



Approches expérimentale et numérique multi-échelle pour modéliser le terme source de masse durant la dégradation du bois pour l'incendie

Guillaume Gerandi

► To cite this version:

Guillaume Gerandi. Approches expérimentale et numérique multi-échelle pour modéliser le terme source de masse durant la dégradation du bois pour l'incendie. Génie des procédés. Université Pascal Paoli, 2020. Français. NNT : 2020CORT0003 . tel-03177218

HAL Id: tel-03177218

<https://theses.hal.science/tel-03177218>

Submitted on 23 Mar 2021

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.



UNIVERSITE DE CORSE-PASCAL PAOLI
ECOLE DOCTORALE ENVIRONNEMENT ET SOCIETE
UMR CNRS 6134 (SPE)



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

Mention : Energétique, Génie des Procédés

Soutenue publiquement par
Guillaume GERANDI

le 10-02-2020

**Approches expérimentale et numérique multi-
échelle pour modéliser le terme source durant la
dégradation du bois pour l'incendie**

Directeurs :

M Paul-Antoine Santoni, Professeur, Université de Corse
Mme Virginie Tihay-Felicelli, Docteur, Université de Corse

Rapporteurs :

M Alexis Coppalle, Professeur, INSA Rouen
M Anthony Collin, Docteur HDR, Université de Lorraine

Jury :

M Khaled Chetehouna, Professeur, INSA Centre Val de Loire
M Alexis Coppalle, Professeur, INSA Rouen
M Anthony Collin, Docteur HDR, Université de Lorraine
M Paul-Antoine Santoni, Professeur, Université de Corse
Mme Virginie Tihay-Felicelli, Docteur, Université de Corse

Membre Invité :

Mme Valérie Leroy-Cancellieri, Docteur, Université de Corse

In memoria di u mo babbu è u mo babbone

Remerciements

Je tiens à remercier M. Paul-Antoine SANTONI, mon directeur de thèse, pour la confiance qu'il m'a accordée pour mener ses travaux de thèse. Ses conseils capitaux et la richesse de ses analyses m'ont été d'une aide précieuse dans le développement de ces travaux de thèse. Qu'il trouve ici l'expression de ma profonde reconnaissance.

Je remercie également Mme Virginie TIHAY-FELICELLI, ma co-directrice de thèse, pour sa disponibilité permanente, sa bonne humeur de tous les jours et l'ensemble de son aide durant ses trois années. Qu'elle trouve ici l'expression de ma profonde gratitude.

Je tiens à remercier Madame Lucile ROSSI pour m'avoir accueilli au sein de l'équipe FEUX depuis 2016.

Je remercie également pour leur précieuse aide durant les expériences ou la rédaction de ce manuscrit, Mmes Valérie LEROY-CANCELLIERI, Lila FERRAT, Yolanda PEREZ-RAMIREZ et M. Frédéric MORANDINI.

Je tiens également à remercier M. Dominique CANCELLIERI pour m'avoir permis de réaliser une partie des expériences de ma thèse dans son laboratoire, mais également pour ses conseils et les échanges lors du traitement des données et de la rédaction de ma première publication.

Je remercie également Antoine PIERI, pour sa disponibilité et son aide lors de la préparation des échantillons pour les expériences.

Que serait une thèse sans une fratrie de doctorants soudés et investis dans la réussite de chacun ? Ainsi, à ce titre, un grand merci du fond de cœur pour son aide en informatique et ses relectures du manuscrit à M. Bruno POIRON-GUIDONI. Ensuite, à Melle Anais PANNEQUIN, ma meilleure amie et mon soutien indéfectible durant ses trois années, sans qui je n'aurais pu aller au bout de cette thèse. Son soutien moral d'envergure totalement proportionnel à sa taille a été une clé importante dans l'aboutissement de ce travail. À M. Paul-Henri MARTELLONI, mon fidèle partenaire de belote contrée, pour les bons moments de détente partagés ensemble à midi ou en soirée. Un grand merci à Melle Karina MEERPOEL-PIETRI, ma « sœur de thèse » pour son aide durant les expériences, son soutien moral indéfectible, sa gentillesse et sa bonne humeur permanente. Je remercie également Melle Pauline LONGEARD pour son aide durant la rédaction et les moments conviviaux passés ensemble. Enfin, un grand merci aussi à Melle Ouafa EL IDRISSI, pour son extrême gentillesse et les bons moments de confiance passés ensemble.

Parmi les doctorants de l'Université de Corse, je tiens à remercier également Melle Carmen AWAD, M. Briac MONNIER, M. François-Marie MANICACCI, Melle Margaux DUPUY et Melle Cynthia PEREZ-CARRILLO pour leur soutien, leur bonne humeur et les bons moments partagés ensemble durant ces trois années.

Merci à ma mère et ma tante pour m'avoir encouragé et très souvent supporté dans cette expérience enrichissante que furent ces trois années de thèse.

Table des matières

Remerciements.....	1
Table des matières.....	Erreur ! Signet non défini.
Liste des figures	7
Liste des tableaux.....	15
Nomenclature.....	18
Introduction.....	22
Chapitre 1. Etat de l’art sur la dégradation thermique des matériaux lignocellulosiques.....	24
1. Le bois	24
1.1. Structure du bois.....	24
1.2. Composition chimique du bois	25
1.3. Propriétés thermo-physiques du bois.....	28
2. Modélisation de la dégradation thermique du bois	30
2.1. Les mécanismes réactionnels.....	30
2.1.1. Les mécanismes globaux	30
2.1.2. Les mécanismes par constituants	32
2.1.3. L’oxydation du résidu charbonneux	35
2.2. Les lois cinétiques	35
2.2.1. Généralités	35
2.2.2. Les méthodes cinétiques sans modèle ou d’iso-conversion.....	36
2.2.2.1. La méthode d’Ozawa-Flynn-Wall.....	36
2.2.2.2. La méthode de Kissinger-Akahira-Sunose.....	37
2.2.2.3. La méthode de Friedmann.....	37
2.2.3. Les méthodes cinétiques à modèle imposé	37
3. Etude de la décomposition thermique des matériaux ligno-cellulosiques	39
3.1. Etudes à l’échelle matière.....	40
3.1.1. Etude de la pyrolyse (ou gazéification)	40
3.1.2. Etude de l’oxydation du résidu charbonneux.....	45
3.2. Etudes à l’échelle matériau.....	48
3.2.1. Modélisation de la dégradation thermique du bois soumis à une densité de flux de chaleur	48

3.2.2. Codes de calcul pour la dégradation thermique d'un solide à l'échelle matériau	49
3.2.3. Principaux résultats à l'échelle matériau	50
4. Mécanismes réactionnels utilisés dans les modèles d'incendie de forêt	52
Chapitre 2. Matériels et méthodes	56
1. Présentation des matériaux utilisés	56
1.1. Analyse chimique des plaques de bois	57
1.2. Masse volumique.....	58
1.3. Capacité calorifique.....	58
1.4. Conductivité thermique	59
1.5. Les propriétés radiatives.....	61
2. Expériences réalisées à l'échelle matière	63
2.1. L'analyseur thermogravimétrique	63
2.2. Protocole expérimental	65
3. Expériences réalisées à l'échelle matériau	66
3.1. Présentation générale.....	66
3.2. Dispositifs de mesure de la température des échantillons	68
3.2.1. Les thermocouples	68
3.2.1.1. Plaques fines.....	68
3.2.1.2. Plaques de 20,87 mm d'épaisseur	69
3.2.2. La caméra infra-rouge.....	70
3.3. Détermination de la densité de flux reçue à la surface des plaques	73
4. Détermination du comportement thermique des plaques de bois	76
5. Présentation du code de calcul GPYRO.....	78
5.1. Définition des grandeurs moyennes	79
5.2. Taux de réaction	80
5.3. Equations de conservation en phase condensée	81
5.4. Equations de conservation en phase gazeuse	82
5.5. Définition des propriétés thermo-physiques.....	83
5.6. Résolution numérique.....	83
5.7. Paramètres de calcul	84
5.7.1. Maillage	84
5.7.2. Conditions aux limites	85

5.7.3. Conditions initiales	88
Chapitre 3. Etude de la dégradation thermique des plaques de bois thermiquement fines à l'échelle matière	89
1. Dégradation thermique du chêne et de l'eucalyptus sous atmosphère inerte et sous atmosphère oxydante	89
1.1. Description de la dégradation thermique sous atmosphère inerte	89
1.2. Description de la dégradation thermique sous atmosphère oxydante.....	91
1.3. Isolation de la réaction d'oxydation du résidu charbonneux	94
2. Les mécanismes réactionnels sous atmosphère oxydante	95
2.1. Analyse cinétique de la dégradation du chêne et de l'eucalyptus	95
2.2. Présentation des mécanismes réactionnels	97
2.2.1. Mécanisme par constituants	97
2.2.2. Mécanisme global	99
2.2.3. Mécanisme actif	100
2.2.4. Mécanisme simplifié.....	101
3. Choix de l'algorithme d'optimisation des paramètres cinétiques	101
3.1. Présentation des algorithmes testés	102
3.1.1. L'algorithme génétique.....	102
3.1.1.1. Généralités.....	102
3.1.1.2. Paramètres utilisés.....	103
3.1.2. L'algorithme du gradient descendant ou algorithme de Levenberg-Marquardt	104
3.2. Test de performance des deux algorithmes d'optimisation	105
4. Evaluation des mécanismes cinétiques sur les expériences à l'échelle matière sous atmosphère oxydante	106
4.1. Mécanisme par constituants.....	106
4.2. Mécanisme global	110
4.3. Mécanisme actif.....	113
4.4. Mécanisme simplifié.....	117
Chapitre 4. Etude expérimentale de la dégradation thermique du bois à l'échelle matériau.....	121
1. Etude de la dégradation des plaques thermiquement fines	121
1.1. Détermination de la température des plaques thermiquement fines.....	121
1.1.1. Comparaison des méthodes de mesure de température utilisant des thermocouples.....	121
1.1.2. Mesure de la température avec la caméra infrarouge	124

1.2. Description de la dégradation thermique en imposant une condition limite adiabatique sous la face inférieure des plaques de bois	126
1.2.1. Evolution de la température	126
1.2.2. Evolution de la masse des plaques de bois	131
1.3. Description de la dégradation thermique en imposant une condition limite avec pertes convectives sous la face inférieure des plaques de bois	134
1.3.1. Evolution de la température	134
1.3.2. Evolution de la masse	139
1.4. Evolution des surfaces de dégradation des plaques.....	142
1.4.1. Surface gazéifiée.....	142
1.4.2. Surface d'oxydation du résidu charbonneux.....	143
2. Etude de la dégradation des plaques de chêne thermiquement épaisses	144
2.1. Description de la dégradation thermique des plaques	144
2.2. Evolution de la température en surface et à l'intérieur des plaques	146
2.3. Vitesse de propagation du front de gazéification dans l'épaisseur de la plaque de bois	151
2.4. Evolution de la masse des plaques de bois	155
3. Conclusion partielle.....	156
Chapitre 5. Etude numérique de la dégradation thermique des plaques de bois à l'échelle matériau	158
1. Etude de la dégradation thermique des plaques de bois thermiquement fines.....	158
1.1. Test des mécanismes réactionnels développés à l'échelle matière.....	158
1.1.1. Etude de la dégradation thermique des plaques de bois thermiquement fines en imposant une condition limite adiabatique à la face inférieure des plaques	158
1.1.2. Etude de la dégradation des plaques de bois thermiquement fines en imposant une condition limite de convection libre à la face inférieure des plaques de bois.....	162
1.1.2.1. Expériences sans oxydation du résidu charbonneux.....	163
1.1.2.2. Expériences avec oxydation du résidu charbonneux.....	169
1.1.3. Synthèse sur la validation des mécanismes réactionnels à l'échelle matériau.....	176
1.2. Etude de la dégradation thermique des plaques de bois thermiquement fines avec GPYRO ..	177
1.2.1. Détermination des propriétés thermo-physiques du bois.....	178
1.2.2. Etude de la perte de masse du chêne et de l'eucalyptus après optimisation des propriétés thermiques.....	185
1.2.3. Simulation numérique de la dégradation thermique des plaques de bois thermiquement fines avec GPYRO.....	188
1.2.3.1. Expériences sans oxydation du résidu charbonneux	188

1.2.3.2. Expériences avec oxydation du résidu charbonneux.....	189
2. Etude de la dégradation thermique des plaques thermiquement épaisses.....	192
3. Synthèse sur l'utilisation de GPYRO pour la dégradation de plaques de bois à l'échelle matériau.....	197
Conclusion	199
Références.....	204
Annexe A. Mesures de la transmittivité et de la réflectivité des plaques fines de chêne et d'eucalyptus	214
Annexe B. Tests réalisés sur les dispositifs de mesure de température	216
Annexe C. Modélisation de la densité de flux issue du cône chauffant et reçue à la surface d'un échantillon	221
Annexe D. Temps d'allumage des plaques de bois.....	226
Annexe E. Comparaison de la dégradation thermique de l'eucalyptus sous forme de disque et sous forme de poudre	229
Annexe F. Courbes de pertes de masse expérimentales et calculées par les différents modèles cinétiques	230
Annexe G. Test des mécanismes cinétiques à l'échelle matériau sur les expériences avec condition adiabatique à la face inférieure des plaques de bois	234
Annexe H. Test des mécanismes réactionnels à l'échelle matériau en imposant une condition limite de convection libre à la face inférieure des plaques de bois.....	238
Annexe I. Analyse de sensibilité du code GPYRO en 1D aux propriétés thermo-physiques du bois et du résidu charbonneux	245

Liste des figures

Figure 1.1 : Représentation microscopique de la structure du bois pour : a) les résineux b) les feuillus [19].	25
Figure 1.2 : Interaction entre les principaux constituants du bois [26].	25
Figure 1.3 : Structure chimique de la cellulose [28].	26
Figure 1.4 : Dégradation thermique des principaux constituants du bois dans une étude menée par Yang et coll. [34].	28
Figure 1.5 : Mécanisme réactionnel proposé par Shafizadeh et Chin [64].	31
Figure 1.6 : Approche homogène proposée par Koufopoulos et coll. [67].	31
Figure 1.7 : Schéma réactionnel de la dégradation de la cellulose [88].	33
Figure 1.8 : Schéma réactionnel de dégradation du xylane développé par Di Blasi et Lanzetta [94].	34
Figure 1.9 : Schéma réactionnel en trois étapes de la dégradation de la lignine.	34
Figure 1.10 : Schéma réactionnel de la pyrolyse (ou gazéification) des principaux constituants du bois.	34
Figure 1.11 : Schéma réactionnel de l'oxydation du résidu charbonneux.	35
Figure 1.12 : Représentation de la dégradation thermique à l'intérieur d'un solide	49
Figure 1.13 : Evolution de la perte de masse et du débit massique surfacique pour du bois de contreplaqué pour des densités de flux de : a) 20 kW/m ² b) 30 kW/m ² c) 40 kW/m ² et d) 50 kW/m ² [15].	51
Figure 1.14 : Simulations numériques de tests réalisés sous un cône calorimètre de dégradation d'un matériau polymère d'épaisseur : a) 5,5 mm b) 6,0 mm.	52
Figure 1.15 : Résultats obtenus en utilisant FDS à l'échelle matériau par : a) Marquis pour l'étude d'une résine polyester [143] b) Guillaume et coll. [142] pour l'étude de sièges de train.	52
Figure 2.1 : Photographie des différentes plaques de bois utilisées pour les expériences a) Chêne blanc de 20,87 mm d'épaisseur, b) Chêne blanc de 1,51 mm d'épaisseur, c) Chêne blanc de 0,61 mm d'épaisseur.	56
Figure 2.2 : Photographie de la plaque d'Eucalyptus globuleux de 0,63 mm d'épaisseur.	56
Figure 2.3 : Mesure de la conductivité des plaques de bois.	60
Figure 2.4 : Superposition de l'absorptivité spectrale du chêne et de l'eucalyptus entre 0 et 20 µm et de la luminance du corps noir à 350°C, 500°C et 1000°C calculée avec l'équation 2.7.	62
Figure 2.5 : Analyseur thermogravimétrique.	64
Figure 2.6 : Schéma de principe de l'ATG Pyris 1 [27].	65
Figure 2.7 : Présentation de la forme des deux essences de bois à l'échelle matière.	65
Figure 2.8 : Cône calorimètre : a) photographie générale b) gros plan sur la partie se situant sous le cône chauffant.	67
Figure 2.9 : Schéma de principe du Cône calorimètre.	67
Figure 2.10 : Photographie des dispositifs expérimentaux permettant d'obtenir en face arrière : a) une condition adiabatique, b) une condition avec pertes thermiques par convection.	68
Figure 2.11 : Localisation des thermocouples sur la plaque de bois.	69
Figure 2.12 : Localisation des thermocouples dans la plaque de bois de 20 mm d'épaisseur a) Photographie du dispositif b) Schéma en coupe du dispositif de mesure.	70
Figure 2.13 : Photographie de la configuration expérimentale adoptée pour la mesure de température par caméra infrarouge lors des expériences de dégradation thermique.	72

