à la masse de pin brûlée lors de nos expériences. Le calcul s'effectue à partir de l'équation suivante :

$$FE_{suies} = \frac{m_{suies}}{m_b} \quad (3.8)$$

Où m_{suies} est la masse de suies estimée et m_b la masse de végétal brûlé

Le facteur moyen d'émission des suies est de 1,318 g.kg⁻¹. Ce résultat sera comparé par la suite au facteur d'émission obtenu pour la combustion de *P. laricio* puis à celui obtenu pour la combustion d'aiguilles de *P. pinaster* à l'échelle du LSHR.

Les analyseurs IRND du cône calorimètre nous ont permis de mesurer les masses de monoxyde et de dioxyde de carbone produites lors de la combustion. Par exemple, dans le cas du monoxyde de carbone, la masse de CO produite est donnée par :

$$m_{CO} = \int_{t_{ig}}^{t_f} \dot{m}_{CO}(t) dt \quad (3.9)$$

Où, $\dot{m}_{CO}$ est le taux de production de monoxyde de carbone au cours du temps en g.s^{-1} , t_{ig} représente le temps d'allumage et t_f le temps final de l'expérience.

Les facteurs d'émission de ces composés ont également été calculés selon l'équation 2.32. Les valeurs obtenues lors des 5 expériences sont regroupées dans le tableau III-IV.

Tableau III - IV: Quantités et facteurs d'émission de monoxyde et de dioxyde de carbone au cours de la combustion

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
CO (g)	0,768	0,794	0,767	0,638	0,751	$0,744 \pm 0,061$
CO₂ (g)	25,583	25,302	25,957	26,216	26,272	$25,866 \pm 1,021$
FE_{CO} (g.kg⁻¹)	52,49	53,75	51,24	43,79	53,29	$50,91 \pm 4,10$
FE_{CO₂} (g.kg⁻¹)	1749,57	1712,53	1733,10	1797,85	1839,31	$1766,47 \pm 51,48$

Le tableau III-V regroupe les facteurs d'émissions moyens de CO et CO₂ émis au cours des phases de combustion. Des quantités importantes de dioxyde de carbone sont émises lors de la combustion des aiguilles de pin maritime ($1766,5 \text{ g.kg}^{-1}$ en moyenne). Ces émissions ont principalement lieu durant la phase de flamme, où près de 90% du CO₂ sont produits, ce qui représente $1\,572,95 \text{ g.kg}^{-1}$ de CO₂. Lors de la phase de flamme, la combustion des aiguilles émet 44 % de la production totale de CO ($22,48 \text{ g.kg}^{-1}$). La production la plus importante de monoxyde de carbone a lieu après la phase de flamme où 56 % de la quantité totale est émise, ce qui représente $28,43 \text{ g.kg}^{-1}$ de CO. La production de CO est principalement due à l'oxydation des résidus charbonneux pendant la phase de smoldering. Toutefois, il convient de rappeler qu'une partie de ceux-ci sont oxydés durant la phase de flamme puisqu'il se produit un mini phénomène de propagation au sein du panier.

Tableau III - V: Facteurs d'émission de CO et CO₂ au cours des phases de combustion

	FE CO ($g.kg^{-1}$)	FE CO ₂ ($g.kg^{-1}$)
Flamme	22,48 ± 2,32	1 572,95 ± 57,65
Smoldering	28,43 ± 3,15	193,52 ± 29,47

La figure 3-8 reproduit l'évolution des facteurs d'émission au cours du temps pour le CO et le CO₂, ainsi que la dérivée de la perte de masse représentée en $mg.s^{-1}$ pour une meilleure visibilité (elle est notée MLR). Nous constatons que les émissions du CO et du CO₂ sont quasi constantes durant la phase de flamme indépendamment de la vitesse de perte de masse. Au moment de l'extinction et de la transition vers la phase de smoldering, nous constatons une augmentation des émissions de CO et CO₂. Durant la phase de smoldering, les facteurs d'émissions de CO et CO₂ semblent se stabiliser mais, dans le cas du CO, la courte durée de smoldering ne permet pas de conclure avec certitude. Ces courbes nous permettent de voir que l'oxydation des résidus charbonneux qui se produit pour partie durant la phase de flamme ne conduit pas à un facteur d'émission pour le CO à la hauteur de celui obtenu pendant la phase de smoldering. Ceci est certainement dû à la température entretenue dans la phase gazeuse par la flamme qui permet de consommer la grande majorité du CO produit par la combustion du charbon. Comme nous l'avons démontré précédemment, bien que le CO soit principalement émis pendant la phase de smoldering après l'extinction de la flamme, une partie de celui-ci est également émis pendant la phase de flamme. Il y a donc bien une oxydation des charbons pendant cette phase. En revanche, le dioxyde de carbone est émis dans sa quasi-totalité pendant la phase de flamme. En effet, l'étude de la perte de masse confirme qu'une partie du charbon est oxydée durant la phase de flamme. Il a été montré à partir d'étude thermogravimétrique (Leroy, 2007) que lors de la combustion d'aiguilles de *P. pinaster*, 24% de la masse initiale est retrouvée sous forme de charbon à l'issue de la pyrolyse (dans des conditions inertes sous azote). Dans ce cas, au moment de l'extinction de la flamme, nous devrions ainsi retrouver 3,6 g de charbon. Or, lors de nos expériences, il ne reste à cet instant en moyenne que 0,71 g de charbon disponible pour la phase de smoldering, ce qui ne représente que 4,7% de la masse initiale. Il y a donc une forte proportion (19,3%) de charbon qui brûle durant la phase de flamme.

Ainsi, l'utilisation des facteurs d'émission ne doit pas être dissociée de la phase de combustion. Autrement dit, si on peut considérer l'émission du CO₂ comme globalement de l'ordre de 1766 $g.kg^{-1}$ pour la totalité de l'expérience, il n'en va pas de même pour l'émission

du CO. Il convient également de mentionner que les aiguilles de pin font partie des particules thermiques fines prises en compte dans les modèles de propagation. De tels modèles devront donc prendre en considération la modélisation de la combustion des résidus charbonneux dans la phase de smoldering pour prédire avec précision l'émission du CO.

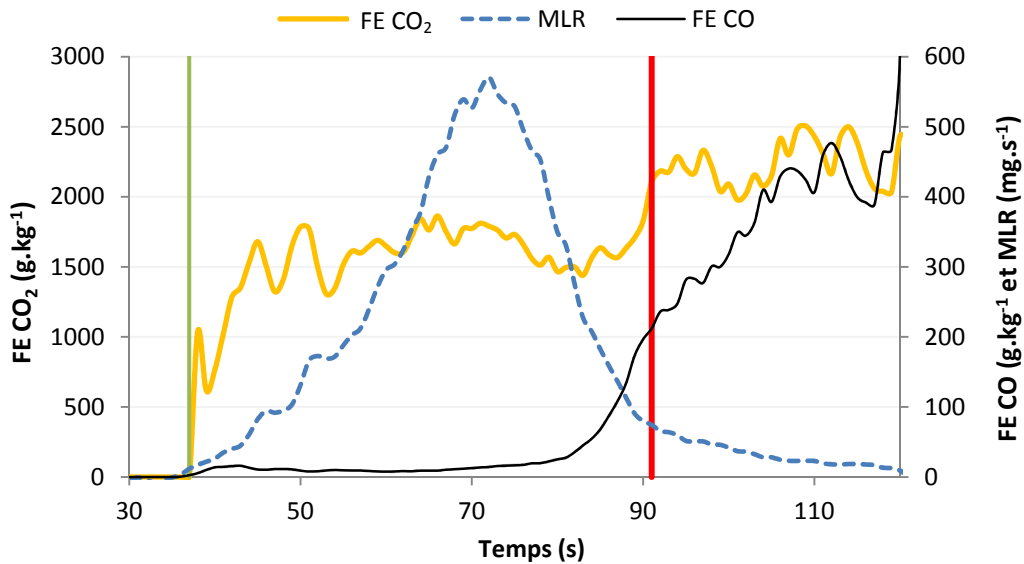


Figure 3 - 8: Evolution des facteurs d'émissions FECO et FECO_2 au cours de la combustion

3.2.2.2. Etude des fumées par couplage DTA-CPG/SM et analyse IRTF

Au cours des expériences de combustion des aiguilles de pin maritime, les fumées émises ont été prélevées dans des sacs Tedlar puis analysés par DTA-CPG/SM (mode de prélèvement indirect). Une analyse par IRTF (mode direct) a également été effectuée en continu au cours de la combustion. Ces analyses chimiques ont permis l'identification de 35 composés (Tableau III-VI), classés selon leur famille chimique (Tableau III-VII). Celles-ci sont au nombre de sept. Il s'agit principalement de composés azotés qui représentent la plus forte proportion du mélange gazeux et de composés linéaires de faible masse moléculaire c'est-à-dire de 1 à 3 atomes de carbone (hors monoxyde et dioxyde de carbone). Le détail des composés analysés dans les fumées est donné dans le tableau III-VI. Les résultats sont des facteurs d'émissions calculés en fonction de la masse de végétal brûlé en g.kg^{-1} .

Tableau III - VI: Facteurs d'émission des composés gazeux analysés par IRTF et CPG/SM

Analyse IRTF (g.kg ⁻¹)		
1	Methane	1,166 ± 0,200
2	Ethylène	0,358 ± 0,100
3	Acétylène	0,509 ± 0,100
4	Monoxyde d'azote	3,620 ± 0,400
5	Dioxyde d'azote	1,790 ± 0,300
Analyse CPG/SM (x10 ⁻³ g.kg ⁻¹)		
6	Hexène	3,55 ± 0,12
7	Hexane	4,65 ± 0,54
8	Benzène	97,73 ± 2,86
9	Heptène	4,22 ± 0,15
10	2,5-diméthylfurane	2,49 ± 0,24
11	Toluène	94,2 ± 5,00
12	1,7-octadiène	0,79 ± 0,05
13	Octène	1,55 ± 0,32
14	Ethylbenzène	15,25 ± 2,79
15	Xylène	4,00 ± 0,52
16	Phényléthyne	11,24 ± 1,53
17	Styrène	10,59 ± 3,6
18	Xylène	4,61 ± 0,55
19	Heptanal	0,41 ± 0,03
20	Nonène	1,14 ± 0,07
21	Nonane	0,31 ± 0,01
22	Benzaldéhyde	9,18 ± 0,95
23	Cumène	2,00 ± 0,20
24	α-pinène	1,38 ± 0,06
25	Benzofurane	0,56 ± 0,15
26	Décène	1,65 ± 0,13
27	Phénol	2,17 ± 0,25
28	Nonanal	1,34 ± 0,08
29	Naphtalène	4,02 ± 0,49
30	Decane	0,62 ± 0,08
31	Undécane	0,42 ± 0,01
32	Dodécane	1,27 ± 0,17
33	Tridécane	1,59 ± 0,27
34	Pentadécane	1,37 ± 0,02
35	Nonadécane	0,53 ± 0,02

Tableau III - VII: Familles chimiques identifiées par CPG/SM et IRTF

Classes chimiques de composés (g.kg ⁻¹)	
Azotés	5,410 ± 0,700
Linéaires (C ₁ -C ₃)	2,033 ± 0,347
Linéaires (C ₆ -C ₁₉)	0,024 ± 0,002
Benzène et dérivés	0,238 ± 0,017
Oxygénés	0,016 ± 0,01
HAP	0,004 ± 0,000
Terpènes	0,003 ± 0,03
Total (g.kg ⁻¹)	7,728 ± 1,106

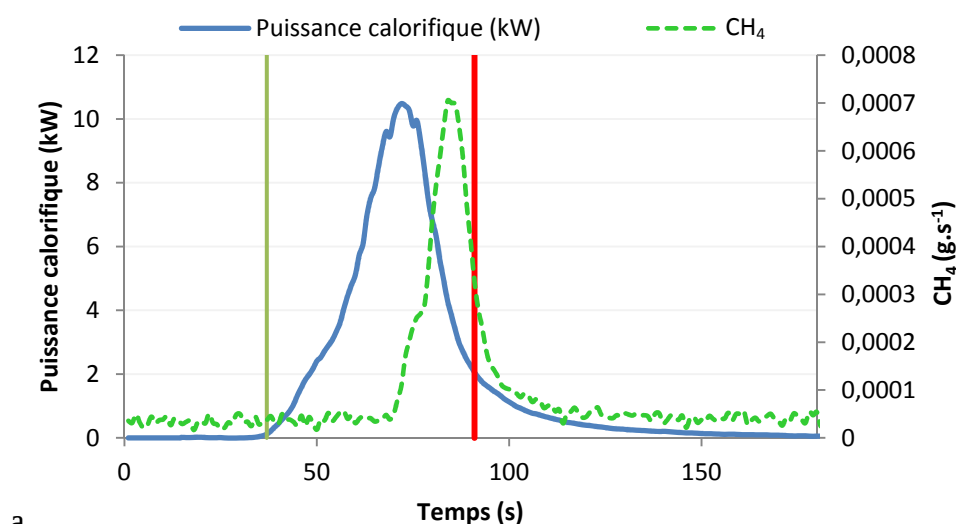
L'analyse des fumées réalisée au moyen du couplage CPG/SM permet l'identification de composés avec une sensibilité plus importante que les autres techniques d'analyses et ainsi d'identifier des composés à de faibles limites de détection. Ainsi, on note la présence de composés à noyau benzénique tels que le benzène et le toluène déterminé à des teneurs respectives de $97,73 \cdot 10^{-3}$ g.kg⁻¹ et $94,2 \cdot 10^{-3}$ g.kg⁻¹. Leurs concentrations représentent près de 70% des composés identifiés par cette voie d'analyse. Les composés linéaires ont été différenciés en deux catégories, les composés de très faibles masses moléculaires comprenant de 1 à 3 atomes de carbone (hors CO et CO₂), quantifiés à partir de l'IRTF et les composés de masse moléculaire plus élevée de 6 à 19 carbones, quantifiés par CPG/SM.

Les constituants retrouvés au moyen de l'IRTF, représentent le plus fort taux de concentration du mélange de gaz. Cette méthode permet d'analyser les composés des fumées de plus faible masse moléculaire *a contrario* de la CPG/SM où l'identification commence à partir de C₆. Nous retrouvons notamment une quantité importante de méthane ($1,166$ g.kg⁻¹). La production de ce composé est représentée figure 3-9a. Nous pouvons noter que le méthane est produit principalement durant la phase de flamme. Il augmente de façon linéaire au moment où la puissance calorifique atteint son maximum. La famille des composés linéaires dosée par CPG/SM a pour concentration totale $24 \cdot 10^{-3}$ g.kg⁻¹. Elle ne représente pas une proportion importante dans le mélange gazeux mais regroupe 14 composés. Dans cette famille, nous avons identifié l'hexane ($4,65 \cdot 10^{-3}$ g.kg⁻¹) ou encore l'hexène ($3,55 \cdot 10^{-3}$ g.kg⁻¹). Les composés oxygénés sont représentés par le benzaldéhyde ($9,18 \cdot 10^{-3}$ g.kg⁻¹) et le phénol ($2,17 \cdot 10^{-3}$ g.kg⁻¹). L'analyse chimique des gaz de combustion a permis de mettre en évidence une forte quantité de composés azotés, tels que le monoxyde d'azote NO et le dioxyde d'azote

NO₂. Parmi les NO_x dosés, il est à noter que lors de la combustion une quantité plus importante d'oxyde d'azote est analysée (3,620 g.kg⁻¹), celle du dioxyde d'azote étant plus faible (1,790 g.kg⁻¹). Nous pouvons suivre l'évolution de leurs productions sur la figure 3-9b, où nous constatons que le monoxyde d'azote est produit simultanément à la puissance calorifique. En effet, le pic de NO est atteint au moment où la puissance calorifique est maximale. La production de dioxyde d'azote atteint quant à elle son maximum environ 15 secondes après le pic de puissance calorifique.

Enfin, deux composés terpéniques ont été identifiés, il s'agit de l' α -pinène et du cumène. Ces composés sont généralement émis lors de la phase de préchauffage du combustible et sont également identifiés dans l'huile essentielle de *Pinus pinaster* (Ottavioli et coll., 2008). Un seul hydrocarbure aromatique polycyclique (HAP) est mis en évidence, il s'agit du naphthalène (4,02.10⁻³ g.kg⁻¹).

Bien que les composés identifiés et quantifiés par CPG/SM ne soient présents qu'en faibles proportions, il demeure important de les quantifier à l'échelle du laboratoire. En effet, des études récentes, ont montré que certains de ces composés peuvent être toxiques même à faible concentration et peuvent donc présenter une menace pour la santé des professionnels de la sécurité incendie et du public exposé (Barboni et Chiaramonti, 2010).



a

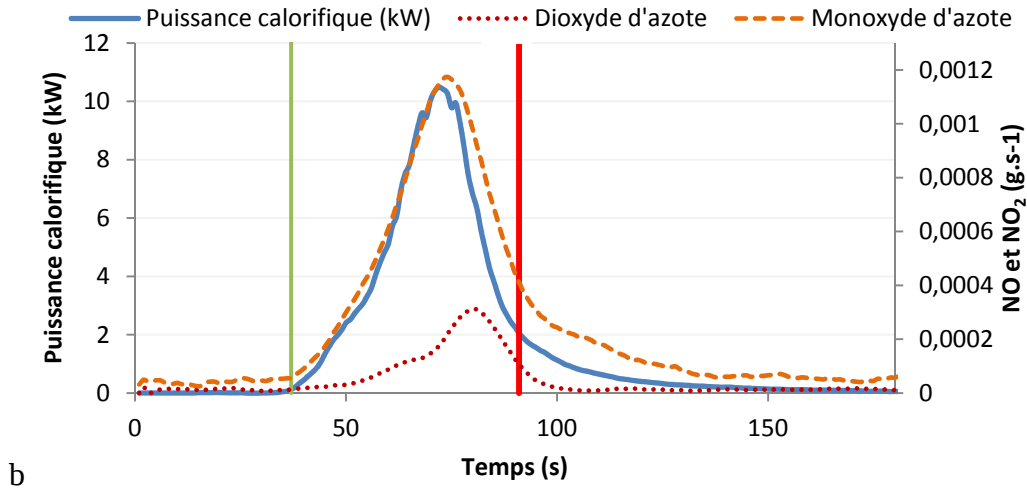


Figure 3 - 9: a- Production de méthane au cours du temps ; b- Productions de monoxyde et de dioxyde d'azote au cours des expériences de combustion de *Pinus pinaster*.

3.2.2.3. Bilan massique de carbone

L'analyse des composés émis lors de la combustion d'aiguilles de *P. pinaster* au moyen des analyseurs IRND, CPG/SM et IRTF, a mis en évidence de nombreux composés carbonés. A partir de la quantification des différents composés et des suies présentes lors de cette combustion, un bilan massique de carbone a été effectué. Ce bilan massique de carbone a été comparé au carbone obtenu pour l'analyse élémentaire réalisée sur ces mêmes aiguilles de pin maritime. Le but est de vérifier si les analyses effectuées permettent de retrouver en grande majorité le carbone total émis. Les calculs ont été effectués à partir de l'équation 2.33. Les résultats sont présentés dans le tableau III-VIII.

L'analyse élémentaire a mis en évidence la présence de 530,5 g de carbone par kg de végétal, noté $g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$. Le bilan massique de carbone calculé permet de retrouver sous forme de gaz 95,52% de ce carbone.

Tableau III - VIII: Bilan massique de carbone pour la combustion de *Pinus pinaster*

Cône calorimètre ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Dioxyde de carbone	481,765 ± 14,039
Monoxyde de carbone	21,754 ± 1,755
Coefficient d'extinction ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Suies	1,318 ± 0,193
IRTF ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Méthane	0,875 ± 0,140
Ethylène	0,307 ± 0,070
Acétylène	0,470 ± 0,072
CPG/SM ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Hexène	3,043 ± 0,000
Hexane	3,894 ± 0,000
Benzène	90,210 ± 0,003
2,5-diméthylfurane	3,162 ± 0,000
Heptène	2,134 ± 0,000
Toluène	86,004 ± 0,005
1,7-octadiène	0,692 ± 0,000
Octène	1,330 ± 0,000
Ethylbenzène	13,815 ± 0,003
(<i>m</i> + <i>p</i>)-xylène	3,626 ± 0,000
Phényléthyne	10,583 ± 0,001
Styrène	9,771 ± 0,003
<i>o</i> -xylène	4,174 ± 0,001
Heptanal	0,303 ± 0,000
Nonène	0,974 ± 0,000
Nonane	0,261 ± 0,000
Benzaldéhyde	7,278 ± 0,001
Cumène	1,799 ± 0,000
α -pinène	1,219 ± 0,000
Benzofurane	0,452 ± 0,000
Decène	1,416 ± 0,000
Phénol	1,660 ± 0,000
Nonanal	1,016 ± 0,000
Naphtalène	3,772 ± 0,000
Décane	0,523 ± 0,000
Undécane	0,357 ± 0,000
Dodécane	1,075 ± 0,000
Tridécane	1,348 ± 0,000
Pentadécane	0,452 ± 0,000
Nonadécane	1,166 ± 0,000

Ce carbone est principalement présent sous forme de dioxyde de carbone puisqu'il représente 90,81% du carbone retrouvé sous forme gazeuse (figure 3-10). Le carbone contenu dans le monoxyde de carbone représente quant à lui 4,1% de ce mélange. Le carbone des composés identifiés par le biais de l'IRTF représente environ 0,31% du mélange gazeux identifié alors que le carbone des composés organiques identifiés en CPG/SM ne représente que 0,05%. Nous constatons que ces composés représentent une part infime du carbone gaz issus de la combustion des aiguilles de pin, au regard de leur toxicité. Enfin les suies assimilées à du carbone pur dans nos calculs représentent 0,25% du carbone identifié dans les produits de combustion.

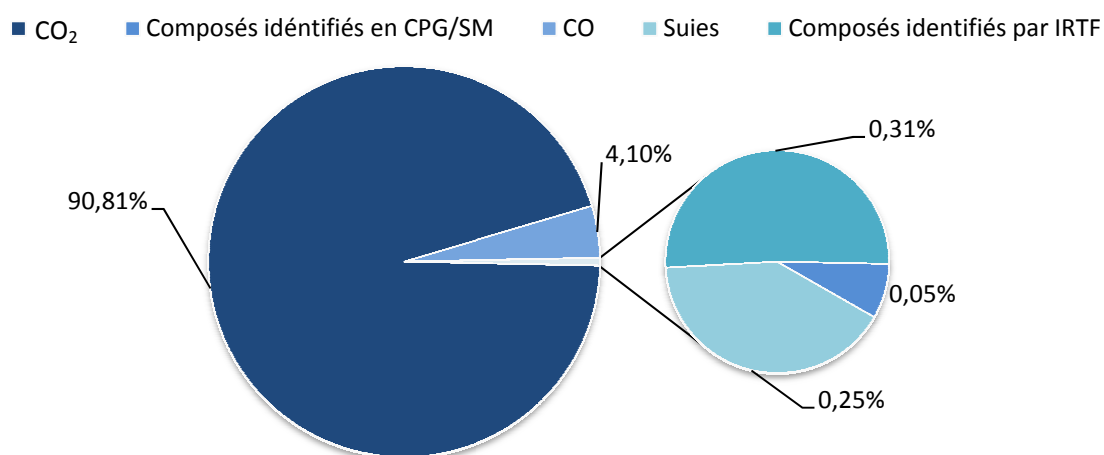


Figure 3 - 10 : Pourcentages de carbone analysé des principaux composés (CO₂, CO, suies) et pourcentage de carbone analysé par CPG/SM et IRTF

3.3. Etude des aiguilles de *Pinus laricio*

L'étude de la dynamique de combustion et l'analyse des fumées a été réalisée pour une seconde espèce de pin très répandue en Corse à savoir, *P. laricio*.

3.3.1. Etude de la dynamique de combustion

Comme pour le pin maritime, plusieurs expériences de combustion d'aiguilles de pin *laricio* ont été réalisées, nous avons choisi de retenir cinq expériences reproductibles. Afin de respecter une perméabilité identique à celle des expériences de pin maritime la charge d'aiguilles de *P. laricio* est de $1,04 \text{ kg.m}^{-2}$, ce qui représenterait en fonction de la taille du panier de combustion utilisé 13 g d'aiguilles. Le processus de combustion est semblable à celui observé pour les aiguilles de *Pinus pinaster*. Les mêmes paramètres ont été analysés à savoir : l'efficacité de combustion, la puissance calorifique et la perte de masse. Le tableau III-IX regroupe les grandeurs énergétiques obtenues.

La bonne reproductibilité des expériences (cf. Figure 3-11), nous permet d'exposer les résultats d'une seule expérience pour les graphiques dans la suite de ce chapitre afin d'obtenir une meilleure lisibilité de ceux-ci.

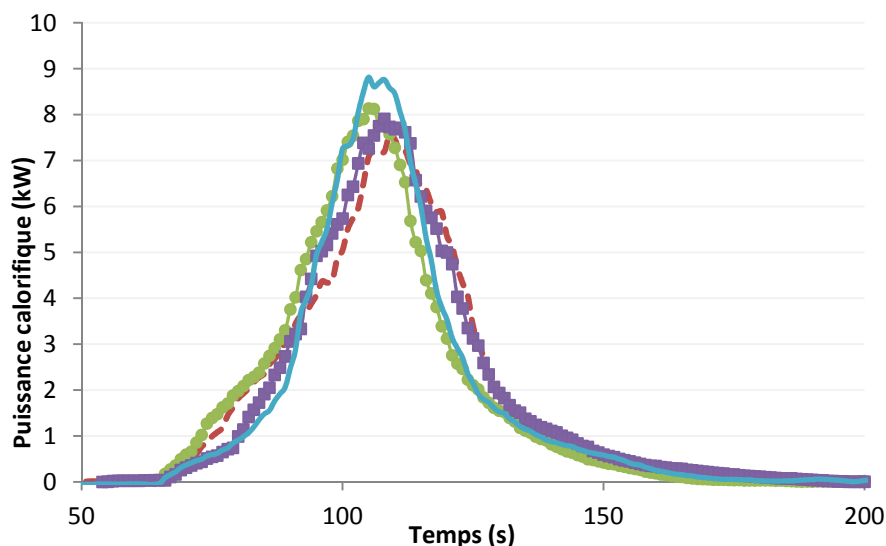


Figure 3 - 11: Reproductibilité des expériences de combustion de *Pinus laricio*

Nous avons également déterminé l'énergie maximale pouvant être dégagée lors de chaque expérience. La masse exacte de combustible brûlée est de 13,27 g en moyenne. Un

pourcentage de réhydratation de 1,5% et une masse moyenne d'imbrûlés de 0,05g ont été déduits de la masse initiale. Il est à noter que la masse d'imbrûlés dans le cas des aiguilles du pin laricio est plus faible que celle relevée pour le pin maritime. En effet, les aiguilles plus fines et plus courtes que celles du pin maritime demeurent dans le panier tout au long de leur combustion, leur permettant de brûler dans leur intégralité. L'énergie maximale dégagée a été calculée selon l'équation 3.6. Le PCI de cette espèce de pin est de 21328 kJ.kg⁻¹ (cf. chapitre 2). L'efficacité de combustion lors de chaque expérience a été déterminée selon l'équation 3.7.

La combustion est quasi-complète avec une efficacité de combustion en moyenne de 93,962% (Tab. III-IX). L'énergie dégagée lors de cette combustion est en moyenne de 264,52 kJ pour une énergie disponible moyenne de 281,509 kJ.

Tableau III - IX: Grandeurs énergétiques telles que l'énergie mesurée, l'énergie maximales dégagées, l'efficacité de la combustion et la puissance maximale pour la combustion des échantillons

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
m_b (g)	13,379	13,279	13,353	13,340	12,999	13,270 ± 0,156
ΔE (kJ)	268,969	260,950	267,232	266,882	258,566	264,520 ± 4,498
ΔE_{max} (kJ)	283,828	281,698	283,272	282,995	275,752	281,509 ± 3,312
χ (%)	94,765%	92,635%	94,338%	94,306%	93,768%	93,962 ± 0,822
$\dot{q}_{max}$ (kW)	7,547	8,530	8,292	8,212	9,237	8,364 ± 0,609

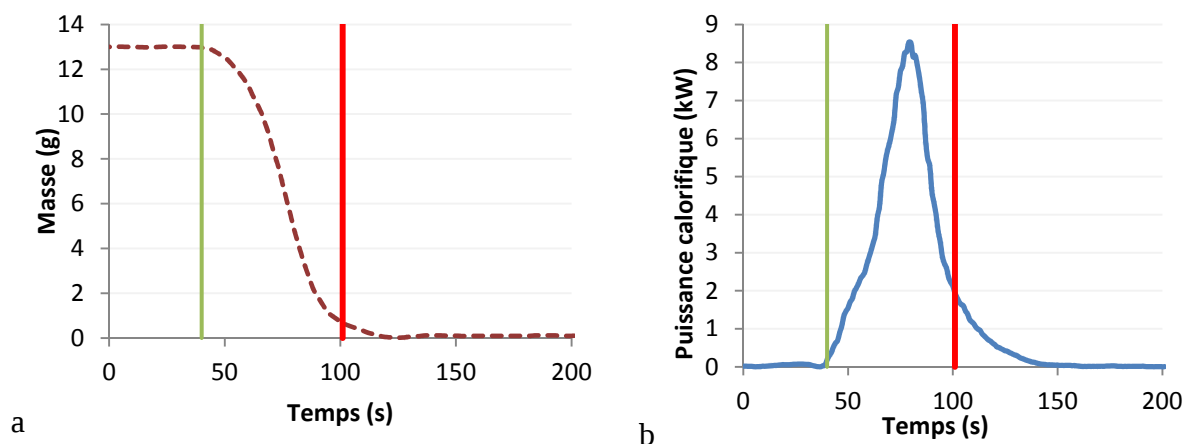
L'évolution de la masse de combustible au cours de la combustion (figure 3-12a) présente le même profil que celui observé pour la combustion des aiguilles de pin maritime. On constate en effet, dès l'inflammation des aiguilles, une diminution progressive de la masse durant 60 secondes. Au moment de l'extinction de la flamme, la masse de combustible est de 0,7 g. Il reste alors très peu de résidus charbonneux qui continuent à brûler durant la phase de smoldering. Le même phénomène de mini-propagation dans le panier, décrit précédemment, a été observé lors de la combustion des aiguilles de pin laricio.

La puissance calorifique (figure 3-12b) augmente dès l'inflammation du combustible. Le maximum de la puissance est atteint environ 40 secondes après l'inflammation et est en moyenne 8,364 kW, puis la puissance diminue progressivement jusqu'à l'extinction de la flamme. Il convient de noter que le maximum de puissance est plus faible que celui obtenu

lors des expériences de pin maritime. Toutefois en ramenant les deux puissances maximales obtenues pour les deux types d'aiguilles de pin à une même masse de combustible, on obtient le même niveau de puissance. Ce résultat déjà obtenu par Bartoli (2011), est dû à la même perméabilité que présentent les deux litières. Nous sommes donc assurés d'avoir des régimes de combustion semblables pour ensuite comparer les facteurs d'émission dans des conditions de combustions similaires. Après extinction de la flamme, les résidus charbonneux continuent à se consommer durant environ 50 secondes.

La figure 3-12c montre l'évolution du CO/CO_2 . Au moment de l'ignition, comme pour le pin maritime, la production de CO_2 augmente de façon brutale durant environ 40 secondes puis diminue progressivement suivant la même tendance que la puissance calorifique. La production de CO , quant à elle, augmente plus progressivement, on remarque un premier pic lorsque le CO_2 atteint son maximum. Ce premier pic est beaucoup plus faible que celui observé lors de la combustion du pin maritime. C'est au moment où la flamme diminue que le CO augmente plus fortement pour atteindre son maximum au moment de l'extinction de la flamme. Ce comportement est analogue à celui observé pour le pin maritime.

La figure 3-12d illustre l'évolution du THR à laquelle nous avons superposé la perte de masse au cours de la combustion. Le THR augmente lorsque la masse de combustible diminue. Lors de la combustion des résidus charbonneux, après l'extinction de la flamme, il continue à progresser légèrement puis se stabilise jusqu'à la fin de l'expérience comme dans le cas du pin maritime.



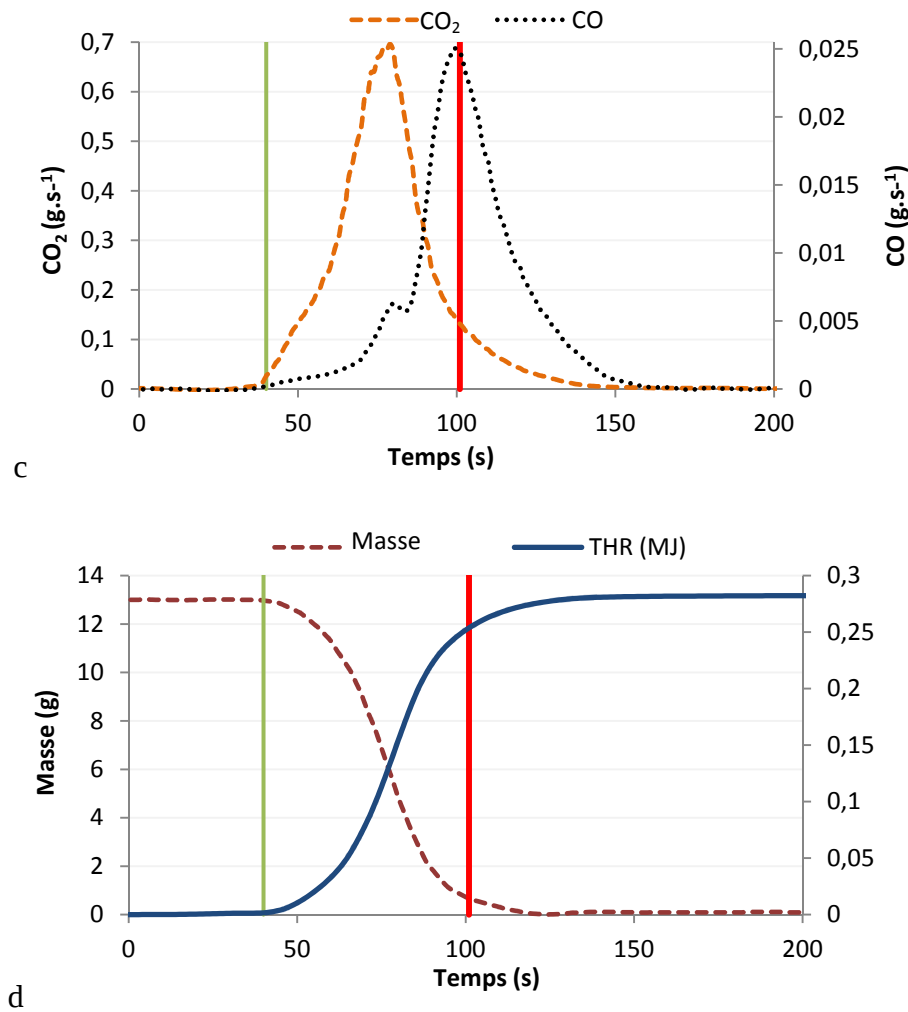


Figure 3 - 12: a-Evolution de la masse de *Pinus laricio* au cours du temps, b-Puissance calorifique au cours du temps, c-Courbes de production de CO et CO₂ au cours du temps, d-Courbes d'évolution de la perte de masse et du THR au cours du temps. Le temps d'ignition est indiqué par un trait bleu et l'extinction de la flamme en rouge.

3.3.2. Analyse des fumées

L'étude des fumées a été effectuée à partir des analyseurs du cône calorimètre et de l'IRTF. Dans cette partie, l'objectif étant de mettre en évidence une éventuelle influence du changement d'espèces végétales sur les caractéristiques globales de la combustion (dynamique et fumées), nous avons choisi de ne pas analyser les fumées à partir de la CPG/SM compte tenu du faible pourcentage que ces gaz représentent dans le calcul du bilan massique de carbone.

3.3.2.1. Etude des fumées à partir des analyseurs du cône calorimètre

La figure 3-13a présente les résultats obtenus pour la mesure du coefficient d'extinction des fumées. Comme dans le cas du pin maritime, la variation de k suit la même tendance que la puissance calorifique. On remarque également que la valeur de k est quasiment nulle lors de la combustion du résidu carbonneux. Il convient toutefois de signaler que la valeur maximale du coefficient d'extinction est trois fois plus faible que dans le cas du pin maritime. La faible valeur de k est probablement associée à une production plus faible de suies, rendant les fumées moins opaques que dans le cas de la combustion des aiguilles de pin maritime.

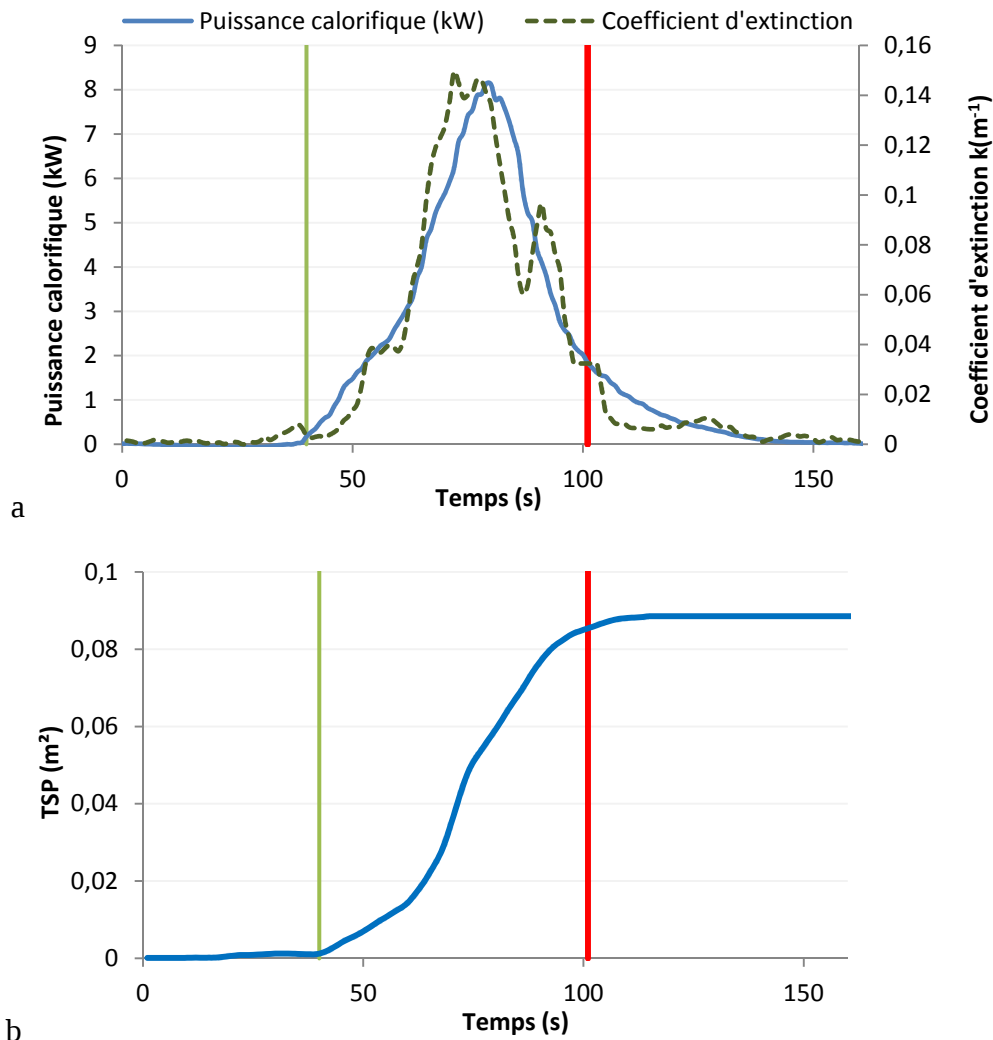


Figure 3 - 13: a-Coefficient d'extinction et puissance calorifique au cours du temps, b-Production totale des fumées au cours du temps

Sur la courbe 3-13b qui représente la production totale de fumées au cours de l'expérience, on observe une augmentation de la production des fumées de l'inflammation à l'extinction du combustible. La production semble modérée pendant les 30 secondes qui suivent l'inflammation, puis augmente de façon importante jusqu'à l'extinction de la flamme. Après l'extinction, la production de fumée n'augmente que très légèrement et se stabilise. Comme pour le pin maritime, il y a peu de suies émises lors de la combustion des résidus charbonneux et donc peu de fumées.

La masse de suies a été calculée à partir de l'équation 2.24. Les valeurs obtenues pour les diverses expériences sont regroupées dans le tableau III-X. La masse de suies moyenne s'élève à 0,01 g.

Tableau III - X: Total de fumées produites, masse de suies et facteurs d'émissions de suies obtenus lors des combustions avec le cône calorimètre

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
<i>TSP (m²)</i>	0,107	0,073	0,105	0,083	0,091	0,092 ± 0,015
<i>m_{suies} (g)</i>	0,013	0,009	0,013	0,010	0,011	0,011 ± 0,002
<i>FE_{suies} (g/kg)</i>	0,964	0,662	0,947	0,750	0,843	0,833 ± 0,129

A partir de cette masse, nous avons déterminé le facteur d'émission correspondant à la masse de pin brûlée lors de nos expériences à partir de l'équation 2.32.

Les facteurs d'émission de suies sont en moyenne de 0,833 g.kg⁻¹. On constate une différence avec celui calculé lors de la combustion des aiguilles de pin maritime qui était de 1,318 g.kg⁻¹. Ainsi, l'obscurcissement des fumées, principalement due aux suies, est moindre dans le cas de la combustion du pin laricio (la valeur du TSP est de 0,092 m² et de 0,158 m² dans le cas du pin maritime).

Les facteurs d'émissions du monoxyde et du dioxyde de carbone ont également été calculés à partir de l'équation 2.32 (chapitre 2). Les résultats obtenus lors des 5 expériences sont regroupés dans le tableau III-XI.

Tableau III - XI: Quantités et facteurs d'émission de monoxyde et de dioxyde de carbone

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
CO (g)	0,76	0,81	0,85	0,74	0,84	0,80 ± 0,05
CO₂ (g)	22,28	22,17	22,07	21,80	21,65	21,99 ± 0,26
FE_{CO} (g.kg⁻¹)	56,77	60,67	63,70	56,85	64,31	60,15 ± 3,60
FE_{CO₂} (g.kg⁻¹)	1665,29	1669,72	1652,57	1634,05	1665,32	1657,388 ± 14,537

Dans ce cas, des quantités importantes de dioxyde de carbone sont également émises. Les émissions de CO₂, comme pour le pin maritime, ont lieu pendant la phase de flamme où 90% de ces émissions sont retrouvées. En revanche, les émissions de CO durant la phase de flamme, représentent 48% des émissions. Le reste est émis durant la phase de smoldering qui correspond à la combustion des résidus charbonneux. La production de CO est donc identique durant les phases de flamme et de smoldering. Toutefois, il convient de rappeler que la masse brûlée durant la phase de smoldering ne représente que 5% de la masse des aiguilles de départ. C'est donc proportionnellement une grande part du CO qui est émis durant la phase de smoldering.

En ce qui concerne les facteurs d'émission de ces deux molécules, on note que la combustion des aiguilles de pin laricio produit un taux plus important de monoxyde de carbone (60,46 g.kg⁻¹) que celle de pin maritime (50,91 g.kg⁻¹). Au contraire de la production de CO₂ qui est sensiblement plus important pour la combustion de *P. pinaster* (1766,47 g.kg⁻¹) que pour celle de *P. laricio* (1657,388 g.kg⁻¹). Ces résultats corroborent la différence d'efficacité obtenue lors des deux combustions, à savoir une efficacité de combustion plus faible dans le cas des aiguilles de *P. laricio*.

L'évolution des facteurs d'émission au cours du temps pour le CO et le CO₂ est reproduite sur la figure 3-14. Comme pour le pin maritime, nous constatons que durant la phase de flamme, ces composés sont émis de façon quasi-constante puis augmentent au moment de l'extinction de la flamme de manière plus importante pour le CO que pour le CO₂. Lors de la phase de smoldering, la vitesse d'émission du CO₂ tend à se stabiliser alors que celle du CO a une valeur supérieure par rapport à la phase de flamme, même si des fluctuations apparaissent, dues aux imprécisions de mesure de la cellule de pesée pour de faibles masses. Lors de ces expériences, une partie importante de CO produite par la

combustion du charbon durant la phase de flamme est consommée par la température entretenue par la flamme. En effet, après extinction de la flamme, 24% de la masse de combustible devrait être disponible soit 3,12 grammes pour la combustion des charbons. Or lors de nos expériences, la masse moyenne de charbon disponible au moment de l'extinction de la flamme s'élève à 0,80 gramme ce qui ne représente que 5,8% de la masse de départ. Il y a donc 2,32 grammes de charbons qui brûlent durant la phase flamme. De plus, les calculs des facteurs d'émission de CO et CO₂ durant les phases de combustion (tableau III-XII) montrent que la majeure partie du CO₂ (1485,06 g.kg⁻¹ sur 1657,39 g.kg⁻¹) est émise durant la flamme mais qu'une partie importante de monoxyde de carbone est également émis durant cette phase puisque nous retrouvons une émission de 25,74 g.kg⁻¹ de ce composé.