Figure 2.14 : Mesure de la température à la surface des plaques de bois par caméra infrarouge avec : a) le dispositif utilisé sur le logiciel Research IR data b) le schéma des zones de mesure.	72
Figure 2.15 : Densité de flux reçue à la surface d'une plaque de bois située à 50 mm sous le cône chauffant pour une densité de flux au centre de : a) 2,3 kW/m ² (température du cône fixée à 221°C) et b) 24 kW/m ² (température du cône fixée à 635°C).	73
Figure 2.16 : Evolution de l'inverse du temps d'inflammation et de l'inverse de la racine carrée du temps d'inflammation en fonction de la densité de flux imposée pour : a) le chêne de 0,61 mm d'épaisseur b) le chêne de 1,51 mm d'épaisseur c) le chêne de 20,87 mm d'épaisseur et d) l'eucalyptus de 0,63 mm d'épaisseur.	78
Figure 2.17 : Influence de la taille du maillage sur : a) la température b) la perte de masse pour la dégradation de plaques fines de chêne soumises à une densité de flux de 21 kW/m ²	85
Figure 2.18 : Maillage des plaques de chêne et d'eucalyptus.	86
Figure 3.1 : Résultats des analyses thermogravimétriques sous atmosphère inerte de : a) la perte de masse adimensionnée du chêne b) la vitesse de perte de masse adimensionnée du chêne c) la perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus et d) la vitesse de perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus.	91
Figure 3.2 : Résultats des analyses thermogravimétriques sous atmosphère oxydante de : a) la perte de masse adimensionnée du chêne b) la vitesse de perte de masse adimensionnée du chêne c) la perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus et d) la vitesse de perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus.	93
Figure 3.3 : Comparaison de la dégradation thermique sous atmosphère inerte et oxydante à 10°C/min pour : a) le chêne b) l'eucalyptus.	94
Figure 3.4 : Comparaison pour une vitesse de chauffe de 20°C/min, des : a) MLR adimensionnés par la masse initiale du chêne et de l'eucalyptus avec les réactions d'oxydation du résidu carbonneux isolées b) MLR adimensionnés par la masse restante à 500°C du chêne et de l'eucalyptus avec les réactions d'oxydation du résidu carbonneux isolées.	95
Figure 3.5 : Droites d'iso-conversion par la méthode de Friedmann pour la dégradation de l'eucalyptus sous air.	96
Figure 3.6 : Energie d'activation du chêne et de l'eucalyptus en fonction du degré d'avancement.	97
Figure 3.7 : Schéma de fonctionnement d'un algorithme d'optimisation [184].	102
Figure 3.8 : Résultats du test de performance sur les expériences du chêne sous atmosphère inerte avec une vitesse de chauffe de 10 °C/min. Courbes de : a) perte de masse b) vitesse de conversion.	106
Figure 3.9 : Résultats de l'optimisation des paramètres cinétiques avec le mécanisme par constituants avec une vitesse de chauffe de 10 °C/min pour : a) la perte de masse du chêne b) la vitesse de conversion du chêne c) la perte de masse de l'eucalyptus et d) la vitesse de conversion de l'eucalyptus.	109
Figure 3.10 : Evolution du taux de conversion global et des taux de conversion en gaz des réactions pour le mécanisme par constituants en fonction de la température à une vitesse de chauffe de 20°C/min : a) du chêne et b) de l'eucalyptus.	110
Figure 3.11 : Résultats de l'optimisation des paramètres cinétiques avec le mécanisme global avec une vitesse de chauffe de 10°C/min pour : a) la perte de masse du chêne b) la vitesse de conversion du chêne c) la perte de masse de l'eucalyptus et d) la vitesse de conversion de l'eucalyptus.	112
Figure 3.12 : Evolution du taux de conversion global et des taux de conversion en gaz des réactions pour le mécanisme global en fonction de la température à une vitesse de chauffe de 20°C/min : a) du chêne et b) de l'eucalyptus.	113

Figure 3.13 : Résultats de l'optimisation des paramètres cinétiques avec le mécanisme actif avec une vitesse de chauffe de 10°C/min pour : a) la perte de masse du chêne b) la vitesse de conversion du chêne c) la perte de masse de l'eucalyptus et d) la vitesse de conversion de l'eucalyptus.	116
Figure 3.14 : Evolution du taux de conversion global et des taux de conversion en gaz des réactions pour le mécanisme actif en fonction de la température à une vitesse de chauffe de 20°C/min : a) du chêne et b) de l'eucalyptus.	117
Figure 3.15 : Résultats de l'optimisation des paramètres cinétiques avec le mécanisme simplifié à une vitesse de chauffe de 10°C/min pour : a) la perte de masse du chêne b) la vitesse de conversion du chêne c) la perte de masse de l'eucalyptus et d) la vitesse de conversion de l'eucalyptus.	119
Figure 3.16 : Evolution du taux de conversion global et des taux de conversion en gaz des réactions pour le mécanisme simplifié en fonction de la température à une vitesse de chauffe de 20°C/min : a) du chêne et b) de l'eucalyptus.	120
Figure 4.1 : Evolution de la température moyenne des plaques soumises à une densité de flux de 20 kW/m ² et avec condition limite adiabatique en fonction du temps pour : a) le chêne avec deux thermocouples b) l'eucalyptus avec deux thermocouples c) le chêne avec seize thermocouples et d) l'eucalyptus avec seize thermocouples.	123
Figure 4.2 : Photographies d'une plaque de chêne soumise à une densité de flux de 20 kW/m ² avec une condition adiabatique sur la face inférieure à différents instants a) 0 s b) 150 s c) 300 s.	124
Figure 4.3 : Evolution de la température moyenne des plaques soumises à une densité de flux de 20 kW/m ² et avec condition limite adiabatique en fonction du temps pour : a) le chêne avec la caméra infrarouge b) l'eucalyptus avec la caméra infrarouge c) le chêne avec seize thermocouples et d) l'eucalyptus avec seize thermocouples.	125
Figure 4.4 : Champ de température à différents instants d'une plaque de chêne soumise à une densité de flux de 20 kW/m ² avec une condition limite adiabatique obtenu à partir des données mesurées avec : a) seize thermocouples b) une caméra infrarouge.	126
Figure 4.5 : Champ de température obtenu par caméra infra-rouge d'une plaque de chêne soumise à une densité de flux de 18 kW/m ² à différents instants : a) 50 s b) 100 s c) 150 s d) 200 s et e) 250 s.	128
Figure 4.6 : Champ de température obtenu par caméra infra-rouge d'une plaque d'eucalyptus soumise à une densité de flux de 18 kW/m ² à différents instants : a) 100 s b) 150 s c) 200 s d) 250 s e) 300 s f) 350 s.	129
Figure 4.7 : Evolution de la température des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à des densités de flux de : a) 18 kW/m ² b) 20 kW/m ² c) 25 kW/m ² et d) 27 kW/m ²	130
Figure 4.8 : Evolution de la température moyennes pour les différentes densités de flux pour les plaques de a) chêne et b) d'eucalyptus.	131
Figure 4.9 : Perte de masse et vitesse de perte de masse adimensionnées des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à différentes densités de flux avec une condition adiabatique sur la face inférieure : a) perte de masse adimensionnée du chêne b) perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus c) vitesse de perte de masse adimensionnée du chêne et d) vitesse de perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus.	133
Figure 4.10 : Pic de vitesse de perte de masse adimensionnée en fonction de la densité de flux imposée sur la face supérieure pour une condition limite adiabatique appliquée sur la face inférieure des plaques.	133

Figure 4.11 : Champ de température à 100 s pour une densité de flux de 27 kW/m ² pour : a) le chêne b) l'eucalyptus	134
Figure 4.12 : Propagation de l'oxydation du résidu charbonneux sur une plaque de chêne soumise à une densité de flux de 27 kW/m ² à différents instants : a) 220 s b) 240 s c) 260 s et d) 290 s.....	135
Figure 4.13 : Propagation de l'oxydation du résidu charbonneux d'une plaque d'eucalyptus soumise à une densité de flux de 27 kW/m ² à différents instants: a) 260 s b) 290 s c) 310 s et d) 340 s.....	135
Figure 4.14 : Evolution de la température des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à des densités de flux de : a) 21 kW/m ² b) 23 kW/m ² c) 25 kW/m ² d) 27 kW/m ² et e) 28,5 kW/m ²	137
Figure 4.15 : Evolution de la température moyennes pour les différentes densités de flux pour les plaques de a) chêne et b) d'eucalyptus.....	138
Figure 4.16 : Comparaison de la température des plaques en fonction du type de condition limite imposée sur la face inférieure (adiabatique ou convection libre) pour une densité de flux de 25 kW/m ² appliquée à la face supérieure : a) chêne b) eucalyptus.	138
Figure 4.17 : Perte de masse et vitesse de perte de masse adimensionnées des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à différentes densité de flux avec une condition de convection libre sur la face inférieure : a) perte de masse adimensionnée du chêne b) perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus c) vitesse de perte de masse adimensionnée du chêne et d) vitesse de perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus.	140
Figure 4.18 : Pic de vitesse de perte de masse adimensionnée et la densité de flux imposée sur la face supérieure pour une condition limite avec pertes convectives appliquée sur la face inférieure des plaques.	141
Figure 4.19 : Perte de masse des plaques pour une condition limite adiabatique et une condition limite en convection libre sur la face inférieure et pour une densité de flux de 25 kW/m ² appliquée sur la face supérieure : a) chêne b) eucalyptus.	141
Figure 4.20 : Surface dégradée au cours de la gazéification des plaques de : a) chêne b) eucalyptus. ..	143
Figure 4.21 : Surface d'oxydation du résidu charbonneux pour : a) le chêne b) l'eucalyptus.	143
Figure 4.22 : Dégradation thermique d'une plaque de chêne de 20,87 mm d'épaisseur soumise à une densité de flux de 23 kW/m ² , au cours du temps : a) t = 0 s b) t = 660 s c) t = 1260 s et d) t = 1800 s.	145
Figure 4.23 : Apparition du craquèlement à la surface de la plaque de bois.	145
Figure 4.24 : Etapes de la dégradation thermique dans l'épaisseur de la plaque de bois.	146
Figure 4.25 : Champ de température à la surface d'une plaque de chêne de 20,87 mm d'épaisseur soumise à une densité de flux de 23 kW/m ² aux instants : a) 150 s, b) 500 s, c) 750 s et d) 1000 s.	147
Figure 4.26 : Comparaison de la température de surface des plaques de bois thermiques fines et épaisses pour une densité de flux de : a) 23 kW/m ² b) 28 kW/m ²	148
Figure 4.27 : Evolution de la température de surface des plaques de chêne en fonction de la densité de flux imposée à la surface de l'échantillon.	149
Figure 4.28 : Evolution de la température au sein de l'épaisseur des plaques de chêne exposées à des densités de flux de : a) 19 kW/m ² , b) 23 kW/m ² et c) 28 kW/m ²	150
Figure 4.29 : Evolution de la température moyenne, en fonction de la densité de flux imposée à la surface de l'échantillon, aux profondeurs de : a) 3 mm, b) 10 mm et c) 17 mm.	151
Figure 4.30 : Position du front de gazéification en fonction du temps, évaluée par la méthode des thermocouples pour des densités de flux imposées de : a) 19 kW/m ² , b) 23 kW/m ² et c) 28 kW/m ²	152

Figure 4.31 : Localisation par traitement d'image du pixel noir le plus avancé pendant l'évolution du front de gazéification sur : a) l'image en couleur b) l'image binarisée.	153
Figure 4.32 : Position du front de gazéification en fonction du temps évalué par traitement d'images : a) Variation des valeurs moyennes, maximales et minimales b) Variation des valeurs moyennes.	154
Figure 4.33 : Evolution de la vitesse de propagation du front de gazéification en fonction de la densité de flux imposée à la surface des plaques de bois déterminée par deux méthodes : mesure de température dans l'épaisseur du bois et traitement d'images de la face latérale.	155
Figure 4.34 : Perte de masse et vitesse de perte adimensionnées des plaques de chêne soumises à différentes densités de flux radiatif : a) perte de masse adimensionnée b) la vitesse de perte de masse adimensionnée.	156
Figure 5.1 : Résultats du test de l'approche active sur les expériences à l'échelle matériau pour : a) le chêne à 18 kW/m ² b) l'eucalyptus à 18 kW/m ² , c) le chêne à 20 kW/m ² d) l'eucalyptus à 20 kW/m ² , e) le chêne à 25 kW/m ² f) l'eucalyptus à 25 kW/m ² , g) le chêne à 27 kW/m ² h) l'eucalyptus à 27 kW/m ² ...	160
Figure 5.2 : Evolution des débits massiques associés aux différentes réactions pour le mécanisme actif en fonction du temps a) du chêne et b) de l'eucalyptus - pour une densité de flux de 20 kW/m ²	161
Figure 5.3 : Etat de la laine en céramique avant et après les expériences de dégradation thermique réalisées avec les plaques de chêne et d'eucalyptus.	162
Figure 5.4 : Goudrons piégés sous la plaque de bois sous forme liquide.	162
Figure 5.5 : Masse et débit massique prédits et mesurés au cours du temps pour une densité de flux de 23 kW/m ² dans le cas du chêne pour : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif et d) le mécanisme simplifié.	164
Figure 5.6 : Masse et débit massique prédits et mesurés au cours du temps pour une densité de flux de 23 kW/m ² dans le cas de l'eucalyptus pour : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif et d) le mécanisme simplifié.	165
Figure 5.7 : Evolution des masses des différents états intermédiaires du chêne pour une densité de flux de 23 kW/m ² calculées par : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.	168
Figure 5.8 : Evolution des masses des différents états intermédiaires de l'eucalyptus pour une densité de flux de 23 kW/m ² calculées par : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.	169
Figure 5.9 : Masse et débit massique prédits et mesurés au cours du temps pour une densité de flux de 28,5 kW/m ² dans le cas du chêne pour : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.	171
Figure 5.10 : Masse et débit massique prédits et mesurés au cours du temps pour une densité de flux de 28,5 kW/m ² dans le cas de l'eucalyptus pour : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.	172
Figure 5.11 : Evolution des masses des différents états intermédiaires du chêne pour une densité de flux de 28,5 kW/m ² calculées par : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.	175
Figure 5.12 : Evolution des masses des différents états intermédiaires de l'eucalyptus pour une densité de flux de 28,5 kW/m ² calculées par : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.	176

Figure 5.13 : Evolution des températures expérimentales et calculées par GPYRO avec les différents mécanismes réactionnels pour une densité de flux de 23 kW/m ² pour : a) le chêne b) l'eucalyptus.	184
Figure 5.14 : Evolution de la température expérimentale et calculées par GPYRO avec les différents mécanismes réactionnels pour une densité de flux de 28,5 kW/m ² pour : a) le chêne b) l'eucalyptus. .	185
Figure 5.15 : Schéma adopté pour l'étude de la dégradation thermique des plaques fines de chêne et d'eucalyptus.	186
Figure 5.16 : Vitesses de réaction surfaciques pour les réactions du mécanisme global pour 21 kW/m ²	187
Figure 5.17 : Exemple d'un produit de convolution réalisé pour le chêne avec l'approche simplifiée à une densité de flux de : a) 21 kW/m ² b) 28,5 kW/m ²	187
Figure 5.18 : Perte de masse et vitesse de perte de masse expérimentales et prédites des plaques de chêne (a, c, e) et d'eucalyptus (b, d, f) pour une densité de flux de 23 kW/m ² avec : a et b) le mécanisme par constituants c et d) le mécanisme global e et f) le mécanisme simplifié.	189
Figure 5.19 : Perte de masse et vitesse de perte de masse expérimentales et prédites des plaques de chêne (a, c, e) et d'eucalyptus (b, d, f) pour une densité de flux de 28,5 kW/m ² avec : a et b) le mécanisme par constituants c et d) le mécanisme global e et f) le mécanisme simplifié.	191
Figure 5.20 : Comparaison entre la température simulée et expérimentale à a) 25 kW/m ² pour le chêne b) 27 kW/m ² pour l'eucalyptus.	192
Figure 5.21 : Comparaison des températures, pertes de masse et vitesses de perte de masse expérimentales et prédites avec a et b) le mécanisme par constituants c et d) le mécanisme global et e et f) le mécanisme simplifié - pour une densité de flux de 28 kW/m ²	195
Figure 5.22 : Evolution expérimentale et numérique du front de gazéification au sein de l'épaisseur du bois à a) 23 kW/m ² b) 28 kW/m ²	196
Figure A.1 : Variations de la transmittivité des plaques fines de chêne et d'eucalyptus en fonction de la longueur d'onde.	214
Figure A.2 : Variations de la réflectivité des plaques fines de chêne et d'eucalyptus en fonction de la longueur d'onde.	215
Figure B.1 : Comparaison entre les mesures de température de deux thermocouples avec des gaines de 250 et de 500 µm de diamètre.	217
Figure B.2: Dispositif expérimental de mesure avec la caméra inclinée.	218
Figure B.3 : Mesure de la température de surface d'une plaque de bois avec un thermocouple et différentes positions de la caméra.	218
Figure B.4 : Mesure de la température de surface d'une plaque de chêne par thermocouple et par caméra infrarouge pour : a) une température de consigne de 130°C b) une température de consigne de 200°C.	219
Figure B.5 : Influence de la température apparente réfléchiée par l'échantillon sur la mesure de température par caméra infrarouge.	220
Figure C.1 : Densité de flux reçue à la surface d'une plaque de bois située à 25 mm sous le cône pour une densité de flux au centre de : a) 2,15 kW/m ² (température du cône fixée à 197°C) et b) 22,5 kW/m ² (température du cône fixée à 571°C).	221
Figure C.2 : Densité de flux reçue à la surface d'une plaque de bois située à 40 mm sous le cône chauffant pour une densité de flux au centre de : a) 2,3 kW/m ² (température du cône fixée à 207°C) et b) 24 kW/m ² (température du cône fixée à 585°C).	222

Figure C.3 : Géométrie de l'échange radiatif entre la surface interne du cône chauffant (surface 3) et une surface élémentaire dA_1 , située en regard.....	223
Figure C.4 : Comparaison des densités de flux simulées et expérimentales obtenus à une distance de a) 25 mm pour $T_c=197^\circ\text{C}$ b) 50 mm pour $T_c= 635^\circ\text{C}$	224
Figure E.1 : Comparaison de la dégradation thermique de l'eucalyptus sous forme de poudre et de disque sous atmosphère inerte et oxydante pour une vitesse de chauffe de $10^\circ\text{C}/\text{min}$	229
Figure F.1 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme par constituants pour : a et b) chêne et eucalyptus à $2^\circ\text{C}/\text{min}$, c et d) chêne et eucalyptus à $5^\circ\text{C}/\text{min}$, e et f) chêne et eucalyptus à $20^\circ\text{C}/\text{min}$, g et h) chêne et eucalyptus à $30^\circ\text{C}/\text{min}$	230
Figure F.2 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme global pour : a et b) chêne et eucalyptus à $2^\circ\text{C}/\text{min}$, c et d) chêne et eucalyptus à $5^\circ\text{C}/\text{min}$, e et f) chêne et eucalyptus à $20^\circ\text{C}/\text{min}$, g et h) chêne et eucalyptus à $30^\circ\text{C}/\text{min}$	231
Figure F.3 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme actif pour : a et b) chêne et eucalyptus à $2^\circ\text{C}/\text{min}$, c et d) chêne et eucalyptus à $5^\circ\text{C}/\text{min}$, e et f) chêne et eucalyptus à $20^\circ\text{C}/\text{min}$, g et h) chêne et eucalyptus à $30^\circ\text{C}/\text{min}$	232
Figure F.4 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme simplifié pour : a et b) chêne et eucalyptus à $2^\circ\text{C}/\text{min}$, c et d) chêne et eucalyptus à $5^\circ\text{C}/\text{min}$, e et f) chêne et eucalyptus à $20^\circ\text{C}/\text{min}$, g et h) chêne et eucalyptus à $30^\circ\text{C}/\text{min}$	233
Figure G.1 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme par constituants pour le chêne à : a) $18\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $20\text{ kW}/\text{m}^2$, c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$	234
Figure G.2 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme par constituants pour l'eucalyptus à : a) $18\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $20\text{ kW}/\text{m}^2$, c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$	235
Figure G.3 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme global pour le chêne à : a) $18\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $20\text{ kW}/\text{m}^2$, c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$	235
Figure G.4 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme global pour l'eucalyptus à : a) $18\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $20\text{ kW}/\text{m}^2$, c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$	236
Figure G.5 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme simplifié pour le chêne à : a) $18\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $20\text{ kW}/\text{m}^2$, c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$	236
Figure G.6 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme simplifié pour l'eucalyptus à : a) $18\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $20\text{ kW}/\text{m}^2$, c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$	237
Figure H.1 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme par constituants pour le chêne à : a) $21\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $23\text{ kW}/\text{m}^2$ c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$ e) $28,5\text{ kW}/\text{m}^2$	239
Figure H.2 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme par constituants pour l'eucalyptus à : a) $21\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $23\text{ kW}/\text{m}^2$ c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$ e) $28,5\text{ kW}/\text{m}^2$	240
Figure H.3 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme global pour le chêne à : a) $21\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $23\text{ kW}/\text{m}^2$ c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$ e) $28,5\text{ kW}/\text{m}^2$	241
Figure H.4 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme global pour l'eucalyptus à : a) $21\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $23\text{ kW}/\text{m}^2$ c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$ e) $28,5\text{ kW}/\text{m}^2$	241
Figure H.5 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme actif pour le chêne à : a) $21\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $23\text{ kW}/\text{m}^2$ c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$ e) $28,5\text{ kW}/\text{m}^2$	242
Figure H.6 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme actif pour l'eucalyptus à : a) $21\text{ kW}/\text{m}^2$ b) $23\text{ kW}/\text{m}^2$ c) $25\text{ kW}/\text{m}^2$ d) $27\text{ kW}/\text{m}^2$ e) $28,5\text{ kW}/\text{m}^2$	243

Figure H.7 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme simplifié pour le chêne à : a) 21 kW/m ² b) 23 kW/m ² c) 25 kW/m ² d) 27 kW/m ² e) 28,5 kW/m ²	244
Figure H.8 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme simplifié pour l'eucalyptus à : a) 21 kW/m ² b) 23 kW/m ² c) 25 kW/m ² d) 27 kW/m ² e) 28,5 kW/m ²	244
Figure I.1 : Diagrammes de Pareto normalisés associés à : a) MLRPUA _{max} , b) t_{max} , c) t_1 , d) t_2	247
Figure I.2 : Graphes des effets principaux associés à : a) MLRPUA _{max} , b) t_{max} , c) t_1 , d) t_2	247
Figure I.3 : Influence d'une variation de $\pm 20\%$ de a) $nc, bois$, b) $hc, haut$, et c) hc, bas sur la dégradation thermique du chêne soumis à une densité de flux de 28,5 kW/m ²	248
Figure I.4 : Diagrammes de Pareto normalisés associés à : a) t_3 et b) t_4	250
Figure I.5 : Graphes des effets principaux associés à : a) t_3 et b) t_4	250
Figure I.6 : Influence d'une variation de $\pm 20\%$ a) de la conductivité thermique k_{char} b) du coefficient $nk, char$ c) de la capacité calorifique massique $cp, char$ et d) du coefficient $nc, char$ - sur la dégradation thermique du chêne soumis à une densité de flux de 28,5 kW/m ²	251

Liste des tableaux

Tableau 1-1 : Analyse constitutionnelle de différents bois et végétaux.	27
Tableau 1-2 : Propriétés thermo-physiques de différents bois.....	29
Tableau 1-3 : Expressions existantes de $f\alpha$	39
Tableau 1-4 : Principaux résultats sur la dégradation thermique des matériaux lignocellulosiques utilisant les mécanismes globaux.....	43
Tableau 1-5 : Principaux résultats sur la dégradation thermique des matériaux lignocellulosiques avec les mécanismes par constituants.....	44
Tableau 1-6 : Paramètres cinétiques d'oxydation du résidu charbonneux en cendres.	47
Tableau 1-7 : Principaux résultats sur la dégradation thermique du bois et des végétaux dans les modèles détaillés d'incendie.	55
Tableau 2-1 : Analyse élémentaire des plaques de bois et teneur en cendres.....	57
Tableau 2-2 : Analyse chimique des plaques de bois	58
Tableau 2-3 : Mesure du volume et de la masse des plaques fines de chêne et d'eucalyptus.	58
Tableau 2-4 : Conductivité thermique pour les plaques de chêne de 20,87 mm d'épaisseur.	60
Tableau 2-5 : Absorptivité et émissivité effectives des plaques de bois.....	63
Tableau 2-6 : Caractéristiques de la caméra infrarouge.....	71
Tableau 2-7 : Ratio entre la densité de flux mesurée au centre de la plaque et la densité de flux moyenne calculée sur l'ensemble de la plaque.....	74
Tableau 2-8 : Correspondances entre la densité de flux mesurée au centre de la plaque et les valeurs calculées de la densité de flux moyenne et de la densité de flux au centre de la plaque.	75
Tableau 2-9 : Temps d'allumage des différentes plaques de bois en fonction de la densité de flux imposée.	76
Tableau 2-10 : Seuils de convergence des paramètres physiques des équations de conservation.....	84
Tableau 2-11 : Coefficient de transfert convectif ($W/m^2.K$) moyen du chêne et de l'eucalyptus en fonction de la densité de flux.	88
Tableau 3-1 : Températures, MLR/m_0 et résidus obtenus par analyse thermogravimétrique sous atmosphère inerte.	90
Tableau 3-2 : Températures, MLR/m_0 et résidus obtenus par analyse thermogravimétrique sous atmosphère oxydante.	92
Tableau 3-3 : Résultat du test de performance des deux algorithmes d'optimisation.	105
Tableau 3-4 : Paramètres cinétiques obtenus avec le mécanisme par constituants pour le chêne et l'eucalyptus.	108
Tableau 3-5 : Paramètres cinétiques obtenus avec le mécanisme global pour le chêne et l'eucalyptus.	111
Tableau 3-6 : Paramètres cinétiques obtenus avec le mécanisme actif pour le chêne et l'eucalyptus. ..	115
Tableau 3-7 : Paramètres cinétiques obtenus avec le mécanisme simplifié pour le chêne et l'eucalyptus	118
Tableau 3-8 : Paramètres cinétiques obtenus pour l'oxydation du résidu charbonneux avec les quatre mécanismes cinétiques.....	119
Tableau 4-1 : Comparaison des températures des asymptotes mesurées des plaques de chêne et d'eucalyptus avec 2 et 16 thermocouples.	122

Tableau 4-2 : Paramètres caractéristiques associés aux pertes de masse des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à différentes densités de flux sur la face supérieure et avec une condition adiabatique sur la face inférieure.	132
Tableau 4-3 : Paramètres caractéristiques associés aux pertes de masse des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à différentes densités de flux sur la face supérieure et avec une condition de convection libre sur la face inférieure.	140
Tableau 4-4 : Paramètres caractéristiques associés aux pertes de masse des plaques de chêne thermiquement épaisses soumises à différentes densités de flux sur la face supérieure.	156
Tableau 5-1 : Ecarts absolu moyen entre les masses mesurées et prédites par chaque approche pour le chêne et l'eucalyptus pour les densités de flux n'entraînant pas l'oxydation du résidu charbonneux. ..	163
Tableau 5-2 : Ecarts absolu moyen entre les masses mesurées et prédites par chaque approche pour le chêne et l'eucalyptus pour les densités de flux entraînant l'oxydation du résidu charbonneux.	170
Pour que l'oxydation du résidu charbonneux puisse avoir lieu dans le code de calcul GPYRO, il a été indispensable de tenir compte de la fraction locale d'oxygène à la surface et à l'intérieur de l'échantillon. D'après les équations 2.34 et 2.35, la prise en compte de l'oxygène modifie l'expression de la vitesse de réaction des espèces. Pour garder les valeurs des facteurs pré-exponentiels déterminés à l'échelle matière (Ak), nous avons utilisé les facteurs pré-exponentiels ($A'k$) donnés dans le Tableau 5-3 calculés à partir de l'équation suivante :	177
Tableau 5-4 : Facteurs pré-exponentiels corrigés du chêne et de l'eucalyptus pour chaque mécanisme réactionnel.	178
Tableau 5-5 : Propriétés thermo-physiques des espèces présentes dans le mécanisme par constituants obtenues par optimisation.	181
Tableau 5-6 : Propriétés thermo-physiques des espèces présentes dans le mécanisme global obtenues par optimisation.	182
Tableau 5-7 : Propriétés thermo-physiques des espèces présentes dans le mécanisme simplifié obtenues par optimisation.	183
Tableau 5-8 : Enthalpies de changement d'état des différentes réactions (gazéification des espèces présentes en phase solide) et enthalpie de réaction des résidu charbonneux pour les mécanismes réactionnels par constituants, global et simplifié.	184
Tableau 5-9 : Moyenne des écarts absolus moyens entre les données simulées et expérimentales pour des plaques de chêne et d'eucalyptus pour les densités de flux n'entraînant pas d'oxydation du résidu charbonneux (jusqu'à 23 kW/m ² pour le chêne et jusqu'à 25 kW/m ² pour l'eucalyptus).	188
Tableau 5-10 : Moyenne des écarts absolus moyens entre les données simulées et expérimentales pour les plaques de chêne et d'eucalyptus pour des densités de flux entraînant l'oxydation du résidu charbonneux (à partir de 25 kW/m ² pour le chêne et de 27 kW/m ² pour l'eucalyptus).	190
Tableau 5-11 : Coefficients nc et nk utilisés pour la modélisation de la dégradation thermique des plaques épaisses	193
Tableau 5-12 : Evaluation de la performance des mécanismes réactionnels sur la dégradation de la plaque de chêne de 20,87 mm d'épaisseur.	197
Tableau H-1 : Ecarts absolus moyen et maximum entre les valeurs calculées pour l'approche par constituants et les valeurs expérimentales.	239
Tableau H-2 : Ecarts absolus moyen et maximum entre les valeurs calculées par l'approche globale et les valeurs expérimentales.	240

Tableau H-3 : Ecart absolu moyen et maximum entre les valeurs calculées par l'approche active et les valeurs expérimentales.	242
Tableau H-4 : Ecart absolu moyen et maximum entre les valeurs calculées par l'approche simplifiée et les valeurs expérimentales.	243
Tableau I-1 : Valeurs basses et hautes des paramètres d'entrée.	245
Tableau I-2 : Plan d'expériences et valeurs des variables de sortie.....	246
Tableau I-3 : Valeurs basses et hautes des paramètres d'entrée.	249
Tableau I-4 : Plan d'expérience et valeurs des variables de sortie	249