Tableau III - XII: Facteurs d'émissions CO et CO₂ au cours des phases de combustion

	FE CO (g.kg ⁻¹)	FE CO ₂ (g.kg ⁻¹)
Flamme	25,743 ± 3,088	1485,066 ± 22,607
Smoldering	34,407 ± 6,251	172,322 ± 24,411

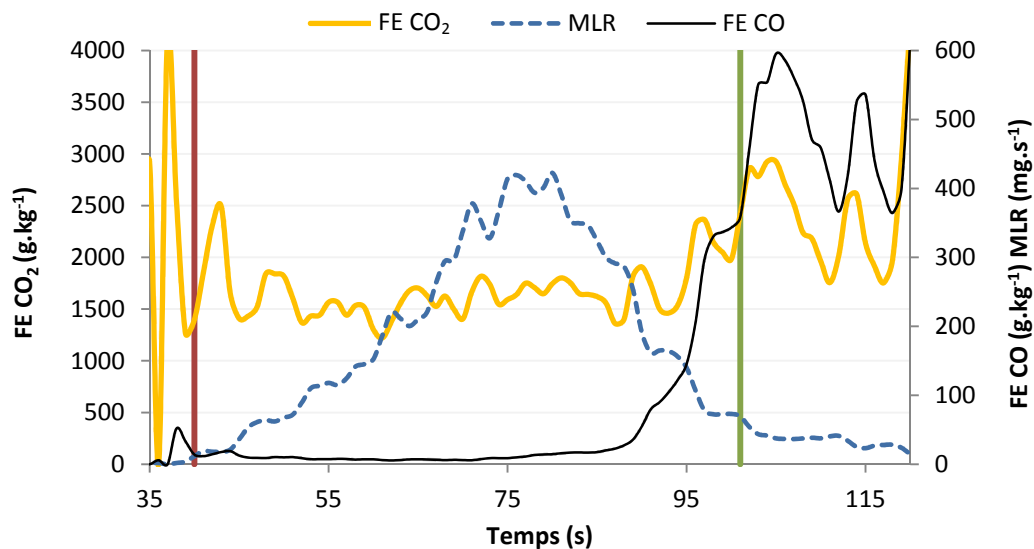


Figure 3 - 14: Courbes de vitesse d'émission de CO et CO₂ au cours de la combustion des aiguilles de *Pinus laricio*

3.3.2.2. Etude des fumées par analyse IRTF

Une analyse des composés présents dans les fumées a été réalisée par IRTF. Six composés ont ainsi été quantifiés, il s'agit du méthane (CH_4), de l'oxyde et du dioxyde d'azote (NO et NO_2), de l'ammoniac (NH_3), de l'éthylène (C_2H_4) et de l'acétylène (C_2H_2). Leurs facteurs d'émissions sont regroupés dans le tableau III-XIII.

Les composés retrouvés au moyen de l'IRTF, représentent un total de $5,943 \text{ g.kg}^{-1}$. Leur production au cours des expériences sont représentées pour le méthane, le monoxyde et le dioxyde d'azote et l'ammoniac sur les figures 3-15a à 3-15d. Ainsi, nous constatons que les productions de NO et le NO_2 sont simultanées à la puissance calorifique alors que celle du méthane augmente au moment où celle-ci diminue. Le composé le plus abondant est le monoxyde d'azote dont la quantité est de $2,723 \text{ g.kg}^{-1}$. Une quantité importante de méthane est également identifiée ($1,155 \text{ g.kg}^{-1}$). La teneur de méthane retrouvée lors de la combustion des aiguilles de pin laricio est identique à celle déterminée lors de la combustion du pin maritime ($1,166 \text{ g.kg}^{-1}$) alors que celle de NO est légèrement inférieure à celle obtenue lors de la combustion des aiguilles de pin maritime. On note également la présence d'ammoniac, dont la production a lieu majoritairement après l'extinction de la flamme, il s'agit en effet d'un produit issu de la combustion des charbons durant la phase de smoldering (Goode et coll., 1999).

Tableau III - XIII: Composés identifiées par IRTF

Composés identifiés par IRTF (g.kg^{-1})	
FE_{CH_4}	$1,155 \pm 0,589$
FE_{NO}	$2,723 \pm 1,374$
FE_{NO_2}	$0,642 \pm 0,326$
FE_{NH_3}	$0,237 \pm 0,123$
$\text{FE}_{\text{C}_2\text{H}_4}$	$0,220 \pm 0,124$
$\text{FE}_{\text{C}_2\text{H}_2}$	$0,075 \pm 0,040$
Total (g.kg^{-1})	$5,943 \pm 0,695$

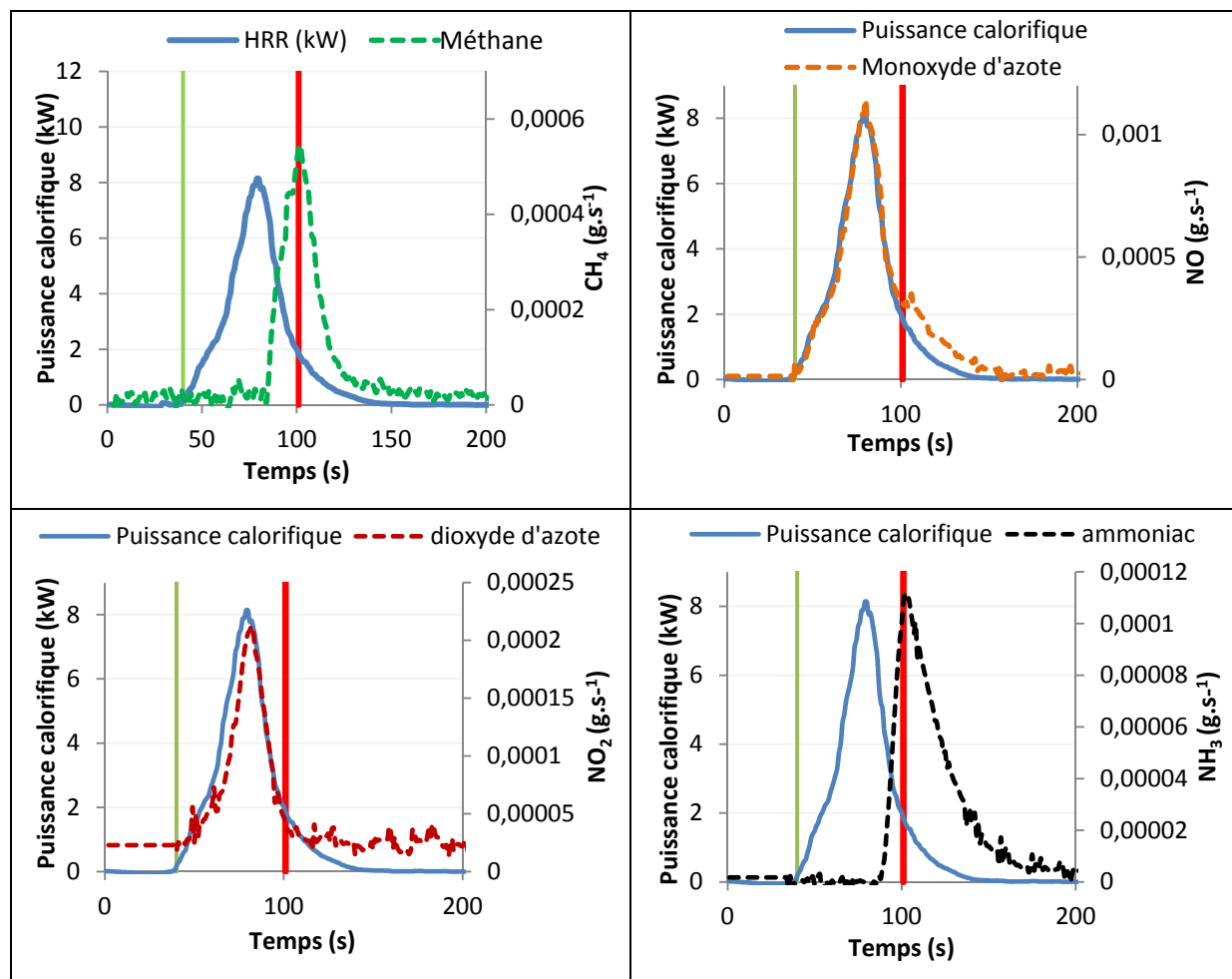


Figure 3 - 15: Productions : a- de méthane, b- de monoxyde d'azote, c- de dioxyde d'azote et d- d'ammoniac au cours de la combustion de *P. laricio*.

3.3.2.3. Bilan massique de carbone

L'analyse des composés émis lors de la combustion des aiguilles de *Pinus laricio* à partir des analyseurs IRND du cône calorimètre et de l'IRTF a permis de mesurer les composés carbonés. Comme pour l'étude précédente dans le cas du pin maritime, le bilan massique de carbone a été effectué et comparé au carbone obtenu lors de l'analyse élémentaire réalisée sur les aiguilles du pin laricio. Les calculs ont été effectués à partir de l'équation 2.33. Les résultats sont présentés dans le tableau III-XIV.

L'analyse élémentaire des aiguilles de *Pinus laricio* a mis en évidence la présence de 503,9 g.kg⁻¹ de carbone lors d'une combustion complète de celles-ci. Le bilan massique de carbone calculé permet de retrouver sous forme de gaz 95,75% de ce carbone. Le résultat est analogue à celui obtenu avec le pin maritime.

Tableau III - XIV: Bilan massique de carbone pour la combustion de *P. laricio*

Cône calorimètre ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Dioxyde de carbone	$454,526 \pm 2,981$
Monoxyde de carbone	$25,912 \pm 1,545$
Coefficient d'extinction ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Suies	$0,751 \pm 0,92$
IRTF ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Méthane	$0,978 \pm 0,221$
Ethylène	$0,214 \pm 0,069$
Acétylène	$0,083 \pm 0,021$

Le carbone est principalement retrouvé sous forme de dioxyde de carbone, il représente en effet 90,20% des émissions des composés gazeux analysés (figure 3-16). Le monoxyde de carbone représente quant à lui 5,14% de ce mélange. Les composés identifiés par le biais de l'IRTF, c'est-à-dire le méthane, l'éthylène et l'acétylène représentent quant à eux 0,25% du carbone gazeux. Enfin les suies, représentent 0,15% du mélange gazeux identifié.

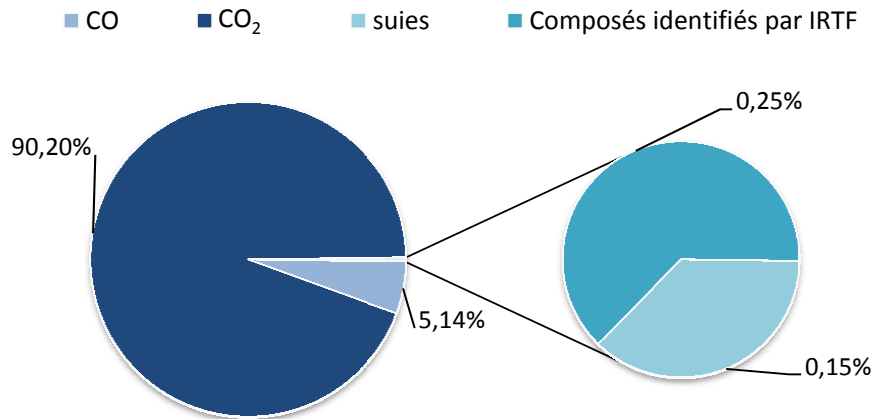


Figure 3 - 16: Pourcentages de carbone analysé des principaux composés (CO_2 , CO , suies) et pourcentage de carbone analysé par IRTF

Chapitre 4 : Dynamique de combustion et analyse des fumées à l'échelle du LSHR

Ce chapitre présente les résultats obtenus pour les expériences de combustion des aiguilles de *P. pinaster* et *P. laricio* à moyenne échelle. Dans un premier temps, nous exposerons les résultats relatifs à la combustion des aiguilles de *P. pinaster*, puis nous les comparerons à ceux obtenus à plus petite échelle, c'est-à-dire à l'échelle du cône calorimètre. Enfin, nous présenterons le travail réalisé et les différentes conclusions obtenues pour la combustion des aiguilles de *P. laricio*. Ces résultats seront également confrontés à ceux obtenus à petite échelle.

4.1. Présentation du Large Scale Heat Release rate calorimeter (LSHR) et mise au point des conditions expérimentales

Les expériences de combustion à moyenne échelle ont été réalisées à l'aide du Large Scale Heat Release rate calorimeter (LSHR) de la société FTT. Ce dispositif permet de conduire des feux dont la puissance peut atteindre jusqu'à 1 MW. La hotte mesure $3\text{m} \times 3\text{m}$ et le débit volumique d'extraction des produits de combustion est de $1\text{m}^3.\text{s}^{-1}$.

Cet appareil, qui répond à la norme ISO 9705 fournit les mêmes mesures que le cône calorimètre : la perte de masse, l'opacité des fumées, la production de monoxyde et de dioxyde de carbone et la consommation dioxygène. Il permet ainsi de déterminer la puissance

calorifique dégagée par la combustion d'un matériau considéré grâce à la mesure du débit massique des gaz d'extraction et de la composition des fumées. Le débit massique est mesuré dans le conduit d'évacuation qui est muni d'un thermocouple et d'une sonde de McCaffrey permettant respectivement la mesure de la température et de la vitesse des gaz. Les gaz de combustion sont prélevés à l'aide d'une pompe. Ils passent par un filtre à suies et un piège à froid avant d'être asséchés à l'aide d'un dessicant (le carbonate de calcium CaCO_3) pour être ensuite acheminés vers les analyseurs. Comme pour le cône calorimètre, un analyseur paramagnétique permet de mesurer le dioxygène et des analyseurs infrarouges IRND permettent de mesurer les teneurs en monoxyde et dioxyde de carbone.

Un laser à hélium-néon de 0,5 mW, émettant dans le rouge à la longueur d'onde de 632,8 nm avec photodétecteurs principaux et de référence (de compensation) permet de mesurer l'opacité due aux fumées, d'en déduire le coefficient d'extinction et ainsi d'évaluer la production des fumées et la teneur en suies.

La combustion à moyenne échelle consiste à placer les aiguilles de pin dans un panier de diamètre 35 cm (cf. chapitre 2) disposé au centre du LSHR, sur une cellule de pesée (cf. Figure 4-1). Le panier ne repose pas directement sur la balance. Il est posé sur un socle métallique assurant un passage continu d'air dans le combustible comme cela était le cas pour les expériences conduites avec le cône calorimètre.



Figure 4 - 1: a. Vue d'ensemble du dispositif expérimental LSHR; b. Photographie du panier de combustion exemple de *Pinus pinaster*

La masse d'aiguilles de pin placée dans le panier a été calculée de façon à conserver la même charge que pour les expériences réalisées à petite échelle. La charge sèche étant de $1,2 \text{ kg.m}^{-2}$ pour *Pinus pinaster*, la masse utilisée lors des expériences avec le LSHR était de 115,45 grammes en masse sèche. Pour *Pinus laricio*, la charge sèche étant de $1,04 \text{ kg.m}^{-2}$, la masse utilisée lors des expériences avec le LSHR était de 100,05 grammes. Nous avons pris soin de placer les aiguilles dans le panier en conservant la même hauteur que pour les expériences à petite échelle de façon à conserver la même perméabilité pour tous les lits de combustible.

L'ignition des aiguilles de pin a été réalisée avec le même système d'allumage que pour le cône calorimètre (cf. chapitre 3). Une mèche de papier fin (0,2 g) imbibée d'éthanol (1ml) a été placée au centre du végétal puis allumée.

4.2. Etude des aiguilles de *Pinus pinaster*

Cette partie regroupe l'étude de la dynamique de combustion des aiguilles de pin maritime et l'analyse des fumées qui en résultent.

4.2.1. Etude de la dynamique de combustion

Plusieurs expériences ont été réalisées à l'échelle du LSHR. Seules les cinq meilleures expériences ont été conservées et seront présentées par la suite. La figure 4-2 présente donc la puissance calorifique obtenue pour cinq expériences de combustion. Nous observons une bonne reproductibilité de cette grandeur. De ce fait, le reste du chapitre sera illustré pour partie par les résultats d'une seule expérience représentative du phénomène de combustion.

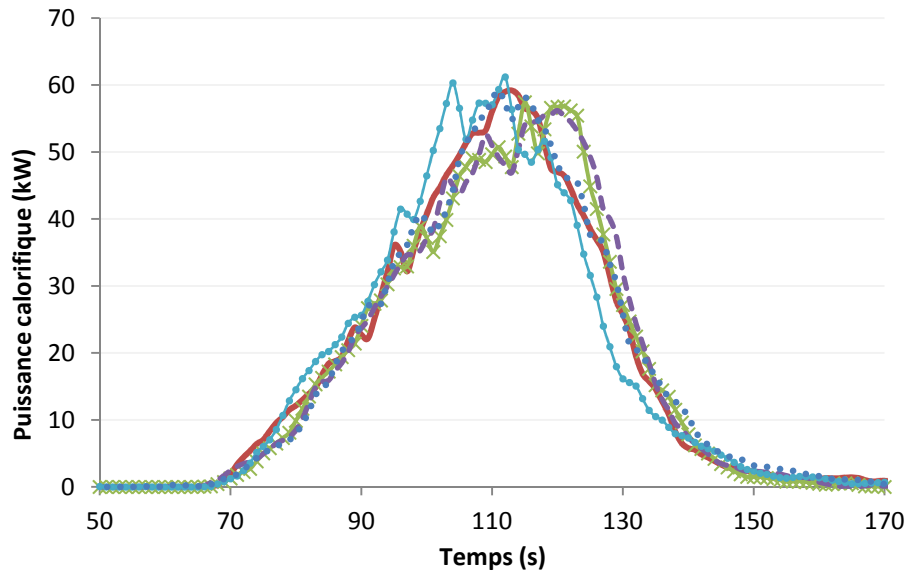


Figure 4 - 2: Mesure de la puissance calorifique et détermination de la reproductibilité des expériences.

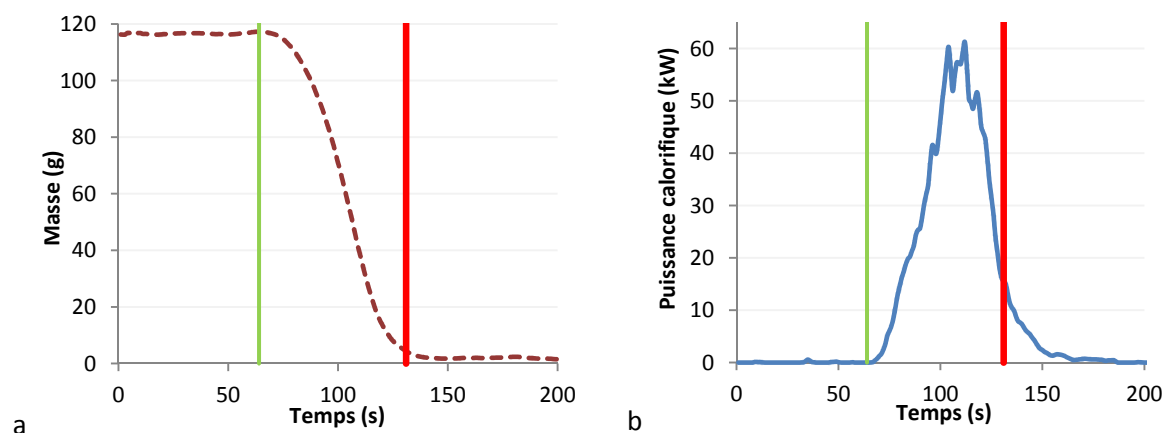
Afin de discuter de la dynamique de combustion des aiguilles de pin maritime à l'échelle du LSHR, nous analyserons la perte de masse, la puissance de flamme, l'efficacité de la combustion ainsi que l'énergie totale dégagée (THR).

L'énergie maximale dégagée par la combustion a été déterminée en tenant compte de la masse exacte de combustible brûlé lors de l'expérience. Autrement dit, les imbrûlés (3 g en moyenne) ont été recueillis en fin d'expérience. Ils ont été soustraits à la masse de départ ainsi que le pourcentage de réhydratation (1,5%) se produisant lors de la mise en place de l'expérience. La masse moyenne d'aiguilles (m_b) de pin brûlée lors de ces expériences est donc de 111,58 g. L'énergie maximale ΔE_{max} et l'efficacité de la combustion (χ) sont calculées à partir des équations 3.6 et 3.7 (cf. chapitre 3). Les résultats sont regroupés dans le tableau IV-I pour cinq expériences.

Tableau IV - I: Grandeurs énergétiques pour la combustion des échantillons (masse brûlée, énergie mesurée, énergie maximale théorique, efficacité de combustion et pic de puissance maximale).

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
m_b (g)	111,27	111,26	111,57	111,82	111,99	111,58 ± 0,33
ΔE (kJ)	2182,87	2184,01	2183,40	2195,45	2197,30	2188,61 ± 7,13
ΔE_{max} (kJ)	2 259,00	2 258,77	2 265,09	2 270,16	2 273,66	2 265,33 ± 6,63
χ	96,63%	96,69%	96,39%	96,71%	96,64%	96,61 ± 0,13%
$\dot{q}_{max}$	57,429	59,186	56,180	61,211	59,170	58,635 ± 1,917

La combustion à l'échelle du LSHR peut être considérée comme quasi-complète. En effet, l'efficacité de la combustion est en moyenne de 96,61%. Un apport dioxygène important a lieu au sein du panier ce qui favorise la combustion des aiguilles de pin. A la fin de l'expérience, il ne reste plus que les cendres dans le panier (et les imbrûlés passés au travers des mailles du panier).



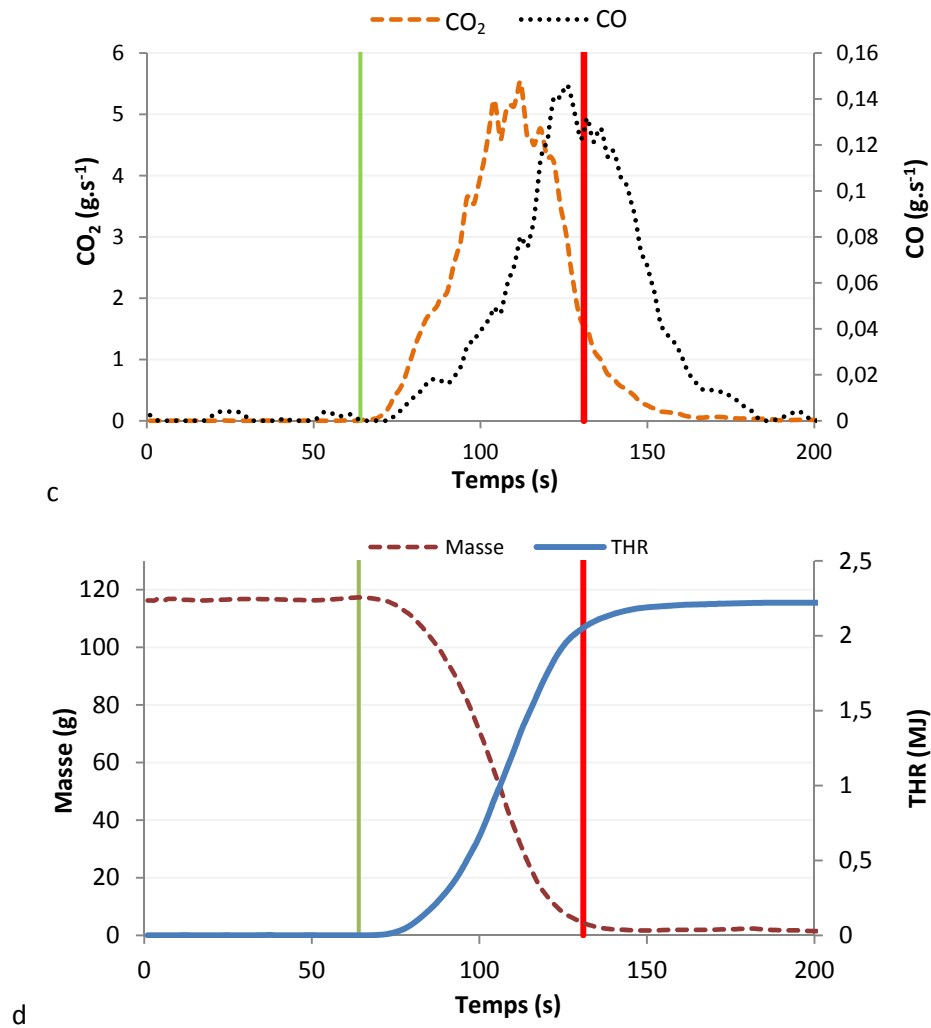


Figure 4 - 3: a-Evolution de la masse des aiguilles de pin maritime, b-Puissance calorifique, c-Courbes de production de CO et CO_2 , d-Courbes d'évolution de la masse et du THR. L'ignition et l'extinction de la flamme sont respectivement représentées par un trait vertical vert et rouge.

Afin d'expliquer la combustion des aiguilles de pin maritime à l'échelle du LSHR, nous nous appuyons sur les figures 4-3a-d et 4-4a-f. La figure 4-3a représente la perte de masse au cours de l'expérience. Au moment de l'allumage (figure 4-4a), on observe une diminution lente de la masse de combustible pendant environ 15 secondes, la vitesse de la perte de masse ramenée à la surface de combustible est alors de $3,8 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$. Au cours de ce laps de temps, la mèche d'éthanol s'enflamme (figure 4-4b) et la combustion se propage au sein du panier (figure 4-4c). La masse décroît ensuite de façon quasi-linéaire pendant environ 60 secondes à une vitesse de $22,9 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$, la combustion est alors constante et occupe entièrement le panier (figure 4-4d), puis la flamme décroît (figure 4-4e) jusqu'à l'extinction. Au moment de l'extinction, il reste en moyenne 5,44 grammes de combustibles qui sont consommés durant la

phase de combustion des résidus charbonneux (figure 4-4f). Cette dernière phase s'arrête lorsque la masse atteint environ 2g de cendres à la fin de l'expérience.

La phase de flamme dure environ 70 secondes. Pendant cette phase, une propagation du centre (point d'allumage constitué de papier imbibé d'éthanol placé au centre du panier) vers les bords du panier est observée. La flamme occupe rapidement le panier de combustion. Après l'inflammation du combustible, la puissance calorifique augmente progressivement (figure 4-3b) pendant environ 40 secondes jusqu'à atteindre son maximum qui s'élève en moyenne à 58,6 kW. La puissance calorifique se stabilise alors pendant une dizaine de secondes puis elle diminue jusqu'à l'extinction de la flamme. A ce stade de la combustion les résidus charbonneux continuent à se consumer progressivement jusqu'à l'arrêt complet de la combustion 50 secondes après l'extinction de la flamme (cf. Figure 4-3c donnant la production du CO).

La figure 4-3c illustre l'évolution du CO/CO₂. La production de dioxyde de carbone s'effectue dès l'ignition du combustible et augmente progressivement pendant les 50 premières secondes de la combustion pour atteindre un pic de production au même moment que celui de la puissance calorifique. Une fois ce pic atteint, la production diminue progressivement de la même manière que la puissance calorifique. La production de CO, débute elle aussi au moment de l'ignition mais connaît une augmentation plus lente que celle du dioxyde de carbone. Le pic de CO est atteint environ 5 secondes avant l'extinction de la flamme. La production du monoxyde de carbone est aussi importante avant qu'après extinction de la flamme. Toutefois de part le dispositif expérimental qui favorise les apports d'air, une partie du CO produit en présence de flamme peut être attribuée à la consommation des charbons se produisant durant cette phase de flamme. Ceci sera explicité dans la suite de ce chapitre. Après l'extinction de la flamme, la production de CO diminue progressivement durant environ 70 secondes jusqu'à l'extinction complète.

La figure 4-3d illustre l'intégrale de la puissance calorifique au cours du temps, c'est-à-dire le total heat release (THR) et la perte de masse au cours de l'expérience. L'énergie dégagée augmente alors que la masse de combustible diminue. L'augmentation se poursuit légèrement lors de la combustion du résidu charbonneux puis le THR atteint un palier correspondant à la fin de l'expérience (fin de la production d'énergie).

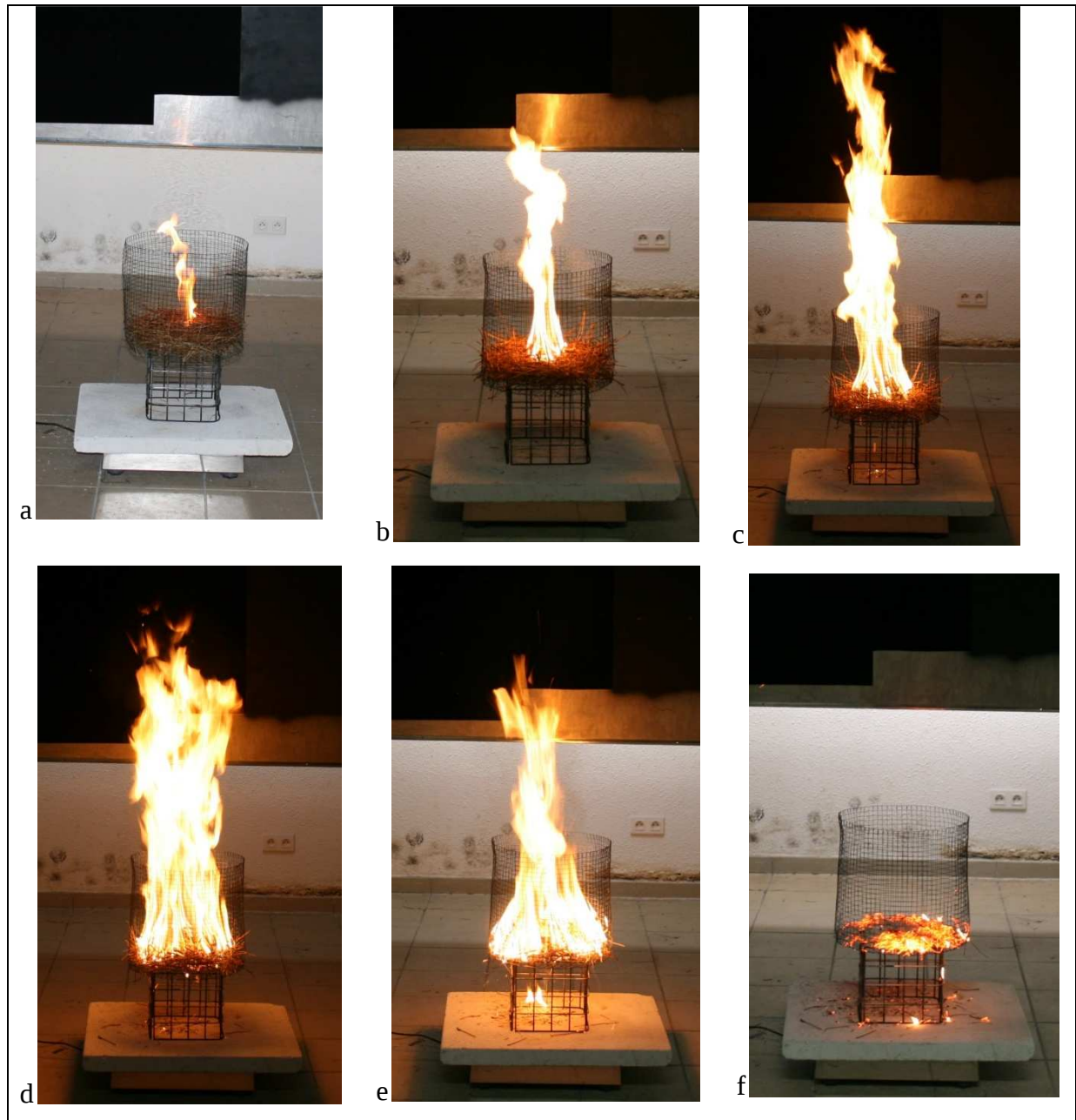


Figure 4 - 4: a. Allumage du combustible, b. Combustion de la mèche imbibée d'éthanol et des aiguilles au centre du panier, c. Début de propagation dans le panier, d. Combustion des aiguilles sur toute la surface du panier, e. Diminution de la puissance de la flamme, f. Combustion des résidus carbonaceux après l'extinction de la flamme

4.2.2. Analyse des fumées

4.2.2.1. Etude des fumées à partir des analyseurs du cône calorimètre

Les analyseurs du LSHR ont permis de suivre l'évolution des fumées au cours de l'expérience, notamment le coefficient d'extinction k qui permet de mesurer l'opacité créée par les fumées dans le conduit d'évacuation.

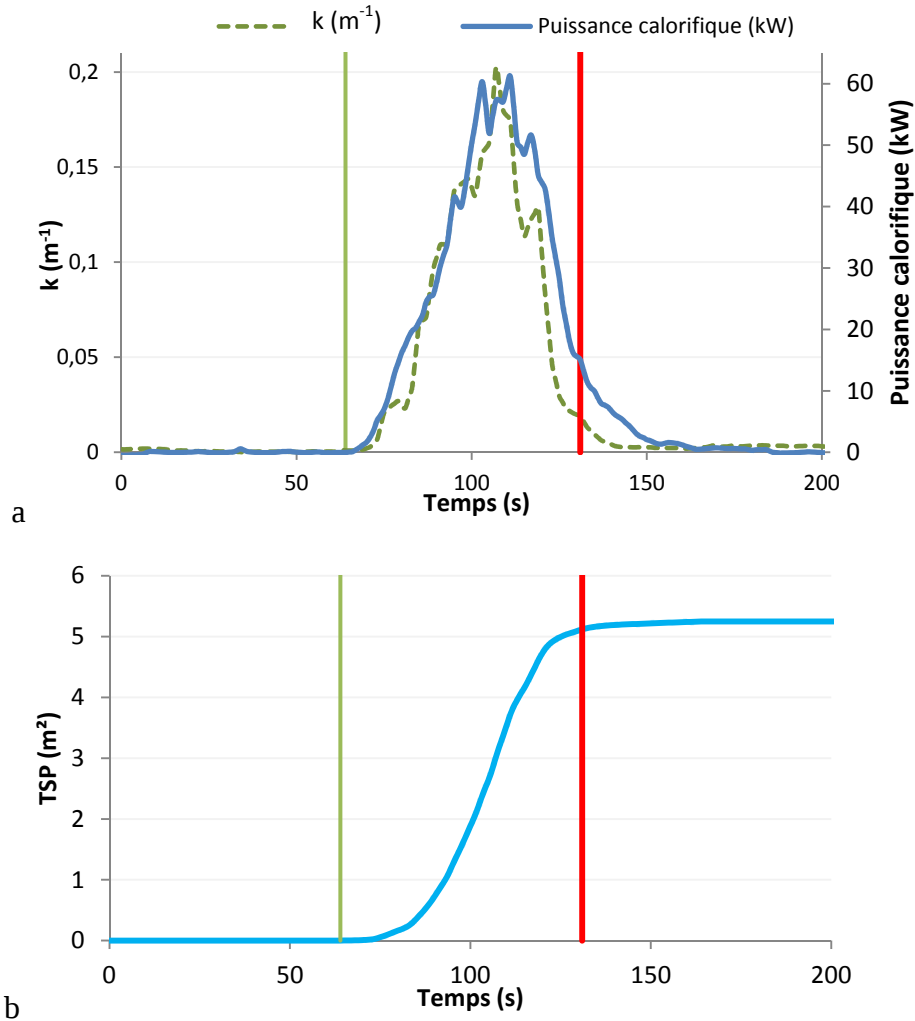


Figure 4 - 5: a-Mesure du coefficient d'extinction et de la puissance calorifique durant la combustion, b- Evolution du TSP au cours du temps.

La figure 4-5a permet d'observer l'évolution du coefficient d'extinction au cours de l'expérience. Celui-ci augmente progressivement après l'inflammation du combustible en suivant la même tendance que la puissance calorifique. L'opacité créée par les fumées est à son maximum au même instant que la puissance, c'est-à-dire environ 40 secondes après l'allumage. Le coefficient d'extinction diminue ensuite progressivement jusqu'à l'extinction

de la flamme. Durant cette phase de la combustion, il reste les résidus charbonneux qui se consomment progressivement en produisant très peu de fumée et de suies. La phase de flamme est donc la phase pendant laquelle la plus grande quantité de fumées et de suies est produite.

La production totale de fumées au cours de l'expérience est illustrée en figure 4-5b. Celle-ci augmente de manière linéaire depuis l'ignition des aiguilles de pin jusqu'à l'extinction de la flamme. Puis, la production se stabilise jusqu'à la fin de l'expérience, reflétant la faible production des particules durant la phase de smoldering.

La masse de suies issue de la combustion des aiguilles de pin maritime a été estimée à l'aide de l'équation 2.24. Les valeurs obtenues sont regroupées dans le tableau IV-II pour cinq répliquas. La masse moyenne de suies produites s'élève à 0,577 g. Le facteur d'émission des suies a été calculé pour chaque expérience, selon l'équation 2.32. Il s'élève en moyenne à 5,171 g par kg d'aiguilles de pin brûlées.

Tableau IV - II: Mesure du TSP, de la masse de suies produites et du facteur d'émission des suies.

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
<i>TSP (m²)</i>	4,51	4,89	4,76	5,16	4,31	4,73 ± 0,33
<i>m_{suies} (g)</i>	0,565	0,606	0,533	0,645	0,537	0,577 ± 0,05
<i>FE_{suies} (g.kg⁻¹)</i>	5,077	5,443	4,779	5,765	4,791	5,171 ± 0,428

Les productions de monoxyde et de dioxyde de carbone ont été obtenues grâce aux mesures fournis par les analyseurs IRND du LSHR, en utilisant l'équation 3.9. Les facteurs d'émission de ces composés ont également été calculés selon l'équation 2.32. Les résultats obtenus lors des 5 expériences sont regroupés dans le tableau IV-III.

Tableau IV - III: Quantités et facteurs d'émission de monoxyde et de dioxyde de carbone

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
<i>CO (g)</i>	5,97	5,12	5,05	5,72	5,25	5,42 ± 0,40
<i>CO₂ (g)</i>	197,33	196,34	198,17	199,31	197,75	197,78 ± 1,09
<i>FE_{CO} (g.kg⁻¹)</i>	53,61	46,00	45,22	51,13	46,92	48,57 ± 3,62
<i>FE_{CO₂} (g.kg⁻¹)</i>	1773,42	1764,69	1776,20	1782,40	1765,77	1772,50 ± 7,40

Lors de la combustion d'aiguilles de pin maritime, des quantités importantes de monoxyde et de dioxyde de carbone sont émises. Ces émissions représentent respectivement 48,57 et 1772,50 grammes par kilogramme de combustible brûlé.

Les facteurs d'émissions au cours des différentes phases de combustion sont présentés dans le tableau IV-IV. Les émissions de dioxyde de carbone ont principalement lieu durant la phase de flamme puisque celles-ci représentent près de 94% des émissions, soit en moyenne $1668,02 \text{ g.kg}^{-1}$. C'est également durant cette phase que la quantité la plus importante de monoxyde de carbone est émise, représentant 63% du CO émis soit $30,49 \text{ g.kg}^{-1}$. Il convient de rappeler que la production de CO lors de la phase de flamme provient également de l'oxydation des charbons qui est favorisée par l'apport d'air au centre du panier lorsque la flamme se propage à toute la litière.

Tableau IV - IV: Facteurs d'émission de CO et CO₂ au cours des phases de combustion

	FE CO (g.kg^{-1})	FE CO ₂ (g.kg^{-1})
Flamme	$30,490 \pm 0,436$	$1668,019 \pm 30,911$
Smoldering	$18,084 \pm 3,597$	$104,477 \pm 31,117$

L'évolution de ces facteurs d'émission (CO et CO₂) au cours du temps, ainsi que la dérivée de la perte de masse (représentée en mg.s^{-1} pour une meilleure visibilité) sont représentés sur la figure 4-6. Le CO et le CO₂ sont émis à vitesse quasi constante durant environ 45 secondes après l'inflammation. Après ce laps de temps, la dérivée de la perte de masse décroît, et nous constatons que les facteurs d'émission des deux composés tendent à augmenter. En effet, à cet instant de l'expérience, une partie des charbons est déjà en combustion à cause du phénomène de propagation se produisant au sein du panier. Après extinction de la flamme, les vitesses d'émission de CO₂ et CO continuent d'augmenter, mais la phase de smoldering pouvant être exploitée (sans erreurs dues à la dérivée de la perte de masse) est alors de courte durée pour en tirer des conclusions.

Le relevé de la perte de masse nous permet d'affirmer qu'une grande partie du charbon est oxydé durant la phase de flamme. En effet, l'analyse thermogravimétrique a montré que (Leroy, 2007) le charbon issu de la pyrolyse des aiguilles de pin maritime représente 24% de la masse initiale, ce qui représenterait dans notre cas 27,7 g. Or à l'extinction de la flamme il reste en moyenne 2,88 g de combustible. Cela signifie que 24,82 g de charbon ont été brûlés

pendant la phase de flamme. Le facteur d'émission du CO durant la phase de flamme est différent de celui obtenu durant la phase de smoldering (cf. Figure 4-6) même si une partie du charbon est consommée durant la phase de flamme. En effet, la flamme entretient une température importante au sein du panier favorisant la consommation d'une majeure partie du CO produit lors de combustion des charbons.

Les deux phases de combustion (flamme et smoldering) influent donc fortement sur la dynamique des facteurs d'émission. Ainsi, à l'échelle du LSHR, le CO₂ peut être considéré comme globalement émis durant la phase de flamme. Il en va différemment pour le CO dont l'émission est dépendante de la phase de combustion puisqu'il peut être émis lors de la phase de flamme mais aussi de façon non négligeable (37%) durant la phase de smoldering. Il est donc important de prendre en considération cette phase de smoldering pour prédire avec précision le moment de l'émission du CO dans les modèles de propagation.

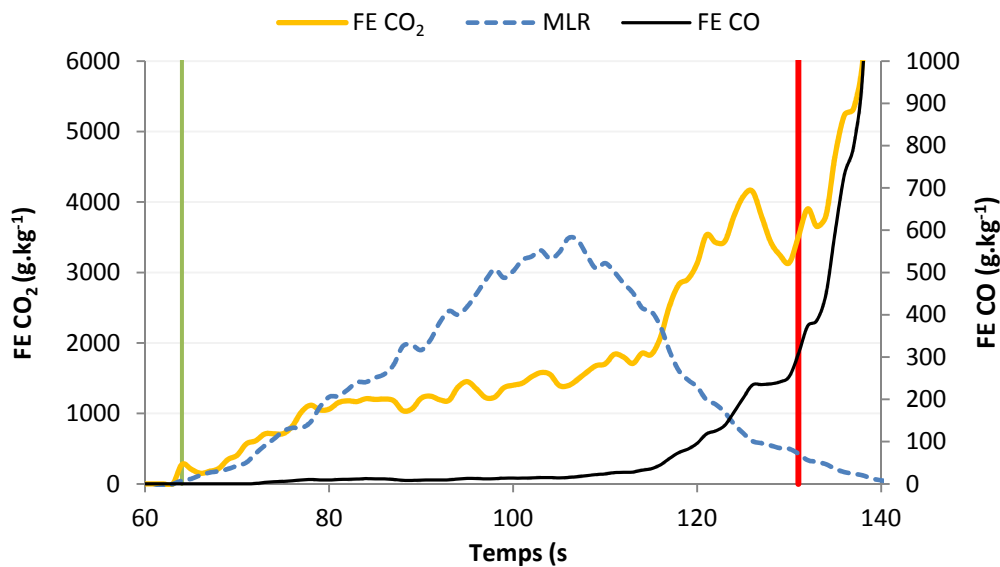


Figure 4 - 6: Evolution des courbes des facteurs d'émission de CO et de CO₂ au cours de la combustion des aiguilles de pin maritime

4.2.2.2. Etude des fumées par analyse CPG/SM et IRTF

Les analyses des fumées ont été effectuées par DTA-CPG/SM à partir de prélèvement dans des sacs Tedlar et par IRTF. Ces analyses ont permis d'identifier 17 composés (tableau IV-V), classés en six familles chimiques (tableau IV-VI).

Tableau IV - V: Facteurs d'émission des composés gazeux analysés par IRTF et DTA-CPG/SM

Analyse IRTF (g.kg ⁻¹)		
1	Methane	0,757 ± 0,053
2	Monoxyde d'azote	4,931 ± 0,238
Analyse DTA-CPG/SM (×10 ⁻³ g.kg ⁻¹)		
3	Hexane	9,080 ± 0,872
4	Benzène	12,859 ± 2,163
5	Heptène	13,399 ± 2,274
6	Toluène	18,872 ± 5,751
7	Ethylbenzène	5,220 ± 0,445
8	Xylène	4,819 ± 0,312
9	Styrène	7,125 ± 0,81
10	Xylène	4,863 ± 0,314
11	α-pinène	5,276 ± 0,393
12	Camphène	4,54 ± 0,185
13	Phénol	7,967 ± 0,984
14	Décane	5,137 ± 0,299
15	Undécane	4,724 ± 0,186
16	Dodécane	4,848 ± 0,364
17	Tridécane	4,852 ± 0,276

Les composés identifiés par DTA-CPG/SM ont des facteurs d'émissions de l'ordre du milligramme alors que ceux analysés par IRTF représentent les plus forts taux du mélange gazeux. Les composés benzéniques retrouvés tels que le benzène et le toluène présentent des facteurs d'émission respectifs de $12,859 \cdot 10^{-3} \text{ g.kg}^{-1}$ et $18,872 \cdot 10^{-3} \text{ g.kg}^{-1}$. Leurs concentrations représentent la plus forte proportion des composés analysés par DTA-CPG/SM. Le méthane est le seul composé linéaire de faible masse moléculaire analysé par IRTF avec un facteur d'émission de $0,757 \text{ g.kg}^{-1}$. Les autres composés linéaires de masses moléculaires plus élevées regroupent 6 constituants représentés majoritairement par l'hexane et l'heptène, dont les facteurs d'émission sont respectivement $9,080 \cdot 10^{-3} \text{ g.kg}^{-1}$ et $13,399 \cdot 10^{-3} \text{ g.kg}^{-1}$.

Le phénol ($7,967 \cdot 10^{-3} \text{ g.kg}^{-1}$) est le seul composé oxygéné identifié par DTA-CPG/SM dans le mélange gazeux. De l'oxyde d'azote est mis en évidence par infrarouge, il est retrouvé à un taux d'émission de $4,931 \text{ g.kg}^{-1}$.

Tableau IV - VI: Familles chimiques de composés émis (en g par kg de végétal), identifiées par CPG/SM et FTIR

Classes chimiques de composés émis (g.kg ⁻¹)	
Azotés	4,931 ± 0,238
Linéaires (C ₁ -C ₃)	0,757 ± 0,053
Linéaires (C ₆ -C ₁₉)	0,042 ± 0,003
Benzène et dérivés	0,054 ± 0,005
Oxygénés	0,008 ± 0,001
Terpènes	0,01 ± 0,001
Total (g.kg ⁻¹)	5,802 ± 0,296

4.2.2.3. Bilan massique de carbone

L'analyse et la quantification des composés carbonés et des suies nous ont permis d'aboutir au calcul du bilan massique de carbone à l'échelle du LSHR (cf. tableau IV-VII). Celui-ci est calculé à partir de l'équation 2.33. Le carbone retrouvé en phase gazeuse peut alors être comparé au carbone présent dans les aiguilles (530,5 g de carbone par kg de végétal) et obtenu par analyse élémentaire. Nos résultats montrent que 96,15 % du carbone initialement présent dans le végétal est retrouvé dans les produits de combustion (gaz + suies).