Nomenclature

Symboles

a	Distance du centre du cône	(m)
A	Facteur pré-exponentiel	(s ⁻¹)
c	Vitesse de la lumière	(m/s)
c_p	Capacité calorifique massique	(J/kg.K)
e	Epaisseur de la plaque	(m)
D	Coefficient de diffusion moléculaire	(m ² /s)
E_a	Energie d'activation	(kJ/mol)
$F_{dA_1-S_3}$	Facteur de forme	(-)
$\mathcal{F}$	Fonction objectif	(-)
Fit	Facteur de performance moyen	(-)
g	Accélération de la pesanteur	(m/s ²)
h	Enthalpie massique	(J/kg)
h_a	Hauteur du cône calorimètre	(mm)
h_c	Coefficient de convection	(W/m ² .K)
h_p	Constante de Planck	(J/s)
HF	Flux thermique	(J/K)
j	Flux massique de diffusion des espèces	(W/kg)
k	Conductivité thermique	(W/m.K)
k_B	Constante de Boltzmann	(J/K)
$\mathcal{K}$	Perméabilité	(-)
K	Nombre de réactions	(-)
l	largeur de la plaque	(m)
L	Longueur de la plaque	(m)
$L(\lambda)$	Luminance spectrale	(W/m ³ .sr)
m	Masse	(kg)

$\dot{m}$	Débit massique	(kg/s)
M	Masse molaire	(kg/mol)
MLR	Débit massique	(g/s)
MLRPUA	Débit massique surfacique	(g/m ² .s)
n	Ordre de réaction	(-)
n _c	Coefficient de la capacité calorifique	(-)
n _k	Coefficient de la conductivité thermique	(-)
N	Nombre de points	(-)
<i>Nu</i>	Nombre de Nusselt	(-)
<i>p</i>	Proportion des constituants	(-)
P	Pression	Pa
$\dot{q}_e''$	Densité de flux de chaleur	(W/m ²)
$\dot{Q}_{s-g}'''$	Densité volumique d'énergie	(J/m ³)
R	Constante des gaz parfaits	(J/mol.K)
<i>R_a</i>	Nombre de Rayleigh	(-)
<i>R_e</i>	Nombre de Reynolds	(-)
<i>R_λ</i>	Réflectivité spectrale	(-)
Sc	Nombre de Schmidt	(-)
t	temps	(s)
T	Température	(K)
<i>T_λ</i>	Transmittivité spectrale	(-)
u	Vitesse de l'air	(m/s)
V	Volume	(m ³)
V _i	Vitesse de conversion en gaz de la réaction i	(s ⁻¹)
X	Fraction volumique	(-)
Y	Fraction massique	(-)
z	Distance sous le cône chauffant	(m)

Symboles grecs

α	Degré d'avancement	(-)
α_c	Diffusivité thermique de l'air	(m ² /s)
α_{eff}	Absorptivité	(-)
β	Vitesse de chauffe	(°C/min)
β_c	Coefficient de dilatation thermique de l'air	(K ⁻¹)
δ	Symbole de Kronecker	(-)
ΔH	Chaleur latente massique	(J/kg)
ϵ_{eff}	Emissivité	(-)
λ	Conductivité thermique	(W/m.K)
λ_l	Longueur d'onde	(μm)
ν	Coefficient stœchiométrique	(-)
ν_c	Viscosité cinématique	(m ² /s)
Ψ	Porosité	(-)
ρ	Masse volumique	(kg/m ³)
σ	Constante de Stefan-Boltzmann	(W/m ² .K ⁴)
σ_e	Rapport surface/volume	(m ⁻¹)
$\dot{\omega}$	Vitesse de réaction	(kg/s)

Indices

0	Grandeur à l'instant initial
∞	Milieu ambiant
ATG	Thermogravimétrie
b	Partie inférieure de la plaque de bois
$char$	Résidu charbonneux
$conv$	Grandeur convoluée
d	Disparition/Destruction
f	Formation

<i>g</i>	Gaz
<i>gaz</i>	Gazeux/Gazéification
<i>h</i>	Partie supérieure de la plaque de bois
<i>i</i>	Phase condensée
<i>ig</i>	Allumage
<i>k</i>	Réaction chimique
<i>j</i>	Phase gazeuse
λ	Grandeur spectrale
<i>pyr</i>	Pyrolyse
<i>r</i>	Valeur de référence
Σ	Présence d'une intégrale

Exposants

''	Grandeur surfacique
'''	Grandeur volumique
<i>exp</i>	Valeurs expérimentales
<i>cal</i>	Valeurs calculées

Introduction

A l'heure où le changement climatique est le sujet écologique au centre de toutes les attentions, la sécheresse des sols et des cours d'eau accélère les incendies de forêt et entraîne des catastrophes de grande ampleur, comme par exemple les incendies de 2019 en Amazonie qui ont parcouru plus de 9 000 000 d'hectares de forêt. Afin de lutter contre ce phénomène ayant des répercussions écologiques graves, un panel conséquent d'outils a été développé depuis des années pour étudier la propagation des feux de forêt [1]. Ces outils permettent notamment, de prédire la propagation d'un feu de forêt. Différents types de modèles permettant d'étudier les feux de forêts ont ainsi été développés. Ils sont généralement répartis en trois classes et se basent sur une approche statistique [2,3], une approche semi-empirique [4,5] ou une approche physique [6,7]. Les modèles détaillés [8] sont une extension des approches physiques. Ils résolvent les équations des écoulements réactifs et radiatifs et intègrent différents sous modèles pour rendre compte de la complexité des phénomènes mis en jeu lors des incendies. La précision des modèles détaillés passe par le développement et la calibration de ces sous-modèles.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi de travailler sur le couplage entre la phase gazeuse et la phase solide (la végétation) car ce terme source est un élément clé pour bien représenter la propagation d'un incendie [8]. La production de gaz libérée par les combustibles végétaux entretient la propagation des flammes durant un incendie. Ainsi, une représentation précise de la perte de masse des végétaux est un point fondamental et crucial pour avoir un modèle de propagation d'incendie pertinent. La perte de masse d'un végétal ou du bois est généralement décrite par trois étapes associées à la manière dont ils se dégradent au cours du temps [9]. Tout d'abord, la dessiccation rend compte de l'évaporation de l'eau contenue dans le végétal ou le bois. Ensuite, la gazéification d'un solide est représentée par sa perte de masse progressive et par la quantité de gaz émis [10,11]. Au cours de cette étape, le solide est transformé en résidu charbonneux. Dans cette étape, les gaz émis peuvent s'enflammer si les conditions en concentration et en température sont réunies. Enfin, le résidu charbonneux formé au cours de la gazéification va s'oxyder au contact de l'oxygène pour se transformer en cendres.

Il existe différents schémas (ou mécanismes) réactionnels permettant de modéliser la dégradation thermique du bois ou des végétaux. Généralement, les mécanismes réactionnels sont développés à partir d'expériences réalisées à l'échelle matière où la masse de combustible est de l'ordre de quelques milligrammes [12,13]. Les paramètres cinétiques associés à ces mécanismes sont ensuite déterminés à partir de ces expériences. A cette échelle, les conditions expérimentales sont bien contrôlées mais ne sont pas représentatives de celles rencontrées dans les incendies réels à l'échelle du terrain. Les combustibles sont en effet mis sous forme de poudre afin d'éviter la présence de gradients thermiques ce qui peut altérer leur structure. Par ailleurs, les vitesses de chauffe n'excèdent généralement pas 50°C/min. Ainsi, avant d'utiliser les mécanismes développés à l'échelle matière dans des modèles physiques de feux de forêt, il semble nécessaire de les tester sur des expériences réalisées à une échelle supérieure où les conditions rencontrées sont plus proches de celles des incendies de végétation. L'échelle matériau, avec l'utilisation par exemple du cône calorimètre [14] permet de tester la validité des mécanismes décrivant la perte de masse des combustibles. Le cône calorimètre est en effet un dispositif permettant de soumettre les

matériaux à des vitesses de chauffe réalistes en leur imposant en surface des densités de flux radiatif élevées. Ces vitesses de chauffe peuvent dépasser 300°C/min au début de la dégradation thermique ce qui est six fois plus important qu'à l'échelle matière. Avec cet instrument, les transferts thermiques au sein du matériau ne peuvent plus être négligés pour des échantillons thermiquement épais [15,16].

Dans ce contexte, nous proposons de développer et d'évaluer dans ces travaux de thèse des mécanismes réactionnels issus de différentes approches pour décrire la décomposition thermique de plaques de bois. L'utilisation de plaques de bois thermiquement fines a été choisie pour plusieurs raisons. Tout d'abord, la propagation des feux de forêt est principalement guidée par des particules thermiquement fines telles que les feuilles et les brindilles de diamètre inférieur à 4 mm [17]. Ensuite, l'utilisation de plaques de bois fines se justifie également par le fait qu'à l'échelle matériau, l'utilisation de combustibles végétaux tels que les feuilles ou les fines brindilles, présente plusieurs inconvénients [17,18]. Il est en effet difficile de maintenir une géométrie constante des combustibles d'une expérience à l'autre car les feuilles et les brindilles ont tendance à se courber. Par conséquent, la valeur de la densité de flux reçue à la surface de l'échantillon n'est pas la même au cours du temps, ce qui peut altérer l'étude cinétique. Enfin, l'utilisation d'un matériau thermiquement fin permet de négliger les transferts thermiques au sein de l'échantillon et donc d'éviter la détermination de ses propriétés thermo-physiques [10]. Les variations de ces propriétés en fonction de la température durant la dégradation thermique sont mal connues. Des valeurs moyennes sont souvent déterminées par optimisation [15] ce qui peut entraîner un biais numérique pour évaluer les performances des mécanismes réactionnels. A cause de ces inconvénients, l'utilisation de plaques thermiquement fines s'avère être un compromis intéressant. Avec ce genre de matériau, on évite les gradients thermiques au sein de l'épaisseur des échantillons et on conserve une géométrie plane et constante tout au long de l'exposition au cône chauffant. Cela permet également d'utiliser des échantillons avec une épaisseur égale à celle des particules de végétation responsables de la propagation des feux de forêts. Ce travail a été réalisé en adoptant une approche multi-échelle [15,16]. Tout d'abord, une première étude a été menée à l'échelle matière avec des expériences réalisées en thermogravimétrie. Ensuite, des expériences avec des plaques de bois thermiquement fines et thermiquement épaisses ont été réalisées à l'échelle matériau afin de tester les mécanismes réactionnels développés à l'échelle inférieure.

Ce manuscrit comporte cinq chapitres. Le premier chapitre présente un état de l'art de la dégradation thermique du bois et des végétaux aux deux échelles d'étude choisies pour ces travaux, à savoir les échelles matière et matériau. Les sous-modèles de dégradation dans les modèles détaillés d'incendie seront également décrits. Le deuxième chapitre détaille les matériels et méthodes, à savoir l'ensemble des protocoles expérimentaux et équipements utilisés aux deux échelles d'étude ainsi que le code de calcul GPYRO. Le troisième chapitre présente les résultats de la dégradation des plaques de bois thermiquement fines à l'échelle matière. Quatre mécanismes réactionnels sont développés et comparés afin d'évaluer leur performance sur des expériences réalisées à différentes vitesses de chauffe. Le quatrième chapitre présente l'étude expérimentale à l'échelle matériau des plaques de bois thermiquement fines et épaisses. La dégradation thermique de ces deux types de matériau est étudiée et comparée. Enfin, le cinquième chapitre présente l'étude numérique de la dégradation thermique des plaques de bois thermiquement fines et épaisses. Les mécanismes cinétiques développés à l'échelle matière sont testés sur les expériences réalisées avec les plaques thermiquement fines et épaisses à l'échelle matériau où les transferts de masse et d'énergie ne peuvent pas être découplés.

Chapitre 1. Etat de l'art sur la dégradation thermique des matériaux lignocellulosiques

Ce chapitre présente les principaux travaux expérimentaux et numériques de la littérature portant sur la dégradation thermique du bois et des végétaux, à l'échelle matière et matériau. Il débute par une présentation générale du bois et de ses propriétés thermo-physiques. Il se poursuit par une revue des différents types de mécanismes réactionnels de dégradation existant, ainsi que des lois permettant de représenter la dégradation thermique au cours du temps. Les résultats cinétiques de la dégradation thermique de différents bois et végétaux sont ensuite exposés aux deux échelles d'étude, à savoir l'échelle matière et l'échelle matériau. Enfin, ce chapitre se termine par une présentation des mécanismes réactionnels mis en jeu dans les modèles physiques d'incendie de forêt.

1. Le bois

1.1. Structure du bois

Le bois se divise généralement en deux catégories : les feuillus (hardwood) tels que le hêtre ou le chêne et les résineux (softwood) tels que le sapin ou le pin. Les deux types de bois présentent des structures différentes. Les résineux sont composés de trachéides qui représentent 90 à 95 % de la structure et de rayons qui en représentent 5 à 10 % [19]. La longueur et la largeur des trachéides varient respectivement entre 2,5 et 7 mm et entre 30 et 45 μm . Les feuillus disposent d'une structure plus complexe que les résineux. Elle est composée de vaisseaux, de trachéides et de parenchymes longitudinaux. Ces dernières sont des cellules non fibreuses qui sont en charge du stockage et de la distribution de substances de réserve telles que les huiles ou l'amidon [20]. La circulation verticale de la sève à l'intérieur du bois passe par les vaisseaux. Il s'agit de tubes non fibreux disposés verticalement dans l'arbre. Ils ont un diamètre large comparé aux fibres et ils apparaissent comme des sections circulaires dans la Figure 1.1.b. Les fibres, bien qu'elles aient un aspect similaire aux trachéides, n'ont qu'un rôle de soutien mécanique dans la structure du bois tandis que les trachéides ont à la fois un rôle mécanique et un rôle de conduction de la sève. La longueur des vaisseaux varie entre 0,18 et 1,33 mm [19]. Les trachéides sont épaisses et ont des longueurs variant entre 0,9 et 2 mm. Les rayons, bien qu'ils soient plus complexes que pour les résineux, ont la même fonction, à savoir la conduction de la sève dans le sens horizontal de l'arbre.

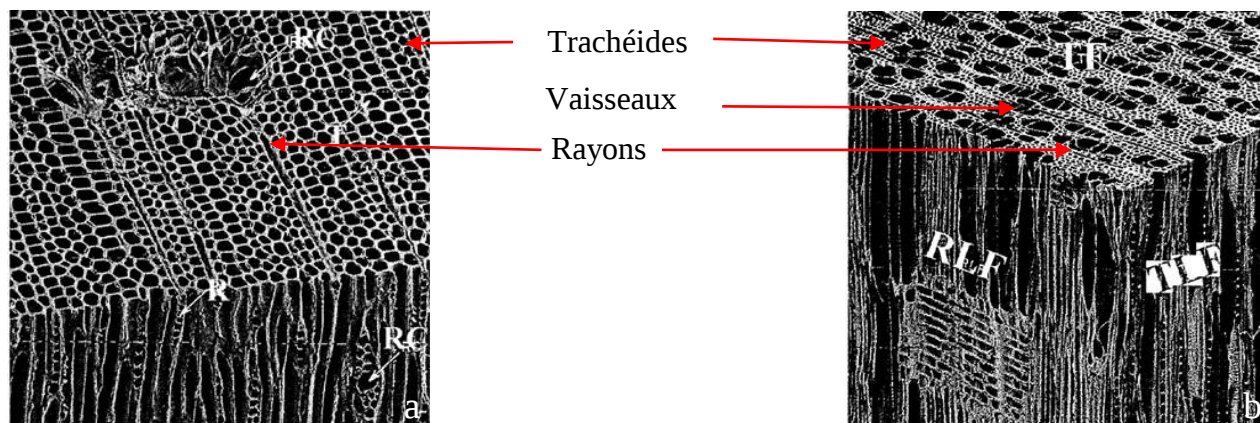


Figure 1.1 : Représentation microscopique de la structure du bois pour : a) les résineux b) les feuillus [19].