Le dioxyde et le monoxyde de carbone représentent les plus fortes proportions de carbone retrouvées lors de la combustion des aiguilles de pin soit respectivement près de 91% et près de 4% du carbone des produits de combustion (Fig. 4-7). Les suies sont assimilées à du carbone pur dans nos calculs. Elles représentent moins de 1% du mélange. Le carbone du méthane identifié par IRTF concerne environ 0,1%. Les composés organiques identifiés en CPG/SM représentent seulement 0,02% du mélange.

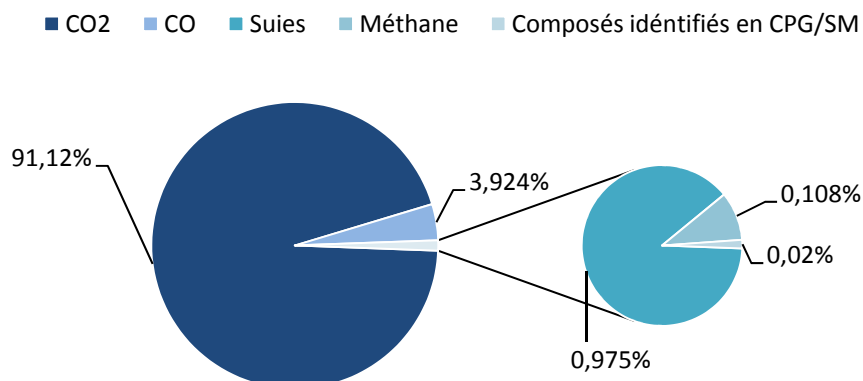


Figure 4 - 7: Pourcentage de carbone analysé des principaux composés (CO₂, CO, suies) et pourcentage de carbone analysé par CPG/SM et IRTF

Tableau IV - VII: Bilan massique de carbone pour la combustion des aiguilles de pin maritime

LSHR ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Dioxyde de carbone	483,408 ± 2,017
Monoxyde de carbone	20,818 ± 1,553
Coefficient d'extinction $g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$	
Suies	5,171 ± 0,428
IRTF $g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$	
Méthane	0,573 ± 0,040
CPG/SM ($\times 10^{-3} g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Hexane	7,602 ± 0,730
Benzène	11,87 ± 1,996
Heptène	11,485 ± 1,949
Toluène	17,231 ± 5,251
Ethylbenzène	4,727 ± 0,403
Xylène	4,364 ± 0,282
Styrène	6,577 ± 0,748
Xylène	4,404 ± 0,284
α -pinène	4,655 ± 0,347
Camphène	4,006 ± 0,163
Phénol	6,103 ± 0,754
Décane	4,341 ± 0,253
Undécane	3,997 ± 0,157
Dodécane	4,106 ± 0,308
Tridécane	4,113 ± 0,234

4.3. Analyse de l'effet d'échelle sur la combustion des aiguilles de *Pinus pinaster*

Cette partie expose une première analyse des effets du changement d'échelle sur la combustion des aiguilles de pin maritime en confrontant les résultats obtenus aux échelles du cône calorimètre et du LSHR.

4.3.1. Analyse de l'effet du changement d'échelle sur la dynamique de combustion

Afin d'étudier les effets du changement d'échelle sur la dynamique de combustion, notre étude s'est portée sur la comparaison de la perte de masse au cours du temps, de la puissance calorifique par unité de surface au cours de la combustion et de l'efficacité des combustions. Les résultats exposés sont les moyennes des 5 expériences présentées précédemment pour les deux échelles.

La figure 4-8a représente les puissances calorifiques exprimées en kW.m^{-2} pour la combustion de *Pinus pinaster* à l'échelle du cône calorimétrique et celle du LSHR panier. En exprimant la puissance par unité de surface de végétal, nous pouvons confronter les résultats, mettant en évidence l'effet de l'échelle des dispositifs expérimentaux sur la dynamique de combustion des aiguilles indépendamment des masses considérées. Les charges d'aiguilles ainsi que les propriétés du lit comme la perméabilité étant conservées dans les deux cas, le fait d'augmenter la masse ne devrait se manifester que par un feu de durée plus importante mais possédant les mêmes propriétés (énergétiques et fumées émises) s'il n'y a pas d'effet de l'échelle sur la combustion.

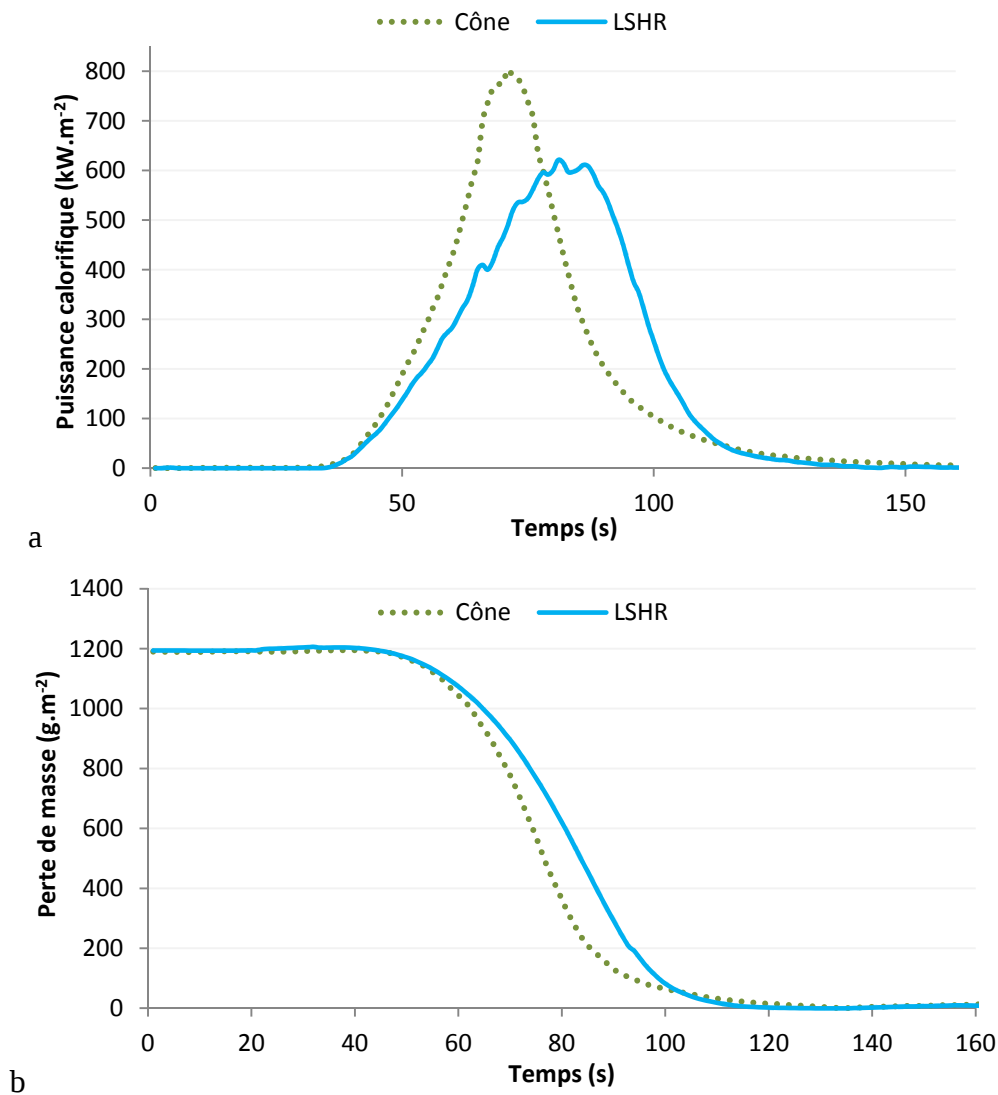


Figure 4 - 8: Courbes moyennes (5 expériences). a-Puissance calorifique moyennée (5 expériences) à l'échelle du cône et du LSHR. b-Courbes de la perte de masse moyennée à l'échelle du cône et du LSHR

La combustion aux deux échelles se déroule de manière quasi-similaire à première vue. Lors de l'inflammation, réalisée de manière analogue par un papier imbibé d'éthanol, la puissance calorifique par unité de surface augmente progressivement jusqu'à atteindre sa valeur maximale. Cette augmentation est plus rapide dans le cas de la combustion au cône calorimètre. Elle dure environ 30 secondes avec le cône, alors qu'elle est atteinte après 40 secondes de combustion avec le LSHR. Dans le cas de ce dernier, le pic de puissance par unité de surface est inférieur à celui observé lors des expériences au cône calorimètre. Cet écart est d'environ 195 kW.m^{-2} ce qui représente 24% de différence si on prend comme référence la combustion au cône. Nous pouvons donc affirmer au vue de ce premier résultat que la combustion est favorisée à l'échelle du cône. La mise en régime de combustion

(croissance du HRR) et la puissance maximale atteinte au cours des expériences (pic de HRR) sont plus importantes à l'échelle du cône.

Ce résultat est d'autant plus remarquable que l'énergie totale dégagée par unité de surface de combustible est constante pour ces deux échelles. Elles s'élèvent respectivement à $22865,59 \text{ J.m}^{-2}$ pour le cône calorimètre et $22797,99 \text{ J.m}^{-2}$ pour le LSHR (tableau IV-VIII). La différence est de $67,6 \text{ J.m}^{-2}$ en moyenne soit 0,3% en se référant à l'énergie émise avec le cône.

La figure 4-8b qui représente les pertes de masse au cours de la combustion corrobore l'analyse précédente. On note au moment de l'ignition une légère inflexion due à la combustion du papier imbibé d'éthanol et à l'allumage des premières aiguilles puis, les masses respectives décroissent quasi-linéairement pendant 45 secondes à l'échelle du cône et 60 secondes pour le LSHR. On note que la pente de la perte de masse correspondant aux expériences conduites avec le cône est plus importante que pour celles réalisées avec le LSHR avec des pics de vitesses de perte de masse respectivement de $43,65 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$ et $35,52 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$. Nous observons également que, la masse décroît plus lentement sur la fin des expériences conduites avec le cône calorimètre. En effet, à ce stade de la combustion la vitesse moyenne de la perte de masse dans le cas du cône s'élève à $4,76 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$ alors que dans le cas de la combustion avec le LSHR panier celle-ci est de $7,3 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$. Ceci est du à la combustion des résidus charbonneux qui est plus longue. Ce palier n'est pas observable lors de la combustion au LSHR où la combustion des charbons est plus importante pendant la phase de flamme. En effet, lors de la combustion de *Pinus pinaster*, 24% de la masse de départ de combustible devraient être retrouvés sous forme de résidus charbonneux après l'extinction de la flamme. Ce qui représenterait 3,6 g lors des expériences avec le cône calorimètre et 27,70 g avec le LSHR. Cependant, au moment de l'extinction de la flamme, nous retrouvons, 0,7 g de résidus charbonneux pour les expériences avec le cône calorimètre et 2,88 grammes avec le LSHR ce qui correspond à 19,4% de la masse potentielle de charbon (et environ 5% de la masse initiale d'aiguilles) dans le cas du cône et 10,4% (2,5% de la masse initiale d'aiguilles) dans le cas du LSHR.

Tableau IV - VIII: Grandeurs énergétiques pour les deux configurations expérimentales (énergie mesurée en fonction de la surface brûlée, efficacité de combustion).

	Cône	LSHR
$\Delta E (J.m^{-2})$	$22865,59 \pm 272,49$	$22797,99 \pm 74,31$
$\chi (\%)$	$96,89 \pm 0,49$	$96,61 \pm 0,13$

En ce qui concerne l'efficacité de la combustion pour les deux échelles, il est à noter qu'elles sont quasi-identiques puisqu'elles s'élèvent respectivement à 96,89% pour les expériences au cône calorimètre et 96,61% pour les expériences au LSHR.

Nous pouvons ainsi conclure que le changement d'échelle pour une charge identique ($1,2 \text{ kg.m}^{-2}$) de combustible végétal, influence la dynamique de combustion mais ne modifie pas l'efficacité de la combustion. En effet, dans les deux cas nous sommes en régimes sur-ventilés ce qui favorise aussi bien la combustion en phase gazeuse que la combustion en régime charbonné. Il convient toutefois de prendre avec précaution les valeurs des puissances calorifiques par unité de surface mesurées avec le cône calorimètre puisqu'une différence de 24% est observée lorsqu'on confronte les deux échelles.

4.3.2. Analyse de l'effet du changement d'échelle sur la production des fumées

Afin d'étudier les effets du changement d'échelle sur la production des fumées, notre étude s'est portée sur la comparaison du taux de fumées dégagées, noté RSR (Rate of Smoke Release), du total des fumées dégagées, noté TSR (Total Smoke Release), tous les deux obtenus à partir de l'opacimètre ainsi que des différents facteurs d'émissions mesurés précédemment (monoxyde et dioxyde de carbone, suies,...). Les résultats exposés sont les moyennes des 5 expériences réalisées à chacune des deux échelles.

Comme dans le paragraphe précédent, le RSR et le TSR sont des grandeurs exprimées par unité de surface de végétal afin de donner plus de sens à la confrontation. Le RSR ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}.\text{m}^{-2}$) est donnée par l'équation suivante :

$$RSR = \frac{k\dot{V}_{smoke}}{S_e} \quad (4.1)$$

Il représente le taux de production de fumées par unité de surface du combustible brûlé.

Le TSR en $\text{m}^2.\text{m}^{-2}$ est calculé selon l'équation suivante :

$$TSR = \frac{\int_0^T (k \dot{V}_{smoke}) dt}{S_e} = \frac{TSP}{S_e} \quad (4.2)$$

Il représente la production de fumée par unité de surface du combustible brûlé au cours d'une expérience. k est le coefficient d'extinction (m^{-1}), $\dot{V}_{smoke}$ est le débit massique de fumées en $\text{m}^3.\text{kg}^{-1}$ et S_e correspond à la surface occupée par l'échantillon de végétal en m^2 .

La figure 4-9 représente les courbes de RSR (moyennes de cinq expériences) à l'échelle du cône et à l'échelle du LSHR. On note une différence importante en terme de valeur de RSR, en effet, le pic de RSR est trois fois plus important à l'échelle du LSHR. Les fumées mesurées à partir de l'obscurcissement au moyen de l'opacimètre, sont quatre fois plus importantes lors des expériences conduites au LSHR que pour celles réalisées avec le cône calorimètre. Les valeurs de TSR sont respectivement égales à $12,508 \text{ m}^2.\text{m}^{-2}$ pour le cône et $49,225 \text{ m}^2.\text{m}^{-2}$ pour les mesures du LSHR. Ces résultats sont corroborés par les facteurs d'émissions obtenus pour les suies puisque celles-ci sont près de quatre fois plus élevées lors de la combustion à l'échelle du LSHR. Ces valeurs varient de $1,318 \text{ g.kg}^{-1}$ pour le cône à $5,171 \text{ g.kg}^{-1}$ pour le LSHR. La quantité plus importante de suies retrouvée lors de la combustion à l'échelle du LSHR explique une telle différence au niveau de la production des fumées. La flamme est beaucoup plus large ($0,35\text{m}$) pour les expériences conduites avec le LSHR que dans le cas des expériences réalisées avec le cône (inférieure à $0,1\text{m}$). La nucléation des suies est donc favorisée à l'échelle du LSHR.

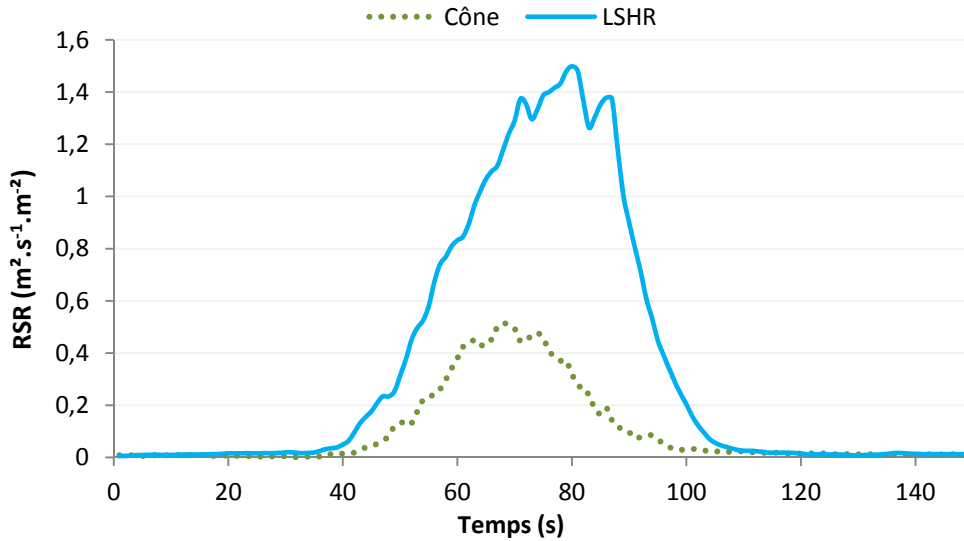


Figure 4 - 9: Courbes de RSR (en $(\text{m}^2.\text{s}^{-1}).\text{m}^{-2}$) mesurées lors des expériences menées avec le cône et le LSHR

Le tableau IV-IX exprime les valeurs moyennes des facteurs d'émission du monoxyde et du dioxyde de carbone obtenus pour les expériences conduites avec le cône et avec le LSHR.

Tableau IV - IX: Mesures de la production des fumées et des facteurs d'émissions moyens des suies, du CO et du CO_2 aux deux échelles de combustion

	Cône	LSHR
TSR ($\text{m}^2.\text{m}^{-2}$)	$12,508 \pm 1,765$	$49,225 \pm 3,469$
FE_{suies} (g.kg^{-1})	$1,318 \pm 0,193$	$5,171 \pm 0,428$
FE_{CO} (g.kg^{-1})	$50,91 \pm 4,10$	$48,57 \pm 3,62$
FE_{CO_2} (g.kg^{-1})	$1766,47 \pm 51,48$	$1772,50 \pm 7,40$

Le changement d'échelle ne semble pas influencer les facteurs d'émissions de CO et CO_2 . La quasi-complétude des réactions pour les deux échelles comme indiqué dans le tableau IV-IX explique la valeur identique de ces facteurs d'émission pour les deux échelles. La différence de production des fumées mis en évidence pour les deux échelles grâce à l'analyse du RSR et du TSR n'est donc pas due aux émissions de CO et de CO_2 .

L'étude des composés constituant les fumées par IRTF et par DTA-CPG/SM (cf. Tableau IV-X), révèle quelques différences entre les deux échelles pour la majorité des facteurs d'émission des familles de composés identifiés. Si on s'intéresse de façon détaillée aux composés majoritaires, on constate par exemple, que lors de la combustion réalisée avec le LSHR, un seul composé azoté est identifié, il s'agit du monoxyde d'azote (NO) présent également à l'échelle du cône mais à un taux inférieur. Il existe différentes voies de formation du monoxyde d'azote. La formation de ce composé est favorisée par des températures de flamme avoisinant 2000K et se produit dans les gaz brûlés (on parle alors de NO-thermique (Zeldovich, 1946), sa formation est alors due à la réaction entre le N_2 atmosphérique (par rupture de liaison) avec le dioxygène de l'air. La formation du NO peut également avoir lieu au sein du front de flamme, il s'agit du NO-précoce (ou prompt NO) de Fenimore (1971), initiée par les radicaux hydrocarbonés CH_i . Ce mécanisme de formation de NO est alors prépondérant dans les zones riches en combustible. Enfin, le NO peut également être formé à partir de l'azote présent dans le combustible, il s'agit du mécanisme de formation NO-combustible dont l'étape d'initiation est la pyrolyse. Dans le cas des combustions d'aiguilles de pin maritime, il a été montré par Perez-Ramirez et coll., (2014) que cette voie de formation qui est privilégiée. Ce mécanisme est prépondérant dans la zone réactionnelle de la flamme et sa vitesse de formation est supérieure à celle de la formation du NO-thermique. De plus, sa formation dépend de la température mais est favorisée par la présence de radicaux $O^\cdot$, $OH^\cdot$ et par O_2 . La forte proportion de NO à l'échelle du LSHR, peut également être attribué à l'absence de transformation du NO en NO_2 dont l'absence y est remarquable. Toutefois, ces points de différences seront abordés de façon plus détaillés au chapitre 5.

En ce qui concerne les composés linéaires de faibles masses moléculaires (de 1 à 3 atomes de carbones), nous n'identifions que le méthane lors de la combustion avec le LSHR dont le facteur d'émission est légèrement inférieur à celui identifié lors de la combustion avec le cône calorimètre. La différence d'efficacité de combustion aux deux échelles n'étant pas significative, nous ne pouvons attribuer ces différents taux de méthane à ce paramètre. Cependant, le méthane est principalement produit durant la phase de smoldering. Ainsi, la plus faible proportion de résidus charbonneux à l'échelle du LSHR peut expliquer cette différence. Nous observons également une différence importante concernant la famille des composés benzéniques. En effet, celle-ci est quatre fois moins importante lors de la combustion à l'échelle du LSHR où elle représente un facteur d'émission total de $0,054 \text{ g.kg}^{-1}$ alors qu'elle représente $0,238 \text{ g.kg}^{-1}$ à l'échelle du cône. Nous notons des différences

importantes de températures des fumées aux deux échelles de combustion pouvant expliquer ces différences de facteurs d'émission. En effet, à l'échelle du cône la température des fumées s'élève à 100°C alors qu'à l'échelle du LSHR elle s'élève à 42 °C lors de leur prélèvement. Or, à cette température de 42°C, les composés tels que le benzène, le toluène, l'éthylbenzène et les xylènes se trouvent sous forme liquide, leurs températures d'ébullition respectives étant de 80,1°C pour le benzène ; 110,6°C pour le toluène, de 136°C pour l'éthylbenzène et de 138 à 144°C pour les xylènes. Les composés peuvent donc être recondensés dans le conduit d'évacuation. Il peut en être de même à l'échelle du cône calorimètre notamment pour le toluène, l'éthylbenzène et les xylènes, cependant, le prélèvement des fumées étant réalisé plus en amont (à quelques dizaines de centimètres de la hotte d'extraction) qu'à l'échelle du LSHR (à environ 3 mètres de la hotte d'extraction) les recondensations seront limitées.

Tableau IV - X: Familles des composés identifiés aux deux échelles de combustion

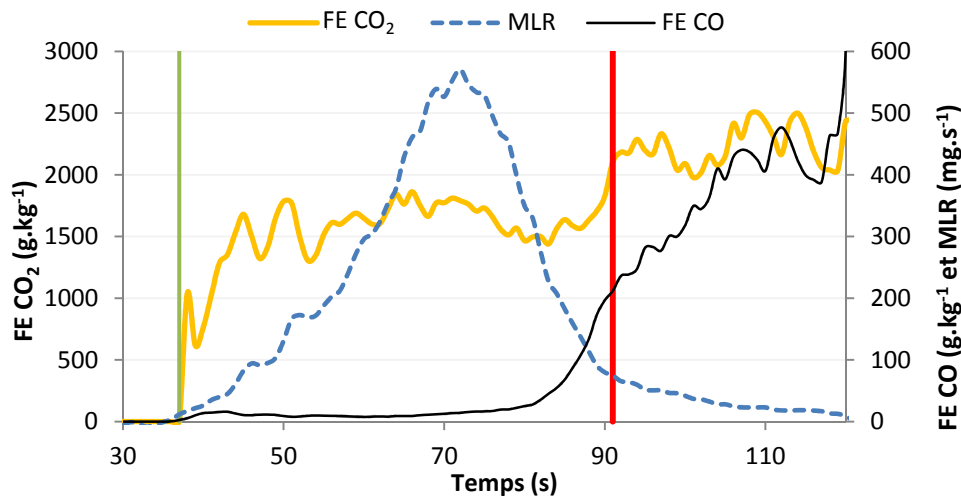
	Cône	LSHR
Azotés	5,410 ± 0,700	4,931 ± 0,238
Linéaires (C1-C3)	2,033 ± 0,347	0,757 ± 0,053
Linéaires (C6-C19)	0,024 ± 0,002	0,042 ± 0,003
Benzène et dérivés	0,238 ± 0,017	0,054 ± 0,005
Oxygénés	0,016 ± 0,01	0,008 ± 0,001
HAP	0,004 ± 0,000	-
Terpènes	0,003 ± 0,03	0,010 ± 0,001
Total (g.kg ⁻¹)	7,728 ± 1,106	5,802 ± 0,301

La figure 4-10 reproduit l'évolution des facteurs d'émission au cours du temps, du monoxyde et du dioxyde de carbone pour les deux échelles. On observe une différence dans l'évolution de ces facteurs d'émission. A l'échelle du cône calorimètre, les productions de CO et CO₂ connaissent une certaine constance durant la phase de flamme. C'est uniquement lors de la transition vers la phase de smoldering que les vitesses d'émission de ces composés augmentent pour se stabiliser (notamment pour le CO₂) à une valeur supérieure. Lors de la combustion à l'échelle du LSHR, nous pouvons observer que les vitesses d'émission de CO et CO₂ augmentent constamment avant l'extinction de la flamme donc avant la transition vers la phase de smoldering. Cette augmentation est certainement due au fait que les charbons sont

oxydés en quasi-totalité durant la phase de flamme à l'échelle du LSHR ce qui n'est pas le cas à l'échelle du cône. En effet, il reste 2,5% de la masse à consommer après extinction des flammes dans le cas du LSHR alors qu'il reste 5% dans le cas du cône. Le tableau IV-XI rappelle également que les proportions de CO et de CO₂ générées avant l'extinction à l'échelle du LSHR sont plus importantes que celles générées à l'échelle du cône calorimètre. Enfin, les vitesses d'émission de CO et de CO₂ augmentent également durant la phase de smoldering pour les deux échelles, mais il est difficile d'interpréter ces résultats qui sont altérés par les erreurs engendrées par les précisions des balances de part la faible quantité de charbon restant à se consumer (moins de 1 g dans le cas du cône et 2,88 g en moyenne dans le cas du LSHR).

Tableau IV - XI: Facteurs d'émissions du CO et du CO₂ au cours des phases de combustion

	Cône		LSHR	
	FE CO ($g.kg^{-1}$)	FE CO ₂ ($g.kg^{-1}$)	FE CO ($g.kg^{-1}$)	FE CO ₂ ($g.kg^{-1}$)
Flamme	22,48 ± 2,32	1 572,95 ± 57,65	30,490 ± 0,436	1668,019 ± 30,911
Smoldering	28,43 ± 3,15	193,52 ± 29,47	18,084 ± 3,597	104,477 ± 31,117



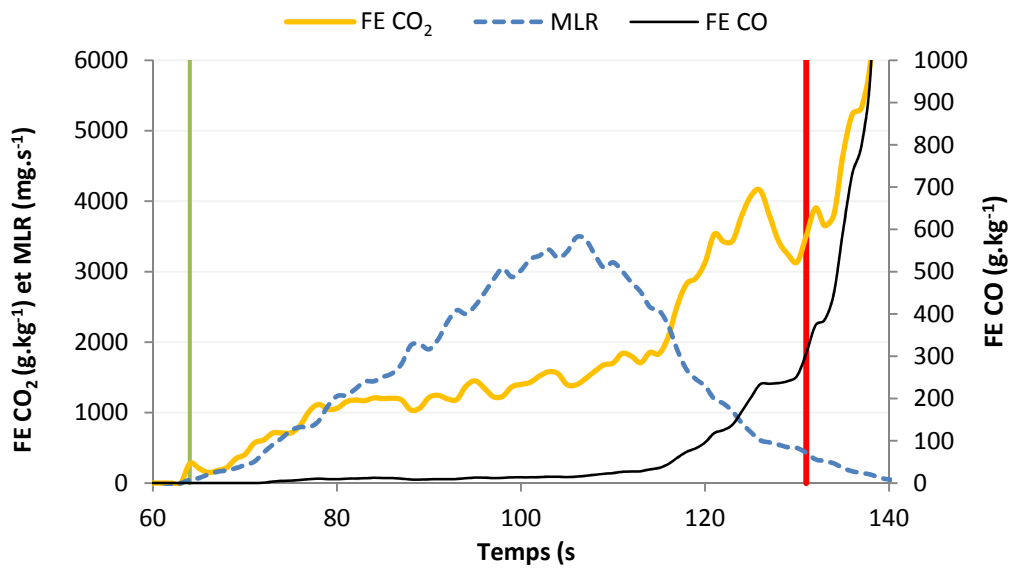


Figure 4 - 10: Courbes de vitesse d'émission de CO et CO₂ au cours de la combustion à l'échelle du cône (a) et du LSHR (b).

En conclusion de cette analyse, il convient de noter des différences essentielles en ce qui concerne la production des fumées en terme tout d'abord de quantité de fumées produite (plus de suies pour le LSHR et plus de composés benzéniques pour le cône) mais également en terme de dynamique des facteurs d'émission de CO et de CO₂ pour les deux échelles.

4.3.3. Analyse de l'effet du changement d'échelle sur le bilan massique de carbone

La comparaison des bilans massiques de carbone aux deux échelles de combustions est donnée dans le tableau IV-XII.

D'après les résultats exposés précédemment, nous notons que des taux similaires de carbone sont retrouvés dans les produits de combustion analysés lors des expériences aux deux échelles. En effet, nous retrouvons 95,50% de carbone avec le cône calorimètre et 96,15% avec le LSHR.

Dans les deux cas, le carbone est principalement retrouvé sous forme de dioxyde de carbone où il représente 91% du carbone gazeux. Il en est de même pour le monoxyde de carbone qui représente 4% du mélange pour les deux échelles de combustion. Nous notons un taux plus important pour les composés organiques identifiés à l'échelle du cône en CPG/SM qui représentent 0,05% du carbone contre 0,02% pour le LSHR. Les composés carbonés

identifiés à partir de l'IRTF (c'est-à-dire de 1 à 3 atomes de carbones et uniquement du méthane à l'échelle du LSHR) représentent un taux de carbone plus faible (0,1%) pour le LSHR que les composés retrouvés lors des analyses conduites avec le cône calorimètre (ou trois composés avaient été identifiés : le méthane, l'acétylène et l'éthylène) qui représentent 0,3% du carbone gazeux identifié. Les différences notables sont principalement dues aux suies et aux composés benzéniques. Le taux de suies est quatre fois plus important à l'échelle du LSHR puisqu'il représente 1% du carbone identifié alors qu'il ne représente que 0,25% lors de la combustion à l'échelle du cône. Le taux de composés benzéniques est quatre fois plus élevé à l'échelle du cône puisqu'il représente 0,05% du carbone identifié alors qu'il ne représente que 0,02% lors de la combustion à l'échelle du LSHR.

Tableau IV - XII: Bilan massique de carbone par familles de composés aux deux échelles

g.kg⁻¹	Cône	LSHR
Suies	1,318 ± 0,193	5,171 ± 0,428
Linéaires (C1-C3)	1,652 ± 0,282	0,573 ± 0,040
Linéaires (C6-C19)	0,019 ± 0,000	0,036 ± 0,004
Benzène et dérivés	0,218 ± 0,000	0,049 ± 0,009
Oxygénés	503,530 ± 15,794	504,232 ± 3,571
Terpènes	0,003 ± 0,000	0,009 ± 0,001
HAP	0,004 ± 0,000	-

4.4. Etude des aiguilles de *Pinus laricio*

Dans cette partie, nous exposerons les résultats obtenus lors de la combustion des aiguilles de *P. laricio* et nous les comparerons avec ceux obtenus pour la combustion des aiguilles de *P. pinaster* exposés dans le paragraphe 4.3.

4.4.1. Etude de la dynamique de combustion

De nombreuses expériences ont été réalisées afin d'étudier la combustion des aiguilles du pin laricio. Nous avons retenu les 5 meilleures expériences où nous avons utilisé pour chacune d'entre elles 100,05 grammes d'aiguilles en moyenne, afin de respecter une perméabilité identique. En raison de la reproductibilité de l'ensemble des expériences (figure 4-11) nous présenterons dans la suite, les résultats obtenus pour une seule expérience afin de faciliter la lecture.

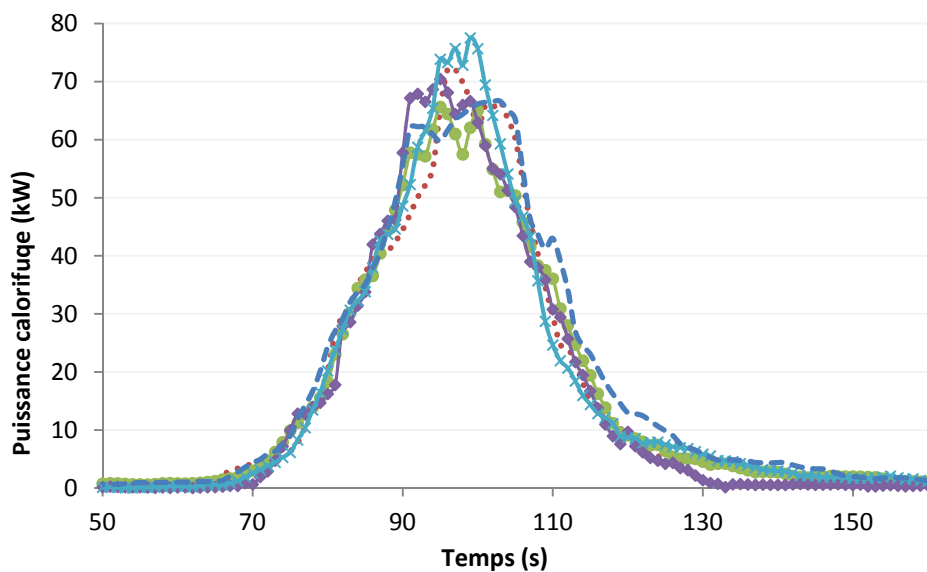


Figure 4 - 11: Puissance calorifique mesurée et reproductibilité des expériences.

La dynamique de combustion sera discutée en fonction de la perte de masse au cours de l'expérience, de la puissance calorifique ainsi que de l'énergie totale dégagée (figure 4-12a-d) et de l'efficacité de la combustion qui en résulte (Tab. IV - XIII). Ces calculs ont été effectués respectivement selon les équations 3.6 et 3.7. La masse de combustible brûlée est en moyenne de 97,50 g. Un pourcentage de réhydratation de 1,5% et une masse moyenne d'imbrûlées de 2,34 g ont été déduits de la masse initiale. Nous notons que la masse d'imbrûlés est semblable à celle obtenue lors de la combustion des aiguilles de pin maritime si on rapporte les résultats à une même masse initiale.

A cette échelle, la combustion est quasi complète, l'efficacité de combustion s'élève en moyenne à 97,27%. L'énergie dégagée est en moyenne de 2016,27 kJ pour une énergie disponible de 2068,37 kJ en moyenne.

Tableau IV - XIII: Grandeurs énergétiques : énergie mesurée, énergie théorique maximale, efficacité de la combustion et puissance maximale.

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
m_b (g)	97,77	98,80	97,59	97,58	97,10	$97,77 \pm 0,25$
ΔE (kJ)	2015,41	2040,28	2008,28	2014,43	2008,22	$2017,32 \pm 13,26$
ΔE_{max} (kJ)	2 074,08	2 095,93	2 070,27	2 070,06	2 059,89	$2074,05 \pm 13,32$
χ (%)	97,17%	97,34%	97,01%	97,31%	97,49%	$97,27 \pm 0,18$
$\dot{q}_{max}$ (kW)	71,32	67,28	72,16	65,65	72,58	$69,80 \pm 3,13$

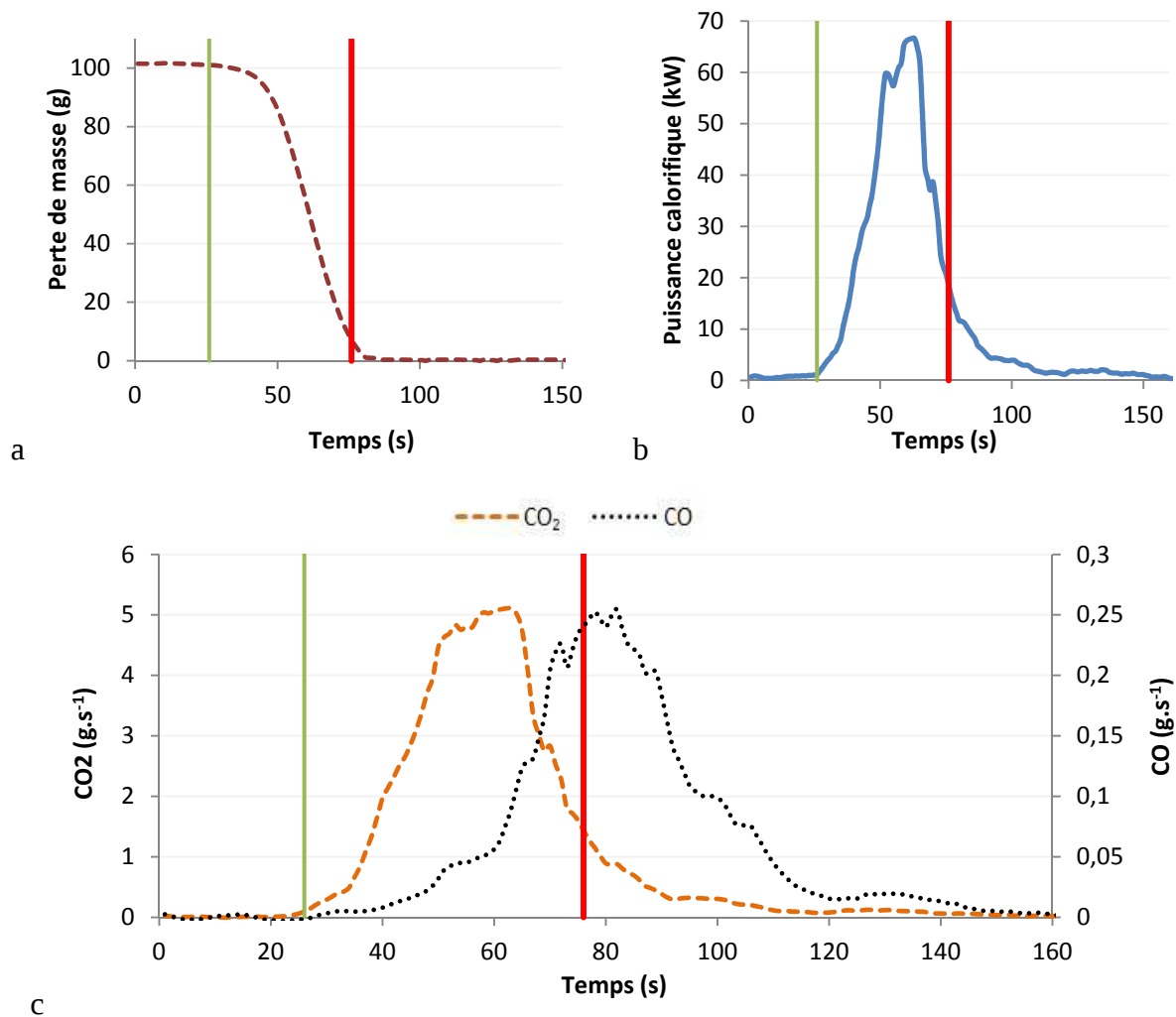
L'évolution de la masse de combustible au cours de l'expérience est présentée à la figure 4-12a. Elle est semblable à celle obtenue lors de la combustion des aiguilles du pin maritime. Après l'allumage, pendant environ 20 secondes, la perte de masse est assez lente avec une vitesse de perte de masse de $2,4 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$. Cette première dynamique correspond au temps nécessaire à l'inflammation du papier imbibé d'éthanol et à l'établissement de la flamme dans la totalité du panier de combustion. Puis la masse diminue de façon plus rapide avec une vitesse apparente de $26,8 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$. Cette deuxième dynamique correspond à une perte de masse quasi linéaire pendant environ 30 secondes. Il convient de relever que la perte de masse est dans ce cas plus importante que lors de la combustion des aiguilles de pin maritime pour laquelle la vitesse apparente de perte de masse durant cette phase était de $22,9 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$, soit $19,8 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$ si on ramène à 100 g de combustible comme dans le cas du pin laricio. Au moment de l'extinction de la flamme, la masse de combustible se retrouve sous forme de résidus charbonneux qui continueront à brûler pendant la phase de smoldering. Cette masse est en moyenne de 3,94 grammes. La masse de résidus charbonneux est donc plus importante pour les aiguilles de *P. laricio* puisqu'elle représente 4% de la masse de départ alors qu'elle était de 2,5% de la masse de départ pour les aiguilles de *P. pinaster*.

La phase de flamme dure environ 50 secondes. Au cours de cette phase, la puissance calorifique augmente dès l'inflammation du papier imbibé d'éthanol, et atteint son maximum, qui s'élève en moyenne à 69,66 kW, au bout d'environ 40 secondes (figure 4-12b). Elle diminue ensuite progressivement jusqu'à l'extinction de la flamme. Les résidus charbonneux se consomment alors pendant environ 70 secondes jusqu'à l'arrêt complet de la combustion. Pour une charge comparable, il est à noter que les combustions d'aiguilles des deux pins diffèrent en terme de puissance calorifique. En effet, la combustion des aiguilles du pin laricio connaît un pic de puissance calorifique plus important que celui observé lors de la combustion

d'aiguilles du pin maritime, pour laquelle la puissance maximale est de 58,6 kW. Nous pouvons attribuer cette différence à deux éléments. Tout d'abord, le PCI du *P. laricio* est 1,05 fois supérieur au PCI de *P. pinaster*. Ensuite la dynamique de combustion du premier est plus rapide que celle du second puisque la vitesse maximale de perte de masse est 1,14 fois supérieure dans le cas de *P. laricio* (les vitesses maximales de perte de masse sont respectivement $40,42 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$ pour *P. laricio* contre $35,52 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$ pour *P. pinaster*). Au total, la puissance attendue pour la combustion des aiguilles de *Pinus laricio* devrait être 1,14 fois supérieure à celle des aiguilles du pin maritime. Ce qui correspond au rapport des pics de puissances obtenus puisque le pic vaut 69,8 kW dans le cas de *P. laricio* et 58,6 kW dans le cas de *P. pinaster* (soit un rapport de 1,19). La vitesse de combustion plus élevée dans le cas de *P. laricio* provient de la structure des aiguilles. En effet d'une part, le ratio surface volume des aiguilles de pin laricio est plus élevé que celui des aiguilles de pin maritime ce qui favorise les échanges thermiques. Elles sont également thermiquement plus fines ce qui réduit le temps de préchauffage et favorise leur inflammation.

Les évolutions du CO et du CO₂ au cours du temps sont représentées sur la figure 4-12c. Elles sont analogues à celles observées lors de la combustion des aiguilles de *P. pinaster*. Dès l'ignition du combustible, la production de dioxyde de carbone augmente pendant environ 40 secondes atteignant son maximum de production lorsque la puissance calorifique atteint son maximum. La production diminue ensuite progressivement. La production de monoxyde de carbone est très faible dans les premiers instants de la combustion, puis commence à augmenter au moment où la production de dioxyde de carbone commence à diminuer. A la différence de *P. pinaster* pour lequel le pic de CO était atteint avant l'extinction de la flamme, dans le cas des aiguilles de *P. laricio*, le pic de CO est atteint au moment de l'extinction de la flamme. De par le dispositif expérimental qui favorise les apports d'air, une partie du CO produit en présence de flamme peut être attribuée à la consommation des charbons se produisant durant cette phase de flamme (comme cela a été détaillé dans les paragraphes précédents). Toutefois, au moment de l'extinction de la flamme, dans le cas du pin laricio, les charbons restants brûlent moins bien que lors de la combustion du pin maritime, les aiguilles plus fines ont tendance à tomber du panier alors que dans le cas de *P. pinaster*, celles-ci restent groupées entretenant ainsi leur combustion. Ainsi, la majeure partie du CO est émis après l'extinction de la flamme puis la production diminue progressivement pendant environ 80 secondes jusqu'à l'extinction complète.

La figure 4-12d illustre l'intégrale de la puissance calorifique au cours du temps ainsi que la perte de masse. Le THR suit la même tendance déjà exposée pour les expériences décrites dans les paragraphes précédents.



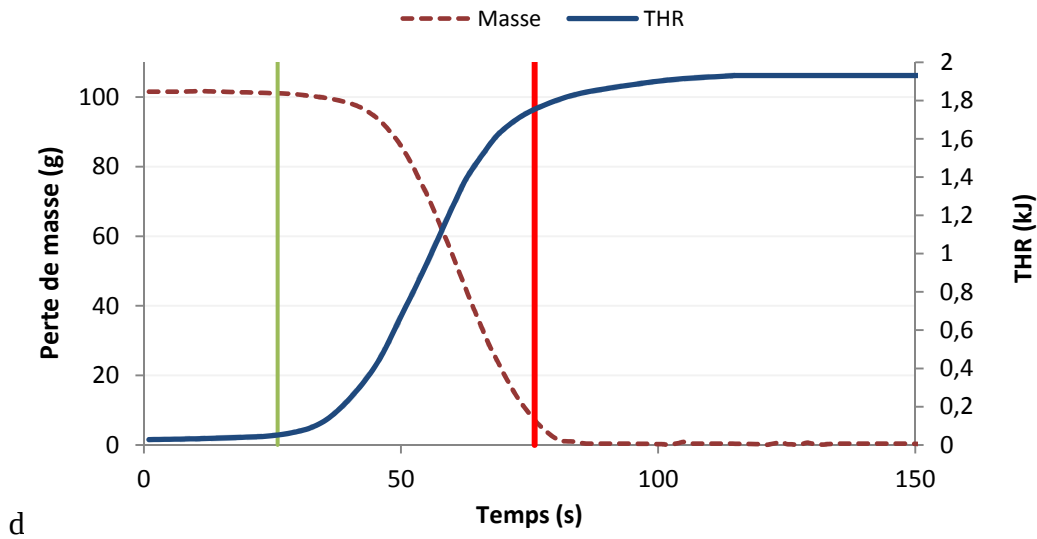


Figure 4 - 12: a-Evolution de la masse de PP au cours du temps, b-Puissance calorifique au cours du temps, c-Courbes de production de CO et CO₂ au cours du temps, d-Courbes d'évolution de la masse et du THR au cours du temps. Les temps d'ignition et de fin de flamme

4.4.2. Analyse des fumées

L'étude des fumées émises par la combustion des aiguilles de *P. laricio* a été effectuée à partir des analyseurs du LSHR et de l'IRTF. Comme pour l'étude au cône calorimètre les fumées n'ont pas été analysées par CPG/SM compte tenu du faible pourcentage que les composés (tels que les composés linéaires de 6 à 19 atomes de carbones, les composés benzéniques, ...) analysés par cette technique représente.

4.4.2.1. Etude des fumées à partir des analyseurs du LSHR et de l'IRTF

A partir des analyseurs du LSHR, nous avons tout d'abord étudié l'opacité des fumées lors de la combustion des aiguilles de pin laricio, en mesurant le coefficient d'extinction k dans le conduit d'évacuation (rappelons que dans ce cas, le débit d'extraction est de $1 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ alors qu'il était de $24 \text{ l} \cdot \text{s}^{-1}$ pour le cône calorimètre).

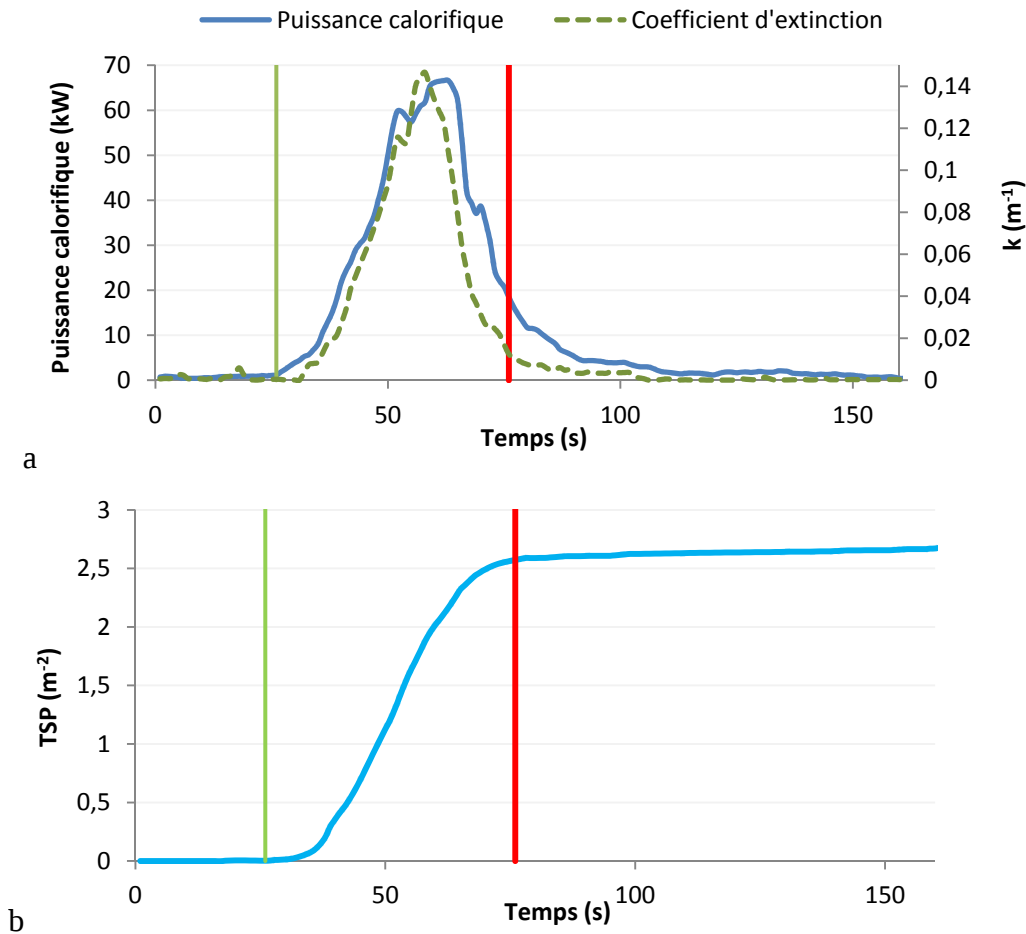


Figure 4 - 13: a-Coefficient d'extinction et puissance calorifique au cours du temps, b-Production totale des fumées au cours du temps

La figure 4-13a représente l'évolution du coefficient d'extinction au cours de l'expérience. Celui-ci évolue de manière similaire à celui observé lors de la combustion des aiguilles de pin maritime. En effet, nous notons une augmentation progressive dès l'inflammation du combustible, suivant l'évolution de la puissance calorifique. Le maximum d'opacité créée par les fumées est atteint au même instant que la puissance calorifique maximale soit environ 40 secondes après l'ignition du combustible. Puis, le coefficient d'extinction diminue jusqu'à l'extinction complète de la flamme pour laisser place à la combustion des résidus charbonneux pour laquelle la valeur de k est proche de 0.

La figure 4-13b décrit la production totale de fumées au cours de l'expérience où nous notons une augmentation quasi-linéaire (peu après la phase d'ignition), qui se termine quelques secondes avant l'extinction de la flamme. Après l'extinction, la courbe de production totale de fumée n'évolue plus ce qui démontre que les productions de fumées et de suies sont pratiquement nulles durant la phase de smoldering.

Lors de la combustion des aiguilles de pin maritime le coefficient d'extinction atteint une valeur supérieure à celle observée pour la combustion des aiguilles de pin laricio, celles-ci valent respectivement $0,2 \text{ m}^{-1}$ et $0,14 \text{ m}^{-1}$ au maximum d'extinction créé par les fumées. Leur production (avec *P. pinaster*) est donc plus importante ainsi que la quantité de suies dont les résultats sont regroupés dans le tableau IV-XIV. La masse de suies moyenne estimée lors des 5 expériences s'élève à 0,361 g alors qu'elle s'élève à 0,577 g pour la combustion de *P. pinaster*. En termes de facteur d'émission cette quantité représente $3,689 \text{ g.kg}^{-1}$ de végétal brûlé alors que la valeur est $5,171 \text{ g.kg}^{-1}$ dans le cas de *P. pinaster*. Cette différence est certainement due à la composition chimique des deux espèces de pin car l'efficacité de la combustion est très proche pour les deux types d'aiguilles (97,27 pour *P. laricio* est 96,61 pour *P. pinaster*).

Tableau IV - XIV: Total de fumées produites, masse et facteurs d'émissions des suies obtenus lors des combustions des aiguilles de *P. laricio* avec le LSHR

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
<i>TSP</i> (m^2)	2,76	2,90	2,87	2,70	2,93	$2,83 \pm 0,10$
<i>m</i>_{suies} (g)	0,333	0,349	0,346	0,325	0,353	$0,341 \pm 0,01$
<i>FE</i>_{suies} (g.kg^{-1})	3,401	3,536	3,542	3,329	3,636	$3,489 \pm 0,12$

Les productions de monoxyde et de dioxyde de carbone ont également été calculées. Les résultats sont regroupés dans le tableau IV-XV.

Tableau IV - XV: Quantité de monoxyde et de dioxyde de carbone mesurées lors de la combustion de *Pinus laricio* et facteurs d'émissions mesurés par analyseurs IRND et IRTF

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
<i>CO</i> (g)	8,735	9,057	8,622	8,136	8,100	$8,530 \pm 0,409$
<i>CO</i>₂ (g)	168,270	163,517	162,147	159,459	162,505	$163,180 \pm 3,217$
<i>FE</i>_{CO} (g.kg^{-1})	89,338	91,675	88,354	83,374	83,420	$87,232 \pm 3,703$
<i>FE</i>_{CO₂} (g.kg^{-1})	1721,089	1655,044	1661,512	1634,137	1673,579	$1669,072 \pm 32,406$
<i>FE</i>_{CH₄} (g.kg^{-1})	0,823	0,947	0,872	1,000	0,979	$0,924 \pm 0,074$
<i>FE</i>_{NO} (g.kg^{-1})	4,570	5,306	3,761	5,650	4,865	$4,830 \pm 0,726$

Une quantité importante de monoxyde de carbone est émise principalement pendant la phase de smoldering, qui représente 66% de la production totale soit une masse de 5,640g. Nous avons observé la tendance inverse dans le cas des aiguilles de pin maritime. Le dioxyde de carbone est quant à lui émis principalement durant la phase de flamme à hauteur de 85% (le taux était de 95% pour *P. pinaster*).

En ce qui concerne les facteurs d'émission de ces deux molécules, nous pouvons noter que la combustion des aiguilles de pin laricio produit une quantité de monoxyde de carbone supérieure ($87,23 \text{ g.kg}^{-1}$) à celle obtenue pour la combustion de *P. pinaster* ($48,57 \text{ g.kg}^{-1}$). La quantité de dioxyde de carbone est au contraire moins importante puisque le facteur d'émission moyenne s'élève à $1669,07 \text{ g.kg}^{-1}$ pour *P. pinaster* alors qu'il est de $1772,50 \text{ g.kg}^{-1}$. Comme pour la production des suies, nous attribuons ces différences à la nature chimique des espèces végétales (différences certainement dans la composition des gaz de dégradation de ces deux espèces). En effet, l'efficacité de combustion étant du même ordre pour les deux pins et le taux de charbons brûlés lors de la phase de flamme étant supérieur pour les aiguilles de pin maritime (19% contre 17% pour le pin laricio), nous aurions observé un taux de CO plus important dans le cas de *P. pinaster* si la composition des deux espèces était identique.

La figure 4-14 représente l'évolution des facteurs d'émission de CO et CO₂ au cours du temps, ainsi que la dérivée de la perte de masse. Le monoxyde et le dioxyde de carbone sont émis à vitesse quasi constante durant les 30 secondes suivant l'allumage. Puis on constate une augmentation simultanée des deux facteurs d'émission. Nous avons obtenu un comportement analogue dans le cas de *P. pinaster*. Nous l'avons alors expliqué par la consommation des charbons qui se produisent durant la phase de flamme. Nous retrouvons ici le même phénomène qui est donc indépendant du combustible. Une partie du combustible, situé au cœur du panier, est donc sous forme de charbon et se consume durant la phase de la flamme. Cette hypothèse est corroborée par la quantité de combustible restant au moment de l'extinction de la flamme. En effet, si 24% du combustible étaient retrouvés sous forme de résidus charbonneux au moment de l'extinction de la flamme, cela représenterait une masse de 24,13 g de combustible, or à cet instant il ne reste en moyenne que 3,94 g, il y a donc environ 20 g de charbon qui brûlent durant la phase de flamme. Les facteurs d'émission émis durant les différentes phases de combustion sont présentés dans le tableau IV-XVI. Le dioxyde de carbone est donc principalement émis durant la phase de flamme ($\approx 1415 \text{ g.kg}^{-1}$) alors que le monoxyde de carbone est émis majoritairement durant la phase de smoldering qui

reste difficilement observable sur la figure 4-14 en raison de l'erreur engendrée par la dérivée de la perte de masse pour des faibles valeurs de la masse.

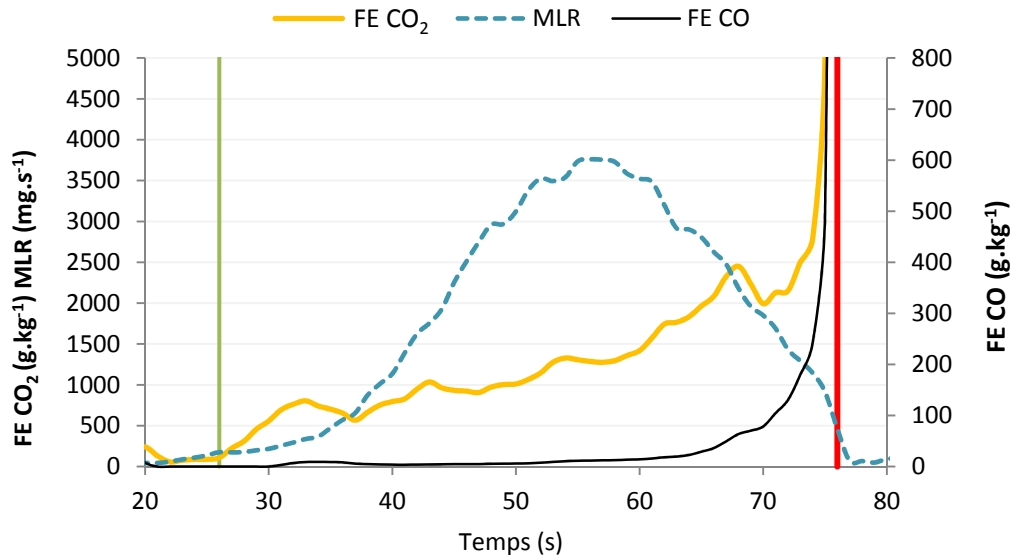


Figure 4 - 14: Evolution des facteurs d'émissions FE CO et FE CO₂ au cours de la combustion

Tableau IV - XVI: Facteurs d'émission de CO et CO₂ au cours des phases de combustion

	FE CO (g.kg ⁻¹)	FE CO ₂ (g.kg ⁻¹)
Flamme	30,072 ± 5,611	1414,679 ± 51,466
Smoldering	57,669 ± 8,645	254,448 ± 35,811

D'autres composés présents dans les fumées issues de la combustion des aiguilles de *Pinus laricio* ont été identifiés par IRTF. Nous avons ainsi observé du monoxyde d'azote et du méthane qui sont présents en quantité importante. En effet, le facteur d'émission moyen du monoxyde d'azote est de 4,830 g.kg⁻¹ ce qui représente une quantité proche de celle retrouvée lors de la combustion de *P. pinaster* dont le facteur d'émission est de 4,931 g.kg⁻¹. Le taux de méthane qui est de 0,924 g.kg⁻¹ est en revanche légèrement supérieur à celui retrouvé lors de la combustion de *P. pinaster* (0,757 g.kg⁻¹).

4.4.2.2. Bilan massique de carbone

A partir de l'analyse des composés émis lors de la combustion de *Pinus laricio* par les analyseurs IRND du LSHR et de l'IRTF, un bilan massique de carbone (tableau IV - XVII) a été effectué et comparé au carbone contenu dans les aiguilles (déterminé par analyse élémentaire). Ce dernier est présent à hauteur de 503,9 g.kg⁻¹. Le bilan massique de carbone nous indique que nous retrouvons 98,68% du carbone sous forme de gaz. Ce résultat est supérieur à celui obtenu lors de la combustion de *P. pinaster* dont le bilan massique de carbone s'élève à 96,15%.

Tableau IV - XVII: Bilan massique en carbone pour la combustion des aiguilles pin laricio

Cône calorimètre ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Dioxyde de carbone	455,202 ± 8,838
Monoxyde de carbone	37,59 ± 1,738
Coefficient d'extinction ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Suies	3,702 ± 0,066
IRTF ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Méthane	0,692 ± 0,056

Le carbone est comme lors de la combustion de *P. pinaster* retrouvé principalement sous forme de dioxyde de carbone qui représente 90,34% des émissions des composés gazeux analysés (figure 4-15). La proportion de monoxyde de carbone est de 7,46% alors qu'elle est seulement de 4% pour la combustion de *P. pinaster*. Les suies représentent 0,74% du mélange gazeux, dans le cas de la combustion de *P. pinaster* le taux s'élevait à 0,975%. Le méthane est retrouvé à un pourcentage analogue pour les deux espèces de pins (respectivement 0,14% pour *P. laricio* et 0,11% pour *P. pinaster*).

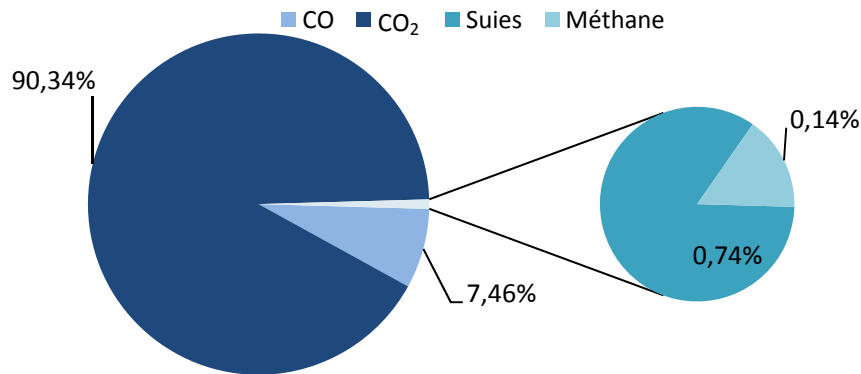


Figure 4 - 15: Pourcentages de carbone analysé des principaux composés (CO₂, CO, suies) et pourcentage de carbone analysé par IRTF

4.5. Analyse de l'effet d'échelle sur la combustion des aiguilles de *Pinus laricio*

Dans cette partie, nous analyserons l'effet du changement d'échelle sur la combustion des aiguilles de *P. laricio* par confrontation des résultats obtenus aux échelles du cône calorimètre et du LSHR.

4.5.1. Analyse de l'effet d'échelle sur la dynamique de combustion

L'effet du changement d'échelle sur la dynamique de combustion a été étudié à partir des comparaisons de la perte de masse au cours du temps, de la puissance calorifique par unité de surface au cours de la combustion et de l'efficacité des combustions. Dans cette partie, les résultats exposés correspondent à la moyenne des 5 expériences présentées pour chacune des deux échelles.

Les puissances calorifiques exprimées en fonction de la surface de combustion (kW.m^{-2}) sont représentées à la figure 4-16 pour les deux échelles. Comme dans le cas de *Pinus pinaster*, la charge et la perméabilité ont été conservées.

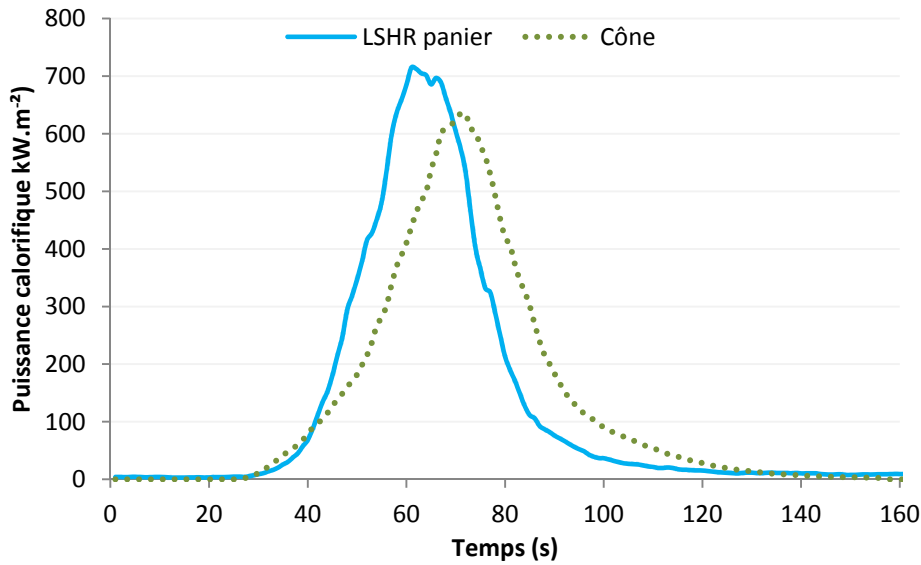


Figure 4 - 16: Courbes moyennées (sur 5 expériences) pour la mesure de la puissance calorifique aux échelles du cône calorimètre et du LSHR

Les dynamiques de combustion présentent de légères différences entre les deux échelles. On note également que le comportement est l'inverse de celui observé à la figure 4-8a lors de la comparaison de la dynamique de combustion des aiguilles de pin maritime. En effet, on note une augmentation plus rapide de la puissance calorifique après l'allumage à l'échelle du LSHR. La puissance maximale est atteinte après 35 secondes de combustion alors qu'il faudra 10 secondes de plus pour atteindre la puissance maximale dans le cas de la combustion avec le cône calorimètre. Les pics de puissances calorifiques diffèrent également. Dans le cas du cône, il est inférieur à celui obtenu avec le LSHR. Cette différence est d'environ 60 kW.m^{-2} , soit 9% en prenant comme référence la combustion au LSHR.

On note également une différence en ce qui concerne l'énergie totale dégagée par unité de surface de combustible. Elle s'élève respectivement à 20994 J.m^{-2} pour le cône et 22415 J.m^{-2} pour le LSHR (tableau IV-XVIII), ce qui représente une différence de 6%. La combustion des aiguilles de pin laricio est donc plus énergétique avec le LSHR. Ce résultat se retrouve dans l'efficacité de la combustion qui s'élève à 97,27% à cette échelle alors qu'elle est seulement de 93,96% dans le cas du cône calorimètre.

Tableau IV - XVIII : Energies dégagées en fonction des surfaces brûlées et efficacité de combustion

	Cône	LSHR
$\Delta E (J.m^{-2})$	$20\,993,65 \pm 356,98$	$22414,68 \pm 147,37$
$\chi (\%)$	$93,96 \pm 0,82$	$97,27 \pm 0,18$

La figure 4-17 représente les pertes de masse aux deux échelles. Ces tracés corroborent la différence de combustion observée précédemment. La pente de la perte de masse dans le cas du LSHR est plus marquée que dans le cas du cône indiquant une combustion plus rapide à l'échelle du LSHR. Les vitesses de perte de masse sont respectivement de $40,01 \text{ g.s}^{-1}.m^{-2}$ pour le LSHR et $31,62 \text{ g.s}^{-1}.m^{-2}$ pour le cône dans les zones quasi-linéaires de perte de masse associées aux deux échelles. Nous observons à la fin de l'expérience que la perte de masse pour les expériences menées avec le cône calorimètre est moins « raide » qu'à l'échelle du LSHR. Ceci est dû à la combustion des résidus charbonneux, plus longue à cette échelle. En effet, si nous retrouvions les 24% de la masse de combustible sous forme de résidus charbonneux au moment de l'extinction de la flamme cela représenterait respectivement des masses de 3,52 g à l'échelle du cône et 23,28 g à l'échelle du LSHR. Or, lors de nos expériences, nous retrouvons 0,81 g de charbon à l'échelle du cône ce qui représente 23% de la masse potentielle de charbon (et 5% de la masse initiale d'aiguilles). Dans le cas des expériences avec le LSHR, la masse restante est en moyenne de 3,94 g, ce qui représente environ 17% de la masse potentielle de charbon (et 4% de la masse initiale d'aiguilles). Il convient de noter que nous avons retrouvé un résultat comparable dans le cas de la combustion des aiguilles de *P. pinaster* aux deux échelles.

Pour une charge identique, nous pouvons conclure que le changement d'échelle de combustion influence faiblement la dynamique de combustion en termes de pic de puissance calorifique mais influence de façon plus importante sur l'efficacité de combustion. Nous constatons également que la combustion des résidus charbonneux est plus importante avec le cône calorimètre.

Nous observons également un effet d'échelle sur la dynamique de combustion des aiguilles de pin puisque les comportements observés à l'échelle du cône et à l'échelle du LSHR sont opposés dans le cas des deux types d'aiguilles. En effet, la dynamique de combustion est plus forte dans le cas des aiguilles de pin laricio à l'échelle du LSHR qu'à l'échelle du cône alors que nous observons le comportement inverse pour les aiguilles de pin

maritime. Toutefois la différence est plus faible dans le cas des aiguilles de pin laricio puisque le pic de puissance diffère de 9% aux deux échelles alors que cette différence était de 20% pour les aiguilles de *P. pinaster*. La différence essentielle entre les aiguilles de *P. laricio* et de *P. pinaster* provient de leur géométrie puisque leurs ratios surface-volume sont respectivement de 3057 m^{-1} et 4360 m^{-1} . Il semble donc au vu de ces résultats que plus les combustibles sont thermiquement fins et moins leur combustion est affectée par le changement d'échelle.

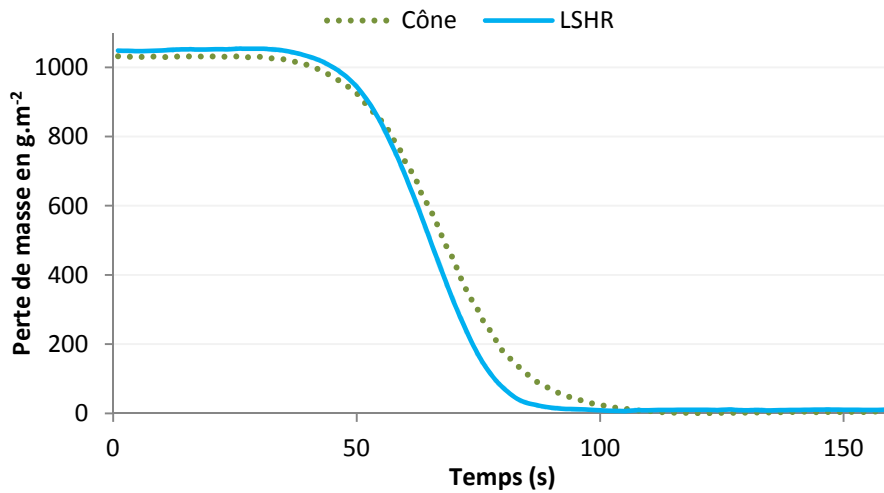


Figure 4 - 17: Courbes de perte de masse moyennée aux deux échelles

4.5.2. Analyse de l'effet du changement d'échelle sur la production des fumées

Comme dans le cas de la combustion de *Pinus pinaster*, nous avons analysé l'effet du changement d'échelle sur la production des fumées en nous intéressant principalement à la comparaison du taux de fumée dégagée (RSR), au total de fumées dégagées (TSR) obtenu par opacimétrie ainsi qu'aux facteurs d'émissions obtenus grâce aux analyseurs IRND et IRTF.

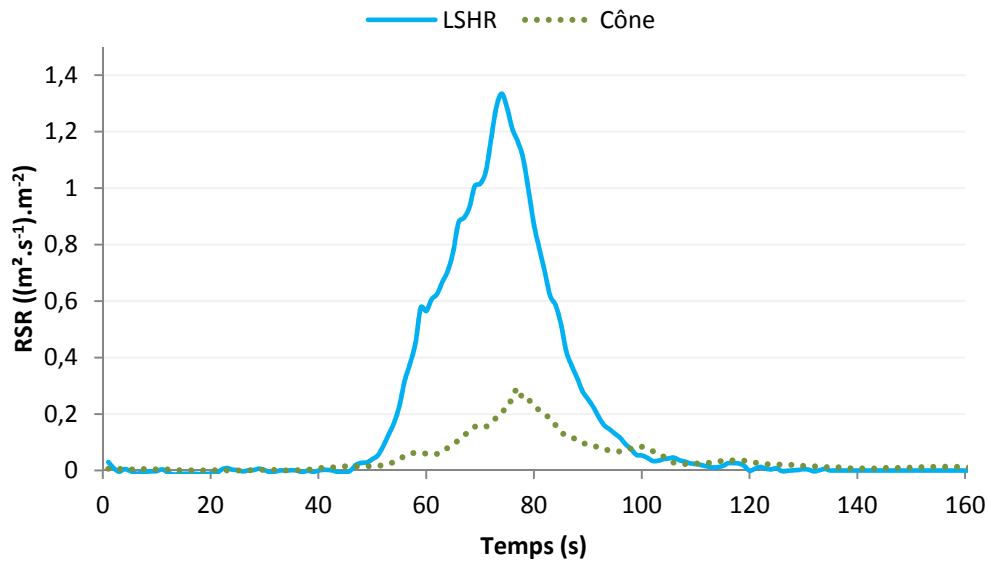


Figure 4 - 18: Taux d'émission de fumées au cours des expériences (RSR en $(m^2.s^{-1}).m^{-2}$) au moyen du cône et du LSHR

Les courbes moyennées de RSR au cours du temps à l'échelle du cône calorimètre et du LSHR sont représentées sur la figure 4-18. On note une différence importante en termes de valeurs de RSR pour les deux échelles de combustion. Les fumées émises à l'échelle du LSHR produisent un obscurcissement quatre fois plus important que celui observé à l'échelle du cône calorimètre puisque les valeurs de TSR (tableau IV-XIX) sont respectivement égales à $7,30 m^2.m^{-2}$ pour le cône calorimètre et $29,49 m^2.m^{-2}$ pour le LSHR. Cette différence est due à la présence de suies en plus grande proportion lors des expériences avec le LSHR. En effet, il y a quatre fois plus de suies à l'échelle du LSHR, avec un facteur d'émission de $3,489 g.kg^{-1}$ alors que ce facteur est de $0,833 g.kg^{-1}$ à l'échelle du cône calorimètre.

Tableau IV - XIX: Mesure de l'opacité des fumées et des facteurs d'émissions moyens des suies, du CO et du CO_2 aux deux échelles.

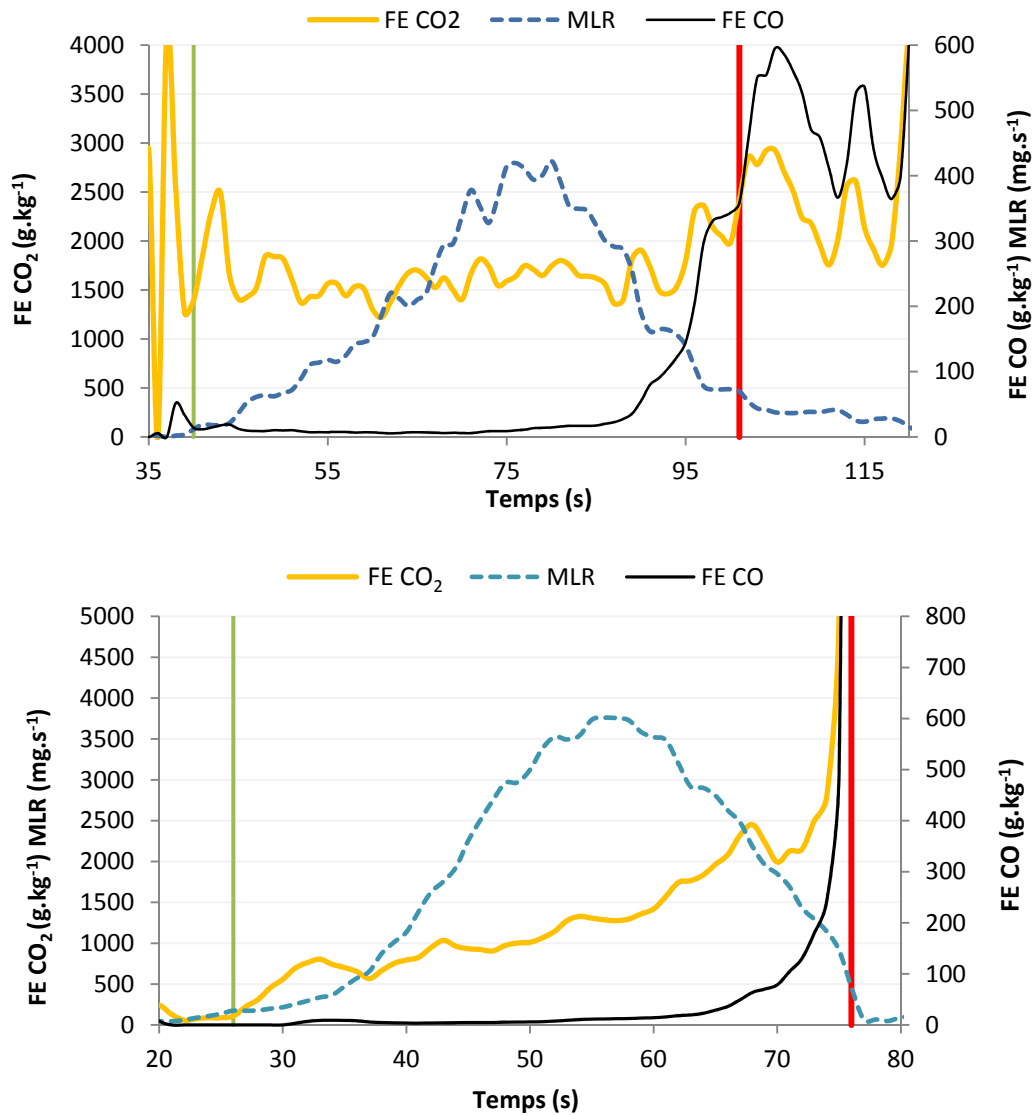
	Cône	LSHR
TSR ($m^2.m^{-2}$)	$7,302 \pm 1,190$	$29,49 \pm 1,03$
FE_{suies} ($g.kg^{-1}$)	$0,833 \pm 0,092$	$3,489 \pm 0,12$
FE_{CO} ($g.kg^{-1}$)	$60,150 \pm 4,043$	$87,710 \pm 4,054$
FE_{CO_2} ($g.kg^{-1}$)	$1657,388 \pm 14,537$	$1669,072 \pm 32,406$

En ce qui concerne les facteurs d'émission, nous notons une différence importante pour le monoxyde de carbone dont les taux varient de $60,15 \text{ g.kg}^{-1}$ pour le cône calorimètre à $87,71 \text{ g.kg}^{-1}$ pour le LSHR. Cette différence peut être attribuée à une moins bonne combustion des résidus charbonneux dans le cas du LSHR. En effet, nous pouvons voir dans le tableau IV-XX que l'émission de CO est plus importante après extinction de la flamme à l'échelle du LSHR. En revanche, il n'y a pas de différence en ce qui concerne le dioxyde de carbone dont le taux varie peu pour les deux échelles de combustion.

La figure 4-19 reproduit l'évolution des facteurs d'émission au cours du temps pour le monoxyde et le dioxyde de carbone aux échelles du cône et du LSHR. Nous observons que l'évolution de ces deux composés diffère aux deux échelles. Pour le cône calorimètre, ils sont émis avec une certaine constance durant la phase de flamme, puis tendent à augmenter après le pic de perte de masse et à l'approche de l'extinction de la flamme, notamment en ce qui concerne le monoxyde de carbone qui est principalement émis pendant la phase de smoldering. Or lors de la combustion à l'échelle du LSHR, les deux composés sont émis différemment, puisque l'augmentation, plus conséquente, débute rapidement après l'allumage. Cette augmentation plus précoce peut être expliquée par le léger phénomène de propagation ayant lieu au sein du panier de combustion avec le LSHR, de l'ordre d'une vingtaine de secondes, entraînant la combustion d'une partie des charbons pendant la phase de croissance de la flamme. A l'échelle du cône calorimètre, l'augmentation de l'émission de CO se produit après le pic de perte de masse. C'est à cet instant que doit débiter la combustion des charbons à l'échelle du cône certainement favorisée par l'entraînement d'air au centre du panier. Le calcul des facteurs d'émission en fonction des phases de combustion (tableau IV-XX) démontre cette différence de comportement, puisque nous pouvons constater qu'une plus grande quantité de monoxyde de carbone est émise pendant la phase de flamme dans le cas du LSHR. Il est difficile d'observer l'évolution de ces facteurs d'émission durant la phase de smoldering du fait des faibles masses de combustibles restantes après l'extinction de la flamme (0,74 g dans le cas du cône et 3,22 g dans le cas du LSHR). Cependant le tableau IV-XX montre que les émissions de CO sont plus importantes après l'extinction dans le cas du LSHR, ce qui traduit une moins bonne combustion des résidus charbonneux à l'échelle du LSHR. Cette tendance qui n'avait pas été observée lors de l'analyse du *P. pinaster* est certainement due à la répartition spatiale des résidus charbonneux qui de part la petite taille des aiguilles entraîne un refroidissement plus rapide des résidus dans le panier.

Tableau IV - XX: Facteurs d'émissions du CO et du CO₂ au cours des phases de combustion

	Cône		LSHR	
	FE CO ($g.kg^{-1}$)	FE CO ₂ ($g.kg^{-1}$)	FE CO ($g.kg^{-1}$)	FE CO ₂ ($g.kg^{-1}$)
Flamme	25,743 ± 3,088	1 485,066 ± 22,607	30,072 ± 5,611	1414,679 ± 51,466
Smoldering	34,407 ± 6,251	172,322 ± 24,411	57,669 ± 8,645	254,448 ± 35,811


Figure 4 - 19: Courbes de vitesse d'émission de CO et CO₂ lors de la combustion des aiguilles de pin laricio aux échelles du cône et du LSHR

L'analyse des composés constituant les fumées par IRTF révèle des différences en nombre de composés identifiés mais également en concentrations (tableau IV-XXI). En effet, à l'échelle du LSHR, nous identifions deux composés, le méthane et le monoxyde d'azote

dont les facteurs d'émissions respectifs sont $0,924 \text{ g.kg}^{-1}$ et $4,830 \text{ g.kg}^{-1}$. Leurs production au cours du temps aux deux échelles de combustions sont représentées figure 4-20. A l'échelle du cône, nous identifions trois fois plus de composés parmi lesquels du monoxyde d'azote ($2,723 \text{ g.kg}^{-1}$) et du méthane ($1,155 \text{ g.kg}^{-1}$) majoritairement. Cependant nous retrouvons également du dioxyde d'azote, de l'ammoniac et de l'éthylène. L'ammoniac est un composé retrouvé principalement lors de la phase de smoldering, celle-ci étant plus marquée lors de la combustion avec le cône calorimètre puisque nous avons vu qu'il y avait plus de résidus charbonneux à cette échelle. Comme dans le cas des combustions des aiguilles de pin maritime aux échelles du cône calorimètre, nous notons des différences en ce qui concerne les facteurs d'émissions notamment pour les composés azotés. En effet, nous identifions aux deux échelles du monoxyde d'azote, cependant le facteur d'émission moyen obtenu à l'échelle du LSHR est environ deux fois supérieur à celui obtenu avec le cône calorimètre. Des différences de température des fumées sont à souligner dans le cas des deux échelles de combustion. En effet, à l'échelle du cône calorimètre celles-ci s'élèvent en moyenne à 95°C alors que dans le cas du LSHR, elles s'élèvent en moyenne à 45°C . Les fumées à l'échelle du LSHR, sont refroidies par dilution dans l'air de part la disposition du panier, (celui-ci repose sur un socle favorisant un apport d'air frais tout au long de la combustion). Ces fumées plus froides, semblent figer la composition des fumées. En effet, certains composés identifiés à l'échelle du cône calorimètre ne sont pas présents lors de la combustion à l'échelle du LSHR, notamment le NO_2 , l'éthylène et l'acétylène. Ce refroidissement peut donc être à l'origine de la forte proportion de NO retrouvée à l'échelle du LSHR. Le NO n'étant pas dans ce cas, transformé en NO_2 . La production de méthane à l'échelle du LSHR est légèrement inférieure à celle observée pour le cône calorimètre. Tout d'abord, nous notons sur la figure 4-20a qu'à l'échelle du cône, la production de méthane est fortement liée à la combustion des résidus charbonneux. Contrairement à la production de NO qui intervient dès le début de la combustion (figure 4-20c) et pendant toute la durée de l'expérience (phases de flamme et smoldering), la production de méthane débute peu avant l'extinction de flamme au moment de la combustion des premiers charbons (figure 4-20a). Elle se poursuit ensuite durant la phase de smoldering. A l'échelle du LSHR, la production de méthane débute également durant la phase de flamme (figure 4-20 b) notamment à cause du phénomène de pseudo propagation ayant lieu à cette échelle et provoquant la combustion d'une partie des résidus charbonneux à cet instant. Cependant, la quantité de résidus charbonneux disponibles à l'extinction de la

flamme, plus faible à cette échelle, entraînent une émission de méthane moins importante durant la phase de smoldering.

Les résultats présentés dans ce paragraphe montrent que le changement d'échelle de combustion influence la production des fumées en termes de fumées produites (TSR plus important avec le LSHR) et de suies (facteur d'émission supérieur avec le LSHR). Cette modification d'échelle agit également sur la nature et la quantité des composés émis, nous retrouvons un plus grand nombre de composés avec le cône calorimètre mais à des concentrations inférieures à celles retrouvées avec le LSHR. Nous observons également une différence en termes de dynamique des facteurs d'émission de CO et CO₂ pour les deux échelles.

Tableau IV - XXI: Facteurs d'émissions des composés identifiés aux deux échelles (- : Non détecté).

	Cône	LSHR
FE_{CH₄} (g.kg⁻¹)	1,155 ± 0,589	0,924 ± 0,074
FE_{NO} (g.kg⁻¹)	2,723 ± 1,374	4,830 ± 0,726
FE_{NO₂} (g.kg⁻¹)	0,642 ± 0,326	-
FE_{NH₃} (g.kg⁻¹)	0,237 ± 0,123	-
FE_{C₂H₄} (g.kg⁻¹)	0,220 ± 0,124	-
FE_{C₂H₂} (g.kg⁻¹)	0,075 ± 0,040	-

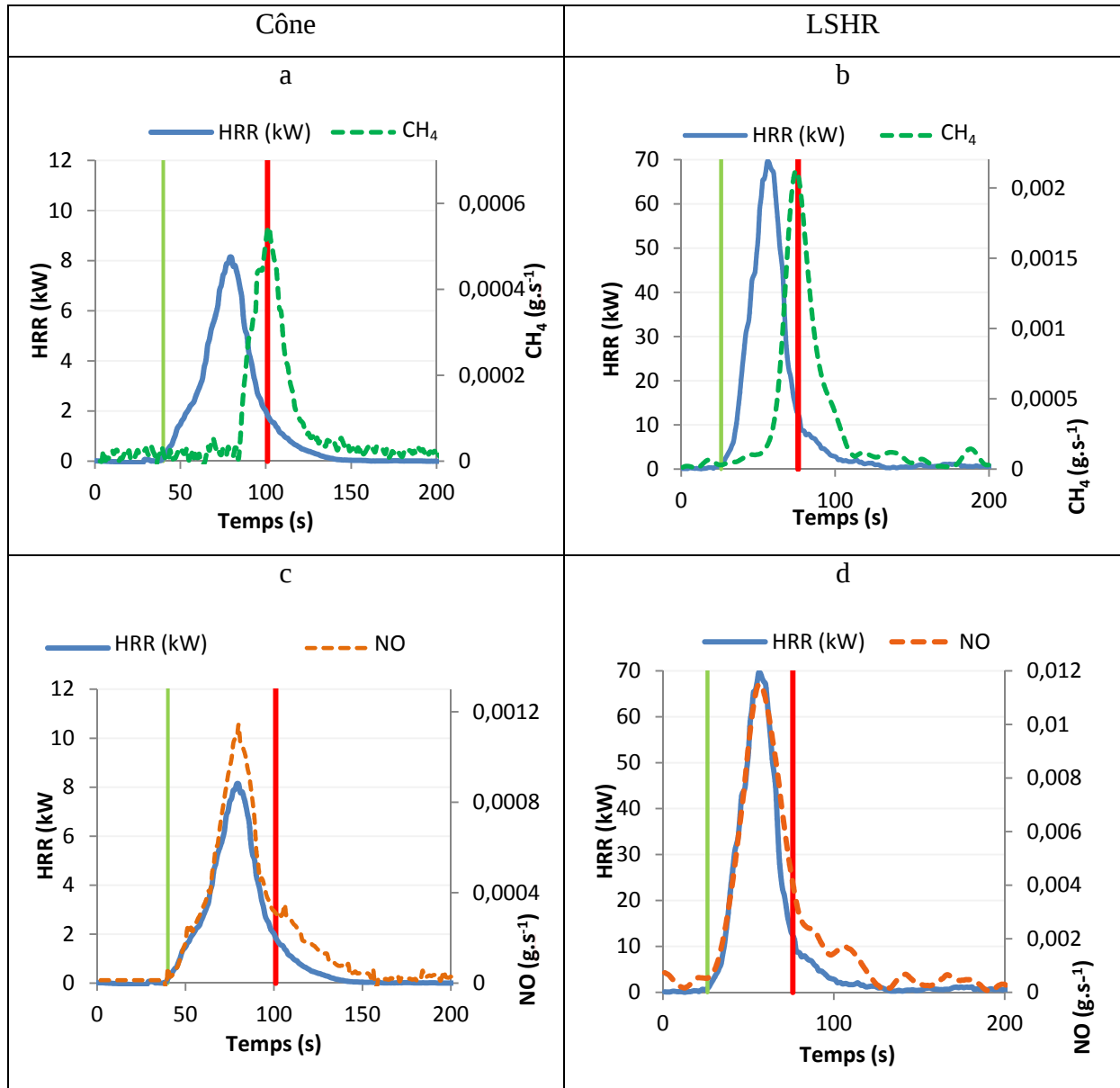


Figure 4 - 20: Production de méthane et de monoxyde d'azote aux deux échelles de combustion

4.5.3. Analyse de l'effet d'échelle sur le bilan massique de carbone

La comparaison des bilans massiques de carbone aux deux échelles de combustion est donnée dans le tableau IV-XXII. D'après les résultats obtenus nous notons une différence significative en ce qui concerne le taux de carbone identifié aux deux échelles de combustion. En effet, lors de la combustion avec le LSHR, le taux de carbone identifié est de 98,68%, avec une proportion importante de dioxyde de carbone (90,34% du carbone identifié) et de monoxyde de carbone (7,46%). La combustion avec le cône calorimètre permet quant à elle

de retrouver 95,86% du carbone présent dans les aiguilles de *P. laricio* principalement sous forme de dioxyde (90,2%) et de monoxyde de carbone (5,14%). Les concentrations des composés identifiés par IRTF, possédant de un à trois carbones, représentent 0,25% du carbone total à l'échelle du cône contre 0,14% à l'échelle du LSHR (pour le méthane seul à cette échelle). Le taux de carbone identifié sous forme de suies varie également aux deux échelles de combustion, représentant 0,74% du carbone à l'échelle du LSHR et 0,26% à l'échelle du cône calorimètre.

Tableau IV - XXII: Bilan massique de carbone par familles de composés aux deux échelles de combustion

$(g_c \cdot kg_{vb}^{-1})$	Cône	LSHR
Suies	$1,312 \pm 0,295$	$3,702 \pm 0,066$
Linéaires (C₁-C₃)	$1,275 \pm 0,311$	$0,692 \pm 0,056$
Oxygénés	$480,438 \pm 4,526$	$492,792 \pm 10,576$

Chapitre 5 : Dynamique de combustion et analyse des fumées à l'échelle de la propagation

Ce chapitre présente les résultats obtenus pour la combustion des aiguilles de pin maritime disposées sur un banc de combustion, en litière avec un allumage linéaire et sans pente. Nous exposerons dans un premier temps la dynamique de combustion et l'analyse des fumées dans cette configuration, plus représentative d'un incendie réel ou d'un brûlage dirigé. Puis nous comparerons ces résultats à ceux obtenus aux échelles du cône et du LSHR décrit précédemment.