1.2. Composition chimique du bois

Le bois est principalement constitué d'atomes élémentaires tels que l'oxygène, le carbone, l'hydrogène et l'azote. Ces éléments se lient pour former des bio-polymères tels que les hémicelluloses, la cellulose et la lignine. Ils forment une matrice solide où chaque constituant est en interaction avec les autres (Figure 1.2). En effet, la lignine réalise le lien entre les fibres de bois tandis que les hémicelluloses permettent de lier la lignine à la cellulose. Le carbone est l'atome présent en plus grand nombre, avec une quantité pouvant varier entre 32 et 64 % selon le type de bois [21–23]. L'oxygène vient ensuite avec une teneur pouvant varier entre 27 et 53 % [21,23,24]. L'hydrogène se retrouve en plus faible quantité, de l'ordre de 2 à 6 % [21,23,25]. Enfin, la quantité d'azote dans le bois est généralement inférieure à 1 % [21] et peut se retrouver souvent sous forme de traces [22,24].

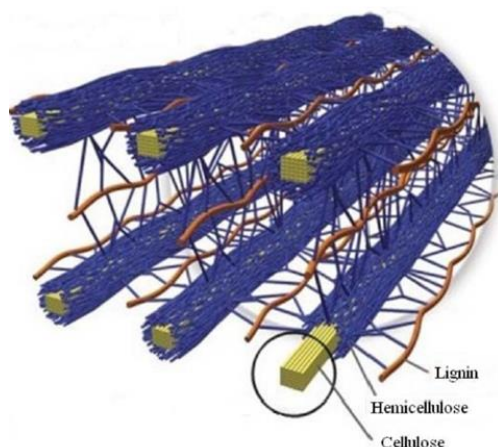


Figure 1.2 : Interaction entre les principaux constituants du bois [26].

Les hémicelluloses sont des polysaccharides solubles dans l'eau qui peuvent être extraits des parois des cellules des matériaux ligno-cellulosiques par des solutions alcalines. La cellulose est une macromolécule à très longue chaîne constituée exclusivement d'unités β -D-glucose (Figure 1.3) [27].

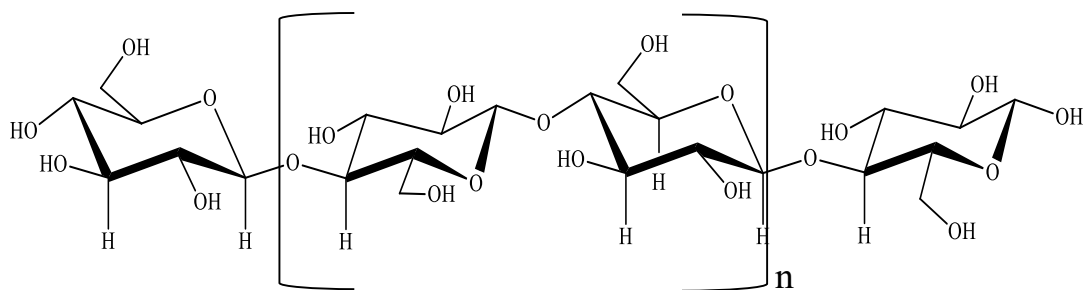


Figure 1.3 : Structure chimique de la cellulose [28]

La structure de la lignine dépend de plusieurs éléments (espèce, âge du bois...). Elle ne peut cependant pas être définie de manière claire car les unités moléculaires qui représentent la lignine sont liées entre elles de manière désordonnée. Son étude est d'autant plus difficile que sa relation avec les autres constituants du bois est mal connue. On peut toutefois classer la lignine en deux groupes [27] :

- Les lignines solubles dans les solvants comme l'eau
- Les lignines solubles en milieu alcalin

La cellulose, les hémicelluloses et la lignine constituent généralement 95 à 98 % du bois. Le Tableau 1-1 présente les compositions de différents bois et végétaux. D'une espèce à l'autre, la composition chimique varie de manière importante. L'holocellulose correspond à la somme des hémicelluloses et de la cellulose. Sa fraction massique varie de 56 à 78 %. Sa plage de variation importante est due à sa composition et aux variations respectives de l'hémicellulose et de la cellulose. L'hémicellulose varie entre 5,10 et 33,00 %. La cellulose est le bio-polymère le plus abondant dans le bois avec des fractions massiques variant entre 38,00 et 48,73 %. La fraction massique de lignine varie de manière moins importante avec des valeurs comprises entre 20,00 et 41,60 %. Enfin, les composés extractibles tels que les composés organiques volatiles (COV), les tanins ou les polyphénols [29] sont présents en faible quantité dans le bois. Ils varient entre 2,00 et 13,10 %, ce qui correspond à la plage de variation donnée par Leroy pour un végétal (entre 3 et 15 %) [27].

Tableau 1-1 : Analyse constitutionnelle de différents bois et végétaux.

Bois/Végétal	Hémicellulose (%)	Holocellulose (%)	Cellulose (%)	Lignine (%)	Extractibles (%)	Total (%)	Réf.
<i>Alnus Incana</i>	-	70,50	-	25,00	4,50	100	[19]
<i>Fagus Sylvatica</i>	33,00	78,00	45,00	20,00	2,00	100	[30,31]
<i>Betula pubescens</i>	-	76,00	-	21,00	3,00	100	[19]
<i>Quercus species</i>	-	68,50	-	28,00	3,50	100	[19]
<i>Eucalyptus grandis</i>	-	62,70	-	32,10	4,10	98,9	[13]
<i>Pinus elliotii</i>	-	61,20	-	33,80	4,50	99,4	[13]
<i>Dipteryx odorata</i>	-	57,10	-	30,40	11,10	98,6	[13]
<i>Mezilaureus itauba</i>	-	57,80	-	28,00	13,60	99,4	[13]
<i>Pseudotsuga menziensis</i>	-	65,00	-	29,00	6,00	100	[30]
<i>Pinus sylvestris</i>	-	65,00	-	30,00	5,00	100	[19]
<i>Pinus pinea</i>	-	69,00	-	24,00	7,00	100	[30]
<i>Sequoia sempervirens</i>	-	56,00	-	33,00	11,00	100	[30]
<i>Eucalyptus grandis</i>	15,65	64,38	48,73	33,90	-	98,28	[32]
<i>Eucalyptus citriodora</i>	19,40	65,45	46,05	31,14	3,29	99,88	[32]
<i>Pinus Sylvestris</i>	25,90	66,70	40,80	29,50	3,40	99,60	[33]
<i>Pinus Pinaster</i>	5,10	43,40	38,30	38,90	12,90	96,20	[27]
<i>Arbutus Unedo</i>	5,20	43,20	38,00	41,60	13,10	97,90	[27]
<i>Cistus Monspeliensis</i>	12,60	52,00	39,40	34,40	9,20	96,20	[27]
<i>Erica Arborea</i>	13,60	54,30	40,70	39,70	5,80	99,80	[27]

Lorsqu'ils sont soumis à une source de chaleur, les bio-polymères du bois vont se dégrader. La Figure 1.4 présente les courbes de perte de masse et de vitesse de perte de masse sous atmosphère inerte pour une vitesse de chauffe de 10°C/min des différents bio-polymères étudiés sous forme de poudre [34]. Tout d'abord, les composés extractibles et l'eau sont les premiers à se volatiliser. Ils se dégradent à de faibles températures, se situant généralement en dessous de 200°C [19]. L'hémicellulose est le premier constituant à se dégrader. Elle se décompose majoritairement entre 180°C et 330°C [34,35]. Une faible partie continue ensuite à se dégrader jusqu'à 800°C comme on peut le voir sur la Figure 1.4. La cellulose se dégrade ensuite quasiment en totalité au-delà de 300°C [33,36,37]. Yang et coll. ont situé cette réaction entre 315°C et 400°C avec un pic maximal de vitesse de perte de masse à 355°C [34]. Enfin, la dégradation de la lignine démarre lentement dès 250°C [38]. Elle a lieu sur une plage de température plus étendue que pour les deux autres constituants. Sa dégradation se termine vers 500°C [35]. La lignine a le plus faible pic de vitesse de perte de masse. Toutefois, la dégradation des bio-polymères dépend souvent de l'espèce

de bois ou du végétal. Dans l'exemple donné par Yang et coll. [34] présenté dans la Figure 1.4, la dégradation de l'hémicellulose et de la lignine n'est pas totalement achevée à 900°C. Ces deux composés se sont transformés en résidu charbonneux. Ces différences dans les plages de dégradation sont dues à la différence de structure chimique des bio-polymères [34]. Les hémicelluloses sont constituées de polysaccharides correspondant à des structures amorphes qui sont très faciles à rompre de la chaîne principale et par conséquent à se transformer en gaz à de faibles températures. La lignine est constituée d'aromatiques avec différentes branches. L'activité des liaisons chimiques couvre une gamme très large ce qui entraîne une dégradation sur une gamme de température étendue.

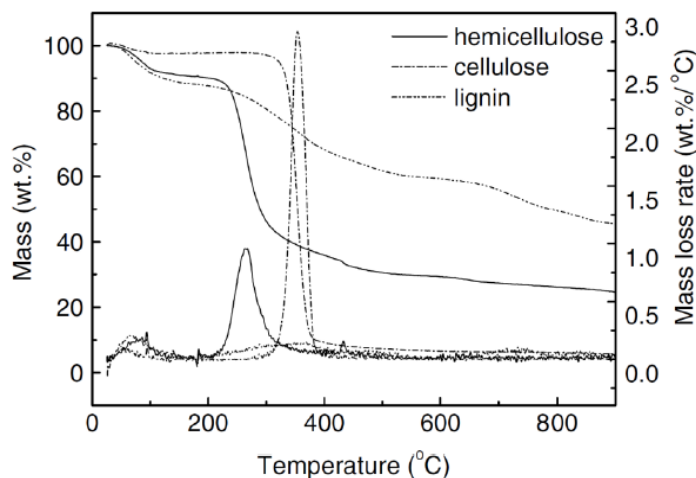


Figure 1.4 : Dégradation thermique des principaux constituants du bois dans une étude menée par Yang et coll. [34].

1.3. Propriétés thermo-physiques du bois

Le bois possède des propriétés intrinsèques qui vont déterminer sa réaction face à un incendie. Parmi celles-ci, les propriétés thermo-physiques telles que la masse volumique, la capacité calorifique, la conductivité thermique et l'émissivité sont nécessaires pour réaliser une étude cinétique de la décomposition thermique du bois ou des végétaux. Le Tableau 1-2 présente une plage de valeurs prises par ces grandeurs thermiques pour différentes essences de bois. La masse volumique du bois varie entre 450 et 730 kg/m³. La valeur de la conductivité thermique du bois dépend de l'orientation des fibres du bois. Elle varie fortement selon qu'elle est mesurée dans le sens des fibres ou perpendiculairement aux fibres [39]. Les valeurs indiquées dans le Tableau 1-2 correspondent à une mesure effectuée dans le sens perpendiculaire aux fibres. Ces valeurs varient entre 0,11 et 0,20 W/m.K. Lorsque la mesure est effectuée dans le sens des fibres, les valeurs sont supérieures et varient généralement entre 0,25 et 0,40 W/m.K [39]. La valeur de la conductivité thermique dépend aussi de la localisation géographique du bois. On peut noter des variations pour une même espèce de bois en fonction de leur localisation [40].

Tableau 1-2 : Propriétés thermo-physiques de différents bois.

Bois	Masse volumique (kg/m ³)	Capacité calorifique (J/kg.K)	Conductivité thermique (W/m.K)	Emissivité (-)
<i>Pinus strobus</i>	621 [41]	2090,4[41]	0,11 [40]	0,76 [42]
<i>Pseudotsuga menziesii</i>	515 [37]	2300 [43]	0,12 [40]	0,95 [43]
<i>Castanea sativa</i>	590 [37]	-	0,11 [40]	-
<i>Fagus sylvatica</i>	730 [37]	1250 [37]	0,15 [40]	-
<i>Eucalyptus grandis</i>	527 [44]	-	0,20 [45]	-
<i>Quercus rubra</i>	660 [46]	-	0,15 [40]	-

Si la capacité calorifique du bois peut se retrouver sous une valeur constante dans la littérature [15,41,42,47], elle varie la plupart du temps avec la température. Parker [48] a défini une relation liant la capacité calorifique et la température entre 0 et 106°C :

$$c_p = 1000 + 3,70 T \quad (T \text{ en } ^\circ\text{C}) \quad (1.1)$$

D'autres auteurs ont défini le même type de relation pour des espèces de bois variées [49–51]. On retrouve par exemple pour l'eucalyptus la relation développée par Moura Pinto et coll. [45] :

$$c_p = 1125 + 4,52 T \quad (T \text{ en } ^\circ\text{C}) \quad (1.2)$$

Cette relation est valable pour une température comprise entre 0 et 200°C. Les relations liant la capacité calorifique à la température sont généralement définies pour une température inférieure à 200°C. Passée cette valeur, les auteurs gardent généralement les valeurs déterminées aux températures inférieures à 200°C ou réalisent une optimisation de ces valeurs afin d'obtenir une valeur constante de la capacité calorifique dans une gamme de température où le bois se dégrade [15].

De manière générale, le bois possède des propriétés fortement émissives avec des valeurs variant entre 0,70 et 0,95 pour différents types de bois comme du Pin blanc ou du Sapin [42,43]. L'absorptivité est fortement dépendante de la température de la source de chaleur. Son calcul est détaillé dans le chapitre 2. On peut toutefois noter des valeurs allant de 0,64 pour des aiguilles de Pin mortes à 0,86 pour du bois de contreplaqué [41,52]. L'absorptivité varie également en fonction de la température de la source de chaleur. Försth et Roos ont montré une décroissance de 12 % de sa valeur pour du bois de contreplaqué et des densités de flux comprises entre 10 et 100 kW/m² [52]. Le bois possède un pouvoir réfléchif et transmissif moins important que son pouvoir émissif. Ainsi les valeurs de réflectivité et de transmittivité du bois sont plus faibles que l'émissivité. Dupleix et coll. [53] ont montré que la réflectivité varie entre 0,02 et 0,40. Cette grandeur est plus élevée pour des longueurs d'onde comprises entre 3500 et 6000 cm⁻¹. Dupleix et coll. [53] ont également montré que la transmittivité varie fortement en fonction de l'épaisseur du bois en comparant plusieurs épaisseurs de hêtre variant entre 0,2 et 3,1 mm. Plus l'épaisseur du bois est faible, plus la transmittivité est élevée. Elle devient quasi nulle lorsque l'épaisseur des échantillons dépasse 1 mm.

Lorsque le bois subit une gazéification et qu'il est transformé en résidu charbonneux, sa structure est modifiée et ses propriétés thermo-physiques évoluent. L'émissivité du résidu charbonneux se situe entre 0,90 et 0,95 [15,42,54]. Le résidu charbonneux étant considéré comme un corps gris, son absorptivité est

prise égale à son émissivité [52,55]. La conductivité thermique, quant à elle, diminue fortement lorsque le bois est transformé en résidu charbonneux. Sa valeur varie en effet entre 0,05 et 0,10 W/m.K [19,43,54,56], ce qui correspond à une diminution maximale de 75 % par rapport à la valeur du bois initial. Les équations 1.1 et 1.2 montrent une évolution linéaire avec la température pour la capacité calorifique massique du bois initial. Lorsque le bois est transformé en résidu charbonneux, l'évolution de la capacité calorifique massique en fonction de la température est donnée par un polynôme d'ordre 2 [54,57]. Gronli et Melaanen, donnent notamment la relation suivante pour du sapin [57] :

$$c_p = 0,42 + 2,09.10^{-3}T - 6,85.10^{-3}T^2 \quad (1.3)$$

Les matériaux ligno-cellulosiques sont également caractérisés par leur pouvoir calorifique. Il s'agit de l'énergie dégagée par la réaction de combustion complète du matériau par unité de masse [58]. On distingue deux types de pouvoir calorifique : le pouvoir calorifique supérieur (PCS) qui correspond à une combustion à volume constant pour laquelle l'eau formée au cours de la réaction se condense [58] et le pouvoir calorifique inférieur (PCI) qui est obtenu à partir du PCS en soustrayant l'enthalpie de vaporisation de l'eau. Dans la littérature, pour plusieurs espèces végétales telles que le Pin, le Ciste de Montpellier, la Bruyère et l'Arbousier, on recense des valeurs comprises entre 17720 et 19963 kJ/kg pour le PCI et des valeurs comprises entre 19172 et 21397 kJ/kg pour le PCS [58]. De manière générale, les valeurs du PCI et du PCS du bois sont proches de celles des parties fines des végétaux telles que les feuilles et les brindilles. Günther et coll. [59] ont déterminé, pour différents types de bois tels que le sapin, le hêtre ou l'érable, des valeurs de PCI variant entre 16600 et 19100 kJ/kg et des valeurs de PCS variant entre 17900 et 20500 kJ/kg. Les valeurs les plus faibles ont été obtenues pour du hêtre et les valeurs les plus fortes pour du palissandre de Santos, un arbre typique d'Amérique du Sud.

2. Modélisation de la dégradation thermique du bois

Dans cette partie, nous allons présenter les mécanismes réactionnels et les lois cinétiques qui régissent la dégradation thermique du bois et des végétaux. Ce phénomène inclut la pyrolyse sous atmosphère inerte, généralement constituée d'azote ou d'argon. La pyrolyse caractérise la transformation du bois en résidu charbonneux et en gaz. Sous atmosphère oxydante, c'est-à-dire en présence d'oxygène, la dégradation thermique comprend la gazéification qui est similaire au phénomène de pyrolyse et la transformation du résidu charbonneux en cendres et en gaz appelée oxydation.

2.1. Les mécanismes réactionnels

Les mécanismes réactionnels peuvent être classés en deux groupes. D'une part, les modèles globaux qui considèrent le bois comme un matériau homogène. D'autre part, les modèles par constituants qui étudient la dégradation de chaque composé du bois défini comme un matériau composite.

2.1.1. Les mécanismes globaux

Les mécanismes globaux considèrent le bois comme un matériau homogène. Le mécanisme de dégradation le plus simple présente une seule étape. Le bois est ainsi transformé en gaz, en résidu

charbonneux et éventuellement en goudrons [60,61]. Ce schéma réactionnel est également utilisé pour étudier la dégradation des végétaux [27,62,63] :



Ce mécanisme réactionnel a été utilisé sous différentes conditions expérimentales. Cancellieri et coll. [62] l'ont mis en œuvre en thermogravimétrie avec des vitesses de chauffe variant entre 10 et 40°C/min et des masses d'échantillons de l'ordre de 10 mg. En revanche, Font et coll. [63] ont utilisé un réacteur où des masses plus importantes de combustibles ont été étudiées (de l'ordre de 3 à 4 g).

D'autres mécanismes font intervenir plusieurs étapes comme par exemple le modèle développé par Shafizadeh et Chin [64] (Figure 1.5). Ces réactions primaires qui conduisent à la formation des gaz, des goudrons ou du résidu charbonneux ont été étudiées à de multiples reprises dans la littérature pour différents types de bois [65–69]. En général, des réactions secondaires, c'est-à-dire des réactions qui se font à partir des goudrons ou du résidu charbonneux sont ensuite introduites pour décrire le craquage des goudrons en gaz et leur polymérisation en résidu charbonneux [70–74]. Les réactions secondaires se produisant à partir du résidu charbonneux correspondent à leur oxydation en cendres. Ces réactions ont généralement lieu en une étape mais peuvent parfois se dérouler en deux étapes (paragraphe 2.1.3).

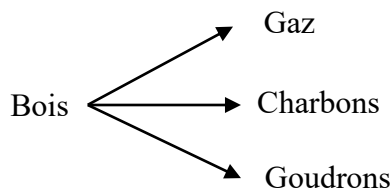


Figure 1.5 : Mécanisme réactionnel proposé par Shafizadeh et Chin [64].

Koufopanos et coll. [67] ont proposé un mécanisme prenant en compte des réactions primaires et secondaires en deux étapes (Figure 1.6). Il inclut deux réactions primaires pour la formation du résidu charbonneux d'une part et des gaz et goudrons d'autre part. Les goudrons et les gaz peuvent ensuite réagir avec le résidu charbonneux pour produire des gaz, des goudrons et du résidu charbonneux avec une composition différente.

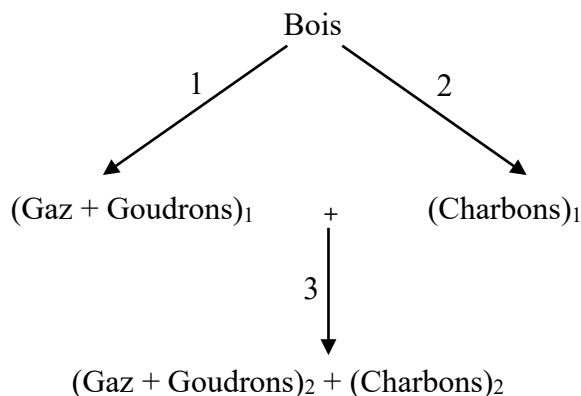


Figure 1.6 : Approche homogène proposée par Koufopanos et coll. [67].

Les mécanismes globaux sont également la base de modèles multi-réactions pour lesquels le bois se dégrade en plusieurs étapes faisant intervenir des états intermédiaires. Parmi ce type de mécanismes, certains considèrent des réactions parallèles indépendantes [35,75,76]. D'autres font intervenir des étapes successives [31,77–80] comme ci-dessous :



Où A correspond au solide à l'état initial. B , C et D représentent les produits intermédiaires formés et V_1 , V_2 et V_3 sont les espèces volatiles créées. Le nombre d'étapes successives dépend de la manière dont se dégrade le bois ou le végétal. On peut par exemple en dénombrer cinq dans une étude sur du bois de contreplaqué [77] ou encore sept pour une étude sur les aiguilles de Pin [78].

Ce mécanisme réactionnel a été utilisé sous différentes conditions expérimentales. L'étude de la dégradation thermique du bois de contreplaqué et des aiguilles de Pin [77,78] a été menée à l'aide d'un analyseur thermogravimétrique mettant en jeu des vitesses de chauffe variant entre 5 et 50°C/min. En revanche, Branca et Di Blasi [31] ont utilisé un système thermogravimétrique rapide permettant d'étudier la pyrolyse du hêtre de deux manières différentes : tout d'abord à l'aide de conditions isothermes variant entre 573 et 708 K et ensuite à l'aide d'une pyrolyse rapide à 1000°C/min. Cette dernière condition a permis d'évaluer une formation totale de résidu charbonneux équivalente à celle déterminée avec des conditions isothermes. La principale différence vient du fait qu'à 1000°C/min, une seule étape du mécanisme présenté dans les équations 1.5 à 1.7 est suffisante pour transformer le bois en résidu charbonneux.

2.1.2. Les mécanismes par constituants

Dans les mécanismes par constituants, il est supposé que lors de sa dégradation, le bois se comporte comme la somme de ces composés majoritaires [2] :

$$\text{Bois} = p_1 \text{Hémicellulose} + p_2 \text{Cellulose} + p_3 \text{Lignine} \quad (1.8)$$

Où p_1 , p_2 et p_3 représentent les proportions respectives d'hémicellulose, de cellulose et de lignine.

La perte de masse du bois est donc obtenue en sommant les contributions de chaque bio-polymère [81–84].

Parmi les bio-polymères du bois, la cellulose a été la plus étudiée [85–87]. Bradbury et coll. [88] ont développé un mécanisme réactionnel en trois étapes pour la cellulose. Elle se transforme d'abord en un composé activé, correspondant à une réduction du degré de polymérisation du constituant de départ. Cette étape est observée pour de faibles températures. Ce nouvel élément se transforme ensuite en goudrons et en gaz ainsi qu'en résidu charbonneux. La Figure 1.7 présente le schéma réactionnel mis en jeu.

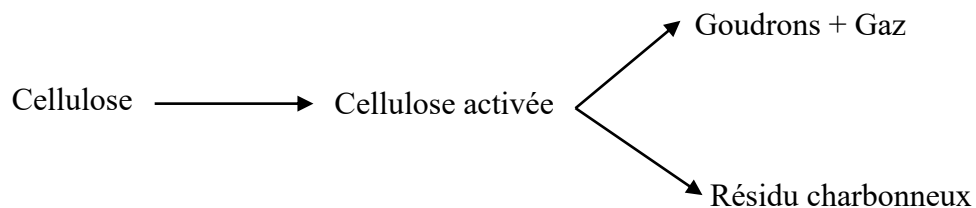


Figure 1.7 : Schéma réactionnel de la dégradation de la cellulose [88].

Ce mécanisme réactionnel a été repris par de nombreux auteurs [61,79,82]. Miller et Bellan [82] l'ont également étendu pour l'ensemble des bio-polymères du bois.

D'autres mécanismes ont été développés pour décrire la dégradation thermique de la cellulose. Kilzer et Broido [89] ont considéré que la cellulose subissait une déshydratation avant de se transformer en goudrons et en résidu charbonneux. D'après leurs analyses, la dégradation de la cellulose démarre à 220°C avec une réaction endothermique intermoléculaire d'élimination d'eau produisant l'anhydro-cellulose. Ensuite, ce composé subit une réaction exothermique de pyrolyse pour former du résidu charbonneux et des goudrons. Dans ce modèle, les réactions de déshydratation prédominent à de faibles températures entraînant la formation de résidu charbonneux sous atmosphère inerte. A des températures élevées, les réactions de dépolymérisation prédominent entraînant la formation de goudrons volatiles sous atmosphère inerte. Ce modèle a été repris dans une étude menée par Arseneau [90] et a été modifié par Agrawal [91] pour prendre en compte la formation de goudrons en parallèle de celle de l'anhydro-cellulose.

Agrawal [85] a également développé un mécanisme en trois étapes parallèles décrivant la dégradation de la cellulose. Il a été développé grâce à une étude antérieure menée par Lipska et Parker [86]. Ce mécanisme ne prend pas en compte la formation d'un composé dépolymérisé comme dans les mécanismes précédents mais considère que la cellulose se dégrade directement en gaz, goudrons et résidus charbonneux.

Le mécanisme réactionnel développé par Bradbury et coll. [88] a été récemment modifié par Ranzi et coll. [92] pour rendre compte de la formation de résidu charbonneux et de gaz en parallèle de celle de la cellulose activée. Ils ont ainsi montré que quatre réactions sont suffisantes pour représenter la dégradation de la cellulose dans des conditions isothermes et non-isothermes avec le même jeu de paramètres cinétiques [93].

Pour les hémicelluloses, beaucoup d'études ont été menées avec du xylane qui est un composant principal des hémicelluloses [94]. Bien qu'il existe des schémas mono-réactionnels [20,76,95], plusieurs auteurs [75,94] s'accordent sur le fait que la dégradation du xylane doit être modélisée à l'aide de deux étapes (Figure 1.8). La première étape a lieu à des températures inférieures à 300°C et donne lieu à des matières volatiles ainsi qu'à un produit intermédiaire, correspondant à une réduction du degré de polymérisation du xylane [94]. Ce dernier se transforme en résidu charbonneux et matières volatiles lorsqu'il atteint des températures supérieures à 300°C. Les matières volatiles émises durant la première réaction correspondent à des composés émis durant la pyrolyse du xylane tels que le furane ou l'acétaldéhyde [96]. Ce mécanisme réactionnel est utilisé dans des conditions de température isotherme entre 473 et 613 K.

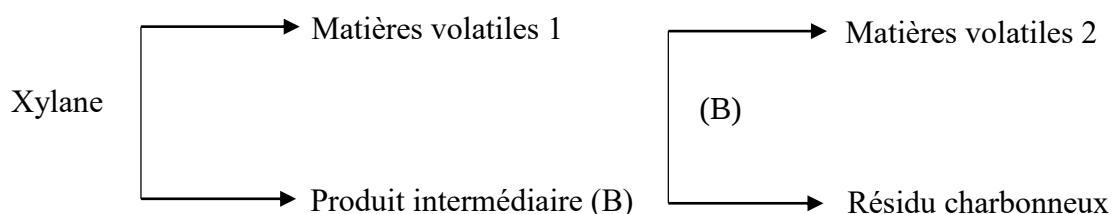


Figure 1.8 : Schéma réactionnel de dégradation du xylane développé par Di Blasi et Lanzetta [94].

En ce qui concerne la lignine, on trouve également différentes approches pour modéliser sa dégradation thermique. Certains auteurs font l'hypothèse d'une réaction unique [97]. Toutefois, Antal [98] a développé un mécanisme réactionnel en trois étapes parallèles (Figure 1.9) :

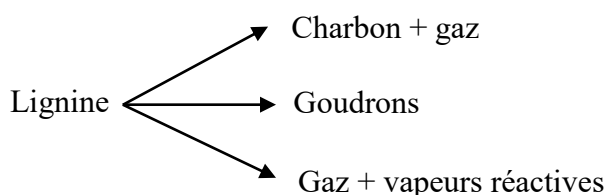


Figure 1.9 : Schéma réactionnel en trois étapes de la dégradation de la lignine.

Pour des procédés à basse température, la lignine se transforme en résidu charbonneux et en gaz. A plus haute température, la lignine va former des goudrons. Pour des vitesses de chauffe très importantes, une troisième étape apparaît et correspond à la transformation de la lignine en gaz et vapeurs réactives.

La pyrolyse (ou gazéification) des bio-polymères du bois (hémicellulose, cellulose et lignine) peut également être représentée par une seule réaction formant du résidu charbonneux et des gaz [24]. La Figure 1.10 présente ce schéma réactionnel. Ce mécanisme a été utilisé pour étudier la pyrolyse à l'aide d'un analyseur thermogravimétrique de cinq matières premières de la biomasse telles que la sciure de bois, des tiges de fougère, de la canne à sucre, des bâtons de jute et des tiges de blé. Ces échantillons ont des masses de l'ordre de 5 mg. Une vitesse de chauffe de 10°C/min a été appliquée entre 20°C et 800°C.

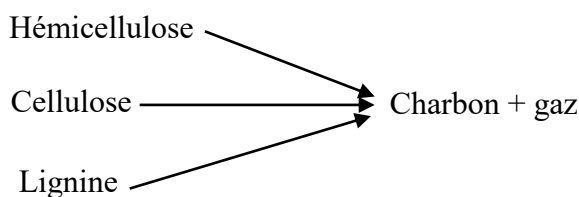


Figure 1.10 : Schéma réactionnel de la pyrolyse (ou gazéification) des principaux constituants du bois.

2.1.3. L'oxydation du résidu charbonneux

L'oxydation du résidu charbonneux est une réaction secondaire intervenant après la gazéification du bois ou des végétaux. Sa transformation en cendres et en gaz est généralement décrite en une étape (Figure 1.11) [62,78,99] :

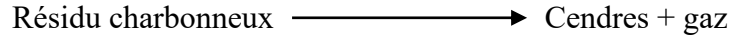


Figure 1.11 : Schéma réactionnel de l'oxydation du résidu charbonneux.

Cette réaction peut également être décrite en deux étapes, ce qui a notamment été le cas pour l'étude de la décomposition du bois de contreplaqué par Fateh [100].

Le modèle de Langmuir-Hinshelwood permet de définir une oxydation du résidu charbonneux en cendres à l'aide de deux réactions élémentaires [101]. Il permet de fournir une description du phénomène d'adsorption de l'oxygène et de désorption du monoxyde et du dioxyde de carbone.