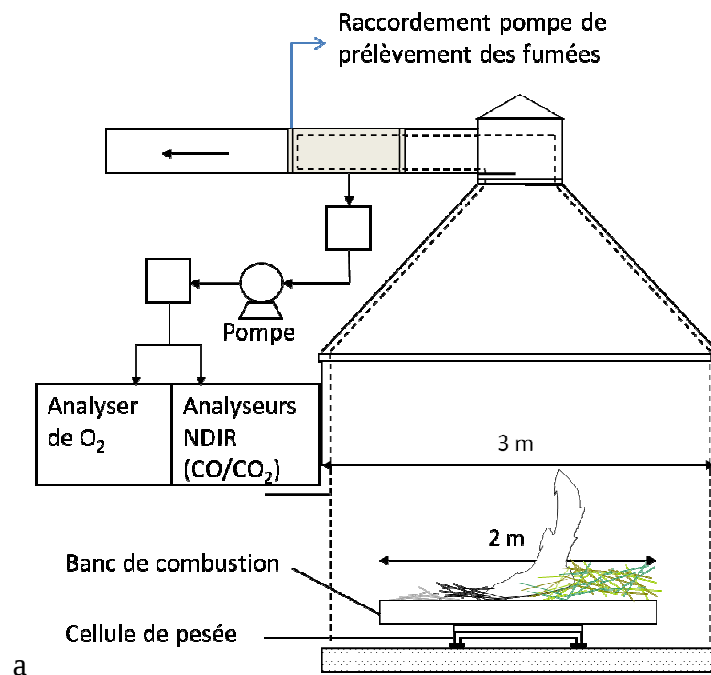
5.1. Mise au point des conditions expérimentales

Les expériences de propagation ont été réalisées à l'aide du LSHR dont le fonctionnement a été décrit au précédent chapitre. Ainsi, la puissance calorifique, les gaz de combustion et l'opacité des fumées ont été déterminés.

Les aiguilles de pin maritime sont disposées sur un banc de combustion pour former une litière dont la surface est de $1,96 \text{ m}^2$ ($1\text{m} \times 1,96\text{m}$) avec une épaisseur de 7 cm (Figure 5-1b). Cette table de combustion repose sur une cellule de pesée afin de mesurer la perte de masse au cours des expériences (Figure 5-1a). La charge de combustible est de $1,2 \text{ kg.m}^{-2}$, ce qui représente une masse sèche de 2,35 kilogrammes.

Pour enflammer le combustible, 10 millilitres d'éthanol sont déposés en ligne au bord du lit d'aiguilles (suivant la largeur de 1 m) puis enflammés à l'aide d'un chalumeau pour former le front de flamme. L'épaisseur du front de flamme au moment de l'allumage est de l'ordre de 3 cm.

Les fumées ont été prélevées dans des sacs Tedlar en moyenne 80 secondes après l'ignition du front de flamme, c'est-à-dire au moment où la combustion est en régime stationnaire. La durée de prélèvement est de 180 secondes. Les gaz prélevés sont ensuite analysés par CPG-DIF/SM de façon identique aux expériences réalisées avec le cône calorimètre et avec le panier dans le LSHR. Au cours de ces expériences, les fumées ont également été analysées en continu par IRTF.



a



b

Figure 5 - 1: a- Schéma du LSHR lors des propagations ; b- Photographie montrant la disposition de la litière d'aiguille de *Pinus pinaster* avant l'expérience de propagation pour une charge de $1,2 \text{ kg.m}^{-2}$

5.2. Etude de la dynamique de combustion

Nous notons une bonne reproductibilité des expériences de propagation (figure 5-2). Pour faciliter l'interprétation des différentes figures, nous avons choisi d'exposer par la suite les courbes correspondant à une seule de ces expériences. Nous indiquons sur chacune des courbes présentées, le temps d'ignition (trait vert fin), la fin du front de flamme (trait bleu en pointillé) et l'extinction complète de la combustion (trait rouge épais).

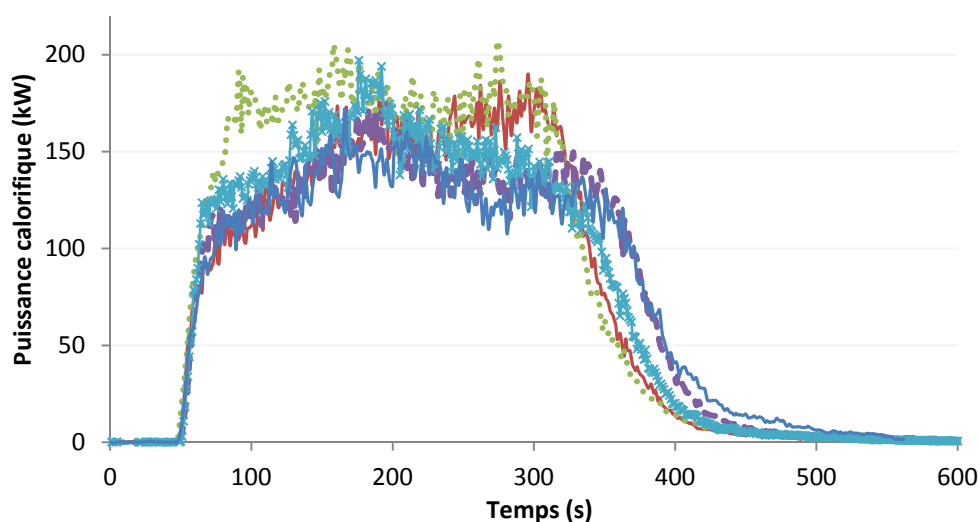


Figure 5 - 2: Mesure de la puissance calorifique en kW et reproductibilité des expériences (5 expériences).

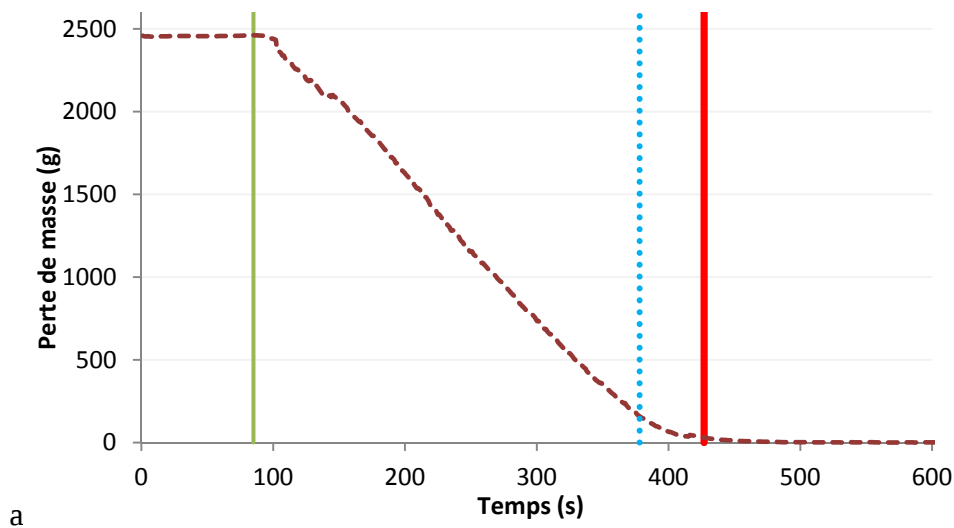
Les paramètres de combustion étudiés dans cette partie sont la perte de masse, la puissance de flamme, l'efficacité de la combustion (χ) ainsi que le THR (Total Heat Release, ΔE). L'énergie maximale de combustion a été déterminée en fonction de la masse réellement brûlée au cours de l'expérience. Il s'agit de la masse pesée au moment de l'ignition à laquelle nous avons retranché le pourcentage de réhydratation se produisant le temps de la mise en place des expériences ainsi que les imbrûlés mesurés en fin d'expérience. Ainsi, les imbrûlés (50 g en moyenne) ont été soustraits à la masse de départ ainsi que le pourcentage de réhydratation (2%). La masse moyenne d'aiguilles brûlées lors des propagations est égale à 2,30 kg.

L'énergie maximale ΔE_{max} et l'efficacité de la combustion sont calculées à partir des équations 3.6 et 3.7. Les résultats sont regroupés dans le tableau V-I.

Tableau V - I: Grandeurs énergétiques obtenues pour 5 expériences de propagation (masse brûlée, énergie mesurée, énergie maximale théorique, efficacité de combustion et pic de puissance maximale).

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
m_b (g)	2 291,9	2 299,60	2 336,50	2 306,00	2 288,00	2304,40 ± 19,25
ΔE (kJ)	44590,29	44162,52	44984,88	45044,87	44513,56	44659,23 ± 363,13
ΔE_{max} (kJ)	46 529,75	45 750,64	47 435,62	46 816,41	46 450,98	46596,68 ± 611,07
χ (%)	95,83	96,53	94,83	96,22	95,83	95,85 ± 0,64
$\dot{q}_{max}$	158,98	147,05	141,45	153,74	144,29	149,10 ± 7,16

La combustion des aiguilles de *Pinus pinaster* lors de propagation est quasi-complète puisque l'efficacité s'élève en moyenne à 95,85%. Bien que l'échelle soit identique à celle des expériences présentées au chapitre 4 avec une même ventilation ($1 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ d'extraction), la dynamique de combustion diffère. L'apport dioxygène au sein du lit d'aiguilles est moins important qu'avec le panier ce qui entraîne une légère diminution de l'efficacité de combustion (nous le détaillerons par la suite au paragraphe 5.4).



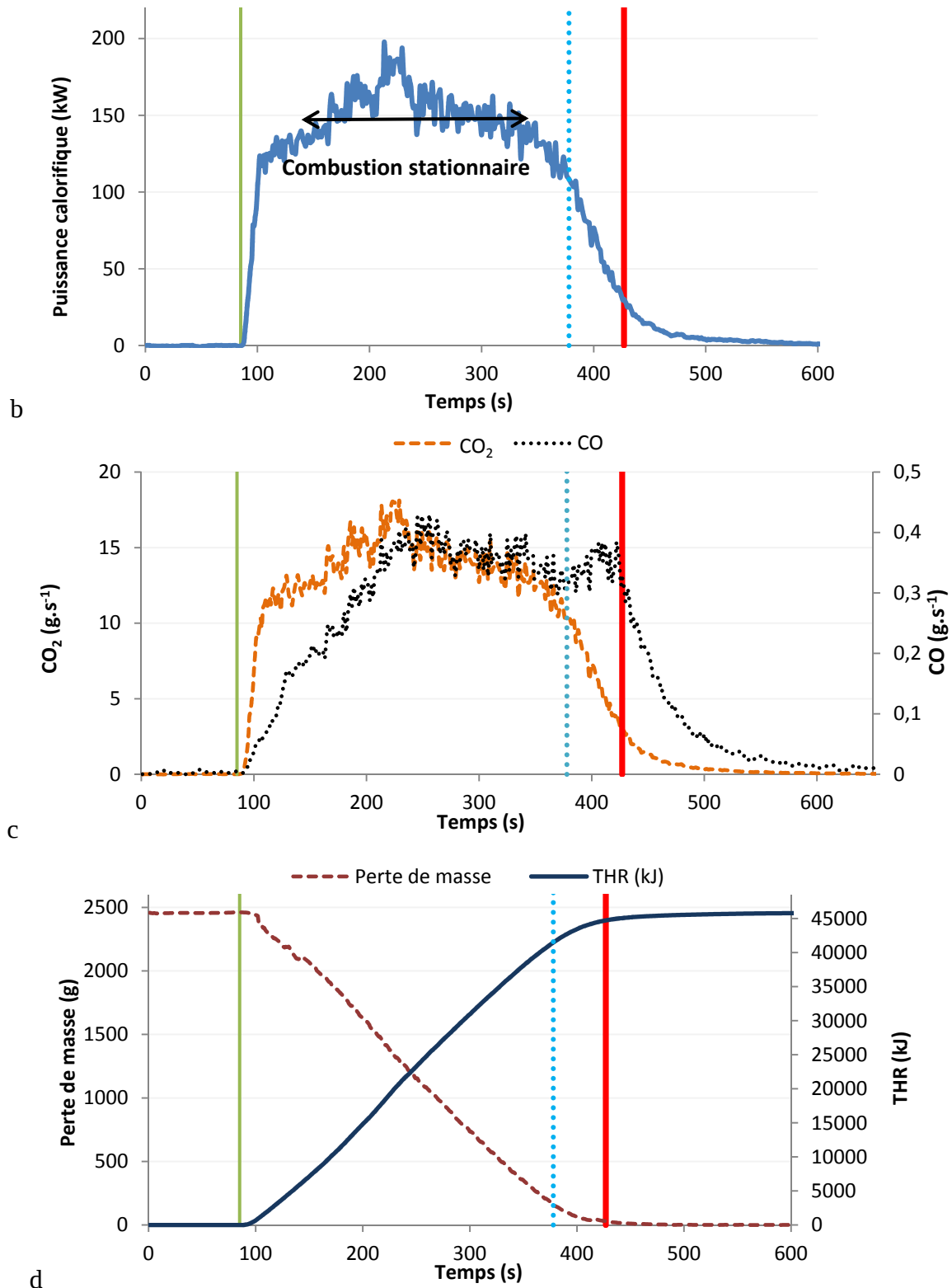


Figure 5 - 3: a-Evolution de la perte de masse, b-Puissance calorifique au cours du temps, c-Courbes de production de CO et CO₂, d-Courbes d'évolution de la masse et du THR.

La perte de masse est représentée sur la figure 5-3a. Nous rappelons que l'allumage de la litière d'aiguilles se fait de façon linéaire à partir d'une ligne d'éthanol enflammée à l'aide

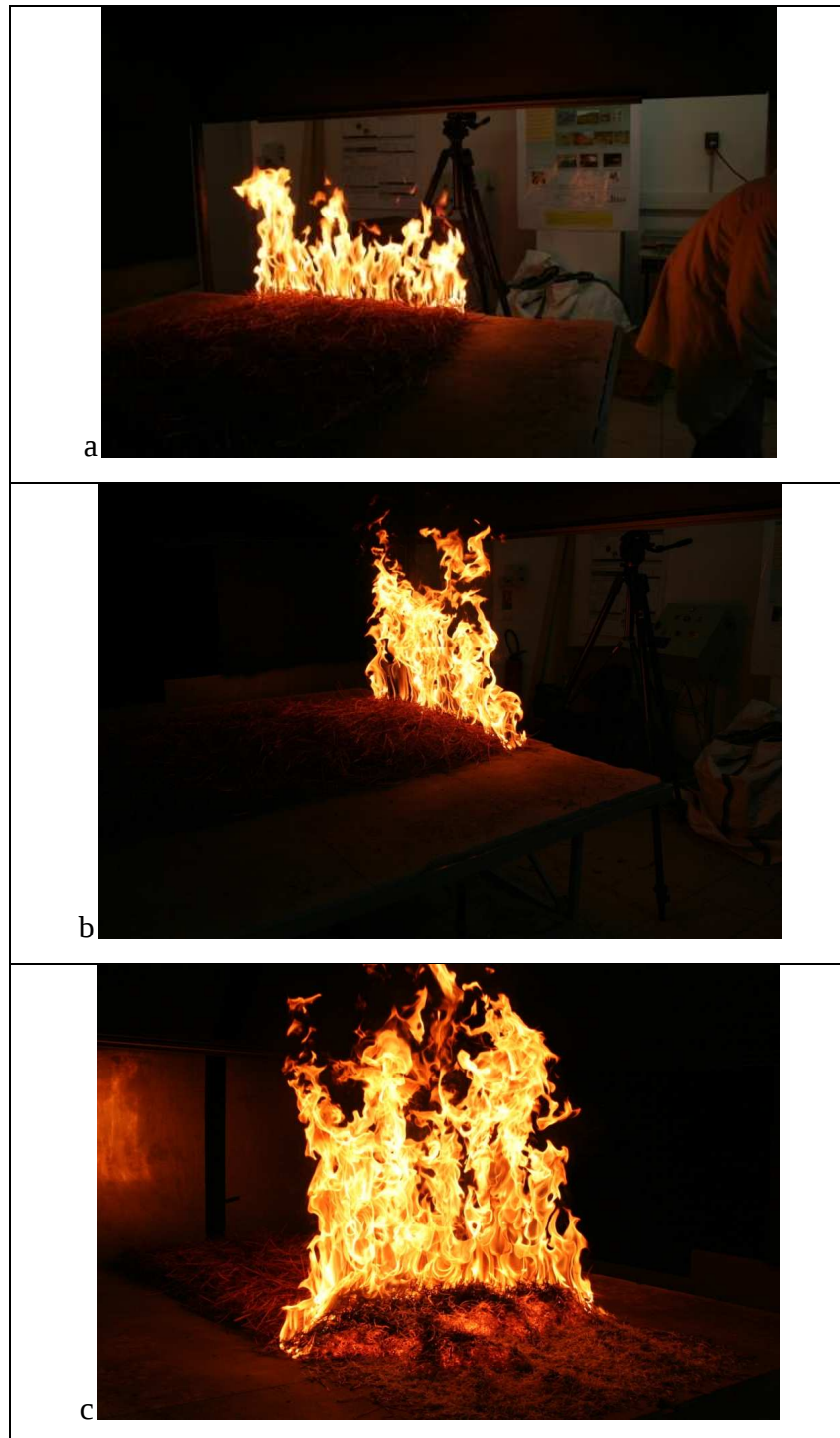
d'un chalumeau (figure 5-4a). Cette phase dure environ 18 secondes, elle est illustrée figure 5-4b. Puis le feu s'installe dans la litière et atteint son régime stationnaire en moyenne 80 secondes après l'allumage. Durant cet intervalle de temps, la perte de masse subit donc des fluctuations dues au caractère instationnaire de la propagation. Une fois le front de flamme formé dans son régime stationnaire (figure 5-4c), la perte de masse est quasi-linéaire pendant environ 200 secondes (période utilisée pour le prélèvement des gaz dans les sacs Tedlar, c'est-à-dire entre $t = 155s$ et $t = 355s$), elle a une vitesse de $36,94 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$. Le front de flamme ne s'éteint pas uniformément. Une partie du front va atteindre l'extrémité du banc de combustion, en moyenne 280 secondes après l'allumage (figure 5-4 d), alors que la flamme est toujours présente sur les côtés du front (figure 5-4 e). A cet instant, la vitesse de perte de masse subit une inflexion et diminue progressivement. Le temps total de la phase de flamme (incluant l'allumage, la mise en régime, la phase stationnaire, le déclin du front de flamme) dure environ 340 secondes. Après l'extinction de la flamme le combustible encore présent (41 g en moyenne) sous forme de charbon se consume lentement le long du banc de combustion. Puis 400 secondes après l'allumage la perte de masse n'évolue plus, le feu est éteint.

La puissance calorifique (figure 5-3 b) augmente fortement au cours des 18 secondes suivant l'inflammation. Elle croît ensuite plus lentement et se stabilise autour d'une valeur moyenne de 149 kW. Environ une minute avant l'extinction de la flamme, la puissance calorifique commence à diminuer (le feu a atteint l'extrémité du banc). Au moment de l'extinction de la flamme une faible puissance calorifique est encore observée. Elle s'élève à 25 kW et est due à la combustion des résidus charbonneux.

Le dioxyde de carbone suit la même évolution que la puissance calorifique (figure 5-3 c). Il est donc principalement émis durant la phase de flamme. L'évolution du monoxyde de carbone est décalée dans le temps par rapport à celle du CO_2 . Elle atteint une valeur constante en moyenne 40 secondes après que la production de CO_2 se soit stabilisée. A la suite du passage du front de flamme, les aiguilles sont transformées en charbons qui se consomment au fur et à mesure que le front de flamme avance. Le monoxyde de carbone est donc ici émis en même temps que le dioxyde de carbone bien que sa production soit due à la combustion des charbons. Le décalage entre les deux courbes provient de la mise en régime du front de combustion des charbons qui est plus lente que la mise en régime du front de pyrolyse et d'oxydation des gaz de dégradation.

Le Total Heat Release et la perte de masse sont illustrés figure 5-3 d. Lors de la propagation comprenant une litière d'aiguilles de pin maritime avec une charge de $1,2 \text{ kg.m}^{-2}$,

une quantité importante d'énergie est produite. Le THR augmente logiquement de façon inverse à la perte de masse. Il atteint son maximum, correspondant à l'énergie totale libérée par la combustion des 2,3 kilogrammes d'aiguilles de pin, au moment où la puissance calorifique s'annule.



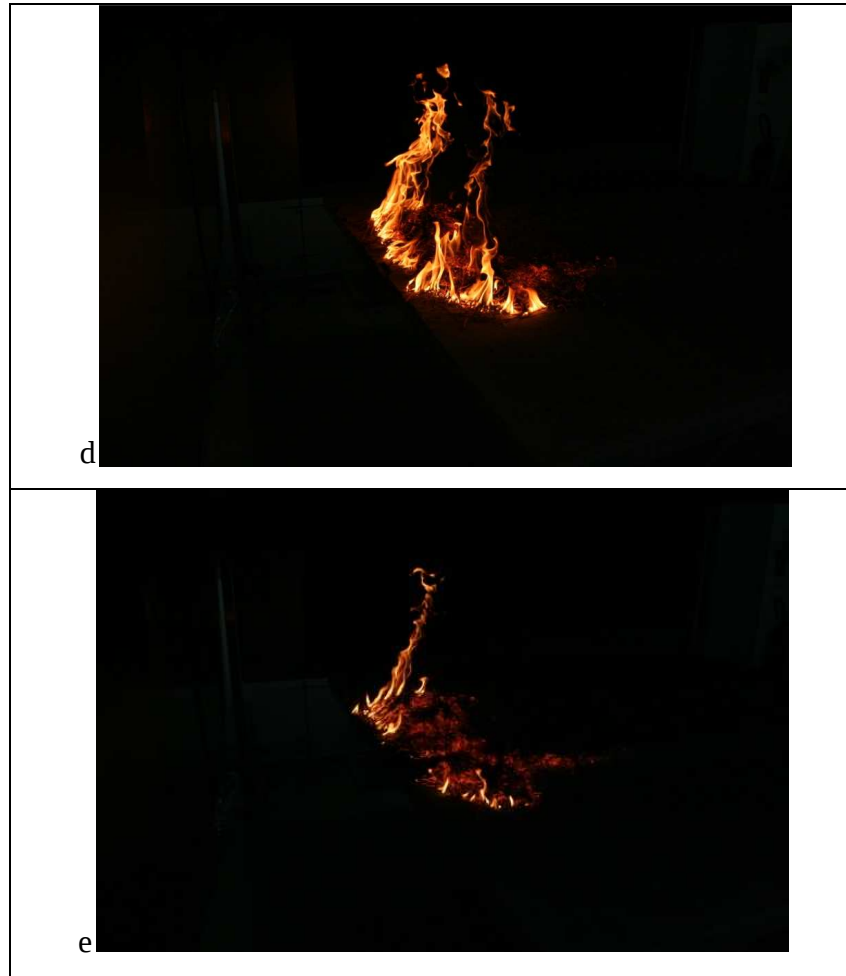


Figure 5 - 4 : a. Allumage linéaire avec de l'éthanol, b. Installation du front de flamme, c. Front de flamme au milieu du banc de propagation et résidus charbonneux derrière celui-ci, d. Front de flamme en bout du banc de combustion, e. Extinction du front de flamme.

5.3. Analyse des fumées

5.3.1. Etude des fumées à partir des analyseurs du cône calorimètre

Afin d'étudier les fumées émises lors de la combustion des aiguilles de pin maritime pour la propagation, nous avons tout d'abord mesuré le coefficient d'extinction k (Fig. 5-5a). Ce dernier permet d'évaluer l'opacité générée par les fumées dans le conduit d'évacuation en fournissant le TSP (Fig. 5-5b). Comme précédemment, nous avons également estimé le facteur d'émission des suies à partir de la mesure de k (Tableau V-II).

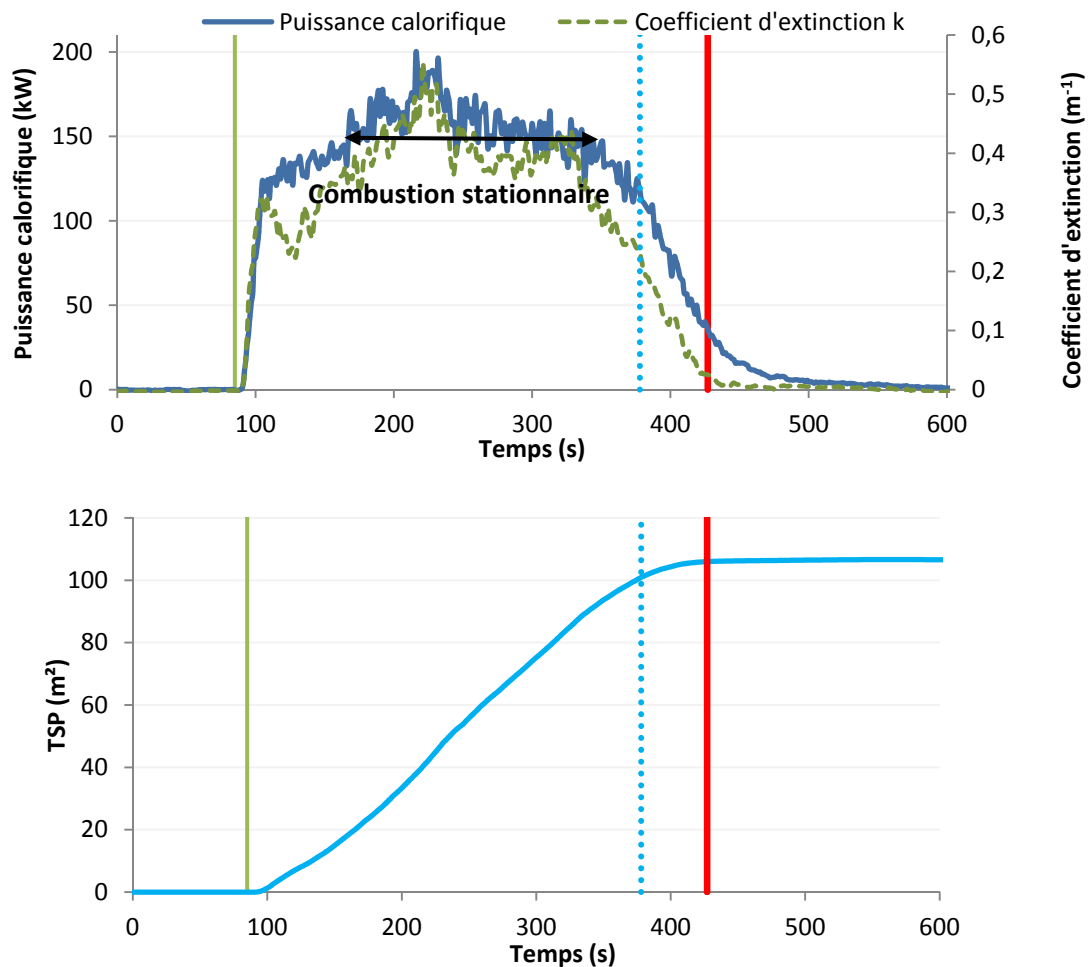


Figure 5 - 5: a-Coefficient d'extinction (k) et puissance calorifique au cours du temps, b-Production totale des fumées lors de la propagation

Le coefficient d'extinction est corrélé à la puissance de flamme (figure 5-5a). En effet, celui-ci augmente dès l'inflammation du combustible en suivant la tendance de la puissance de flamme. L'opacité générée par les fumées atteint un régime stationnaire environ 80 secondes après l'inflammation c'est-à-dire au même instant que la puissance calorifique. En revanche, le coefficient d'extinction commence sa dégression 30 secondes avant que la puissance calorifique ne diminue elle aussi. A cet instant, le front de feu a presque atteint l'extrémité du banc. On assiste probablement à une meilleure oxydation des suies du fait d'une aération localement favorisée. La valeur de k diminue alors progressivement jusqu'à l'extinction de la flamme. A cet instant de la combustion le coefficient d'extinction est quasiment nul, puisqu'il est égal à $0,02 \text{ m}^{-1}$. Après l'extinction de la flamme, la combustion des résidus charbonneux qui produit une puissance faible n'est pas en mesure de générer de fumées.

A partir des données précédentes, la masse de suies issue de la combustion des aiguilles de pin maritime a été estimée à l'aide de l'équation 2.24. Le tableau V-II regroupe les valeurs obtenues. Nous relevons une masse moyenne de suies de 12,57 g ce qui correspond à un facteur d'émission moyen de 5,346 g.kg⁻¹.

Tableau V - II: Mesure du TSP, de la masse de suies produites et les facteurs d'émission des suies.

	Test 1	Test 2	Test 3	Test 4	Test 5	Moyenne
TSP (m²)	105,230	101,880	106,080	106,640	103,239	104,615 ± 1,999
m_{suies} (g)	13,131	12,334	12,245	13,166	11,975	12,570 ± 0,545
FE_{suies} (g/kg)	5,730	4,817	5,241	5,710	5,234	5,346 ± 0,382

Les productions de monoxyde et de dioxyde de carbone ont été mesurées par les analyseurs IRND du LSHR, en utilisant l'équation 3.9 permettant d'obtenir la masse du composé analysé en grammes. Les facteurs d'émission de ces composés ont également été calculés selon l'équation 2.32. Les résultats obtenus lors des 5 expériences sont regroupés dans le tableau V-III.

Tableau V - III: Mesures du monoxyde et du dioxyde de carbone et leurs facteurs d'émission

	Exp1	Exp2	Exp3	Exp4	Exp5	moyenne
CO (g)	124,82	124,95	123,46	115,32	129,09	123,54 ± 5,03
CO₂ (g)	4088,66	4086,32	4140,96	4245,76	3855,79	4 074,00 ± 130,36
FE_{co} (g.kg⁻¹)	52,578	52,648	51,98	48,66	56,42	53,62 ± 2,38
FE_{co2} (g.kg⁻¹)	1722,267	1721,744	1743,56	1791,46	1 685,221	1 767,81 ± 49,98

Les facteurs moyens d'émissions du monoxyde et du dioxyde de carbone sont respectivement de 53,62 et 1767,81 g.kg⁻¹. On observe que 98% du CO₂ a été émis avant l'extinction de la flamme, ce qui représente un facteur d'émission de 1732,45 g.kg⁻¹. Le monoxyde de carbone est également dégagé de façon importante avant l'extinction de la flamme puisque 87% du CO est émis soit 46,65 g.kg⁻¹. Lors des expériences de propagation le front de flamme parcourt la litière d'aiguilles de pin en laissant derrière lui le charbon qui est progressivement consommé simultanément à la phase de flamme.

Tableau V - IV: Facteurs d'émissions du CO et du CO₂ en fonction de la phase de combustion et de la masse totale de combustible brûlé

	FE CO ($g.kg^{-1}$)	FE CO ₂ ($g.kg^{-1}$)
Flamme	46,65 ± 2,11	1732,45 ± 23,23
Smoldering	6,97 ± 1,94	35.36 ± 4,60

Les dynamiques des facteurs d'émission pour le CO et le CO₂ sont représentées à la figure 5-6 ainsi que la dérivée de la perte de masse (représentée en $mg.s^{-1}$ pour une meilleure visibilité). Lors de la propagation, la combustion dure suffisamment pour permettre une analyse fine des facteurs d'émissions dynamiques. Nous pouvons ainsi moyenner les valeurs des facteurs obtenues dans les phases de flamme et de smoldering. Pendant la phase de flamme, nous constatons que les vitesses d'émission moyennes au cours du temps pour le CO et le CO₂ sont quasi-constantes, elles valent respectivement $50,43 g.kg^{-1}$ et $1623,12 g.kg^{-1}$. Si nous comparons ces facteurs dynamiques à ceux calculés à partir de la masse totale de végétaux brûlés (tableau V-IV), nous notons que pendant la phase de flamme, nous retrouvons des valeurs assez proches, en moyenne $46,65 g.kg^{-1}$ pour le CO et $1732,45 g.kg^{-1}$ pour le CO₂. La vitesse d'émission du CO commence à augmenter environ 70 secondes avant l'extinction complète de la flamme, pour atteindre un facteur d'émission dynamique de $397,10 g.kg^{-1}$. A cet instant, la puissance de flamme diminue de manière considérable et la combustion transite vers la phase de smoldering. Ainsi le CO produit à l'arrière du front de flamme par la combustion des charbons n'est probablement plus consommé dans les mêmes proportions que précédemment en présence d'une flamme plus puissante. Durant cette phase, la vitesse d'émission du CO₂ augmente légèrement puis se stabilise également à une valeur supérieure ($2632,54 g.kg^{-1}$) à celle observée durant la phase de flamme. La vitesse d'émission du CO dont l'augmentation a été plus précoce semble se stabiliser également pendant cette phase à une valeur de $397,10 g.kg^{-1}$. A ce stade de la combustion, il ne reste plus que les résidus charbonneux (assimilable à du carbone pur) qui se consomment jusqu'à extinction complète pour ne laisser que des cendres et des imbrûlés, c'est pourquoi ces valeurs ne sont pas comparables à celles exprimées en fonction de la masse totale de combustible brûlé, donnée dans le tableau V-IV.

L'oxydation des résidus charbonneux lors des expériences de propagation se produit en grande partie durant la phase de flamme. Cependant le facteur d'émission lors de cette phase

n'atteint pas la valeur obtenue lors de la phase de smoldering. Les facteurs d'émission globaux donnés dans le tableau V-III diffèrent des facteurs d'émission dynamiques démontrant que la phase de combustion (flamme ou smoldering) joue un rôle important sur ces émissions. L'utilisation de ces valeurs dans des modèles de propagation d'incendie par exemple doit donc être faite en connaissant ces tendances qui peuvent varier en fonction de l'épaisseur des combustibles considérées. Ainsi, dans le cas des aiguilles de *Pinus pinaster* (qui sont des combustibles thermiquement fins), nous pouvons considérer que les vitesses d'émission globales du CO et du CO₂ sont représentatives de l'ensemble de la propagation puisqu'une grande partie de ces gaz sont émis durant la phase de flamme (98% pour le CO₂ et 87% pour le CO) avec des facteurs d'émissions globaux très proches de ceux obtenus pour la phase de flamme.

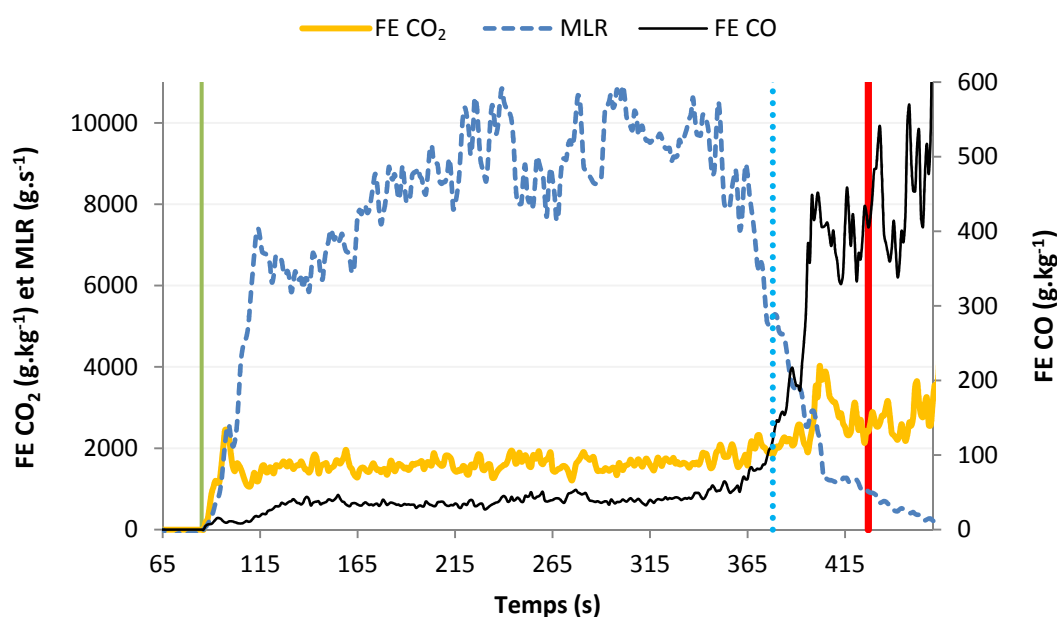


Figure 5 - 6 : Courbes des facteurs d'émission de CO et de CO₂ ainsi que de la dérivée de la perte de masse (MLR) lors de la propagation des aiguilles de pin maritime.

5.3.2. Etude des fumées par analyse DTA-CPG /SM et IRTF

Les analyses des fumées par DTA-CPG/SM et par IRTF ont permis d'identifier 17 composés (tableau V-V), classés en six familles chimiques (tableau V-VI). Une forte

proportion de composés azotés a été identifiée, représentant plus de 80% du total des composés chimiques identifiés (CO et CO₂ exclus). Nous retrouvons également des composés linéaires de faibles masses moléculaires (de 1 à 3 carbones).

Tableau V - V: Facteurs d'émission des composés gazeux analysés par IRTF et CPG/SM

Analyse IRTF (g.kg ⁻¹)		
1	Methane	0,731 ± 0,064
2	Monoxyde d'azote	2,779 ± 0,203
3	Dioxyde d'azote	0,697 ± 0,016
4	Ammoniac	1,055 ± 0,045
5	Ethylène	0,169 ± 0,025
Analyse CPG/SM (×10 ⁻³ g.kg ⁻¹)		
6	Butane	6,437 ± 0,795
7	Héxène	9,046 ± 1,062
8	Benzène	57,929 ± 4,997
9	Heptène	4,101 ± 0,437
10	Toluène	55,569 ± 5,020
11	Heptane	0,819 ± 0,487
12	Octène	0,560 ± 0,246
13	Ethylbenzène	2,578 ± 0,599
14	(<i>m+p</i>)-xylène	5,843 ± 0,387
15	<i>o</i> -xylène	0,367 ± 0,080
16	Benzaldéhyde	0,524 ± 0,102
17	α-pinène	1,311 ± 0,142

Les composés majoritaires ont été déterminés par IRTF (Tab. V-V). Il s'agit principalement du monoxyde d'azote avec un facteur d'émission de 2,779 g.kg⁻¹. Une quantité importante d'ammoniac a également été identifiée avec un facteur d'émission de 1,055 g.kg⁻¹. En effet, il s'agit d'un composé émis principalement durant la phase de combustion des charbons qui se déroule conjointement à la phase de flamme. Le méthane représente un facteur d'émission non négligeable puisqu'il s'élève à 0,731 g.kg⁻¹. L'analyse par DTA-CPG/SM (composés > C5) a permis d'identifier des composés de l'ordre du milligramme. Nous retrouvons principalement des composés à noyau benzénique : du benzène et du toluène avec des taux d'émission respectifs de 57,93.10⁻³ g.kg⁻¹ et 55,57.10⁻³ g.kg⁻¹.

Tableau V - VI : Familles chimiques de composés émis (en g.kg⁻¹), identifiées par CPG/SM et FTIR

Classes chimiques de composés émis (g.kg ⁻¹)	
Azotés	4,530 ± 0,264
Linéaires (C1-C3)	0,901 ± 0,088
Linéaires (C6-C19)	0,021 ± 0,003
Benzène et dérivés	0,122 ± 0,011
Oxygénés	0,001 ± 0,000
Terpènes	0,001 ± 0,001
Total (g.kg ⁻¹)	5,576 ± 0,367

5.3.3. Bilan massique de carbone

Le bilan massique de carbone réalisé à partir de l'ensemble des composés carbonés identifiés (tableau V-VII) par les différentes techniques d'analyses révèle que 95,01% du carbone présent dans le végétal sont retrouvés dans les fumées. Il s'agit principalement de dioxyde de carbone, puisque ce composé représente 89,70% du carbone analysé (figure 5-7). Le monoxyde de carbone représente également un taux important avec 4,16% de carbone identifié. Les suies assimilées à du carbone pur dans nos calculs représentent 1,01% du mélange alors que les composés carbonés identifiés par IRTF (méthane et éthylène) concernent 0,13% de ce carbone. Enfin, les composés carbonés organiques identifiés en CPG/SM ne représentent que 0,02% du mélange.

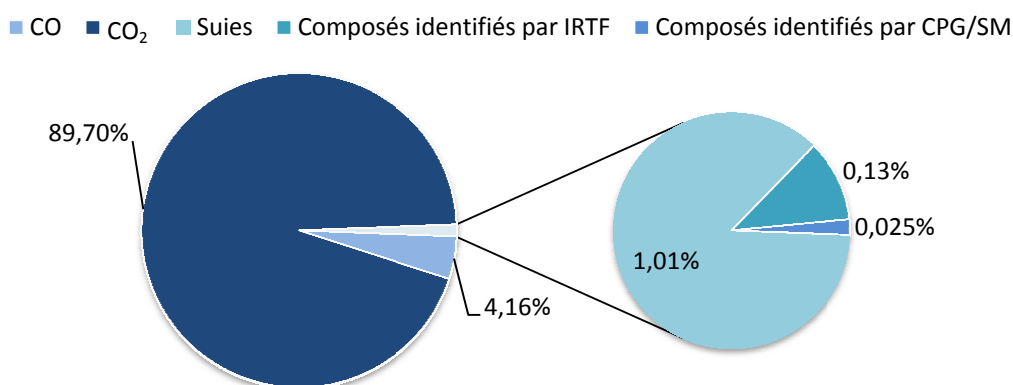


Figure 5 - 7 : Pourcentages de carbone analysé des principaux composés (CO₂, CO, suies) et pourcentage de carbone analysé par CPG/SM et IRTF

Tableau V - VII: Bilan massique de carbone pour la combustion en propagation des aiguilles de pin maritime.

LSHR ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Dioxyde de carbone	$475,843 \pm 8,932$
Monoxyde de carbone	$22,057 \pm 0,813$
Coefficient d'extinction ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Suies	$5,346 \pm 0,382$
IRTF ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Méthane	$0,549 \pm 0,048$
Ethylène	$0,145 \pm 0,145$
CPG/SM ($\times 10^{-3} g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$)	
Butane	$0,005 \pm 0,001$
Hexène	$0,008 \pm 0,001$
Benzène	$0,053 \pm 0,005$
Heptène	$0,004 \pm 0,000$
Heptane	$0,001 \pm 0,004$
Toluène	$0,051 \pm 0,000$
Octène	$0,001 \pm 0,000$
Ethylbenzène	$0,002 \pm 0,001$
(m+p) xylène	$0,005 \pm 0,000$
o- xylène	$0,001 \pm 0,000$
Benzaldéhyde	$0,000 \pm 0,000$
α -pinène	$0,001 \pm 0,000$

5.4. Analyse des effets du changement d'échelle et du système sur la combustion des aiguilles de pin maritime

L'analyse des effets du changement d'échelle et du système (panier et propagation à l'échelle du LSHR) sur la dynamique de combustion des aiguilles de pin maritime ainsi que les effets induits sur la production des fumées (gaz et suies) sont exposés dans cette partie. Cette analyse sera conduite en confrontant les résultats obtenus avec : le cône calorimètre, le panier et la propagation dans le LSHR.

5.4.1. Analyse des effets du changement d'échelle et du système sur la dynamique de combustion

Les effets du changement d'échelle et du système sur la dynamique de combustion ont été étudiés en confrontant les mesures de : puissance calorifique par unité de surface, perte de masse par unité de surface et efficacité de combustion. Pour ce qui concerne le cône et le panier dans le LSHR, nous avons considéré la surface du panier comme étant représentative de la surface de combustion. Pour la propagation, la surface de combustion correspond à la zone englobant le front de flamme et le front de combustion des charbons. Cette surface a été calculée à partir d'une analyse d'images, nous permettant d'estimer la vitesse du front de flamme et le temps nécessaire à son passage. Les résultats exposés sont les moyennes des 5 expériences réalisées pour les trois configurations de combustion.

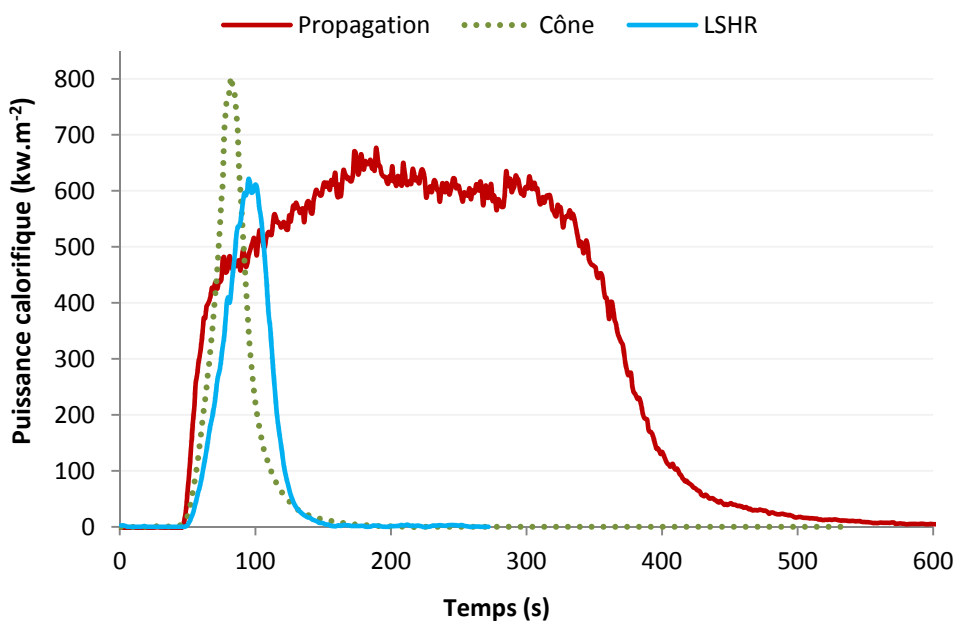


Figure 5 - 8: Courbes de puissance calorifique aux trois échelles de combustion

Les puissances calorifiques exprimées en kW.m^{-2} pour la combustion des aiguilles de pin maritime à l'échelle du cône et du LSHR (cas du panier et de la propagation) sont représentées sur la figure 5-8. L'expression de la puissance calorifique en fonction de la surface de végétal brûlé permet de comparer les trois configurations expérimentales en s'affranchissant des masses de combustibles. Ainsi, en cas d'absence d'effet du changement d'échelle ou du système sur la dynamique de combustion, l'augmentation de la masse de

combustible ne devrait influencer que la durée de la combustion (c'est-à-dire la quantité d'énergie dégagée par les différentes combustions) et non la puissance (c'est-à-dire la dynamique de dégagement de cette énergie).