2.2. Les lois cinétiques

Après avoir présenté certains mécanismes réactionnels utilisés dans la littérature pour modéliser la dégradation thermique du bois, nous détaillons ci-dessous les lois mathématiques permettant de caractériser les cinétiques des réactions et étapes introduites dans ces mécanismes.

2.2.1. Généralités

La dégradation thermique d'un solide peut être étudiée par l'évolution de sa masse au cours du temps [77,78,82] ou par le taux de conversion, aussi appelé degré d'avancement [27,62,79,81]. Cette grandeur est définie de la manière suivante :

$$\alpha = \frac{m_0 - m}{m_0 - m_\infty} \quad (1.11)$$

Où m_0 représente la masse initiale du solide, m sa masse à l'instant t et m_∞ sa masse finale.

La vitesse de réaction est ensuite donnée par :

$$\frac{d\alpha}{dt} = f(\alpha)k(T) \quad (1.12)$$

Où $f(\alpha)$ est une fonction de α et $k(T)$ la constante de vitesse généralement modélisée à l'aide d'une loi d'Arrhenius :

$$k(T) = A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (1.13)$$

Où T est la température, A le facteur pré-exponentiel, E_a l'énergie d'activation et R la constante des gaz parfaits.

Dans le cas où le solide subit une montée en température linéaire avec une vitesse de chauffe β , la vitesse de réaction s'écrit :

$$\frac{d\alpha}{dT} = \frac{1}{\beta} f(\alpha) k(T) \quad (1.14)$$

En séparant les variables, l'équation ci-dessus peut se réécrire de la manière suivante :

$$\frac{d\alpha}{f(\alpha)} = \frac{1}{\beta} k(T) dT \quad (1.15)$$

En intégrant, on obtient :

$$G(\alpha) = \int_0^\alpha \frac{du}{f(u)} = \frac{A}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{Rz}\right) dz = \frac{AE_a}{R\beta} p(x) \quad (1.16)$$

Avec :

$$p(x) = \int_x^\infty \frac{\exp(-x)}{x^2} dx \quad (1.17)$$

$$\text{et } x = \frac{E_a}{RT}$$

Pour déterminer les paramètres cinétiques, il existe deux types de méthodes :

- Les méthodes cinétiques sans modèle ou d'iso-conversion qui permettent de déterminer l'évolution de l'énergie d'activation en fonction du degré d'avancement sans avoir besoin de définir le mécanisme réactionnel c'est-à-dire sans connaître la forme de $f(\alpha)$ ou de $G(\alpha)$.
- Les méthodes à modèle imposé qui nécessite la définition de $f(\alpha)$ ce qui permet d'identifier les paramètres cinétiques de la dégradation thermique relatifs à ce modèle.

2.2.2. Les méthodes cinétiques sans modèle ou d'iso-conversion

Parmi les méthodes cinétiques sans modèles, les trois méthodes les plus utilisées sont : la méthode d'Ozawa-Flynn-Wall, la méthode de Kissinger-Akahira-Sunose et la méthode de Friedman.

2.2.2.1. La méthode d'Ozawa-Flynn-Wall

La méthode d'Ozawa-Flynn-Wall se base sur l'équation 1.16 en utilisant l'approximation de Doyle [102,103] pour calculer $p(x)$:

$$\log(p(x)) = -2,153 - 0,4567 x \quad (1.18)$$

Cela permet d'exprimer le logarithme de la vitesse de chauffe en fonction de $G(\alpha)$ et des paramètres cinétiques [104,105] :

$$\log(\beta) = \log\left(\frac{AE_a}{G(\alpha)R}\right) - 2,315 - \frac{0,4567E_a}{RT} \quad (1.19)$$

Pour différentes vitesses de chauffe et à un degré d'avancement fixé, on peut observer une relation linéaire en traçant $\log(\beta)$ en fonction de $\frac{1}{T}$. L'énergie d'activation est alors déterminée grâce à la pente de la droite obtenue.

2.2.2.2. La méthode de Kissinger-Akahira-Sunose

La méthode de Kissinger- Akahira-Sunose approxime $p(x)$ de la manière suivante :

$$p(x) = \frac{\exp(-x)}{x^2} \quad (1.20)$$

Cela conduit à une équation de la forme :

$$G(\alpha) = \frac{ART^2}{\beta E_a} \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (1.21)$$

De manière similaire à la méthode d'Ozawa-Flynn-Wall, on aboutit à l'équation suivante [106] :

$$\ln\left(\frac{\beta}{T^2}\right) = \left[\ln\left(\frac{AR}{E_a}\right) - \ln(G(\alpha))\right] - \frac{E_a}{RT} \quad (1.22)$$

Comme pour la méthode précédente, il est possible d'obtenir l'évolution de l'énergie d'activation en fonction de l'avancement grâce à la pente de la courbe de $\ln\left(\frac{\beta}{T^2}\right)$ en fonction de $\frac{1}{T}$.

2.2.2.3. La méthode de Friedmann

La méthode de Friedman est une méthode différentielle utilisant directement l'équation 1.16 [107] :

$$\ln\left(\frac{d\alpha}{dt}\right) = \ln A + \ln f(\alpha) - \frac{E_a}{RT} \quad (1.23)$$

Comme pour les cas précédents, l'énergie d'activation est estimée à l'aide de la pente de la courbe de $\ln\left(\frac{d\alpha}{dt}\right)$ en fonction de $\frac{1}{T}$ en prenant différents taux de conversion. L'avantage de cette méthode par rapport à celles d'Ozawa-Flynn-Wall et de Kissinger-Akahira-Sunose réside dans le fait qu'elle est applicable aussi bien pour des expériences utilisant des isothermes que pour des rampes de température.

2.2.3. Les méthodes cinétiques à modèle imposé

Les méthodes cinétiques à modèle imposé permettent d'obtenir par optimisation l'énergie d'activation, le facteur pré-exponentiel et l'ordre de la réaction pour des réactions associées à un phénomène thermique. Cependant, cela nécessite de définir au préalable la forme de la fonction de conversion $f(\alpha)$. Les modèles existants (Tableau 1-3) comprennent des modèles de nucléation, de contraction géométrique, de diffusion et d'ordre de réaction. Les modèles de nucléation sont par exemple utilisés pour décrire des réactions de cristallisation, de transition cristallographique, de décomposition, d'adsorption ou d'hydratation. Parmi ces modèles, on trouve les lois puissances, les lois d'Avrami-Erofeev ou encore les lois d'autocatalyse. Les modèles de contraction géométrique s'appliquent principalement aux cristaux. Ils supposent que la nucléation se produit rapidement sur la surface du cristal. La vitesse de dégradation ou de dissolution est

contrôlée par l'état d'avancement de l'interface réactionnelle. Dans le cas des réactions à l'état solide, les modèles de diffusion sont généralement utilisés lorsque les réactions sont influencées par la présence à l'interface de réaction, d'un réactif ou d'un produit issus de la décomposition du solide. Enfin, les modèles d'ordre de réaction sont les modèles les plus simples. Ils sont semblables à ceux utilisés en cinétique homogène. La vitesse de réaction est proportionnelle à la concentration, la quantité ou la fraction restante de réactif élevé à une puissance donnée (entier ou fractionnaire), qui est l'ordre de réaction. Plus l'ordre de réaction est grand, plus la cinétique des réactions est complexe.

Tableau 1-3 : Expressions existantes de $f(\alpha)$

Modèle	Forme différentielle $f(\alpha) = \frac{1}{k} \frac{d\alpha}{dt}$	Forme intégrale $G(\alpha) = kt$
Loi de puissance (P2)	$2\alpha^{\frac{1}{2}}$	$\alpha^{\frac{1}{2}}$
Loi de puissance (P3)	$3\alpha^{\frac{2}{3}}$	$\alpha^{\frac{1}{3}}$
Loi de puissance (P4)	$4\alpha^{\frac{3}{4}}$	$\alpha^{\frac{1}{4}}$
Avrami-Erofeev (A2)	$2(1-\alpha)(-\ln(1-\alpha))^{\frac{1}{2}}$	$(-\ln(1-\alpha))^{\frac{1}{2}}$
Avrami-Erofeev (A3)	$3(1-\alpha)(-\ln(1-\alpha))^{\frac{2}{3}}$	$(-\ln(1-\alpha))^{\frac{1}{3}}$
Avrami-Erofeev (A4)	$4(1-\alpha)(-\ln(1-\alpha))^{\frac{3}{4}}$	$(-\ln(1-\alpha))^{\frac{1}{4}}$
Prout-Tomkins (B1)	$\alpha(1-\alpha)$	$\ln\left(\frac{\alpha}{1-\alpha}\right) + c^\alpha$
Surface compressée (R2)	$2(1-\alpha)^{\frac{1}{2}}$	$1 - (1-\alpha)^{\frac{1}{2}}$
Volume compressé (R3)	$3(1-\alpha)^{\frac{2}{3}}$	$1 - (1-\alpha)^{\frac{1}{3}}$
Diffusion 1D (D1)	$\frac{1}{2\alpha}$	α^2
Diffusion 2D (D2)	$-\frac{1}{\ln(1-\alpha)}$	$(1-\alpha)\ln(1-\alpha) + \alpha$
Diffusion 3D – Jander (D3)	$\frac{3(1-\alpha)^{\frac{2}{3}}}{2\left(1 - (1-\alpha)^{\frac{1}{3}}\right)}$	$\left(1 - (1-\alpha)^{\frac{1}{3}}\right)^2$
Ginstling-Brounshtein (D4)	$\frac{3}{2((1-\alpha)^{-\frac{1}{3}} - 1)}$	$1 - \frac{2}{3}\alpha - (1-\alpha)^{\frac{2}{3}}$
Ordre zéro	1	α
Premier ordre	$(1-\alpha)$	$-\ln(1-\alpha)$
Deuxième ordre	$(1-\alpha)^2$	$\frac{1}{1-\alpha} - 1$
Troisième ordre	$(1-\alpha)^3$	$\frac{1}{2}[(1-\alpha)^2 - 1]$

3. Etude de la décomposition thermique des matériaux ligno-cellulosiques

L'échelle d'étude est un élément important lors de l'étude de phénomènes physiques. Dans le domaine de l'incendie, on peut relever trois échelles d'étude différentes :

- L'échelle matière où les matériaux sont sous forme de poudre ou ont un diamètre inférieur à 5 mm [13,108]. La masse de combustible est alors de quelques milligrammes. A cette échelle, on fait

l'hypothèse d'une dégradation thermique en dimension zéro, c'est-à-dire en considérant qu'il n'y a pas de transfert de masse et d'énergie au sein du combustible.

- L'échelle matériau où les combustibles ont une masse de l'ordre de la dizaine ou centaine de grammes avec des dimensions de l'ordre du centimètre à la dizaine de centimètres [15,16,43]. A cette échelle d'étude, les transferts de masse et d'énergie existent et sont couplés.
- L'échelle produit où les matériaux ont une masse de l'ordre du kilogramme avec des dimensions équivalentes à celle d'un arbuste [9,109].

L'étude de la dégradation thermique des matériaux ligno-cellulosiques est principalement réalisée à l'échelle matière et à l'échelle matériau. Les paramètres cinétiques, permettant de représenter la perte de masse d'un combustible, sont déterminés à l'échelle matière. A l'échelle matériau, la validité des modèles développés à l'échelle matière est souvent testée par l'intermédiaire d'une approche multi-échelle [15,16]. Cette approche consiste à représenter la perte de masse d'un combustible en tenant compte du couplage entre les transferts de masse et d'énergie à l'aide d'un code de calcul permettant de résoudre les équations de conservation. On retrouve plusieurs techniques permettant de réaliser cette approche, avec par exemple l'utilisation du code de calcul GPYRO [110] ou du code de calcul Thermakin [111]. Cette approche peut également être utilisée en implémentant le modèle cinétique et les propriétés thermo-physiques du combustible dans un code de calcul de mécanique des fluides (CFD) tels que Fire Dynamic Simulator (FDS) [112] ou Firefoam [113]. La présentation de ces méthodes sera faite dans le paragraphe 3.2.2.

Nous allons à présent présenter les principaux résultats aux différentes échelles d'étude, en commençant par l'échelle matière. Nous détaillerons notamment les principaux paramètres cinétiques déterminés pour les différents types de mécanismes réactionnels ainsi que pour la réaction d'oxydation du résidu charbonneux. A l'échelle matériau, nous présenterons les phénomènes mis en jeu lors de la dégradation thermique du bois, avant de présenter les différents outils permettant d'étudier la dégradation thermique à cette échelle.

3.1. Etudes à l'échelle matière

3.1.1. Etude de la pyrolyse (ou gazéification)

A l'échelle matière, l'étude de la pyrolyse ou de la gazéification du bois se fait principalement à l'aide de la thermogravimétrie de manière isotherme [83,86,94,97] ou en imposant une rampe de température [24,77,78,114,115]. Toutefois, on peut également trouver quelques expériences utilisant des réacteurs cylindriques [73,116–118]. Les expériences se font soit sous atmosphère inerte, soit sous atmosphère oxydante ou encore sous atmosphère partiellement oxydante. Les expériences sous atmosphère inerte permettent d'exclure le dioxygène de l'air [119,120] et utilisent généralement comme gaz vecteur de l'azote [24,77] ou de l'argon [121]. Ces expériences permettent de se focaliser sur la pyrolyse du matériau. Les essais sous atmosphère oxydante sont principalement réalisés sous air (79 % d'azote et 21 % d'oxygène) [62,122].

Afin de compléter l'analyse thermogravimétrique de la dégradation thermique, certaines études couplent un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier [77,123,124]. Cela permet d'avoir simultanément la perte de masse et les émissions gazeuses en fonction de la température ou du temps ce qui peut aider dans

la détermination d'un mécanisme de décomposition en connaissant notamment les gaz émis aux différentes étapes de la dégradation thermique.

Pour l'ensemble des études de la littérature à l'échelle matière, les masses initiales sont de l'ordre du milligramme. Elles varient entre 2 et 20 mg pour des vitesses de chauffe allant de 5°C/min jusqu'à 80°C/min en thermogravimétrie. A partir des pertes de masse, les différents auteurs ont déterminé les mécanismes de dégradation les mieux adaptés et calculé les paramètres cinétiques correspondants. Les Tableaux 1-4 et 1-5 résument ces différents travaux en recensant les modes opératoires utilisés, les masses initiales, les caractéristiques géométriques des combustibles, les vitesses de chauffe, les mécanismes réactionnels utilisés et les énergies d'activation obtenues pour les mécanismes globaux et les mécanismes par constituants présentés précédemment.

Le mécanisme réactionnel développé par Shafizadeh et Chin [64] montre que les énergies d'activation obtenues respectivement pour la transformation du bois en gaz, en goudrons et en résidu charbonneux varient de manière importante d'un bois à l'autre. La transformation en gaz donne lieu à des énergies d'activation qui varient entre 88,6 et 150,0 kJ/mol, celle en goudrons à des variations entre 112,7 et 133,0 kJ/mol et celle en résidu charbonneux à des variations entre 106,5 et 121,0 kJ/mol. Cette variabilité a des causes multiples. La première d'entre elles est le bois ou végétal étudié. Ensuite, le mécanisme réactionnel et les conditions opératoires sont des facteurs pouvant également impacter les valeurs des énergies d'activation entre les différentes études. Lors d'une gazéification en une étape de végétaux en résidu charbonneux (Equation 1.4), nous remarquons que l'influence de l'espèce sur les valeurs d'énergie d'activation est significative puisque pour des conditions expérimentales similaires, les énergies d'activation varient entre 80,0 et 120,0 kJ/mol. Avec le mécanisme développé par Branca et Di Blasi [31] où les réactions se déroulent successivement, une étude sur du bois de contreplaqué et sur des aiguilles de Pin montre une plus faible dépendance de l'espèce de bois sur la détermination des paramètres cinétiques [99,100]. Ces études comprennent un mécanisme réactionnel en 3 étapes pour décrire la pyrolyse des aiguilles de Pin et du bois de contreplaqué. Les réactions ne présentent qu'une faible variation de leur énergie d'activation, de l'ordre respectivement de 14 et 16 kJ/mol pour les deux premières réactions et la troisième réaction. Toutefois, pour une espèce de bois et des conditions expérimentales différentes, Branca et Di Blasi [31] ont déterminé des énergies d'activation différentes de celles obtenues pour le bois de contreplaqué et les aiguilles de Pin.