L'inflammation du combustible est réalisée de manière analogue pour les trois configurations expérimentales : du papier imbibé d'éthanol pour les feux statiques dans le cône et le LSHR et uniquement avec de l'éthanol déposé sur le bord de la litière pour la propagation. Dès l'inflammation la puissance calorifique par unité de surface augmente rapidement pour les trois configurations. Cette augmentation est plus importante à l'échelle du cône calorimètre où le maximum de puissance est de $805,54 \text{ kW.m}^{-2}$, 30 secondes après l'inflammation. Il faudra 40 secondes pour que la puissance maximale ($610,78 \text{ kW.m}^{-2}$) soit atteinte lors de la combustion dans le panier avec le LSHR. Concernant la propagation, la puissance calorifique augmente pendant 80 secondes puis tend à se stabiliser pendant 200 secondes pour atteindre une valeur maximale moyenne de $608,78 \text{ kW.m}^{-2}$ durant la phase stationnaire. Le pic de puissance par unité de surface dans le cas du cône est nettement supérieur à ceux observés dans les expériences conduites avec le LSHR. La différence est de 24% avec le panier dans le LSHR (cf. chapitre précédent) et de 24,4% avec la propagation en prenant le cône comme référence dans les deux cas. Nous constatons cependant que le pic de puissance mesurée pour le cas du panier dans le LSHR diffère peu de la puissance maximale moyenne relevée lors de la propagation. Cette différence est de 1% si on prend comme référence la combustion en propagation.

L'énergie totale dégagée par unité de surface de combustible est similaire pour les trois configurations expérimentales (cf. tableau V-VIII). Les valeurs mesurées pour le cône et le panier dans le LSHR sont quasiment identiques avec une différence de 0,3%. Nous constatons également une faible différence entre ces valeurs et l'énergie surfacique dégagée lors de la propagation (0,35% d'écart en prenant comme référence la propagation). Nous retrouvons des analogies en confrontant les efficacités de combustion mesurées pour les trois configurations expérimentales. Afin de le vérifier statistiquement, nous avons utilisé un test de Comparaison de plusieurs échantillons (STATGRAPHICS® Centurion XV). Etant donné que notre échantillonnage est faible (3 configurations expérimentales et 15 expériences de combustions), il était nécessaire d'utiliser un test non paramétrique qui s'affranchit de la loi normale. Nous avons choisi le test ANOVA (Annexe 3) pour mettre en évidence une éventuelle différence statistiquement significative entre les valeurs mesurées pour l'ensemble des expérimentations.

La valeur de la probabilité (p) obtenue pour le test F est inférieure à 0,05 ($F = 6,51 - \text{Ddl}$ (degrés de liberté) = 14 – p = 0,0122), il apparaît une différence entre les moyennes des 3 variables au niveau de confiance de 95 %. Des tests des étendues multiples ont ensuite été appliqués afin de déterminer quelles moyennes sont significativement différentes les unes des autres (Annexe 3). La méthode utilisée pour discriminer les moyennes est la procédure des différences significatives minimales de Fisher (LSD). Deux groupes sont identifiés, il s'agit du groupe Cône - LSHR panier et du groupe LSHR propagation. Cependant les différences entre deux moyennes d'échantillons sont faibles, notamment la paire panier – propagation dans le LSHR (différence de 0,760) et la limite (estimation de l'intervalle de cette différence) est égale dans ce cas à $\pm 0,648$.

L'efficacité de combustion est donc peu dépendante de l'échelle (cône calorimètre et LSHR) et du système (panier et propagation dans le LSHR). Nous constatons donc que l'efficacité de la combustion est proche pour une combustion statique (LSHR panier) et une combustion dynamique (LSHR propagation).

Tableau V - VIII : Energies dégagées en fonction des surfaces brûlées et efficacité de combustion pour les trois configurations expérimentales

	Cône	LSHR panier	Propagation
$\Delta E_s \text{ (kJ.m}^{-2}\text{)}$	22865,59 $\pm$ 272,49	22797,99 $\pm$ 74,31	22 785,32 $\pm$ 185,27
$\chi \text{ (%)}$	96,89 $\pm$ 0,49	96,61 $\pm$ 0,13	95,85 $\pm$ 0,64

En ce qui concerne les pertes de masse relevées lors des trois combustions, nous notons des différences pour les valeurs des pics de vitesse de perte de masse. La combustion la plus rapide a lieu avec le cône calorimètre, elle correspond à une vitesse de 43,65 g.s⁻¹.m⁻². Les combustions réalisées avec le LSHR (cas du panier et de la propagation) ont une vitesse de perte de masse quasiment égale, soit 36,94 g.s⁻¹.m⁻² lors de la propagation et 35,66 g.s⁻¹.m⁻² lors de la combustion avec le LSHR panier. Ces résultats sont en conformité avec les mesures calorimétriques de puissance.

L'ensemble de ces résultats nous permet de conclure que pour une charge identique (1,2 kg.m⁻²) d'aiguilles, le changement d'échelle influence la dynamique de combustion. Nous avons montré qu'il existe une différence notable en terme de puissance calorifique maximale dégagée, de l'ordre de 24% entre les expériences menées à l'échelle du LSHR (avec le panier

et en propagation) et celles conduites à l'échelle du cône calorimètre. Comme la valeur de la probabilité pour le test F est inférieure à 0,05, il y a bien une différence statistiquement significative au niveau de confiance de 95 % (test ANOVA : $F = 27,17$ – Ddl = 14 – $p = 0,0000$). Nous n'avons pas observé d'effet du système sur cette grandeur puisque les puissances maximales relevées pour des feux statiques (panier dans le LSHR) et dynamique (propagation dans le LSHR) sont identiques. Afin de le vérifier statistiquement, nous avons poursuivi notre approche en appliquant des tests des étendues multiples basées sur la procédure des différences significatives de Fisher. Ces derniers ont bien mis en évidence la présence de deux ensembles dont le premier est constitué par le panier et la propagation LSHR et le second par le cône. La détermination de ces ensembles corrobore notre observation précédente, le système n'influence pas la puissance calorifique maximale, il y a uniquement un effet de l'échelle de combustion.

L'échelle du cône calorimètre influence donc la dynamique de combustion, probablement en raison de la taille de la flamme relativement à la taille de l'échantillon. Le pic de puissance calorifique pourrait être dû à une meilleure aspiration créée par la flamme.

5.4.2. Analyse des effets du changement d'échelle et du système sur la production des fumées

L'étude des effets du changement d'échelle et du système sur la production des fumées a été menée en confrontant le taux de fumées dégagées (RSR), le total des fumées dégagées (TSR), ainsi que les facteurs d'émissions calculés pour les trois configurations expérimentales. Le RSR et le TSR sont des grandeurs exprimées par unité de surface de végétal afin de donner plus de sens à la confrontation. Leurs équations sont regroupées au chapitre 4. Les résultats exposés sont les moyennes des 5 expériences réalisées pour chaque configuration expérimentale.

La figure 5-9 représente les courbes moyennes de RSR aux échelles du cône et du LSHR (panier et propagation). Nous observons que les valeurs de RSR sont très différentes. En effet, l'obscurcissement produit par les fumées au niveau de l'opacimètre est 3 fois plus important lors des expériences conduites avec le LSHR que pour celles réalisées avec le cône calorimètre. Nous constatons également que le pic de RSR obtenu lors de la combustion dans le panier avec le LSHR est quasiment similaire au RSR observé lors des expériences de

propagation. Le RSR s'élève en moyenne à $1,59 \text{ (m}^2\cdot\text{s}^{-1}\text{)}\cdot\text{m}^{-2}$ lors de la phase stationnaire de la propagation alors que le pic de RSR est respectivement de $1,56 \text{ (m}^2\cdot\text{s}^{-1}\text{)}\cdot\text{m}^{-2}$ et $0,52 \text{ (m}^2\cdot\text{s}^{-1}\text{)}\cdot\text{m}^{-2}$ dans le cas du panier avec le LSHR et à l'échelle du cône calorimètre.

Les valeurs de TSR mesurées à l'échelle du LSHR (tableau V-IX) sont très proches pour les expériences réalisées avec le panier et celles effectuées en propagation. Nous retrouvons des valeurs respectives de $49,225 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-2}$ et $52,307 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-2}$ pour ces deux configurations expérimentales. Le TSR est cependant beaucoup plus faible à l'échelle du cône calorimètre ($12,508 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-2}$) en comparaison des études réalisées avec le LSHR.

Afin de vérifier s'il existe une différence significative entre les différentes valeurs de TSR, nous avons appliqué les mêmes tests statistiques utilisés et décrits précédemment pour l'efficacité et la puissance calorifique maximale dégagée.

L'analyse de la variance à un facteur a donné les résultats suivants pour le total des fumées dégagées, TSR : $F = 455,46$ – Ddl (degrés de liberté) = 14 – $p = 0,0000$.

La valeur de la probabilité étant inférieure à 0,05, certaines moyennes sont significativement différentes des autres. Deux groupes homogènes sont identifiés, il s'agit du groupe cône et du groupe LSHR panier - propagation. Ce dernier est constitué d'échantillons à l'intérieur duquel il n'y a pas de différence statistiquement significative (la différence estimée entre cette paire de moyennes est de -3,083 et la limite est de $\pm 3,197$). Ces résultats statistiques confortent la remarque énoncée en début de paragraphe. En ce qui concerne les facteurs d'émissions des suies, nous observons peu de différence à l'échelle du LSHR pour le panier ($5,17 \text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$) et la propagation ($5,34 \text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$) et une différence plus marquée à l'échelle du cône calorimètre ($1,32 \text{ g}\cdot\text{kg}^{-1}$) par comparaison avec le LSHR. Afin de vérifier et démontrer ce constat, nous avons appliqué les mêmes tests statistiques (Comparaison de plusieurs échantillons, ANOVA, Test des étendues multiples) aux facteurs d'émissions des suies. Les résultats obtenus ($F = 211,72$ – Ddl = 14 – $p = 0,0000$) confirment notre observation puisque les tests statistiques soulignent des différences significatives et identifient deux groupes à savoir le cône et le groupe LSHR panier – propagation.

La quantité plus importante de suies retrouvée au cours de la combustion des aiguilles de pin maritime à l'échelle du LSHR est donc la cause d'une telle différence sur la production des fumées. Les raisons de ces différences sont les suivantes. La flamme est beaucoup plus large (0,35m) pour les expériences conduites dans le panier avec le LSHR que dans le cas des expériences réalisées avec le cône (inférieure à 0,1m) ce qui favorise la nucléation des suies. Si l'épaisseur de flamme n'est que de 0,1 m lors de la propagation, l'arrivée d'air est toutefois

limitée par la nature propagative du feu. En effet, d'une part la largeur du front de flamme mesure 1m (ce qui contraint l'arrivée d'air sur les côtés) et d'autre part, le front de charbon situé à l'arrière du front de flamme consomme une partie de dioxygène aspiré par la flamme. Ainsi, l'arrivée d'air est surtout disponible à l'avant du front de flamme. La nucléation des suies est donc favorisée à l'échelle du LSHR pour les deux configurations expérimentales (panier et propagation) en raison de la dimension des flammes et/ou de la géométrie du front de feu.

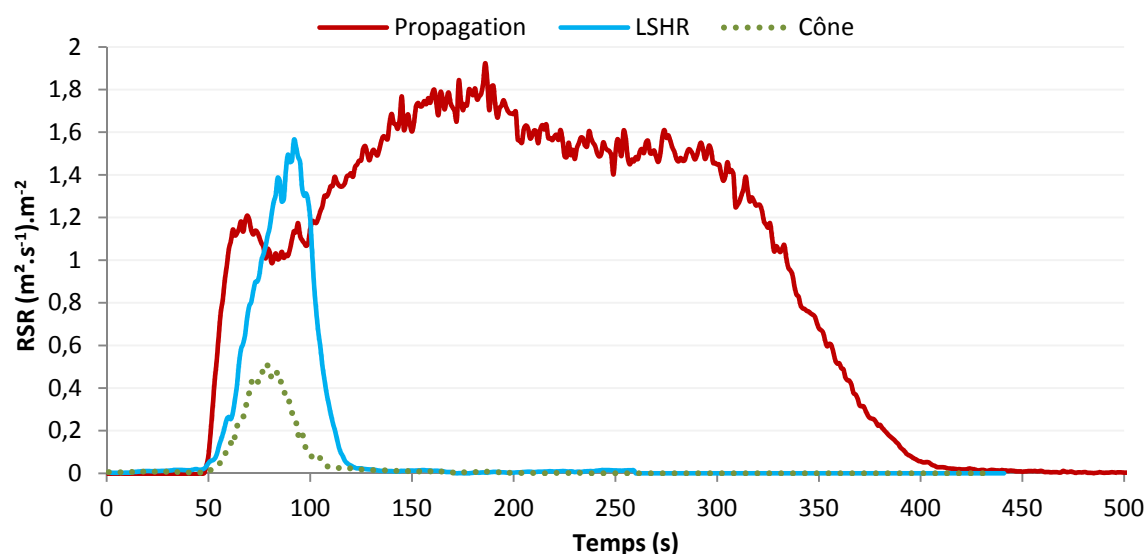


Figure 5 - 9 : Courbes de taux de production de fumées pour le cône et le LSHR en mode statique et en propagation

Les facteurs d'émission du monoxyde et du dioxyde de carbone sont rappelés dans le tableau V-IX. Nous constatons que le changement d'échelle et le système de combustion (panier ou propagation) n'influence pas les émissions de monoxyde et de dioxyde de carbone pour une même charge d'aiguilles. Le test ANOVA donne les résultats suivants :

- FE CO $F = 2,69 - Ddl = 14 - p = 0,1084$
- FE CO₂ $F = 0,03 - Ddl = 14 - p = 0,9716$

Les valeurs des probabilités pour le test F sont supérieures à 0,05, il n'y a pas de différence statistiquement significative entre les moyennes des trois variables (cône, LSHR panier et propagation) au niveau de confiance de 95 %. Ainsi, ces facteurs d'émission sont indépendants de l'échelle et du système.

Comme nous l'avons noté lors de la comparaison des facteurs d'émission pour le cône et le panier dans le LSHR (chapitre 4), ce ne sont pas les émissions de CO et de CO₂ qui

influencent la production des fumées mais les émissions des suies dont les facteurs varient fortement aux échelles du cône et du LSHR.

Tableau V - IX: Mesures de la production des fumées et des facteurs d'émissions moyens des suies, du CO et du CO₂ pour les trois configurations expérimentales

	Cône	LSHR panier	Propagation
TSR (m².m⁻²)	12,508 ± 1,765	49,225 ± 3,469	52,307 ± 0,999
FE_{suies} (g.kg⁻¹)	1,318 ± 0,193	5,171 ± 0,428	5,346 ± 0,382
FE CO (g.kg⁻¹)	50,91 ± 4,10	48,57 ± 3,62	53,62 ± 2,37
FE CO₂ (g.kg⁻¹)	1766,47 ± 51,48	1772,50 ± 7,40	1767,811 ± 49,981

L'analyse des composés par DTA-CPG/SM et IRTF a révélé des différences importantes en termes de composition et de quantité des constituants des fumées issues de la combustion des aiguilles à l'échelle du cône et pour les deux configurations expérimentales à l'échelle du LSHR (panier et propagation). Les composés retrouvés de façon majoritaire à l'échelle du cône et pour les deux configurations au LSHR sont regroupés dans le tableau V-X. Les familles des composés identifiés pour les trois configurations expérimentales sont regroupées dans le tableau V-XI. Lors de la combustion dans le LSHR avec le panier, nous constatons que seulement deux composés sont identifiés par IRTF. Il s'agit du méthane et du monoxyde d'azote. Ces composés sont également présents lors des combustions réalisées avec le cône calorimètre et en propagation dans le LSHR mais à des concentrations moindres que lors de la combustion statique conduite dans le panier avec le LSHR.

Afin de déterminer si les moyennes des composés majoritaires identifiés par DTA-CPG /SM et IRTF, sont statistiquement différentes les uns des autres, divers tests ont été appliqués. Les résultats du test ANOVA (test F, degrés de liberté et probabilité) détaillés par la suite pour chaque composé, nous ont indiqué qu'il était nécessaire de poursuivre notre approche statistique par l'application à nos données des tests des étendues multiples. Les moyennes ont alors été discriminées par la procédure des différences significatives minimales de Fisher (LSD).

De façon générale, nous avons mis en évidence des différences significatives pour tous les composés majoritaires identifiés au niveau de confiance de 95 %. Trois groupes ont été révélés, chacun représentant une variable c'est-à-dire un type de configuration expérimentale.

Concernant le monoxyde d'azote comme évoqué au chapitre 4, il peut être produit par différents mécanismes de formation. Pour notre part, nous retenons l'hypothèse d'une formation à partir de l'azote présent dans le végétal. L'évolution du NO et du NO₂ au cours des trois expériences de combustion est donnée figures 5-10a, 5-10b et 5-10c. La présence de NO et NO₂ se produit principalement durant la phase de flamme. Il a été montré (Perez-Ramirez et coll., 2014)) que l'oxydation de NH₃ peut conduire à deux composés principaux, le NO et le N₂. Une fois le NO formé, une partie de celui-ci va être transformé en NO₂ à partir du radical hydroperoxy. Cependant, une partie du NO₂ est directement reconverti en NO ou par l'intermédiaire de HONO. Lorsque la température augmente, la transformation de NO en NO₂ est moins efficace, et la reconversion de NO₂ en NO est plus importante.

Nous notons des différences significatives en terme d'émission de NO dans le cas des trois configurations expérimentales. Le tableau de l'ANOVA nous a donné les résultats suivants : $F = 68,55 - Ddl = 13 - p = 0,0000$. Le rapport F dont sa probabilité inférieure à 0,05 indique une différence statistiquement significative entre les moyennes des trois variables (3 configurations de combustions : cône, panier dans le LSHR, propagation avec le LSHR) au niveau de confiance de 95 %. En effet, le facteur d'émission de NO le plus important est mesuré dans le cas du LSHR panier où il s'élève à 4,931 g.kg⁻¹ en l'absence d'émission de NO₂. En revanche, dans le cas des combustions à l'échelle du cône calorimètre et à l'échelle du LSHR pour la propagation, nous notons des facteurs d'émissions de NO moins élevés, respectivement 3,620 et 2,779 g.kg⁻¹ mais également la présence de NO₂ (dans les deux cas avec des différences statistiquement significatives $F = 178,97 - Ddl = 13 - p = 0,001$) ainsi que du NH₃ pour la propagation. La présence de NO₂ peut être attribuée à la température des fumées. Nous relevons en effet dans la zone de prélèvement des fumées, trois valeurs différentes de température : 42°C pour le cas du panier dans le LSHR, 100°C dans le cas du cône calorimètre et 125°C pour le cas de la propagation dans le LSHR. La dilution des fumées dans l'air pour le cas du panier avec le LSHR entraîne un refroidissement des fumées plus important de part sa disposition, (celui-ci repose sur un socle favorisant un apport d'air frais tout au long de la combustion) que pour la propagation dont la durée de l'expérience et la disposition du banc (plus proche de la zone d'extraction) permet de maintenir une température plus élevée dans les fumées. Ainsi, la composition des fumées produites avec le LSHR dans le cas du panier semble être figée (pas de transformation du NO en NO₂) alors qu'elle semble évoluer dans le cas de la propagation et du cône calorimètre entre la source d'émission et la

zone de prélèvement (transformation du NO en NO₂). C'est donc un effet de systèmes que nous observerions dans ce cas et non un effet du changement d'échelle.

La présence de NH₃ lors des expériences de propagation est due à la combustion des charbons qui se produit derrière le front de flamme (cf. figure 5-10i). La figure 5-10i illustre la production de l'ammoniac au cours de la combustion ainsi que la production de CO. Nous notons que la production débute au même instant que la production de CO, mais de façon moins rapide. La production de NH₃ va augmenter au moment où le CO est produit de façon stationnaire. Ce qui correspond à l'instant où le front de combustion des charbons est le plus actif comme le montre la courbe de production de CO.

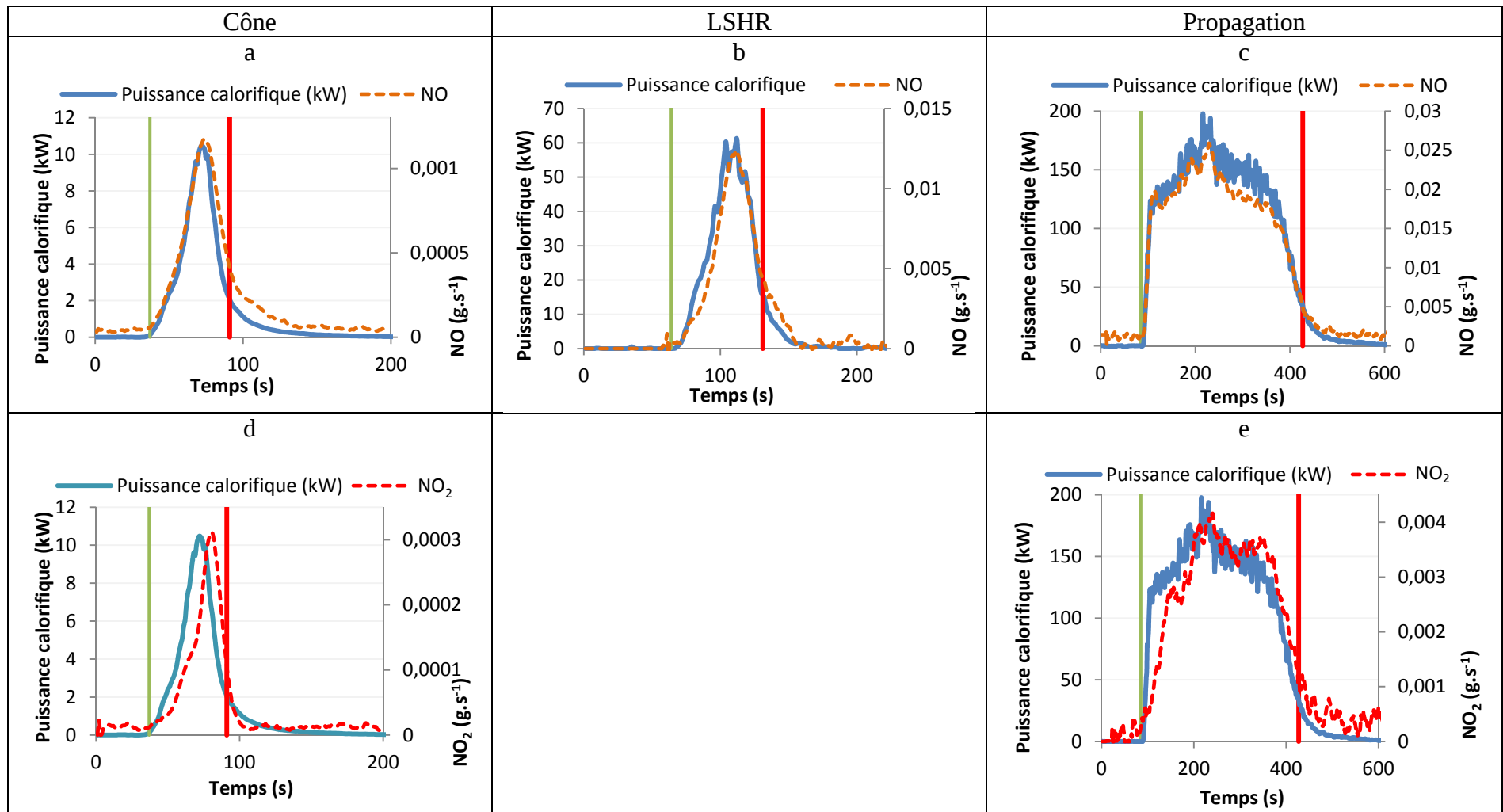
Nous notons également des différences concernant les émissions de méthane et d'éthylène pour les trois configurations expérimentales. Les résultats du test ANOVA sont respectivement $F = 19,20 - Ddl = 13 - p = 0,0003$ pour le méthane et $F = 19,42 - Ddl = 8 - p = 0,0031$ pour l'éthylène. Les valeurs des probabilités pour le test F sont inférieures à 0,05, nous constatons des différences statistiquement significatives entre les moyennes des trois variables correspondant aux trois configurations expérimentales. Le facteur d'émission du méthane le plus élevé correspond au cas du cône calorimètre avec 1,166 g.kg⁻¹ alors qu'il représente 0,757 g.kg⁻¹ pour les combustions avec le panier à l'échelle du LSHR et 0,731 g.kg⁻¹ pour la propagation dans le LSHR. L'évolution de ce composé pour chaque combustion est donnée figure 5-10f, 5-10g et 5-10h. L'éthylène n'est pas retrouvé à l'échelle du LSHR pour le panier. Il est présent à l'échelle du cône calorimètre avec le facteur d'émission le plus élevé de 0,358 g.kg⁻¹. On le retrouve également en propagation avec un facteur d'émission plus faible de 0,169 g.kg⁻¹. Une première raison pouvant expliquer ces différences pourrait être la température des fumées (cf. explication précédente pour le NO₂) qui figerait leurs compositions pour le cas du panier dans le LSHR. La deuxième raison pourrait être liée à la combustion des charbons qui diffère pour les trois configurations expérimentales. En effet, nous notons que le méthane à l'échelle du cône est émis au moment où la flamme décroît, puis l'émission de l'éthylène se produit quelques secondes plus tard. Dans le cas de la combustion avec le LSHR panier, celle-ci débute environ 30 secondes après l'ignition, une partie importante des résidus charbonneux étant consommée pendant la phase de flamme, cependant, il n'y a pas d'émission d'éthylène. Lors de la propagation, le méthane est également produit peu de temps après l'ignition, au moment où la combustion des résidus charbonneux débute après le passage du front de flamme, elle est suivie par la production de l'éthylène.

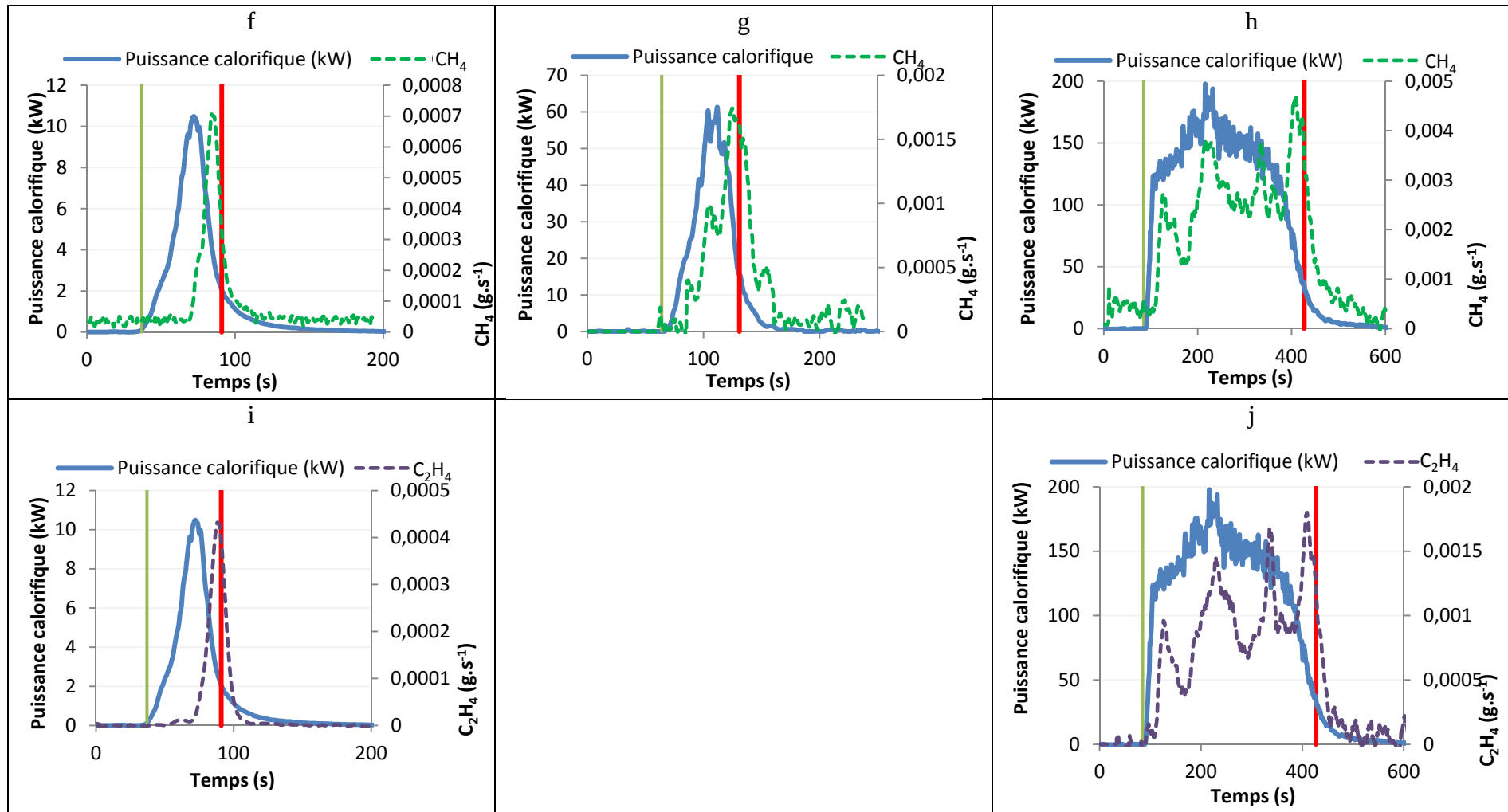
Tableau V - X: Composés majoritaires produits pour les trois configurations expérimentales

	Cône	LSHR panier	LSHR propagation
Analyse IRTF (g.kg ⁻¹)			
Méthane	1,166 ± 0,200	0,757 ± 0,053	0,731 ± 0,064
Ethylène	0,358 ± 0,100		0,169 ± 0,025
Acétylène	0,509 ± 0,100		
Monoxyde d'azote	3,620 ± 0,400	4,931 ± 0,238	2,779 ± 0,203
Dioxyde d'azote	1,790 ± 0,300		0,697 ± 0,016
Ammoniac			1,055 ± 0,045
Analyse CPG/SM (x10 ⁻³ g.kg ⁻¹)			
Benzène	97,730 ± 2,86	12,859 ± 2,163	57,929 ± 4,997
Toluène	94,200 ± 5,00	18,872 ± 5,751	55,569 ± 5,020
Ethylbenzène	15,250 ± 2,79	5,220 ± 0,445	2,578 ± 0,599
Xylènes (m+p+o)	8,610 ± 1,07	9,682 ± 0,626	6,210 ± 0,467
Styrène	10,590 ± 3,6	7,125 ± 0,81	

Tableau V - XI: Familles des composés identifiés pour les trois configurations expérimentales

	Cône	LSHR panier	LSHR Propagation
Azotés	5,410 ± 0,700	4,931 ± 0,238	4,530 ± 0,264
Linéaires (C ₁ -C ₃)	2,033 ± 0,347	0,757 ± 0,053	0,901 ± 0,088
Linéaires (C ₆ -C ₁₉)	0,024 ± 0,002	0,042 ± 0,003	0,021 ± 0,003
Benzène et dérivés	0,238 ± 0,017	0,054 ± 0,005	0,122 ± 0,011
Oxygénés	0,016 ± 0,01	0,008 ± 0,001	5,24.10 ⁻⁴ ± 0,000
HAP	0,004 ± 0,000	-	
Terpènes	0,003 ± 0,03	0,010 ± 0,001	0,001 ± 0,001
Total (g.kg ⁻¹)	7,728 ± 1,106	5,802 ± 0,296	5,576 ± 0,367





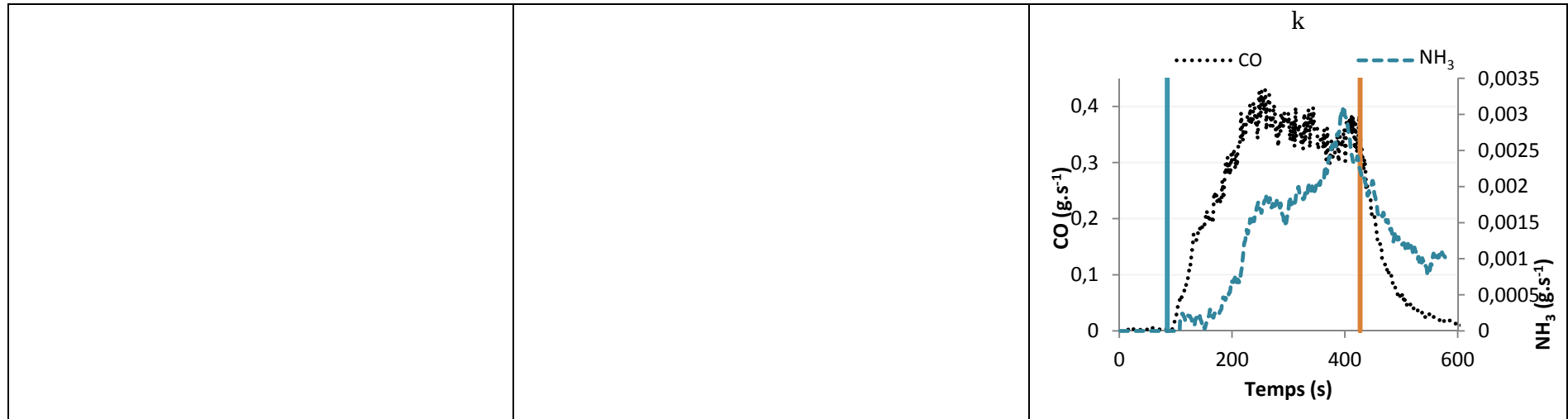


Figure 5 - 10 : Productions au cours du temps de NO, NO₂, CH₄, C₂H₂ et NH₃ pour les trois configurations expérimentales.

Les analyses par DTA-CPG/SM, montrent des différences significatives au niveau de confiance de 95 % révélées par le test ANOVA en ce qui concerne les composés majoritaires identifiés par cette voie d'analyse, principalement le benzène, le toluène, l'éthylbenzène et les xylènes. Le tableau suivant (V-XII) regroupe les résultats statistiques.

Tableau V - XII: Résultats statistiques (ANOVA) de certains composés majoritaires identifiés par DTA-CPG/SM

Composé	F	Ddl	p
Benzène	1127,99	16	0,0000
Toluène	303,32	16	0,0000
Ethylbenzène	91,53	16	0,0000
Xylènes (m+p+o)	35,90	16	0,0000
Styrène	39,31	17	0,0000

Les comparaisons multiples ont été utilisées pour déterminer les moyennes qui sont significativement différentes les unes des autres. La méthode employée pour discriminer entre les moyennes est la procédure des différences significatives minimales de Fisher (LSD).

Le test indique la présence de trois groupes homogènes correspondant chacun à un type particulier de configurations expérimentales. Les différences estimées entre les paires de moyennes et les limites de l'intervalle de ces différences montrent que ces trois paires (cône - panier dans le LSHR, cône – propagation et enfin panier – propagation dans le LSHR) sont statistiquement différentes au niveau de confiance de 95,0%.

Les différences estimées par exemple pour le benzène entre ces trois paires, sont respectivement 84,868 (+/-3,873) ; 39,798 (+/-4,557) et - 45,070 (+/- 4,160). Les limites de l'intervalle sont indiquées entre parenthèses.

Nous attribuons ces différences à la température des fumées. Les facteurs d'émissions les plus faibles sont relevées pour le cas du panier dans le LSHR. La température étant de l'ordre de 40°C dans ce cas, les composés organiques volatils auront tendance à se condenser dans le conduit d'évacuation. Il y aura donc une perte de composés organiques volatils à cette échelle pour cette configuration expérimentale en comparaison des deux autres cas (cône et propagation pour lesquels la température des fumées supérieure à 100°C limitera la condensation dans le conduit d'évacuation). En revanche, dans le cas de la propagation, nous pourrions nous attendre à des facteurs d'émission supérieurs à ceux obtenus dans le cas du

cône calorimètre car la température des fumées est supérieure (125°C pour la propagation et 100°C pour cône calorimètre) or, nous constatons qu'ils sont plus faibles. Ceci est attribué à une plus forte production de suies dans le cas de la propagation. Une partie du benzène, toluène, éthylbenzène et xylènes (BTEX) va donc contribuer à la formation des suies.

Afin de mettre en évidence les principaux composés chimiques intervenant sur la combustion et donc de réduire le nombre de variables tout en conservant le maximum de variabilité totale, nous avons appliqué une méthode factorielle aux différentes données regroupées dans le tableau V-X.

Ainsi, nous avons choisi la procédure d'analyse en composantes principales (ACP) dont le but est d'obtenir un petit nombre de combinaisons linéaires des 8 variables (composés majoritaires identifiés) prenant en compte la plus grande partie de la variabilité des données. Dans notre cas, deux composantes ont été extraites car il y a deux composantes qui ont des valeurs propres supérieures à 1 respectivement c^1 6,777 et c^2 3,725. Ensemble, elles expliquent 94,589 % de la variabilité des données d'origine. Les corrélations sont représentées dans la figure 5-11 appelée cercle de corrélation, où chaque variable z est représentée par un point de coordonnées $(r(c^1, z^j), r(c^2, z^j))$.

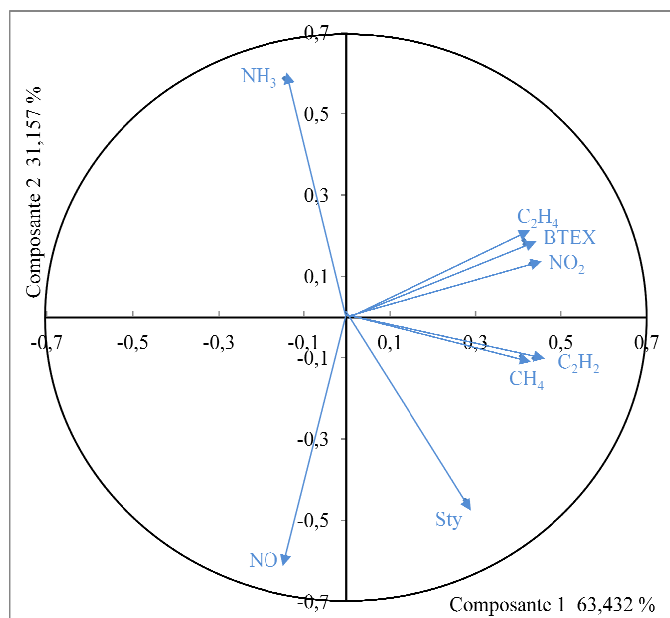


Figure 5 - 11: Cercle des corrélations des variables sur le plan 1-2 pour les trois types combustions de pin maritime

Toutes les variables sont bien représentées dans ce plan factoriel puisque leurs corrélations avec les axes sont relativement importantes (certaines sont assez proches du cercle de

corrélation). Nous remarquons que seul le vecteur ammoniac (NH_3) s'oppose aux autres vecteurs, traduisant une indépendance de la présence de ce composé par rapport à l'ensemble des autres variables dont certaines sont plus ou moins corrélées entre elles. Ainsi, l'ammoniac caractérise l'axe 2. Le styrène et le monoxyde d'azote sont corrélés négativement à cet axe.

Ce plan explique 94,589 % de la variance totale, il montre une forte corrélation entre les BTEX, le dioxyde d'azote et l'éthylène. Les variables BTEX, dioxyde d'azote et éthylène sont actives sur l'axe 1.

Après l'interprétation des composantes principales, nous représentons les individus (l'ensemble des expériences de combustion) dans les plans factoriels formés en croisant les axes factoriels retenus (Figure 5-12). Chaque représentation est expliquée en essayant de repérer des groupes d'individus et en donnant à ces groupes une signification en fonction de leur place dans les plans factoriels.

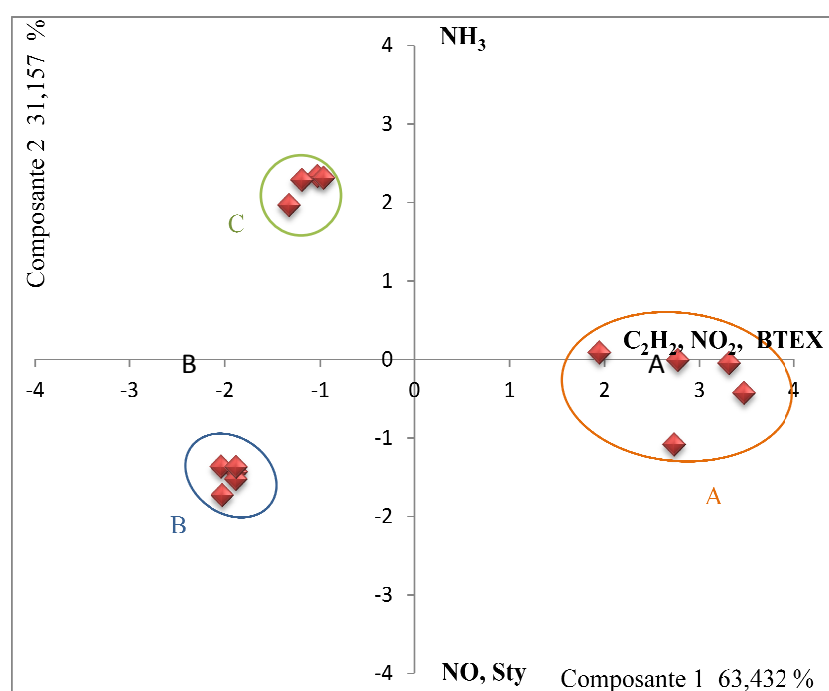


Figure 5 - 12: Représentation de l'ensemble des composés pour les expériences de combustion de pin maritime pour les trois configurations expérimentales

Le plan 1-2 permet de distinguer nettement trois groupes, correspondant chacun à un type particulier de combustion. En effet, nous remarquons que

- le groupe A est constitué par les expériences réalisées avec le cône et dont les analyses ont révélé des concentrations en BTEX, éthylène et dioxyde d'azote les plus élevées.

- le groupe B regroupant les individus issus de la combustion du panier dans le LSHR, est caractérisé par des teneurs importantes en monoxyde d'azote, et des taux de BTEX les plus faibles.

- Le groupe C correspond aux combustions de propagation à l'échelle du LSHR. La présence d'ammoniac est spécifique à ce groupe. Les concentrations en monoxyde d'azote sont minimales, celles en BTEX sont moyennes.

Afin de compléter cette approche statistique, il nous est apparu intéressant de mettre en œuvre une nouvelle analyse en composantes principales en y ajoutant les résultats des combustions obtenues sous le cône et avec le panier dans le LSHR pour le second végétal à savoir le pin laricio (Chapitre 4).

Les analyses par DTA-CPG/SM n'ayant pas été réalisées pour les combustions du pin laricio, nous avons été contraints de réduire le nombre de variables (6 composés chimiques à savoir le méthane, l'éthylène, l'acétylène, les deux oxydes d'azote et l'ammoniac).

L'analyse des plans 1-2 permet d'expliquer 86,511 % de la variance totale. Le cercle de corrélation des variables sur ce plan est fourni à la figure 5-13.

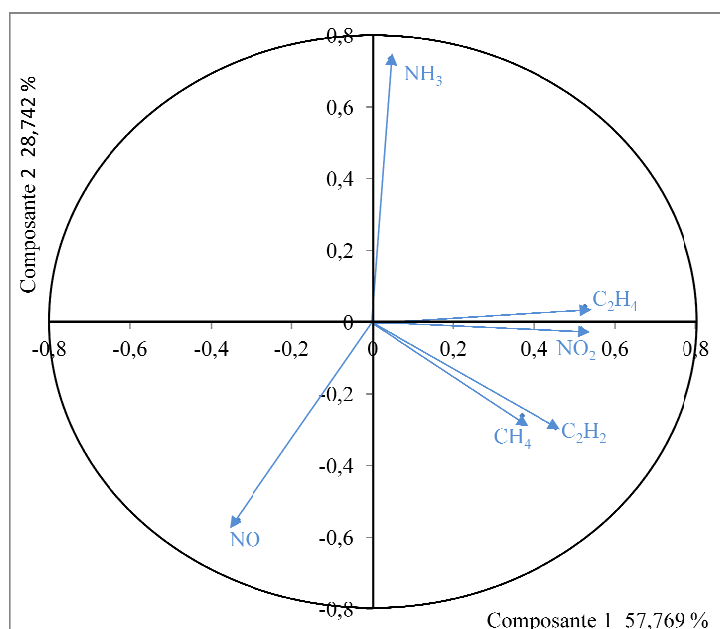


Figure 5 - 13: Cercle des corrélations des variables sur le plan 1-2 pour les combustions des aiguilles de pin maritime et de pin laricio

Comme pour la précédente ACP, nous constatons que le vecteur ammoniac NH_3 caractérise l'axe 2 positivement alors que le NO le caractérise négativement. Sur l'axe 1, seules les variables éthylène et dioxyde d'azote sont actives.

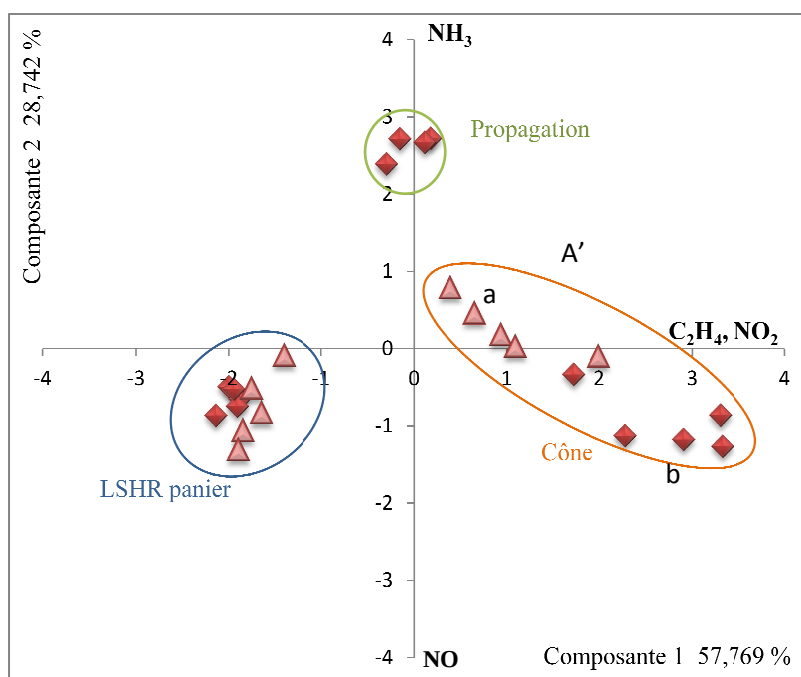


Figure 5 - 14: Représentation de l'ensemble des composés pour les expériences de combustion de pin maritime et de pin laricio

La figure 5-14 présente la répartition des combustions (25 expériences dont 15 réalisées en brûlant *Pinus pinaster* et 10 obtenues à partir de *Pinus laricio*) en fonction de l'ensemble des variables sur le plan 1-2.

On distingue 3 groupes :

-Le groupe A' comprenant l'ensemble des combustions réalisées avec le cône. C'est avec ce type d'expérimentations que les concentrations en dioxyde d'azote NO_2 et éthylène C_2H_4 sont les plus importantes. Ces composés chimiques nous permettent de distinguer deux sous-groupes l'un constitué par les expériences réalisées à partir de *P. pinaster* et l'autre celles ayant brûlées du *P. laricio* (respectivement sous-groupes a et b, figure 5-14). Le 1^{er} sous-groupe correspondant aux expériences de *P. pinaster* est caractérisé par une teneur plus importante en ces deux constituants et par une absence d'émission d'ammoniac. A l'inverse, le second sous-groupe (b) est déterminé par une production d'ammoniac et des concentrations plus faibles de l'ensemble des deux constituants (NO_2 et C_2H_4). Dans les deux sous-groupes, le NO a des valeurs intermédiaires par rapport à celles obtenues pour les groupes B' et C'.

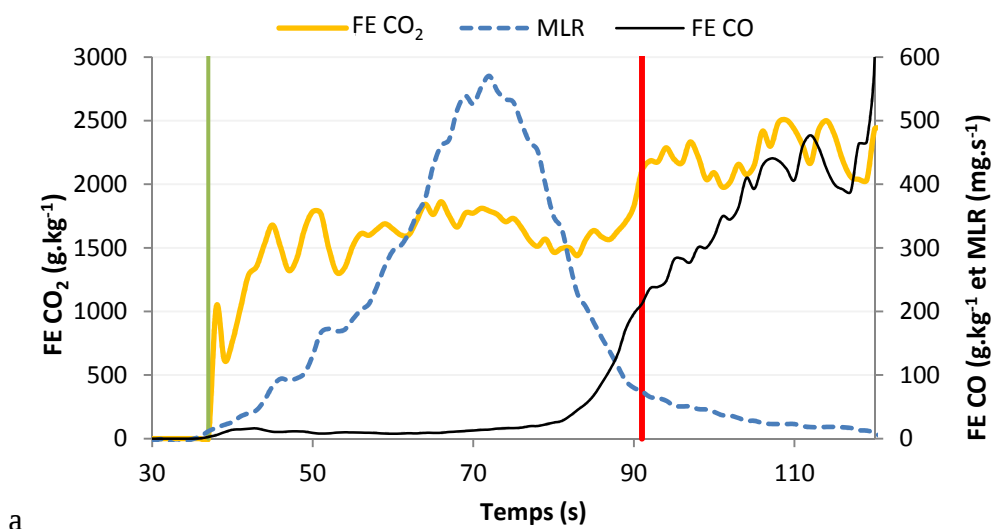
- Le groupe B' est composé de l'ensemble des combustions qui se sont déroulées avec le panier dans le LSHR. Seul le NO caractérise ces expérimentations. Pour les deux types de végétaux (*Pinus pinaster* et *Pinus laricio*), il est le constituant majoritairement émis avec ce type de configuration expérimentale.

- Le groupe C' concerne uniquement les individus provenant des propagations obtenues avec *Pinus pinaster*. Cet ensemble se caractérise principalement par des émissions d'ammoniac mais également par des concentrations faibles en éthylène et en oxydes d'azote.

Si cette analyse a été réalisée avec un faible nombre d'échantillons, elle a néanmoins révélé que la configuration expérimentale favorise l'émission de certains composés. Comme pour *Pinus pinaster*, la prise en compte de variables supplémentaires pourrait renforcer ces résultats.

Les figures 5-15a, b et c reproduisent l'évolution des facteurs d'émission au cours du temps du monoxyde et du dioxyde de carbone pour les trois configurations expérimentales. Lors de la phase de flamme pour les combustions au cône calorimètre une certaine constance d'émission (égales à 1601,15 g.kg⁻¹ pour le CO₂ et 15,90 g.kg⁻¹ pour le CO) est observée. Elle est suivie d'une augmentation lors de la transition vers la phase sans flamme (smoldering) qui est plus marquée pour le CO que pour le CO₂. Lors de la combustion avec le panier dans le LSHR, nous avons constaté une augmentation conjointe des facteurs d'émissions pendant la phase de flamme pour le CO et le CO₂ (variant entre 11,52 et 251,60 g.kg⁻¹ pour CO et entre 1033,95 et 3200,99 g.kg⁻¹ pour CO₂). Pour les expériences de propagation, nous observons le même comportement qu'à l'échelle du cône calorimètre. En effet, au moment de l'inflammation des aiguilles, les facteurs d'émission de CO₂ et CO augmentent et se stabilisent pendant toute la durée de la phase de flamme (ils valent respectivement 50,43 g.kg⁻¹ pour le CO et 1623,12 g.kg⁻¹ pour le CO₂). Lors de la propagation, la phase de combustion des charbons est couplée avec la phase de flamme car les charbons se consomment au fur et à mesure que progresse le front de flamme. Les facteurs d'émissions augmentent ensuite au moment de la transition vers l'extinction de la flamme et se stabilisent à une valeur supérieure lors de la phase de smoldering (ayant lieu après l'extinction du front de flamme). Le facteur d'émission de CO connaît la plus forte augmentation et vaut en moyenne 397,10 g.kg⁻¹ pour la propagation et 282,45 g.kg⁻¹ pour la combustion avec le cône calorimètre.

Ainsi, nous constatons que si les facteurs d'émission globaux (cf. tableau V-XIII) de CO et de CO₂ sont du même ordre pour les trois configurations expérimentales, il en va différemment des facteurs d'émission dynamiques au cours de la phase de flamme. Tout d'abord, l'évolution de ces facteurs pour CO et CO₂ est dépendante du système car on retrouve des comportements différents pour les deux configurations expérimentales dans le LSHR. Ensuite, les valeurs de ces facteurs d'émission sont également dépendantes de l'échelle. Pour le CO on observe une valeur plus élevée (50,43 g.kg⁻¹) dans le cas de la propagation, suivie d'une valeur intermédiaire (23,53 g.kg⁻¹ en moyenne pour la durée de la phase de flamme) pour le panier dans le LSHR où une légère propagation est présente et enfin la valeur la plus faible (15,90 g.kg⁻¹) à l'échelle du cône calorimètre où la propagation est insignifiante. Le CO₂, en revanche a des valeurs d'émission proches dans les trois configurations expérimentales pendant la phase de flamme puisqu'elles valent respectivement 1601,15 g.kg⁻¹ pour le cône, 1622,67 g.kg⁻¹ pour le LSHR panier et 1623,12 g.kg⁻¹ pour la propagation.



a

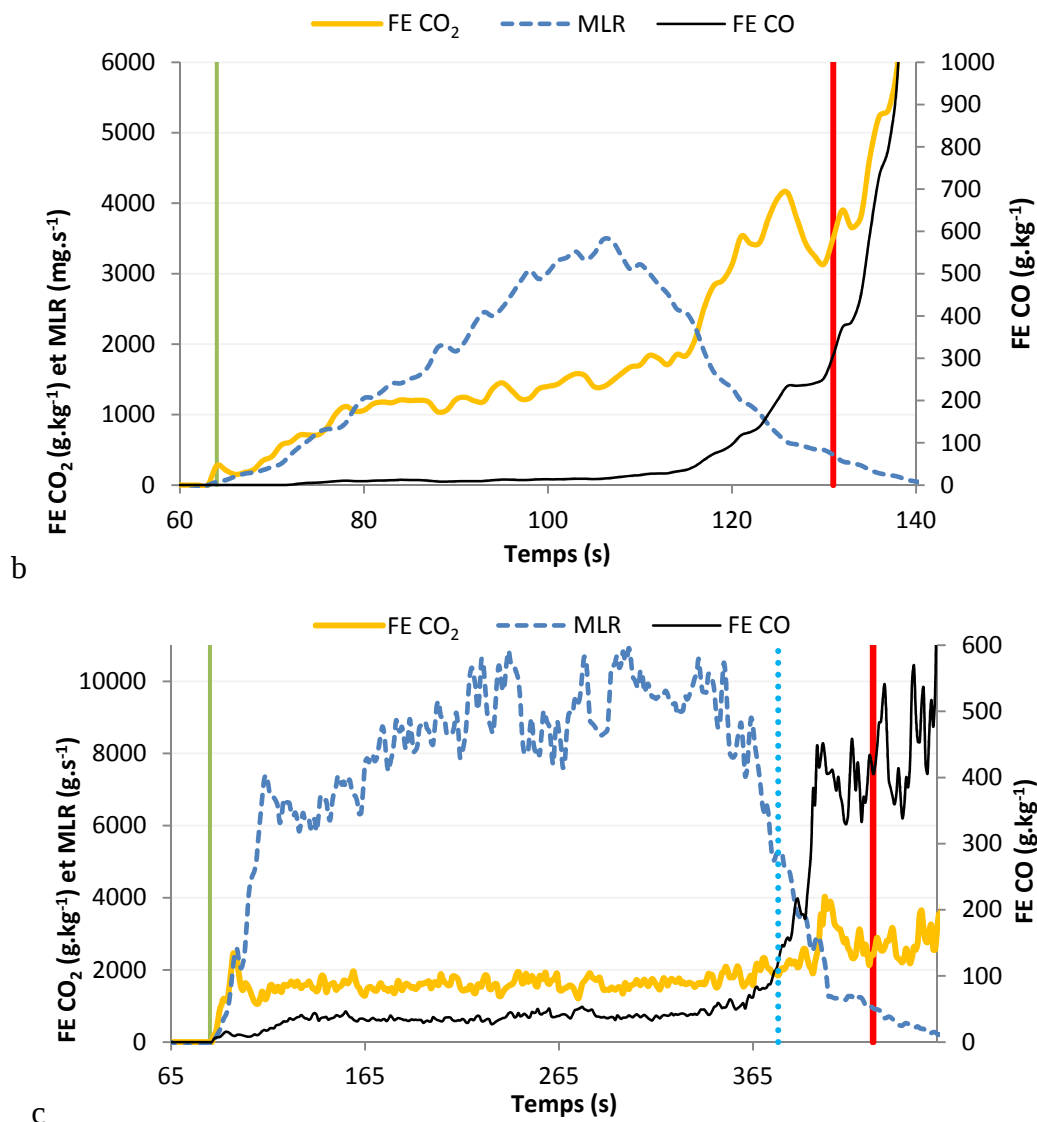


Figure 5 - 15: Facteurs d'émission dynamiques de CO et CO₂ pour les trois configurations expérimentales

En conclusion de cette analyse, nous notons des différences importantes sur la production des fumées à la fois en raison de l'échelle d'observation mais aussi pour une même échelle en raison de la configuration expérimentale. La production des suies et donc l'opacité des fumées semble dépendante de l'échelle d'observation puisque les configurations de type panier ou propagation à l'échelle du LSHR présentent les mêmes caractéristiques. Ces dernières sont nettement différentes de celles observées à l'échelle du cône calorimètre. La composition chimique des gaz présents dans les fumées semble liée à l'échelle et au système. En effet, nous avons observé que la variété des espèces présentes est corrélée à la température des fumées, donc à la dynamique de combustion et au système puisque les mêmes composés sont détectés à l'échelle du cône calorimètre et dans le cas de la propagation à l'échelle du

LSHR. De plus, les composés chimiques sont moins variés mais émis dans des quantités plus importantes pour le cas du panier à l'échelle du LSHR (cf. tableau V-X). Il faut ajouter également que la nature propagative des expériences menées à l'échelle du LSHR modifie clairement les facteurs dynamiques d'émission de CO et CO₂. Nous attribuons ceci à un effet du système et non à un effet d'échelle car des différences notables ont été obtenues à l'échelle du LSHR.

5.4.3. Analyse des effets du changement d'échelle et du système sur le bilan massique de carbone

Le tableau V - XIII regroupe les bilans massiques de carbone obtenus aux trois échelles de combustion. Les résultats exposés précédemment ont mis en évidence des taux similaires de carbone retrouvés dans les produits de combustion analysés aux trois échelles de combustion. En effet, nous retrouvons 95,50% de carbone avec le cône calorimètre, 96,15% avec le LSHR et 95,02% lors des propagations.

Le carbone est principalement retrouvé sous forme de dioxyde de carbone dans les trois cas de combustion à des taux très proches, 90,81% avec le cône, 91,12% avec le LSHR et 89,70% lors des propagations. Le monoxyde de carbone représente 4% du carbone identifié pour les trois échelles de combustion (4,10% avec le cône, 3,92% avec le LSHR et 4,16% en propagation). En ce qui concerne le carbone analysé par CPG/SM, nous notons des taux variant de 0,02% pour l'échelle du LSHR à 0,05% pour l'échelle du cône calorimètre. Le carbone gazeux provenant des composés linéaires de faibles masses moléculaires identifiés par IRTF (composés de 1 à 3 carbones) est plus abondant lors des expériences avec le cône calorimètre (0,31%) que pour la propagation (0,13%) et pour le panier avec le LSHR (0,11%). Les suies sont retrouvées à des taux identiques à l'échelle du LSHR pour le panier et en propagation, soit 1% du carbone identifié. En revanche, les suies ne représentent que 0,25% du carbone identifié à l'échelle du cône. Malgré les différences sur les facteurs d'émissions, le changement d'échelle et du système n'affecte pas notre bilan massique de carbone. Nous avons donc retrouvé pour les trois configurations expérimentales la même quantité de carbone dans les produits de combustion (mais répartie différemment), ce qui conforte notre analyse.

Tableau V - XIV: Bilan massique en carbone par familles de composés pour les trois configurations expérimentales en ($g_c \cdot kg_{vb}^{-1}$) (- : non identifiés).

	Cône	LSHR	Propagation
Suies	1,318 ± 0,193	5,171 ± 0,428	5,346 ± 0, 0,382
Linéaires (C₁-C₃)	1,652 ± 0,282	2,444 ± 0,197	0,694 ± 0,193
Linéaires (C₆-C₁₉)	0,019 ± 0,000	0,036 ± 0,004	0,019 ± 0,006
Benzène et dérivés	0,218 ± 0,000	0,049 ± 0,009	0,112 ± 0,007
Oxygénés	503,530 ± 15,794	504,232 ± 3,571	497,901 ± 9,745
Terpènes	0,003 ± 0,000	0,009 ± 0,001	0,001 ± 0,000
HAP	0,004 ± 0,000	-	-

5.4.4. Tableau de synthèse des effets du changement d'échelle et du système sur la combustion des aiguilles de *Pinus pinaster*

Le tableau V-XIV synthétise l'ensemble des analyses menées dans les paragraphes précédents à propos des effets du changement d'échelle et du système sur la combustion des aiguilles de *Pinus pinaster*.

Tableau V - XV: synthèse des effets du changement d'échelle et du système sur la combustion des aiguilles de *Pinus pinaster*

	Dépendant de l'échelle	Dépendant du système	Indépendant de l'échelle et du système
Efficacité χ			$\sqrt{*}$
Pic de perte de masse en fonction de la surface ($\text{g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$)	$\sqrt$		
Puissance calorifique en fonction de la surface (kW.m^{-2})	$\sqrt$		
RSR et TSR	$\sqrt$		
FE_{suies}	$\sqrt$		
FE_{CO} et FE_{CO_2} globaux			$\sqrt$
FE_{CO} et FE_{CO_2} dynamiques		$\sqrt$	
Composés azotés	$\sqrt$	$\sqrt$	
COV	$\sqrt$	$\sqrt$	

*(Peu dépendant)

Conclusions et perspectives

Le comportement des incendies de végétation est influencé par de nombreux facteurs tels que les conditions météorologiques, l'horographie et les typologies végétales. Pour comprendre et analyser les phénomènes mis en jeu dans ces incendies et répondre aux sollicitations des services opérationnels de sécurité incendie, la communauté scientifique, étudie la combustion des végétaux notamment à l'échelle du laboratoire. Ces études requièrent la prise en compte de phénomènes complexes notamment la dégradation du combustible végétal, les phases de combustion, les transferts thermiques, les écoulements. L'objectif principal de cette thèse est de déterminer quels protocoles expérimentaux et plus particulièrement quelles échelles de combustion permettent de caractériser au mieux la combustion des végétaux en laboratoire. Pour répondre à cette question, nous avons étudié à l'aide de trois configurations expérimentales le comportement au feu des aiguilles de deux espèces de pin représentatives de l'écosystème méditerranéen, *Pinus pinaster* et *Pinus laricio*. Les litières d'aiguilles de pin représentent un enjeu important en matière de sécurité incendie car elles entretiennent la dynamique des incendies en assurant la propagation des feux en surface.

Trois configurations expérimentales ont été étudiées au cours de cette thèse :

- La combustion d'un échantillon d'aiguilles à l'échelle du cône calorimètre,
- La combustion d'un échantillon d'aiguilles à l'échelle du grand calorimètre ou Large Scale Heat Release (LSHR). Ce dispositif permet d'étudier la combustion statique de masses plus importantes que celles étudiées avec le cône calorimètre en donnant des flammes de plus grandes tailles,
- La combustion d'une litière donnant naissance à un feu se propageant dans des conditions similaires à celles observées sur le terrain. Cette configuration permet

d'étudier l'effet de la propagation et donc du système sur la dynamique de la combustion et sur la production des fumées.

Différents paramètres ont été étudiés pour analyser la dynamique de combustion tels que l'efficacité de la combustion, la puissance du feu ou encore la vitesse de perte de masse. La production des fumées a été étudiée à partir de l'opacité créée par celles-ci par mesure du coefficient d'extinction. Cette mesure a également permis d'obtenir les facteurs d'émission des suies. Ceux des principaux composés émis lors de la combustion de ces deux types d'aiguilles de pin ont été mesurés en continu à partir d'un analyseur Infrarouge à Transformée de Fourier et d'un analyseur Infrarouge Non-Dispersif. Des analyses par chromatographie en phase gazeuse couplée à un détecteur à ionisation de flamme et un spectromètre de masse ont complété cette étude.

Des protocoles expérimentaux ont été adaptés pour garantir la confrontation des trois configurations expérimentales. Tout d'abord la masse de combustible brûlée a été adaptée afin de conserver une même charge de $1,2 \text{ kg.m}^{-2}$ pour les trois configurations dans le cas de *P. pinaster*. En ce qui concerne la combustion de *P. laricio*, la charge utilisée est de $1,04 \text{ kg.m}^{-2}$ pour conserver une perméabilité identique à celle de *P. pinaster*. Pour les feux statiques correspondants aux deux échelles de combustion, les expériences ont été réalisées dans des supports spécialement conçus pour cette étude. Il s'agit de paniers grillagés de diamètres 12,6 cm dans le cas du cône calorimètre et 35 cm dans le cas du LSHR contenant les aiguilles. L'ouverture des paniers est de 99,75% permettant ainsi un écoulement d'air quasi-naturel dans le combustible. Ainsi la différence de diamètre nous a permis de réaliser une combustion de l'échantillon dans son ensemble en modifiant notablement la taille des flammes (1 m dans le LSHR pour 30 cm dans le cône calorimètre). Le même type d'allumage a été réalisé pour les trois configurations expérimentales. Nous avons choisi d'allumer le combustible au moyen d'une mèche imbibée d'éthanol.

A l'échelle du cône calorimètre, les combustions des aiguilles des deux espèces de pins se déroulent de manière analogue pour des lits présentant une même perméabilité. Les combustions sont quasi complètes du fait de leur forte efficacité qui s'élève à 96,89% pour les aiguilles de pin maritime et à 93,96% pour celles de pin laricio. Ces régimes de combustion semblables nous permettent de comparer les facteurs. Les fumées produites lors de ces deux combustions présentent des différences. L'opacité générée par les fumées est plus faible lors de la combustion des aiguilles de pin laricio. Cette différence est principalement attribuée au

facteur d'émission de suies qui est deux fois moins important pour les aiguilles de pin laricio. Lors des deux combustions les facteurs d'émissions majoritaires sont le dioxyde et le monoxyde de carbone. La production de CO₂ est sensiblement plus importante pour la combustion de *P. pinaster* que pour celle de *P. laricio*. En revanche, le facteur d'émission de CO est moins élevé lors de la combustion des aiguilles de pin maritime. D'autres facteurs d'émission ont également été obtenus tels que le monoxyde et dioxyde d'azote, ils sont retrouvés en quantité supérieure lors de la combustion des aiguilles de pin maritime. Toutefois, les facteurs d'émission de méthane sont identiques. Un bilan massique de carbone a été effectué pour les deux combustions et comparé aux quantités de carbone obtenues lors des analyses élémentaires réalisées sur les aiguilles des deux espèces de pins. Ainsi, nous avons retrouvé sous forme de gaz 95,52% de ce carbone pour *Pinus pinaster* et 95,75% pour *Pinus laricio*.

La combustion des aiguilles de pin maritime à une échelle supérieure, celle du LSHR, a mis en évidence une différence de dynamique de combustion par rapport à celle observée avec le cône calorimètre. Ainsi, le changement d'échelle pour une charge identique (1,2 kg.m⁻²) de combustible végétal, influence la dynamique de combustion sans en modifier l'efficacité. La comparaison des vitesses de perte de masse en fonction de la surface brûlée (correspondant aux surfaces des paniers respectifs) au moment de la phase de flamme, indique une combustion plus rapide dans le cas des expériences réalisées avec le cône calorimètre. Cette tendance s'inverse au moment de la phase de smoldering, puisque la vitesse de la perte de masse est alors plus rapide avec le LSHR indiquant une combustion des résidus charbonneux plus longue lors des expériences menées avec le cône calorimètre. Les combustions aux deux échelles sont réalisées en régimes sur-ventilés ce qui favorise aussi bien la combustion en phase gazeuse que la combustion des charbons. En ce qui concerne les valeurs des puissances calorifiques par unité de surface mesurées, les résultats obtenus avec le cône calorimètre sont à prendre avec précaution, puisqu'une différence de 24% est observée lorsqu'on confronte les deux échelles. La combustion semble être favorisée à l'échelle du cône calorimètre. Pour la production des fumées, des différences importantes ont été obtenues en terme de quantité de fumées produite. Celles-ci s'expliquent par des facteurs d'émission de suies plus importants à l'échelle du LSHR. Il est à noter également qu'à l'échelle du cône calorimètre des composés organiques volatils des suies tels que le benzène et des hydrocarbures aromatiques polycycliques sont présents en quantités plus importantes qu'à

l'échelle du LSHR. Les autres facteurs d'émissions tels que le NO sont impactés par le changement d'échelle, ce composé est en effet retrouvé en quantité supérieure à l'échelle du LSHR. A l'échelle du cône calorimètre, la température des fumées, au point de prélèvement, est plus élevée qu'à l'échelle du LSHR, empêchant ainsi la recondensation des COV. Le changement d'échelle ne semble pas influencer les facteurs d'émissions de CO et CO₂ globaux, mais des différences en termes de dynamique de ces facteurs d'émission sont à noter pour les deux échelles. Aucun effet d'échelle n'est à noter concernant les bilans massiques de carbone. En effet, des taux similaires de carbone sont retrouvés dans les produits de combustion analysés aux deux échelles.

En ce qui concerne la combustion des aiguilles de *Pinus laricio*, pour une charge identique aux échelles du cône et du LSHR, un effet d'échelle sur la dynamique de combustion est également observé. Cependant, les comportements à l'échelle du cône et à l'échelle du LSHR sont opposés à ceux obtenus avec les aiguilles de *Pinus pinaster*. En effet, la dynamique de combustion est plus forte dans le cas des aiguilles de *Pinus laricio* à l'échelle du LSHR qu'à l'échelle du cône alors que nous observons le comportement inverse pour les aiguilles de *Pinus pinaster*. Toutefois, la différence observée dans le cas de la combustion de *Pinus laricio* aux deux échelles est plus faible (9% contre 24% dans le cas de *Pinus pinaster*). Les combustibles thermiquement fins (tels que les aiguilles de *Pinus laricio*) semblent moins affectés par le changement d'échelle. En revanche, le changement d'échelle de combustion influence la production des fumées puisqu'une quantité plus importante de fumées est obtenue dans le cas de la combustion avec le LSHR de même qu'un facteur d'émission de suies supérieur. La nature et la quantité des composés émis sont également impactés, nous retrouvons un plus grand nombre de composés avec le cône calorimètre mais à des concentrations inférieures à celles retrouvées avec le LSHR. Le facteur d'émission du monoxyde d'azote est retrouvé en quantité supérieure à l'échelle du LSHR alors que celui du méthane est retrouvé en quantité légèrement inférieure. Ces différences sont principalement dues à la différence de température des fumées qui varient fortement selon l'échelle de combustion (elles sont en moyenne à 100°C lors des combustions avec le cône et de 45°C avec le LSHR). Nous observons également une différence en termes de dynamique des facteurs d'émission de CO et CO₂ pour les deux échelles. Le bilan massique de carbone est également influencé par le changement d'échelle pour la combustion des aiguilles de *Pinus laricio*. La différence de taux de carbone identifié aux deux échelles de combustion est principalement due à la différence de facteur d'émission de monoxyde de carbone dont la

quantité supérieure à l'échelle du LSHR (87,71 g.kg⁻¹ contre 60,15 g.kg⁻¹ à l'échelle du cône) est attribuée à une moins bonne combustion des résidus charbonneux pendant la phase de smoldering.

Les effets du changement d'échelle et du système sur la dynamique de combustion ont également été étudiés en confrontant les mesures de : puissance calorifique par unité de surface, perte de masse par unité de surface et efficacité des combustions. Les surfaces considérées dans le cas des feux statiques réalisés avec le cône calorimètre et le LSHR sont celles des paniers respectifs. Pour la propagation, la surface de combustion correspond à la zone du front de feu, englobant le front de flamme et le front de combustion des charbons. Pour une charge identique (1,2 kg.m⁻²) d'aiguilles de *Pinus pinaster*, le changement d'échelle influence la dynamique de combustion. En effet, il existe une différence notable concernant la puissance calorifique maximale dégagée, de l'ordre de 24% entre les expériences menées à l'échelle du LSHR (panier et propagation) et celles conduites à l'échelle du cône calorimètre. Aucun effet du système n'est observé sur cette grandeur puisque les puissances maximales relevées pour des feux statiques (panier dans le LSHR) et dynamiques (propagation dans le LSHR) sont identiques. L'efficacité de la combustion (et par conséquent l'énergie totale dégagée) est peu influencée par le changement d'échelle et par le système de combustion puisque les valeurs obtenues sont très proches pour les trois configurations expérimentales. L'échelle du cône calorimètre influence donc la dynamique de combustion, probablement en raison de la taille de la flamme relativement à la taille de l'échantillon. Le pic de puissance calorifique pourrait être dû à une meilleure aspiration créée par la flamme.

Des différences importantes sur la production des fumées sont également notées à la fois en raison de l'échelle d'observation mais aussi pour une même échelle en raison de la configuration de combustion. En effet, les configurations de type panier ou propagation à l'échelle du LSHR présentent les mêmes caractéristiques concernant la production des suies et l'opacité des fumées alors que les résultats obtenus à l'échelle du cône calorimètre diffèrent fortement. La composition chimique des gaz présents dans les fumées semble liée au système et à l'échelle. Des tests statistiques ANOVA et les étendues multiples dont la procédure basée sur les différences significatives minimales de Fisher (LSD) permet la discrimination des moyennes, ont mis en évidence la présence de différences significatives pour tous les composés majoritaires identifiés au niveau de confiance de 95 %. Trois groupes ont été révélés, chacun représentant une variable c'est-à-dire un type de configuration expérimentale.

Ainsi, la composition des gaz présents dans les fumées est dépendante de l'échelle et du système.

Les mêmes composés ont été identifiés à l'échelle du cône calorimètre et dans le cas de la propagation mais dans des proportions différentes. Leurs productions semblent fortement liées aux températures des fumées qui sont très proches pour le cône calorimètre et pour les expériences de propagation. Ces valeurs sont nettement supérieures à celles obtenues pour les feux statiques conduits avec le LSHR. Dans ce cas, les composés chimiques identifiés sont moins variés mais présents en proportions plus importantes que dans les autres configurations expérimentales. Les facteurs d'émissions de CO et CO₂ globaux, sont indépendants de l'échelle de combustion, mais leur dynamique d'émission est influencée par le système de combustion. En effet, à l'échelle du LSHR, leurs émissions sont plus élevées durant la phase de flamme qu'à l'échelle du cône calorimètre. Les bilans massiques de carbone ne sont pas impactés par le changement d'échelle et de système de combustion. Des taux similaires de carbone sont retrouvés dans les trois configurations expérimentales.

L'approche multi-échelle proposée dans ce travail a mis en évidence les difficultés rencontrées lors de l'analyse et de l'étude des phénomènes complexes comme les incendies. Les principaux outils actuellement disponibles à l'échelle du laboratoire rendent possibles des études difficilement réalisables à la pleine échelle. Toutefois, nous avons pu montrer que certaines précautions sont nécessaires avant de transposer les résultats de laboratoire sur le terrain. Si le cône calorimètre s'est révélé assez pertinent pour l'analyse de la composition des fumées, il a toutefois démontré de fortes limitations pour la prédiction du taux de production des fumées et de la dynamique de combustion. Le grand calorimètre qui semblerait *a priori* mieux approprié a également prouvé que l'étude de feux statiques de faible dimension induit un refroidissement rapide des fumées qui pénalise l'analyse des facteurs d'émission.

Ces travaux nécessitent d'être poursuivis dans le but d'étudier l'influence du changement d'échelle pour des combustions se produisant dans des atmosphères sous-oxygénées. L'utilisation de combustibles différents est également souhaitable afin d'évaluer l'intérêt de cette approche pour d'autres types d'incendies.

Bibliographie

- Alén, R., Kuoppala, E., Oesch, P., 1996. Formation of the main degradation compound groups from wood and its components during pyrolysis. *J. Anal. Appl. Pyrol.* 36, 137–148.
- Alvarado, M.J., Prinn, R.G., 2009. Formation of ozone and growth of aerosols in young smoke plumes from biomass burning: 1. Lagrangian parcel studies. *J. Geophys. Res.-Atmos.* 114, D09306.
- Alves, C.A., Gonçalves, C., Pio, C.A., Mirante, F., Puxbaum, H., Caseiro, A., Freitas, M.C., Viegas, X., 2010. Smoke emissions from biomass burning in a Mediterranean shrubland. *Atmospheric Environment*, 44 (25), 3024–3033.
- Anderson, H.E., 1970. Forest fuel ignitability. *Fire Technology* 6, 312–319.
- Andreae, M.O., Merlet, P., 2001. Emission of trace gases and aerosols from biomass burning. *Global Biogeochemical Cycles* 15, 955-966.
- Andrews, P. L., C. D. Bevins, and R. C. Seli (2003), BehavePlus fire modeling system, version 2.0: User's guide, Gen. Tech. Rep. RMRS-GTR-106WWW , 132 pp., U.S. Dep. of Agric. For. Serv., Ogden, Utah.
- Babrauskas, V., (2006), Effective heat of combustion for flaming combustion of conifers, *Canadian Journal of Forest Research*, 36, 659-663.
- Babrauskas, V., 1984. Upholstered furniture room fires – measurements, compararison with furniture calorimeter data, and flashover predictions. *J. of Fire Sciences* 2, 5-19.
- Babrauskas, V., Twilley, W. H., Janssens, M. and Yusa, S., 1992. A cone calorimeter for controlled-atmosphere studies. *Fire Mater.*, 16: 37–43.
- Babrauskas, V. and Mulholland, G., 1987. Smoke and Soot Data Determinations in the Cone Calorimeter. *Mathematical Modeling of Fires*, ASTM STP 983, American Society for Testing and Materials, Philadelphia, pp. 83–104.
- Babrauskas, V., 2002. The Cone Calorimeter, *SFPE Handbook of Fire Protection Engineering*, The National Fire Protection Association Press, pp. 3-63 - 3-81.

- Barboni, T. and Chiaramonti, N. 2010. BTEX Emissions During Prescribed Burning in Function of Combustion Stage and Distance From Flame Front. *Combustion Science and Technology*, 182: 9, 1193—1200.
- Barker, T., Bashmakov, I., Bernstein, L., Bogner, J.E., Bosch, P.R., Dave, R., Davidson, O.R., Fisher, B.S., Gupta, S., Halsnæs, K., Heij, G.J., Kahn Ribeiro, S., Kobayashi, S., Levine, M.D., Martino, D.L., Maser, O., Metz, B., Meyer, L.A., Nabuurs, G.J., Najam, A., Nakicenovic, N., Rogner, H.H., Roy, J., Sathaye, J., Schock, R., Shukla, P., Sims, R.E.H., Smith, P., Tirpak, D.A., Urge-Vorsatz, D., Zhou, D., 2007. *Climate Change 2007: Mitigation. Contribution of Working Group III to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Bartoli, P., (2011), *Feux de forêt : amélioration de la connaissance du couplage combustible-flamme*, Thèse de Doctorat, Université de Corse.
- Bartoli, P., Simeoni, A., Biteau, H., Torero, J.L. and Santoni, P.A., 2011. Determination of the main parameters influencing forest fuel combustion dynamics. *Fire Safety Journal* 46, 27-33.
- Behm, A.L., Duryea, M.L., Long, A.J., Zipperer, W.C., 2004. Flammability of native understory species in pine flatwood and hardwood hammock ecosystems and implications for the wildland-urban interface. *International Journal of Wildland Fire* 13, 355–365.
- Benkoussas, B., Consalvi, J.L., Porterie, B., Dardoy, N., Loraud, J.C., 2007. Modelling thermal degradation of woody fuel particles. *International Journal of Thermal Sciences*, 46, 319–327.
- Bertschi, I., Yokelson, R. J., Ward, D. E., Babbitt, R.E., Susott, R. A., Goode, J. G., Hao, W. M., 2003. Trace gas and particle emissions from fires in large diameter and belowground biomass fuels. *Journal of Geophysical Research*, 108, 8472.
- Biteau, H., Steinhaus, T., Schemel, C., Simeoni, A., Marlair, G., Bal, N., and Torero, J.L., 2009. Calculation methods for the heat release rate of materials of unknown composition. *Fire Safety Science – Proceedings of the Ninth International Symposium, International Association for Fire Safety Science*, 2008, pp. 1165-1176.
- Bockhorn, H., *Soot formation in combustion* (Vol. 59 in series in Chemical Physics), Springer-Verlag, Berlin 1994.
- Booze, T.F., Reinhardt, T.E., Quiring, S.J., Ottmar, R.D., 2004. A screening-level assessment of the health risks of chronic smoke exposure for wildland firefighters. *Journal of Occupational and Environmental Hygiene*, 1, 296-305.
- Burling, I.R., Yokelson, R.J., Griffith, D.W.T., Johnson, T.J., Veres, P., Roberts, J.M., Warneke, C., Urbanski, S.P., Reardon, J., Weise, D.R., Hao, W.M., de Gouw, J., 2010. Laboratory measurements of trace gas emissions from biomass burning of fuel types from the southeastern and southwestern United States. *Atmos. Chem. Phys.* 10, 1115–11130.

- Byram, G. M., 1959. Combustion of forest fuels. In: Davis, K. P., ed. *Forest Fire: Control and Use*. New York: McGraw Hill.
- Chandler, C., Cheney, P., Thomas, P., Trabaud, L., Williams, D., 1983. *Fire In Forestry. Volume I: Forest Fire Behavior and Effects*. New York, NY: John Wiley & Sons, 1983. 450 p.
- Chen, L.-W. A., Verburg, P., Shackelford, A., Zhu, D., Susfalk, R.J., Chow, C., Watson, J. G., 2010. Moisture effects on carbon and nitrogen emission from burning of wildland biomass. *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 6617.
- Christian, T., Kleiss, B., Yokelson, R., Holzinger, R., Crutzen, P., Hao, W., Saharjo, B., Ward, D., 2003. Comprehensive laboratory measurements of biomass-burning emissions: 1. Emissions from Indonesian, African, and other fuels. *J. Geophys. Res.-Atmos.* 108, 4719.
- Clements, C. B., S. Zhong, X. Bian, W. E. Heilman, and D. W. Byun 2008. First observations of turbulence generated by grass fires. *J. Geophys. Res.*, 113, D22102.
- Colthup, N.B., Daly, L.H., Wiberley, S.E., 1975. *Introduction to Infra Red and Raman Spectroscopy (2nd Edn)* Academic Press, London (1975).
- Countryman, Clive M. 1976. *Heat - its role in wildland fire, part 3: heat conduction and wildland fire (blue cover)*. USDA Forest Service, Pacific Southwest Forest and Range Experiment Station. Berkeley, CA. 12 pp.
- Curt, T., Schaffhauser, A., Borgniet, L., Dumas, C., Estève, R., Ganteaume, A., Jappiot, M., Martin, W., N'Diaye, A., Poilvet, B., 2011. Litter flammability in oak woodlands and shrublands of southeastern France. *Forest Ecology and Management* 261, 2214–2222.
- Daligault, O., 1991. *Caractéristiques physiques des aiguilles de pin*, Document PIF9112.
- De Hoffmann E., Charette J., Stroobant V., 1999. *Spectrométrie de Masse*, 2e édition, Ed. Dunod, Paris.
- Dibble, A.C., White, R.H., Lebow, P.K., 2007. Combustion characteristics of North-Eastern USA Vegetation Tested in the Cone Calorimeter: Invasive versus Non-invasive Plants. *International Journal of Wildland Fire*, 16, 426-443.
- Di Blasi, C., 2008. Modelling chemical and physical processes of wood and biomass pyrolysis. *Progress in Energy and Combustion Science* 34, 47-90.
- Dimitrakopoulos, A.P., Papaioannou, K.K., 2001. Flammability assessment of Mediterranean forest fuels. *Fire Technology* 37, 143–152.
- Dupuy, J.L., Maréchal, J., Morvan, D., 2003. Fire from a cylindrical forest fuel burner : combustion dynamics and flame properties. *Combustion and Flame*, 135, 65-76.

- Dupuy, J.-L. , Maréchal, J., Portier, D., Valette, J.-C., 2011. The effects of slope and fuel bed width on laboratory fire behavior. *International Journal of Wildland Fire* 20 (2), 272-288.
- Grieco, E., Baldi, G., 2011. Analysis and modelling of wood pyrolysis. *Chemical Engineering Science* 66, 650–660.
- Etiégni, L., Campbell, A. G., 1991. Physical and chemical characteristics of wood ash. *Bioresource Technology*, 37, 173–178.
- Evans, M., Vithanadurage, I. and Williams, A., 1981. An investigation of the combustion of wood. *Journal of the Institute of Energy*, 54, 179–186.
- Fateh, T., Rogaume, T., Luche, J., Richard, F., Jabouille, F., 2013. Kinetic and mechanism of the thermal degradation of a plywood by using thermogravimetry and Fourier-transformed infrared spectroscopy analysis in nitrogen and air atmosphere. *Fire Safety Journal* 58 25–37.
- Fateh, T., Rogaume, T., Luche, J., Richard, F., Jabouille, F., 2014. Characterization of the thermal decomposition of two kinds of plywood with a cone calorimeter – FTIR apparatus. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* 107, 87–100.
- Fenimore, C.P., 1971. Formation of nitric oxide in premixed hydrocarbon flames. *Proc Combust Inst* 13, 373–379.
- Fernandes, P.M., Rego, F., 1998. A new method to estimate fuel surface area to volume ratio using water immersion. *Int. J. Wildland Fire* 8, 121-128.
- Fernandes, P., Botelho, H. Loureiro, C., 2002. Models for the sustained ignition and behavior of low-to-moderately intense fires in maritime pine stands, *Forest Fire Research and Wildland Fire Safety*, Millpress, Rotherdam, In: D.X. Viegas, Editor,
- Fernandes, P.M., Botelho, H., Rego, F., Loureiro, C., 2008. Using fuel and weather variables to predict the sustainability of surface fire spread in maritime pine stands. *Can. J. For. Res.* 38, 190-201.
- Filippi, J.B., Bosseur, F., Pialat, X., Santoni, P.A., Strada, S., Mari, C., 2011. Simulation of coupled fire/atmosphere interaction with the MesoNH-ForeFire models. *Journal of Combustion*, vol. 2011, Article ID 540390, 13 pages.
- Finney, M.A., 1998. FARSITE: fire area simulator. Model Development and Evaluation. USDA Forest Service Research Paper RMRS-RP-4.
- Fonda, R.W., Belanger, L.A., BURLEY, L.L., 1998. Burning characteristics of western conifer needles. *Northwest Sci.* 72, 1–9.
- Frenklach, M., 2002. Reaction mechanism of soot formation in flames. *Phys Chem Chem Phys*, 4, 2028–2037.
- Gamisans, J., Marzocchi, J., (1996), *La flore endémique de la Corse*. Edisud.

- Ganteaume, A., Jappiot, M., Lampin-Maillet, C., Curt, T., Borgniet, L., 2011. Effects of vegetation type and fire regime on flammability of undisturbed litter in Southeastern France. *For. Ecol. Manag.* 261, 2223-2231.
- Gentilhomme, A., Cochez, M., Ferriol, M., Oget, N., Mieloszynski, J.L., 2005. Thermal degradation of methyl methacrylate polymers functionalized by phosphorus-containing molecules. III: Cone calorimeter experiments and investigation of residues. *Polymer Degradation and Stability* 88, 92-97.
- Gerber, H.E., and Hindman, E.E., 1982. Light absorption by aerosol particles: First International Workshop. *Applied Optics*, Vol. 21, Issue 3, pp. 370-370.
- Ghetti, P., Ricca, L., Angelini, L., 1996. Thermal analysis of biomass and corresponding pyrolysis products. *Fuel*, 75(5), 565-573.
- Glover, D., and Jessup, T., 2006. Indonesia's fires and haze, the cost of catastrophe. Institute of Southeast Asian Studies.
- Goode, J. G., Yokelson, R. J., Susott, R. A., Ward, D. E., 1999. Trace gas emissions from laboratory biomass fires measured by open-path Fourier transform infrared spectroscopy: Fires in grass and surface fuels. *Journal of Geophysical Research*, 104, 21237-21245.
- Guijarro, M., Hernando, C., Diez, C., Martinez, E., Madrigal, J., Cabaret, C.L., Blanc, L., Colin, P.Y., Perez-Gorostiaga, P., Vega, J.A., Fonturbel, M.T., 2002. Flammability of some fuel beds common in the South-European ecosystems Forest fire research and wildland fire safety. In: *Proceedings of IV International Conference on Forest Fire Research 2002 Wildland Fire Safety Summit*, Luso, Coimbra, Portugal, 18-23 November 2002, p. 152.
- Hely, C., Bergeron, Y., Flannigan, M.D., 2000. Effects of stand composition on fire hazard in mixed-wood. *Canadian Boreal Forest Journal of Vegetation Science* 11, 813-824.
- Hietaniemi, J., Kallonen, R. and Mikkola, E. (1999), Burning characteristics of selected substances: production of heat, smoke and chemical species. *Fire Mater.*, 23: 171-185.
- Hinkley, P., Wraight, H., Wadley, A., 1968. Rates of Heat Output and Heat Transfer in the Fire Propagation Test. *Fire Research Note No. 709*, Fire Research Station, Borehamwood, England.
- Hogenbirk, J. C., Sarrazin-Delay, C. L., 1995. Using fuel characteristics to estimate plant ignitability for fire hazard reduction. *Water, Air, and Soil Pollution* 82, 161-170.
- Horne, P. A., Williams, P. T., 1996. Influence of temperature on the products from the flash pyrolysis of biomass. *Fuel* 75, 1051-1059.
- Huggett, C., 1980. Estimation of the rate of heat release by means of oxygen consumption. *Fire and Materials*, 4, 61-65.

- ISO 1993: ISO 5660-1:1993 Fire Tests Reaction to Fire Part 1: Rate of Heat Release from Building Products, Method for measuring the rate of heat release of products (Cone Calorimeter Method). International Organization for Standardization.
- Janssens, M. L. and Babrauskas, V., (1992); Heat Release in Fires, Elsevier Applied Science, 31-59.
- Koppmann, R., von Czapiewski, K., Reid, J.S., 2005. A review of biomass burning emissions, part I: gaseous emissions of carbon monoxide, methane, volatile organic compounds, and nitrogen containing compounds. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 5, 10455-10516.
- Koukoulas, N., Härmäläinen, J., Papanikolaou, D., Tourunen, A., Jäntti, T., 2007. Mineralogical and elemental composition of fly ash from pilot scale fluidised bed combustion of lignite, bituminous coal, wood chips and their blends. *Fuel*, 86(14), 2186-2193.
- Langmann, B., Duncan, B., Textor, C., Trentmann, J., van der Werf, G.R., 2009. Vegetation fire emissions and their impact on air pollution and climate. *Atmospheric Environment* 43, 107-116.
- Leonard, J.E., Bowditch, P.A., Dowling, V.P., 2000. Development of a Controlled-atmosphere Cone Calorimeter. *Fire Mater.*, 24, 143-150.
- Leroy, V., Cancellieri, D., Leoni, E., 2006. Thermal degradation of ligno-cellulosic fuels : DSC and TGA studies, *Thermochimica Acta*, 451, 131-138.
- Leroy, V., (2007), Contribution à la modélisation des feux de forêt : cinétique de dégradation thermique et cinétique de combustion des végétaux, Thèse de Doctorat, Université de Corse.
- Leroy, V., Cancellieri, D., Leoni, E., 2009. Relation between forest fuels composition and energy emitted during their thermal degradation. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 96(1), 293-300.
- Linn, R.R., Reisner, J., Colman, J.J., Winterkamp, J. 2002 Studying wildfire behavior using FIRETEC. *Int. J. of Wildland Fire* 11, 233-246.
- Linn, R.R., Cunningham, P. 2005 Numerical simulations of grass fires using a coupled atmosphere-fire model: basic fire behavior and dependence on wind speed. *J. of Geophysical Research* 110, D13107. 19 p.
- Liodakis, S., Kakardakis, T., 2006. Measuring the particle flammability of forest species from wildland/urban interface (wui) near athens by thermal analysis. *ISEIM 2006*, 24–28.
- Lobert, J., 1991. Experimental evaluation of biomass burning emissions: nitrogen and carbon containing compounds, in: *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic and Biospheric Implications*. MIT Press, Cambridge, MA, pp. 289–304.

- Lobert and Warnatz, 1993. Emissions from the combustion process in vegetation P.J. Crutzen, Goldammer (Eds.), *Fire in the Environment: The Ecological, Atmospheric, and Climatic Importance of Vegetation Fires*, Wiley, Chichester, UK, pp. 15–37.
- Luche, J., Rogaume, T., Richard, F., Guillaume, E., 2011. Characterization of thermal properties and analysis of combustion behavior of PMMA in a cone calorimeter. *Fire Safety Journal* 46, 451–461.
- Marcelli, T., Santoni, P., Simeoni, A., Leoni, E., Porterie, B., 2004. Fires spread across pine needle fuel beds: characterization of temperature and velocity distributions within the fire plume. *International Journal of Wildland Fire*, 13, 37–48.
- Margossain, N., *Risque chimique*, 2002, Dunod, Paris, 235 p.
- Marquis, D., 2010. Caractérisation et modélisation multi-échelle du comportement au feu d'un composite pour son utilisation en construction navale. Thèse de Doctorat de l'Ecole des Mines de Nantes.
- Marsden-Smedley JB, Catchpole WR, Pyrke A. 2001. Fire behaviour modelling in Tasmanian buttongrass moorlands. IV Sustaining versus non-sustaining fires. *Int. J. Wildland Fire* 10: 255-262 .
- Martin, R.E., Gordon, D., Gutierrez, M., Lee, D., Molina, D., Schroeder, R., Sapsis, D., Stephens, S., Chambers, M., 1994. Assessing the flammability of domestic and wildland vegetation. *Proceedings of the 12th Conference on Fire and Forest Meteorology*, pp. 130-137.
- Martin, RE., Gordon, DA., Gutierrez, MA., 1994. Assessing the flammability of domestic and wildland vegetation. In 'Proceedings 12th conference on fire and forest meteorology, 6–28 October 1993, Jekyll Island, GA'. p. 796.
- McEnally, C., Pfefferle, L., Atakan, B., Kohse-Höinghaus, K., 2006. Studies of aromatic hydrocarbon formation mechanisms in flames: Progress towards closing the fuel gap. *Progress in Energy and Combustion Science* 32, 247–294.
- McLafferty F.W., Tureček F., 1993. *Interpretation of mass spectra*, Fourth edition, University Science Books, Sausalito, California.
- McMeeking, G.R., Kreidenweis, S.M., Baker, S., Carrico, C.M., Chow, J.C., Collett, J.L., Hao, W.M., Holden, A.S., Kirchstetter, T.W., Malm, W.C., Moosmüller, H., Sullivan, A.P., Wold, C.E., 2009. Emissions of trace gases and aerosols during the open combustion of biomass in the laboratory. *J. Geophys. Res.-Atmos.* 114, D19210.
- Meier, D., Faix, O., 1999. State of the art of applied fast pyrolysis of lignocellulosic materials, a review. *Bioresource Technology* 68, 71–77.
- Mell, W.E., Jenkins M.A., Gould J., Cheney P., 2007. A physics-based approach to modelling grassland fires. *International Journal of Wildland Fire* 16, 1-22.

- Mendes-Lopes, J., Ventura, J., Amaral, J., 2003. Flame characteristics, temperature time curves and rate of spread in fires propagating in a bed of *Pinus pinaster* needles. *International Journal of Wildland Fire*, 12, 67–84.
- Mendes Lopes, J.M.C, Ventura, J.M.P, Santos, N.M.G, 2010. Comparison of surface fire propagation studies at two laboratory scales: a case study of interaction with a tree trunk. VI International Conference on Forest Fire Research, D.X. Viegas (Ed.).
- Miranda, A.I., 2004. An integrated numerical system to estimate air quality effects of forest fires. *International Journal of Wildland Fire*, 13 (2), 217-226.
- Monod, B., Collin, A., Parent, G., Boulet, P., 2009. Infrared radiative properties of vegetation involved in forest fires. *Fire Safety Journal*, 44(1), 88-95.
- Montgomery, K.R., Cheo, P.C., 1971. Effect of leaf thickness on ignitibility. *Forest Science*, 17 (4), 475-478.
- Morandini, F., Santoni, P.A., Balbi, J.H., Ventura, J.M., Mendes-Lopes, J.M., 2002. A two-dimensional model of fire spread across a fuel bed including wind combined with slope conditions. *International Journal of Wildland Fire*, 11(1) 53 – 63.
- Morandini, F., Silvani, X., Rossi, L., Santoni, P.A., Simeoni, A., Balbi, J.H., Rossi, J.L., Marcelli, T., 2006. Fire spread experiment across Mediterranean shrub: influence of wind on flame front properties, *Fire Safety Journal*, 41(3), 229–235.
- Moro, C., 2006. Détermination des caractéristiques physiques de particules de quelques espèces forestières méditerranéennes, Rap. Tech, PIF2006-06, INRA.
- Muraleedharan, T. R., Rajojovic, M., Waugh, A., and Caruana, A., 2000. Chemical characteristics of haze in Brunei Darussalam during the 1998 episode. *Atmospheric Environment*, 34, 2725-2731.
- Myers, R.L., 1985. Fire and the dynamic relationship between Florida sandhill and sand pine scrub vegetation. *Bull. Torr. Bot. Club* 112: 241–252.
- Ndiema, C.K.W., Mpendazoe, F.M. and Williams, A., 1998, Emission of pollutants from a biomass stove, *Energy Convers Mgmt*, 39(13): 1357–1367.
- Neto, T.G.S., Carvalho Jr., J.A., Veras, C.A.G., Alvarado, E.C., Gielow, R., Lincoln, E.N., Christian, T.J., Yokelson, R.J., Santos, J.C., 2009. Biomass consumption and CO₂, CO and main hydrocarbon gas emissions in an Amazonian forest clearing fire. *Atmospheric Environment* 43, 438-446.
- Neto T.G. S., J.A. Carvalho Jr., Cortez E.V., Azevedo R.G., Oliveira R.A., Fidalgo W.R.R., Santos J.C., 2011. Laboratory evaluation of Amazon forest biomass burning emissions *Atmospheric Environment* 45, 7455-7461.
- Orfao, J.J.M., Antunes, F.J.A., Figueiredo, J.L., 1999. Pyrolysis kinetics of lignocellulosic materials—three independent reaction model. *Fuel* 78, 349–358.

- Ottavioli, J., Bighelli, A., Casanova, J., 2008. Diterpene-rich needle oil of *Pinus pinaster* Ait. from Corsica. *Flavour and Fragrance Journal* 23 (2), 121–125.
- Pastor, E., Perez, Y., Algueda, A., Miralles, M., Planas, E., 2010. Pile burning of cutting debris in stands of hazel (*Corylus avellana*): An experimental study of smouldering combustion towards the validation of a burning protocol. *Fire Safety Journal*, 45, 69–81.
- Perez, Y., Algueda, A., Pastor, E., Planas, E., 2006. Study of the effect of changing scale in forest fires experimentation by means of dimensional analysis. *Proceedings of the 5th International Conference on Forest Fire Research*, Figueria da Foz, Portugal, In Viegas DX (ed).
- Pérez-Ramírez, Y., Santoni, P.-A., Darabiha, N., 2014. Modelling the NO emissions from wildfires at the source level. *Nat. Hazards Earth Syst. Sci.*, 14, 1169–1183.
- Petriccione, M., Moro, C., Rutigliano, F.A., 2006. Preliminary studies on litter flammability in Mediterranean region. *Forest Ecology and Management* 234S, S128.
- Philpot, C., 1970. Influence of mineral content on the pyrolysis of plant materials. *Forest Science*, 16, 461–471.
- Pio, C.A., Legrand, M., Alves, C.A., Oliveira, T., Afonso, J., Caseiro, A., Puxbaum, H., Sanchez-Ochoa, A., Gelencser, A., 2008. Chemical composition of atmospheric aerosols during the 2003 summer intense forest fire period. *Atmospheric Environment* 42, 7530–7543.
- Plucinski, M.P., and Catchpole, W.R. 2001. Predicting ignition thresholds in litter layers. In *MODSIM 2001 International Congress on Modelling and Simulation*, December 2001, Canberra, Australia. Vol. 1. Edited by F. Ghassemi, D.A. Post, M. Sivapalan, and R. Vertessy. Modelling and Simulation Society of Australia and New Zealand. pp. 967–971.
- Plucinski, M.P., and Catchpole, W.R. 2002. Vertical development of fire in shrubland fuels. In *Proceedings of the 4th International Conference on Forest Fire Research and 2002 Wildland Fire Safety Summit*, 18–23 November 2002, Luso, Portugal [CD-ROM]. Edited by D.X. Viegas. Millpress Science Publishers, Rotherdam, the Netherlands.
- Plucinski, M.P., Anderson, W.R., 2008. Laboratory determination of factors influencing successful point ignition in the litter layer of shrubland vegetation. *International Journal of Wildland Fire* 17, 628–637.
- Porterie B., Consalvi J.L., Kaiss A., Loraud J.C., 2005. Predicting wildland fire behaviour and emissions using a fine-scale physical model. *Numerical Heat Transfer, Part A* 47, 571–591.
- Radojevic, M., 2003. Chemistry of forest fires and regional haze with emphasis on Southeast Asia. *Pure Applied Geophysics* 160, 157–187.

- Reid, J.S., Koppmann, R., Eck, T.F., Eleuterio, D.P., 2005. A review of biomass burning emissions part II: intensive physical properties of biomass burning particles. *Atmospheric Chemistry and Physics* 5, 799-825.
- Reinhardt, T.E., Ottmar, R.D., Hanneman, A.J.S., 2000. Smoke exposure among firefighters at prescribed burns in the Pacific Northwest. U.S. Department of Agriculture Forest Service, Pacific Northwest Research Station, Portland, Oregon, 45pp.
- Reisen, F. & Brown, S.K., 2009. Australian firefighters' exposure to air toxics during bushfire burns of autumn 2005 and 2006. *Environment International* 35, 342-352.
- Reisein, F., Hansen, D., Meyer, C.P., 2011. Exposure to bushfire smoke during prescribed burns and wildfires: Firefighters' exposure risks and options. *Environment International*, 37, 314-321.
- Rhodes, B.T., and Quintiere, J.G., 1996. Burning Rate and Flame Heat Flux for PMMA in a Cone Calorimeter. *Fire Safety Journal* 26, 221-240.
- Richter, H., Howard, J., 2000. Formation of polycyclic aromatic hydrocarbons and their growth to soot - a review of chemical reaction pathways. *Progress in Energy and Combustion Science* 26, 565-608.
- Romagnoli, E., Barboni, T., Santoni, P.-A., Chiaramonti, N., 2014. Quantification of volatile organic compounds in smoke from prescribed burning and comparison with occupational exposure limits. *Nat. Hazards Earth Syst. Sci.*, 14, 1049-1057.
- Rothermel, R., Anderson, H., 1966. Fire spread characteristics determined in the laboratory. Rep, Tech. Paper INT-30, USDA Forest Service Research, Ogden, Utah.
- Rothermel, R.C., 1972. A mathematical model for predicting fire spread in wildland fuels. USDA For. Serv. Res. Pap. INT-115 Intermt. For. and Range Exp. Stn. Ogden, Utah.
- Safi, M., Mishra, I., Prasad, B., 2004. Global degradation kinetics of pine needles in air. *Thermochimica acta* 412, 155-162.
- Santana, V. M., Marrs, R. H., 2014. Flammability properties of British heathland and moorland vegetation: Models for predicting fire ignition. *Journal of Environmental Management* 139, 88-96.
- Santoni, P., Marcelli, T., Leoni, E., 2002. Measurement of fluctuating temperatures in a continuous flame spreading across a fuel bed using a double thermocouple probe. *Combustion and Flame*, 131, 47-58.
- Santoni, P.A., Simeoni, A., Rossi, J.L., Bosseur, F., Morandini, F., Silvani, X., Balbi, J.H., Cancellieri, D., Rossi, L., 2006. Instrumentation of wildland fire: Characterisation of a fire spreading through a Mediterranean shrub. *Fire Safety Journal*, 41(3):171-184.
- Santoni, P.A., Morandini, F., Barboni, T., 2010. Steady and Unsteady Fireline Intensity of Spreading Fires at Laboratory Scale. *The Open Thermodynamique Journal*, 4, 212-219.

- Santoni, P.A., Filippi, J.B., Balbi, J.H., Bosseur, F., 2011. Wildland fire behaviour case studies and fuel models for landscape-scale fire modeling. *Journal of Combustion*, Article ID 613424, 12 p.
- Santoni, P.A., Morandini, F., Barboni, T., 2011. Determination of fireline intensity by oxygen consumption calorimetry. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 104(3), 1005-1015.
- Santoni P.A., Bartoli, P., Simeoni, A., Torero, J.L., 2014. Bulk and particle properties of pine needle fuel beds – Influence on combustion. *International Journal of Wildland Fire*, In Press.
- Schemel, C., Simeoni, A., Biteau, H., Rivera, J., and Torero, J.L., 2008. A calorimetric study of wildland fuels. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 32(7): 1381-1389.
- Silvani, X., Morandini, F., 2006. Intrusive measurement system for fire experiments at field scale. *Proceedings of the fifth international conference on forest fire research*.
- Silvani, X., Morandini, F., 2009. Fire spread experiments in the field: Temperature and heat fluxes measurements, *Fire Safety Journal*, 44, 279–285.
- Simeoni, A., Thomas, J.C., Bartoli, P., Borowieck, P., Reszka, P., Colella, F., Santoni, P.-A., Torero, J.L., 2012. Flammability studies for wildland and wildland–urban interface fires applied to pine needles and solid polymers. *Fire Safety Journal* 54, 203-217.
- Smedley, J.M., Williams, A. and Bartle, K.D., 1992. A mechanism for the formation of soot particles and soot deposits. *Combust Flame*, 91: 71–82.
- Statheropoulos, M., Karma, S., 2007. Complexity and origin of the smoke components as measured near the flame-front of a real forest fire incident: A case study. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* 78(2) 430-437.
- Stenseng, M., Jensen, A., Dam-Johansen, K., 2001. Investigation of biomass pyrolysis by thermogravimetric analysis and differential scanning calorimetry. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* 58–59, 765–780.
- Sylvester, T.W., Wein, R.W., 1981. Fuel characteristics of arctic plant species and simulated plant community flammability by Rothermel's model. *Revue canadienne de botanique*, 59(5): 898-907.
- Tanskanen, H., 2002. Ignition potential of Norway spruce and Scots pines stands in southern Finland. In: Viegas, D.X. (Ed.), *IV International Conference on Forest Fire Research*. Luso, Portugal. Millpress, p. 6.
- Tewarson, A., 2002. Generation of Heat and Chemical Compounds in Fires, *SFPE Handbook of Fire Protection Engineering*, The National Fire Protection Association Press, pp. 3-82 - 3-161.
- Thornton, W.M., 1917. The Relation of Oxygen to the Heat of Combustion of Organic Compounds. *Philosophical Magazine and Journal of Science*, 6(33), 196-203.

- Tihay, V., 2007. Contribution expérimentale et théorique pour la modélisation de la combustion dans les feux de forêt, Thèse de Doctorat, Université de Corse.
- Tihay, V., Gillard, P., 2010. Pyrolysis gases released during the thermal decomposition of three Mediterranean species. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* 88, 168–174.
- Tihay, V., Morandini, F., Santoni, P.A., Perez-Ramirez, Y., Barboni, T., 2014. Combustion of forest litters under slope conditions: Burning rate, heat release rate, convective and radiant fractions for different loads. *Combustion and Flame*, In Press.
- Urbanski, S. P., 2013. Combustion efficiency and emission factors for wildfire-season fires in mixed conifer forests of the northern Rocky Mountains, US. *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 7241–7262.
- Urbanski, S., 2014. Wildland fire emissions, carbon, and climate: Emission factors. *Forest Ecology and Management* 317 51–60.
- US-EPA, 1999. Compilation of Air Pollutant Emission Factors (AP-42) U.S. Environmental Protection Agency. Available at: <http://www.epa.gov/ttn/chief/>
- Valette, J.C., 1990. Flammability of Mediterranean forest species. Effects on the combustibility of vegetation types. *Revue Forestière Franc, aise*, 76–92.
- Van der Werf, G.R., Randerson, J.T., Giglio, L., Collatz, G.J., Mu, M., Kasibhatla, P.S., Morton, D.C., DeFries, R.S., Jin, Y., van Leeuwen, T.T., 2010. Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009). *Atmos. Chem. Phys.* 10, 11707–11735.
- van Wagtenonk, J.W., 1996. Use of a deterministic fire growth model to test fuel treatments. In: *Sierra Nevada Ecosystem Project: Final Report to Congress, vol. II. Assessments and Scientific Basis for Management Options*. University of California, Davis. Centers for Water and Wildland Resources, pp. 1155–1165.
- Vicente, A., Alves, C., Calvo, A.I., Fernandes, A.P., Nunes, T., Monteiro, C., Almeida, S.M., Pio, C., 2013. Emission factors and detailed chemical composition of smoke particles from the 2010 wildfire season. *Atmospheric Environment* 71, 295–303.
- Viegas, D., Pita, L., 2002. Fire spread in canyons. *International Journal of Wildland Fire* 13, 1–22.
- Viegas, D. X., Almeida, M., Raposo, J., Oliveira, R., Viegas, C.X., 2014. Ignition of Mediterranean Fuel Beds by Several Types of Firebrands. *Fire Technology* 50 (1), 61–77.
- Wang, H., Frenklach, M., 1997. A detailed kinetic modeling study of aromatics formation in laminar premixed acetylene and ethylene flames. *Combustion and Flame* 110, 195–209.
- Ward, D.E., Susott, R.A., Kauffman, J.B., Babbitt, R.E., Cummings, D.L., Dias, B., Holben, B.N., Kaufman, Y.J., Rasmussen, R.A., Setzer, A.W., 1992. Smoke and fire

- characteristics for cerrado and deforestation burns in Brazil: BASE-B experiment. *J. Geophys. Res.* 97, 14601.
- Ward, D.E., Hao, W.M., Susott, R.A., Babbitt, R.E., Shea, R.W., Kauffman, J.B., Justice, C.O., 1996. Effect of fuel composition on combustion efficiency and emission factors for African savanna ecosystems. *J Geophys Res* 101, 23569–23576.
- Ward, T.J. and Smith, G.C., 2001. Air sampling study of the 2000 Montana wildfire season . Proceedings of the Air and Waste Management Association. 94th Annual Conference and Exhibition, Orlando, FL.
- Warneke, C., Roberts, J.M., Veres, P., Gilman, J., Kuster, W.C., Burling, I., Yokelson, R., de Gouw, J.A., 2011. VOC identification and inter-comparison from laboratory biomass burning using PTR-MS and PIT-MS. *Int. J. Mass Spectrom.* 303, 6–14.
- Weiland, J.J.; Guyonnet, R.; Gibert, R. 1998. Analysis of controlled wood burning by combination of thermogravimetric analysis, differential scanning calorimetry and Fourier transform infrared spectroscopy. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry* 51 (1): 265-274.
- Weise, D., White, R., Beall, F., Etlinger, M., 2005. Use of the cone calorimeter to detect seasonal differences in selected combustion characteristics of ornamental vegetation. *International Journal of Wildland Fire.* 14, 321-338.
- White, R., Dietenberger, M., 2001. Wood products: Thermal degradation and fire. *Encyclopedia of Materials: Science and Technology.*
- Wiedinmyer, C., Akagi, S.K., Yokelson, R.J., Emmons, L.K., Al-Saadi, J.A., Orlando, J.J., Soja, A.J., 2011. The Fire INventory from NCAR (FINN): a high resolution global model to estimate the emissions from open burning. *Geosci. Model Dev.* 4, 625–641.
- Wotton, B.M. and Beverly, J.L. 2007. Stand specific litter moisture content calibrations for the Canadian Fine Fuel Moisture Code. *International Journal of Wildland Fire*, 16: 463 - 472.
- Xanthopoulos, G., Ghosn, D., Kazakis, G., 2006. Investigation of the wind speed threshold above which discarded cigarettes are likely to be moved by the wind *International Journal of Wildland Fire* 15, 567–576.
- Yokelson, J., Christian, T. J., Karl, T. G., Guenther, A., 2008. The tropical forest and fire emissions experiment: laboratory fire measurements and synthesis of campaign data. *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3509–3527.
- Yokelson, R. J., Goode, J. G., Ward, D. E., Susott, R. A., Babbitt, R. E., Wade, D. D., Bertschi, I., Griffith, D. W. T., Hao, W. M., 1999. Emissions of formaldehyde, acetic acid, methanol, and other trace gases from biomass fires in North Carolina measured by airborne Fourier transform infrared spectroscopy, *J. Geophys. Res.*, 104(D23), 30109–30125.

- Yokelson, R., Griffith, D., Ward, D., 1996. Open-path Fourier transform infrared studies of large-scale laboratory biomass fires. *J. Geophys. Res.-Atmos.* 101, 21067–21080.
- Yokelson, R.J., Burling, I.R., Gilman, J.B., Warneke, C., Stockwell, C.E., de Gouw, J., Akagi, S.K., Urbanski, S.P., Veres, P., Roberts, J.M., Kuster, W.C., Reardon, J., Griffith, D.W.T., Johnson, T.J., Hosseini, S., Miller, J.W., Cocker III, D.R., Jung, H., Weise, D.R., 2013. Coupling field and laboratory measurements to estimate the emission factors of identified and unidentified trace gases for prescribed fires. *Atmos. Chem. Phys.* 13, 89–116.
- Yokelson, R.J., Burling, I.R., Urbanski, S.P., Atals, E.L., Adachi, K., Buseck, P.R., Weidinmyer, C., Akagi, S.K., Toohey, D.W., Wold, C.E., 2011. Trace gas and particle emissions from open biomass burning in Mexico. *Atmos. Chem. Phys.* 11, 6787–6808.
- Yokelson, R.J., Clarke, A.D., Weinheimer, A., Knapp, D.J., Montzka, D.D., Holloway, J., Weibring, P., Flocke, F., Zheng, W., 2009. Emissions from biomass burning in the Yucatan. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 5785–5812.
- Zaïda, T.J., 2012. Étude expérimentale et numérique de la dégradation thermique des lits combustibles végétaux. Thèse de Doctorat Université d’Ouagadougou.
- Zeldovich, Y. B., 1946. The Oxidation of Nitrogen in Combustion Explosions. *Acta Physicochimica U.S.S.R.* 21. 577-628.

Annexes

1. Comparaison des supports de prélèvement

L'influence des supports de prélèvements a été étudiée pour la combustion des aiguilles de *Pinus pinaster*. Nous avons choisi d'utiliser deux types de supports de prélèvement à savoir des tubes Tenax TA et des tubes Tri-phases constitués de Tenax TA, de Carbograph 1TD (carbone graphitisé piégeant les cétones, les alcools, les aldéhydes, le benzène, le toluène et les xylènes) et de Carboxen 1000 (tamis moléculaires carbonés pour piéger les composés très volatils, les hydrocarbures, ...).

Les expérimentations ont été réalisées avec le cône calorimètre en faisant varier le débit d'aspiration (7 et 24 L.s⁻¹). Nous avons suivi l'évolution de la puissance calorifique au cours de la combustion (Figure), et calculé l'efficacité de combustion ainsi que les facteurs d'émission du monoxyde de carbone et du dioxyde de carbone. Les résultats sont donnés dans le tableau .

Les supports ont été désorbés puis analysés grâce au couplage DTA-CPG/SM. Ainsi, nous avons identifié globalement pour les deux types de supports 48 composés. Nous avons choisi de les regrouper par famille chimique et nous présentons les résultats dans le tableau A-I.

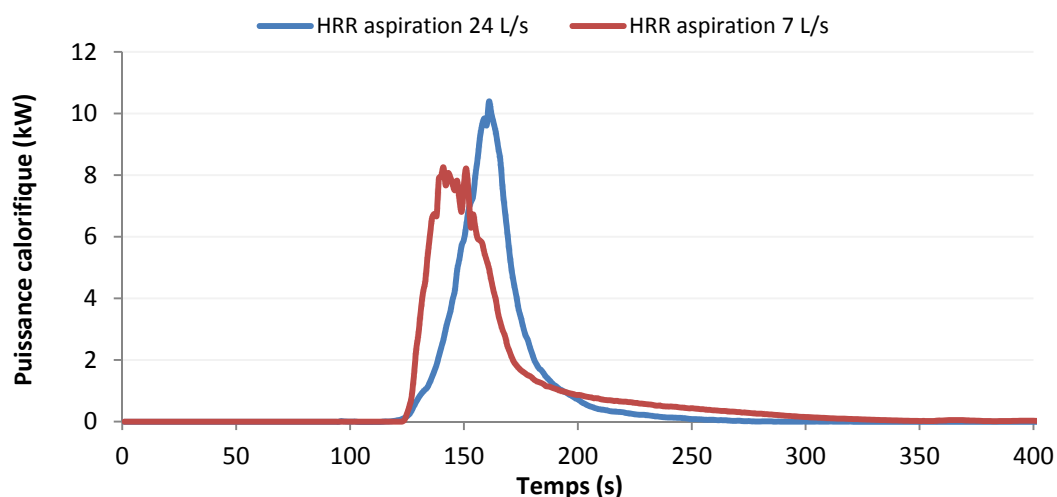


Figure A - 1: Puissance calorifique pour les deux débits d'aspiration

Tableau A - I: Facteurs d'émissions de CO et CO₂ et efficacités des combustions pour les différents débits d'aspiration

	Aspiration 7 L.s ⁻¹	Aspiration 24 L.s ⁻¹
FE CO (g.kg ⁻¹)	34,21 ± 2,40	50,91 ± 4,10
FE CO ₂ (g.kg ⁻¹)	1584,32 ± 55,12	1766,47 ± 51,48
χ (%)	88,31 ± 3,03	96,89 ± 0,49

Tableau A - II: Familles chimiques identifiées dans les fumées issues de la combustion de *P. pinaster* avec différents supports de prélèvements

Familles de composés	Triphases	Tenax
Linéaires (C ₆ -C ₁₉)	0,671 ± 0,185	0,011 ± 0,005
Benzène et dérivés	0,347 ± 0,093	0,114 ± 0,054
Cycles et autres cycles	0,024 ± 0,002	0,019 ± 0,001
Composés oxygénés	0,041 ± 0,008	0,047 ± 0,014
Terpènes	0,108 ± 0,028	0,618 ± 0,063
Concentration totale	1,191 ± 0,319	0,809 ± 0,137

Les concentrations pour chaque famille sont des valeurs moyennes prenant ainsi en compte l'ensemble des expériences. Nous avons pu constater qu'elles sont optimales pour un débit d'aspiration du cône calorimètre de 7 L.s^{-1} . Cependant, un tel débit d'aspiration ne permet pas de coupler aisément ces analyses à l'étude de la dynamique de combustion. En effet, la figure A-1 montre les différences obtenues pour la puissance calorifique en faisant varier le débit d'aspiration. Nous notons que la puissance de la flamme est supérieure pour un débit d'extraction de 24 L.s^{-1} . Elle atteint un pic de puissance calorifique de 10,5 kW, alors qu'avec une aspiration à 7 L.s^{-1} , la puissance calorifique se stabilise pendant 10 secondes et atteint une valeur moyenne de 8,05 kW. L'efficacité de la combustion (Tableau A-II) est également affectée par cette variation d'aspiration, la combustion à 7 L.s^{-1} étant nettement moins efficace (88,3 % contre 96,89 % avec une aspiration à 24 L.s^{-1}). Les facteurs d'émissions de monoxyde et de dioxyde de carbone diffèrent fortement selon le débit d'aspiration, les quantités de CO et CO₂ dégagées à 7 L.s^{-1} sont en effet moindres (respectivement $34,21 \text{ g.kg}^{-1}$ et $1,584 \text{ g.kg}^{-1}$).

Bien que les tubes Tri-phases présentent un intérêt pour l'analyse des fumées par rapport à d'autres types de supports, puisqu'ils retiennent mieux les composés organiques volatils (aussi bien du point de vue qualitatif que quantitatif), la contrainte liée au débit d'aspiration s'est avérée limitante pour la généralisation de leur utilisation lors de nos expérimentations. Ainsi, nous avons poursuivi notre étude avec des sacs Tedlar qui ne contraignent pas le débit d'extraction tout en permettant d'identifier les principaux composés majoritaires (35 composés identifiés).

2. Influence du panier de combustion

Afin d'évaluer l'importance de l'ouverture du panier sur la combustion du pin maritime, nous avons mesuré la puissance de la flamme, la perte de masse, la production du CO et du CO₂ puis calculé l'efficacité de la combustion. Les deux paniers utilisés sont représentés sur la figure A-1, le premier présente une ouverture de 63% (panier standard), alors que celle du second est de 99,75% (panier aéré). Les valeurs du panier aéré sont comparées à celles du panier standard. L'inflammation des aiguilles de pin maritime se fait avec le cône chauffant pour un rayonnement de 20 kW.m⁻² et avec l'allumage piloté.



Figure A - 2 : Paniers de combustions

Le tableau A-III donne les valeurs moyennes des mesures obtenues par le cône calorimètre. Les facteurs d'émission (FE), représentent la quantité massique de gaz émis par unité de masse de végétal brûlé.

Tableau A - III: Facteurs d'émission (FE) en g.kg⁻¹ de végétal et efficacité de la combustion (χ) obtenus à partir du cône calorimétrique

	Panier standard	Panier aéré
FE CO (g.kg ⁻¹)	37,45 ± 3,02	47,36 ± 4,06
FE CO ₂ (g.kg ⁻¹)	1806,65 ± 40,12	1745,29 ± 2,30
χ (%)	99,35 ± 0,39	96,50 ± 1,27

A partir des données du tableau A-III, nous constatons que la combustion diffère selon le panier utilisé. En effet, l'efficacité de la combustion est plus élevée pour le panier standard

(99,35%), ce qui révèle que le pin brûle mieux avec ce panier. Les facteurs d'émission sont sensiblement différents. Pour le CO, les facteurs d'émission varient de 37,45 à 47,36 g.kg⁻¹ et de 1806,65 à 1745,29 g.kg⁻¹ pour le CO₂ avec le panier standard et le panier aéré respectivement. La concentration en CO₂ est un indicateur qui confirme le caractère plus ou moins complet de la combustion. En effet, plus la combustion est complète, plus la concentration en CO₂ est importante. Nous pouvons noter que le CO₂ est rejeté en plus grande quantité avec le panier standard. En revanche, le CO est davantage émis lors de la combustion dans le panier aéré. Ce résultat est lui aussi lié à l'efficacité puisque le CO est un des indicateurs du caractère plus ou moins complet de la combustion.

Les écarts d'efficacité de combustion proviennent de la capacité du panier à plus ou moins capter et concentrer dans le volume du panier la chaleur émise par le cône et par la flamme. En effet, lors des différentes expériences réalisées nous avons remarqué que le panier aéré refroidissait beaucoup plus vite que le panier standard. La structure (ouverture à 63%) et le matériau utilisé font que le panier standard retient la chaleur et l'accumule. Cette chaleur accumulée permet d'avoir une température plus élevée, qui se diffuse dans tout le volume du panier contrairement au panier aéré. La température reste élevée après la flamme dans le panier standard, les résidus charbonneux sont alors mieux dégradés.

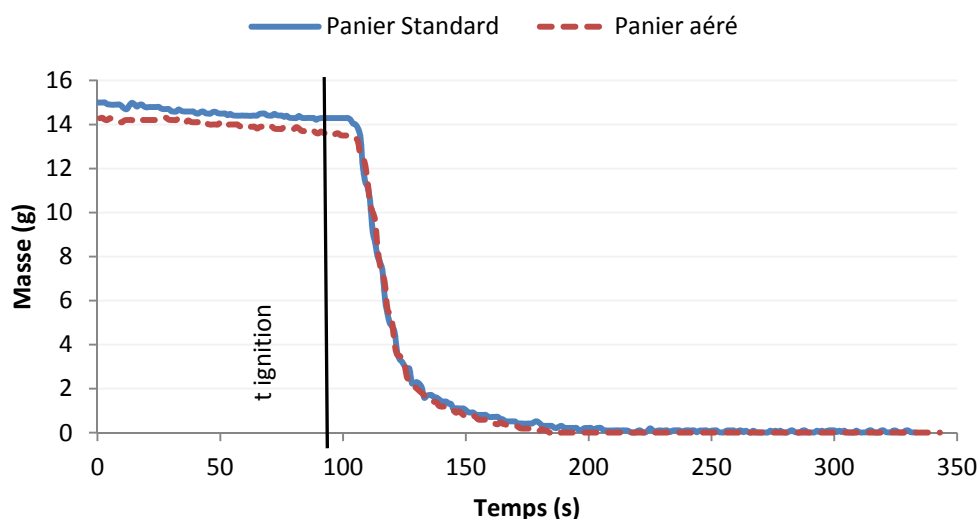


Figure A - 3: Représentation des masses d'échantillon avec des paniers différents (le trait marque l'ignition)

Cette hypothèse est notamment vérifiée avec les courbes représentant la masse de combustible au cours du temps (v. figure A-3). On s'aperçoit qu'au moment de l'ignition, la

masse de combustible dans le panier aéré est inférieure à celle du panier standard. Le panier aéré a tendance à dissiper la chaleur. Dans ce panier, le pin est chauffé en surface uniquement et mettra plus de temps pour s'enflammer car les gaz combustibles ne sont pas émis en quantité suffisante. La perte de masse avant la flamme est donc plus importante pour le cas du panier aéré. Pour le panier standard, le préchauffage est favorisé, la production de gaz inflammables est donc plus importante et le temps d'ignition est raccourci.

Les courbes représentées sur la figure A-4 nous permettent de constater que la durée de la flamme (environ 35s) est identique mais aussi que la puissance maximale dégagée par la flamme avec le panier standard (12,8kW) est supérieure à celle du panier aéré (11kW). Cette divergence renforce l'idée que dans le panier standard le combustible se trouve dans de meilleures conditions pour brûler.

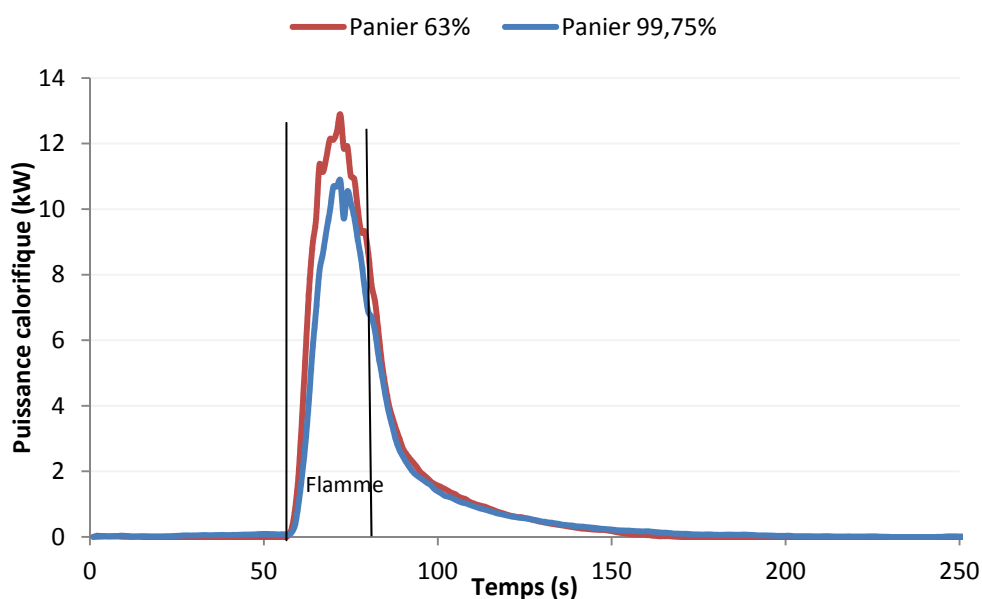


Figure A - 4: Représentation des puissances calorifiques émises pour un panier différent

L'ensemble de ces résultats montre que le panier aéré influence moins la combustion. Nous avons donc opté pour ce type de panier dans le cadre de cette étude.

3. Méthodes statistiques

Les méthodes statistiques employées au cours de cette étude sont la procédure de Comparaison de plusieurs échantillons, l'analyse de la variance à un facteur ANOVA, les Tests des étendues multiples et l'Analyse en Composantes Principales.

Le logiciel utilisé est STATGRAPHICS® Centurion XV.

Dans la procédure Comparaison de plusieurs échantillons, des tests sont effectués pour déterminer s'il y a ou non des différences significatives entre les moyennes, les variances et les médianes des populations dont les échantillons proviennent. Selon les résultats obtenus, d'autres tests statistiques s'imposent afin de déterminer par exemple si les moyennes des différents échantillons sont statistiquement différentes ou non. Au cours de cette étude, nous avons mis en œuvre par la suite une analyse de la variance à un facteur (ANOVA). Lors de ce test statistique, la variabilité totale entre les différentes mesures est découpée en deux composants « inter-groupes » et « intra-groupes » et les résultats sont présentés en regroupant les degrés de liberté (Ddl) pour chaque composant, le test F et sa probabilité (p).

Ce rapport F teste l'hypothèse que la réponse moyenne pour tous les échantillons est la même. Ainsi, il teste deux hypothèses :

- l'hypothèse nulle : les moyennes sont égales.
- l'hypothèse alternative : les moyennes ne sont pas toutes égales.

Si la valeur de F est suffisamment grande, l'hypothèse nulle est rejetée.

La significativité statistique du rapport F est mesurée par sa valeur de probabilité. Si la valeur de la probabilité est inférieure à 0,05, l'hypothèse nulle d'égalité des moyennes est rejetée au niveau de signification de 5%. Cela n'implique pas que chaque moyenne est différente d'une autre moyenne, cela indique uniquement que toutes les moyennes ne sont pas égales.

Selon les résultats de l'ANOVA, il faut ensuite poursuivre l'approche statistique afin de déterminer quelles moyennes sont significativement différentes des autres. Ainsi, nous avons parfois appliqué à nos données les Tests des étendues multiples.

Ces tests conduisent à la moyenne estimée de l'échantillon, indiquent la présence ou non de groupes homogènes (un groupe étant constitué d'échantillons à l'intérieur duquel il n'y a pas de différence statistiquement significative), la différence entre deux moyennes d'échantillons et la limite qui est une estimation de l'intervalle de cette différence.

L'intervalle de confiance pour chaque paire de moyennes au niveau de confiance est donné en utilisant :

$$M = t_{\alpha/2, n-q}$$

où t représente la valeur de la loi t de Student à $n - q$ degrés de liberté ayant une aire de $\alpha/2$ pour la partie supérieure de la courbe. Cette méthode utilisée pour discriminer les moyennes, établie par Fisher est appelée *Least Significant Difference* (Différence Minimale Significative) (LSD).

Cette procédure doit uniquement être utilisée lorsque le test F (ANOVA) indique une différence significative entre les moyennes des échantillons. La probabilité p d'une erreur (dire que deux moyennes sont différentes alors qu'elles ne le sont pas) s'applique à chaque paire de moyennes séparément.

Avec cette méthode, il y a 5 % de risque de dire que chaque paire de moyennes est significativement différente lorsque la vraie différence est égale à 0.

L'analyse en composantes principales (ACP) est une méthode factorielle permettant de réduire le nombre de variables en perdant le moins d'information possible, c'est-à-dire en gardant le maximum de la variabilité totale.

Pratiquement, l'ACP propose une représentation dans un espace de dimension réduite, permettant ainsi de mettre en évidence d'éventuelles structures au sein des données. On impose que l'espace sur lequel on projette soit orthogonal.

Une composante principale est un ensemble de combinaisons linéaires orthogonales des variables. Lorsque les variables sont fortement corrélées, les premières composantes principales peuvent être suffisantes pour décrire la plus grande part de la variabilité présente. La première composante principale est la combinaison linéaire qui a la variance maximale, sous la contrainte que le vecteur des coefficients est unitaire. La deuxième composante principale est la combinaison linéaire qui a la deuxième plus grande variance et qui est non corrélée avec la première composante principale. Les composantes suivantes expliquent le plus possible de la variance résiduelle et sont non corrélées avec les autres composantes.

La variance de la population est égale à la somme des valeurs propres.

Un critère pour sélectionner le nombre de composantes principales est d'extraire toutes les composantes pour lesquelles les valeurs propres sont au moins égales à 1.

La méthode pour interpréter les composantes principales (ou les axes factoriels) est de les relier aux variables initiales, en utilisant les corrélations. Généralement, pour un couple de composantes principales, on représente les corrélations dans une figure appelée cercle de corrélation, où chaque variable z est représentée par un point de coordonnées $(r(c^1, z^j), r(c^2, z^j))$.

Une fois les composantes principales interprétées, on représente les individus dans les plans factoriels formés en croisant deux à deux les axes factoriels retenus. Chaque représentation est interprétée en essayant de repérer des groupes d'individus et en donnant à ces groupes une signification en fonction de leur place dans les plans factoriels.

Résumé

Les incendies de végétation sont caractérisés par de nombreuses échelles de temps et d'espace. Une approche multi-physique et multi-échelle est donc nécessaire pour aborder la complexité de ces phénomènes. Ce travail de thèse est une contribution expérimentale à l'étude des effets d'échelle et du système sur la dynamique de combustion des végétaux et les fumées émises. Notre objectif principal a été de déterminer quels protocoles expérimentaux et plus particulièrement quelles échelles permettent de caractériser au mieux la combustion des végétaux en laboratoire. Nous avons ainsi étudié le comportement au feu des aiguilles de deux espèces de pin représentatives de l'écosystème méditerranéen, *Pinus pinaster* et *Pinus laricio*. Les litières d'aiguilles de pin représentent un enjeu important car elles entretiennent la propagation des incendies et elles participent à la transition d'un feu de surface à un feu total.

Trois configurations expérimentales ont été étudiées au cours de cette thèse, l'échelle du cône calorimètre, l'échelle du grand calorimètre ou LSHR (permettant la combustion statique de masses plus importantes que le cône) et enfin, la propagation dans le LSHR permettant d'étudier l'effet du système sur la dynamique de la combustion et sur la production des fumées. Pour comparer ces trois configurations les protocoles expérimentaux ont été adaptés tout en maintenant la charge de combustible. Différents paramètres ont été étudiés pour analyser la dynamique de combustion tels que l'efficacité de la combustion, l'énergie dégagée ou encore la vitesse de perte de masse. La production des fumées a été étudiée par la mesure du coefficient d'extinction qui caractérise leur opacité et permet d'obtenir le facteur d'émission des suies. Les facteurs d'émissions des principaux composés émis lors de la combustion de ces deux types d'aiguilles de pin ont été mesurés en continu à partir d'un analyseur Infrarouge à Transformée de Fourier et d'un analyseur Infrarouge Non Dispersif. Des analyses par chromatographie en phase gazeuse couplée à un détecteur à ionisation de flamme et un spectromètre de masse nous ont permis de compléter ces mesures. Un bilan massique de carbone a également été réalisé afin de quantifier le carbone total mesuré dans nos analyses.

Les principales contributions de notre travail sont les suivantes : l'étude du comportement au feu des aiguilles de *P. pinaster* a révélé des différences importantes pour la puissance dégagée aux échelles du cône calorimètre et du LSHR. En revanche, le système de combustion (propagation) n'influence pas cette grandeur. L'efficacité de la combustion est apparue peu dépendante de l'échelle et du système de combustion. Nous avons observé une influence de l'échelle de combustion sur la production totale des fumées (RSR) et sur le facteur d'émission des suies. Nous avons également montré que le système de combustion (la propagation) influence la dynamique et la valeur des facteurs d'émission de dioxyde et de monoxyde de carbone, composés majoritairement émis par ces combustions. Une influence de l'échelle et du système est également à noter sur les facteurs d'émissions des composés azotés et des COV émis pour les trois configurations expérimentales. Nous avons attribué les différences observées aux valeurs de températures des fumées. Enfin, une influence de la géométrie des particules a été mise en évidence par comparaison des combustions réalisées avec le cône calorimètre et le LSHR pour les deux types d'aiguilles de pin. La dynamique de combustion des aiguilles de *Pinus laricio* est moins affectée par le changement d'échelle que celle des aiguilles de *Pinus pinaster* (plus faible variation de la puissance de combustion). Nous avons également observé que les aiguilles de *Pinus laricio*, thermiquement plus fines que les aiguilles de *Pinus pinaster* présentent une valeur plus faible pour le facteur d'émission des suies.

Mots clef : changement d'échelle, incendie, calorimétrie, facteurs d'émissions, puissance calorifique

Abstract

Wildfires are characterized by a lot of scales of time and space. A multi-physics and multi-scale approach is required to consider the complexity of these phenomena. This thesis is an experimental contribution to the study of the scale effects and the effects of the system on the combustion dynamics of forest fuels and smoke emission. The aim of this work was to determine which experimental protocols and specifically which scales can be used to characterize the combustion of vegetal fuels in the laboratory. The reaction to fire of pine needles species representative of the Mediterranean ecosystem, (*Pinus pinaster* and *Pinus laricio*) has been studied. Litters of pine needles are an important issue because they sustain fire spread and are involved in the transition from a surface fire to a total fire.

Three experimental configurations were studied in this thesis: the cone calorimeter scale; the large scale calorimeter or LSHR (allowing static combustion with larger masses than used with the cone); a fire spread in the LSHR, allowing to study the effect of the system on the dynamics of combustion and release of smoke. To compare these configurations, experimental protocols have been elaborated while keeping the same fuel load. Different parameters were studied to analyze the combustion dynamics such as combustion efficiency, heat released rate and mass loss rate. Smoke production was studied by measuring the coefficient of extinction to characterize their opacity and an estimation of the soot emission factor was derived. The emission factors of the main compounds emitted during the combustion of these two pines needles were measured with a Fourier Transform Infrared analyzer and a Non-dispersive infrared analyzer. Analysis by gas chromatography coupled with a flame ionization detector and a mass spectrometer allowed us to complete these measurements. A mass balance of carbon was also performed to quantify the total carbon measured through our analyzes.

The main contributions of our work can be summarized as follow: the study of the burning of *Pinus pinaster* needles reveals significant differences for heat release rate (HRR) at both cone calorimeter and LSHR scales. However, the combustion system (fire spread) does not influence the HRR value at the LSHR scale. The combustion efficiency appeared to be independent with regard to the scale and the system. We observed a wide influence on the rate of smoke release and the emission factor of soot. We also shown that the combustion system (fire spread) influences the dynamics and value of emissions factors of carbon dioxide and carbon monoxide (major compound emitted for these combustions). An influence of the three experimental configurations on the emission factors of nitrogen compounds and VOC emissions was also noted. This difference was attributed to the level of smoke temperature. Finally, an effect of particles geometry was also pointed out by the comparison between the burnings performed with the cone calorimeter and the LSHR for both types of pine needles. The combustion dynamics of *Pinus laricio* needles was slightly affected by changing scale in comparison to needles of *Pinus pinaster* (weak variation of HRR). We also observed that *Pinus laricio*'s needles, which are thermally thinner than *Pinus pinaster* ones have the lowest soot emission factor.

Keywords : changing scale, wildfire, calorimetry, emission factors, heat release rate