Les modèles de dégradation se basant sur les trois principaux constituants du bois, à savoir l'hémicellulose, la cellulose et la lignine, montrent également de grandes disparités dans les énergies d'activation obtenues. En considérant le schéma réactionnel défini dans la Figure 1.7, une étude menée par Koufopoulos et coll. [67] a montré que, pour des conditions expérimentales similaires, la gazéification de l'hémicellulose, de la cellulose et de la lignine ont donné lieu à des valeurs d'énergie d'activation très différentes. Ainsi, dans la première étape correspondant à une réduction du degré de polymérisation du constituant de départ donnant lieu à la formation d'un composé actif, les énergies d'activation varient entre 72,4 et 167,5 kJ/mol. La cellulose présente la plus forte valeur tandis que l'hémicellulose présente la plus faible pour cette réaction. La transformation en goudrons et en gaz des composé actifs présente également des énergies d'activation différentes selon le constituant de départ. Les valeurs varient entre 137,1 et 216,6 kJ/mol. La plus forte énergie d'activation est celle de la cellulose et la plus faible est attribuée à la lignine. Pour la transformation du composé actif en résidu charbonneux, les valeurs d'énergie

d'activation varient entre 122,1 et 196,0 kJ/mol. La plus forte valeur est toujours attribuée à la cellulose et la plus faible à la lignine. En considérant à présent une pyrolyse de la lignine et de l'hémicellulose par étapes successives (Equation 1.5 à 1.7), les énergies d'activation obtenues sont plus fortes que celles obtenues avec le mécanisme défini par la Figure 1.7. Pour la lignine, les énergies d'activation varient entre 107,4 et 240,3 kJ/mol et pour l'hémicellulose entre 186,4 et 250,4 kJ/mol. Toutefois, les conditions expérimentales entre les deux études sont très différentes puisque l'on considère des masses de l'ordre de 20 mg en thermogravimétrie alors que l'on a des masses de l'ordre de 100 mg dans un four.

Lorsque la transformation des trois principaux constituants du bois est considérée en trois étapes parallèles, les énergies d'activation obtenues sont beaucoup plus proches que dans les deux cas précédents. C'est le cas notamment dans l'étude de Chen et coll. [24] sur différentes matières premières de la biomasse telles que la sciure de bois, les tiges de blé, les tiges de fougère, les bâtons de jute et la canne à sucre. Par exemple, pour la transformation de l'hémicellulose en résidu charbonneux, on retrouve des valeurs respectives de 152,03, 147,80 et 143,80 kJ/mol pour la sciure de bois, les tiges de blé et les bâtons de jute. Les différences maximales sont de l'ordre de 9 kJ/mol ce qui est beaucoup plus faible que pour les deux cas précédents. Ces différences sont également du même ordre de grandeur pour la cellulose et la lignine.

Tableau 1-4 : Principaux résultats sur la dégradation thermique des matériaux lignocellulosiques utilisant les mécanismes globaux.

Réf.	Combustible	Appareil utilisé	Atmosphère de dégradation	Masses initiales (dimensions)	Type de chauffe Isotherme/Rampe	Mécanisme cinétique	Energies d'activation (kJ/mol)
[31]	Hêtre	ATG	N ₂	(<80µm)	Isotherme entre 300 et 435°C	Equations 1.5 à 1.7 (Branca et Di Blasi)	E ₁ = 76,2 ± 21,1 E ₂ = 142,8 ± 10,0 E ₃ = 43,8 ± 5,7
[125]	Pin	ATG	N ₂	1-7mg (100<d(µm)<212)	Isotherme à 380°C	Figure 1.5 (Shafizadeh et Chin)	E _{Gaz} = 150
[66]	Chêne	Four tubulaire isotherme	N ₂	(0,615-1 mm)	-	Figure 1.5 (Shafizadeh et Chin)	E _{Gaz} = 88,6 E _{Goudron} = 112,7 E _{Charbon} = 106,5
[126]	Pin	Réacteur	-	(1 cm)	-	Figure 1.5 (Shafizadeh et Chin)	E _{Gaz} = 140,0 E _{Goudron} = 133,0 E _{Charbon} = 121,0
[62]	Ciste	ATG	Air	10 mg (< 5 mm)	Rampe de 10, 20, 30 et 40 °C/min	Equation 1.4	E = 91,0
[62]	Bruyère	ATG	Air	10 mg (< 5 mm)	Rampe de 10, 20, 30 et 40 °C/min	Equation 1.4	E = 80,0
[62]	Pin maritime	ATG	Air	10 mg (< 5 mm)	Rampe de 10, 20, 30 et 40 °C/min	Equation 1.4	E = 118,0
[62]	Arbousier	ATG	Air	10 mg (< 5 mm)	Rampe de 10, 20, 30 et 40 °C/min	Equation 1.4	E = 120,0
[77]	Contreplaqué	ATG	N ₂ (3 premières réactions) et Air (3 dernières réactions)	5 mg (-)	Rampe de 5, 10, 20, 30, 40 et 50 °C/min	Fateh [100]	E ₁ = 114,2 E ₂ = 100,4 E ₃ = 135,3 E ₄ = 116,7
[78]	Aiguilles de Pin	ATG	N ₂ et Air	5 mg (-)	Rampe de 5, 10, 15 et 20 °C/min	Fateh [99]	E ₁ = 108,0 E ₃ = 98,3 E ₂ = 116,0

Tableau 1-5 : Principaux résultats sur la dégradation thermique des matériaux lignocellulosiques avec les mécanismes par constituants.

Référence	Combustible	Appareil utilisé	Atmosphère de dégradation	Masses initiales (dimensions)	Type de chauffe Isotherme/Rampe	Mécanisme cinétique	Energies d'activation (kJ/mol)
[67]	Hémicellulose	ATG	N ₂	20 mg (0,3-0,85 mm)	Rampe de 5-80 °C/min	Figure 1.7 (Bradbury et coll.)	E ₁ = 72,4 E ₂ = 174,1 E ₃ = 172 ,0
[67]	Cellulose	ATG	N ₂	20 mg (0,3-0,85 mm)	Rampe de 5-80 °C/min	Figure 1.7 (Bradbury et coll.)	E ₁ = 167,5 E ₂ = 216,6 E ₃ = 196,0
[67]	Lignine	ATG	N ₂	20 mg (0,3-0,85 mm)	Rampe de 5-80 °C/min	Figure 1.7 (Bradbury et coll.)	E ₁ = 147,7 E ₂ = 137,1 E ₃ = 122,1
[35]	Hêtre	ATG	N ₂	-	Rampe de 5, 10 et 80 °C/min	Figure 1.10 (Chen et coll.)	E ₁ = 100,0 E ₂ = 236,0 E ₃ = 46,0
[127]	Hêtre	ATG	N ₂	5 mg	Séchage à 30 °C/min puis pyrolyse à 5°C/min	Figure 1.10 (Chen et coll.)	E ₁ = 147,0 E ₂ = 193,0 E ₃ = 181,0
[24]	Sciure de Pin	ATG	N ₂	5 mg	Rampe de 10 °C/min	Figure 1.10 (Chen et coll.)	E ₁ = 152,03 E ₂ = 158,22 E ₃ = 199,88
[24]	Paille de blé	ATG	N ₂	5 mg	Rampe de 10 °C/min	Figure 1.10 (Chen et coll.)	E ₁ = 147,80 E ₂ = 167,98 E ₃ = 195,18
[24]	Toile de jute	ATG	N ₂	5 mg	Rampe de 10 °C/min	Figure 1.10 (Chen et coll.)	E ₁ = 143,80 E ₂ = 169,84 E ₃ = 211,77
[84]	Lignine	Four	N ₂	100 mg	Rampe de 5,1°C/min	Equations 1.5 à 1.7 (Branca et Di Blasi)	E ₁ = 107,4 E ₂ = 205,7 E ₃ = 240,3
[84]	Hémicellulose	Four	N ₂	100 mg	Rampe de 5,1°C/min	Equations 1.5 à 1.7 (Branca et Di Blasi)	E ₁ = 186,4 E ₂ = 215,7 E ₃ = 250,4

3.1.2. Etude de l'oxydation du résidu charbonneux

L'oxydation du résidu charbonneux apparaît lorsque la dégradation thermique d'un matériau a lieu sous atmosphère oxydante ou sous atmosphère partiellement oxydante. Pour cette dernière il s'agit de faire varier la fraction massique d'oxygène et ainsi de déterminer l'influence du taux d'oxygène sur les différentes réactions de dégradation (pyrolyse et oxydation du résidu charbonneux) [121,128,129].

L'oxydation du résidu charbonneux correspond à une transformation chimique complexe qui se déroule en plusieurs étapes [130]. Il y a tout d'abord un transfert de l'oxygène environnant vers la surface externe de la particule. Ensuite, l'oxygène se diffuse dans les pores du solide puis il est adsorbé sur un site actif. La réaction chimique qui a lieu conduit à la désorption des produits. Ces différentes étapes sont fortement influencées par les propriétés physico-chimiques du résidu charbonneux, la température de combustion, la pression partielle en oxygène et la taille des particules solides. L'oxydation du résidu charbonneux des matériaux ligno-cellulosiques a lieu entre 400°C et 900°C [131,132] et produit un résidu solide (cendres), des gaz et des goudrons qui compte tenu de la température sont à l'état vapeur. Dans la littérature, il existe beaucoup d'études sur le résidu charbonneux. Toutefois, la cinétique d'oxydation du résidu charbonneux issue de la pyrolyse de matériaux ligno-cellulosiques a été moins étudiée. Le Tableau 1-6 présente une revue des différentes études réalisées à l'échelle matière soit avec des conditions isothermes soit avec des rampes de température pour divers types de biomasse.

Le taux de réaction de l'oxydation du résidu charbonneux est généralement décrit à l'aide de l'expression suivante :

$$\frac{d\alpha}{dt} = k(T) \cdot h(P_{O_2}) \cdot f(\alpha) \quad (1.24)$$

Où $h(P_{O_2})$ est une fonction de la pression partielle en oxygène fréquemment définie par :

$$h(P_{O_2}) = P_{O_2}^{n_{O_2}} \quad (1.25)$$

où n_{O_2} est l'ordre de réaction de l'oxygène et $k(T)$ est définie dans l'équation 1.13. D'autres approches font intervenir la fraction massique locale d'oxygène Y_{O_2} de la manière suivante [15,42] :

$$\frac{d\alpha}{dt} = f(\alpha) A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) Y_{O_2}^{n_{O_2}} \quad (1.26)$$

L'ordre de réaction n_{O_2} est parfois remplacé par le symbole de Kronecker δ fixant l'ordre de ce paramètre à 1 en présence d'oxygène et à 0 lorsqu'il n'y en a pas [22,77].

Dans certaines approches, la formulation de Langmuir-Hinshelwood est préférée aux deux équations précédentes afin de décrire la compétition existante entre le phénomène d'adsorption de l'oxygène et de désorption du monoxyde de carbone et du dioxyde de carbone à la surface du résidu charbonneux. La formulation la plus simple de cette approche peut alors s'écrire :

$$k(T) \cdot h(P_{O_2}) = \frac{k_d \cdot k_a \cdot P_{O_2}}{k_a \cdot P_{O_2} + k_d} \quad (1.27)$$

Où k_a et k_d sont les constantes de vitesse respectives pour les processus d'adsorption et de désorption respectant la loi d'Arrhenius. Il est toutefois à noter que cette approche est beaucoup moins fréquente que la première.

Concernant $f(\alpha)$, il existe plusieurs modèles utilisés notamment à cause de la complexité de la structure du résidu charbonneux. Les plus employés sont toutefois les lois d'ordre n et de nucléation.

La majorité des études à l'échelle matière considère une seule étape pour l'oxydation du résidu charbonneux (Tableau 1-6). Toutefois, certains auteurs préfèrent utiliser deux étapes en parallèle afin de rendre compte de la forme des courbes présentant deux zones d'oxydation attribuées à une étape de volatilisation et à une étape de combustion hétérogène [133]. D'autres auteurs utilisent même trois étapes en parallèle pour décrire l'oxydation du résidu charbonneux. La troisième étape correspond à une autre étape de combustion hétérogène [132]. La première étape de volatilisation est du premier ordre et ne dépend pas de la concentration en oxygène. La cinétique des deux étapes de combustion hétérogène est décrite par la relation 1.13.

Le Tableau 1-6 recense les paramètres cinétiques des principales études menées sur l'oxydation du résidu charbonneux en une étape. De manière similaire aux observations réalisées pour la pyrolyse ou la gazéification du bois ou des végétaux, les énergies d'activation de la réaction d'oxydation du résidu charbonneux présentent une grande variabilité. Lorsque la fraction locale ou la pression partielle en oxygène n'est pas considérée, les énergies d'activation varient entre 78,00 et 182,60 kJ/mol. Les conditions expérimentales étant similaires, ces valeurs semblent être fortement dépendantes du bois ou du végétal considéré. Lorsque l'oxygène est pris en compte dans la loi cinétique, les énergies d'activation varient entre 111,00 et 192,40 kJ/mol. Ces valeurs semblent être également dépendantes essentiellement du bois ou du végétal. Comme les valeurs des énergies d'activation et des facteurs pré-exponentiels sont couplées, la variabilité des valeurs de l'énergie d'activation se retrouve aussi pour le facteur pré-exponentiel. Lorsque l'oxygène n'est pas pris en compte dans la loi cinétique, il varie entre $1,51 \cdot 10^6$ et $1,40 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$. Lorsque la loi cinétique tient compte d'une fraction massique locale ou d'une pression partielle en oxygène, le facteur pré-exponentiel varie entre $5,30 \cdot 10^5$ et $9,73 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$. À l'inverse de la tendance observée pour l'énergie d'activation, la variabilité du facteur pré-exponentiel est plus grande lorsque la loi cinétique tient compte de la présence d'oxygène. En ce qui concerne les ordres de réaction, ils varient entre 0,53 et 2,15. Toutefois une majorité d'études [99,133–136] considère un ordre de réaction proche de 1 ou strictement inférieur, caractérisant ainsi le fait que l'oxydation du résidu charbonneux peut se représenter en une seule étape [27]. Les ordres de réaction de l'oxygène, lorsqu'ils sont pris en compte dans la loi cinétique, varient entre 0,53 et 1,04.

Tableau 1-6 : Paramètres cinétiques d'oxydation du résidu charbonneux en cendres.

Réf.	Matériau	Conditions d'oxydation	Température du four (°C)	Vitesse de chauffe (°C/min)	Diamètre (µm)	O ₂ (%)	Energie d'activation (kJ/mol)	Facteur pré-exponentiel (s ⁻¹)	Ordre de réaction (-)	Ordre de réaction de l'oxygène (-)
[133]	Epi de maïs	Réacteur à 1,4 MPa	ATG 20– 600	5 – 25	5 – 13	20, 100	111,00	$7,08.10^6$	1,0	0,63
[134]	Pin	ATG 527°C, 5 – 15 °C/min	ATG 400 – 600	10	60 – 150	21	108,40	$1,51.10^6$	1,2	0
[134]	Paille de blé	ATG 527°C, 5 – 15 °C/min	ATG 400 – 600	10	60 – 150	21	78,00	$6,44.10^4$	2,0	0
[132]	Hêtre	Four à 527°C	ATG 600	5 – 15	<80	21	182,60	$1,40.10^{11}$	1,0	0
[135]	Chêne	-	ATG 300 – 550	-	100-200	Air	136,00	$4,30.10^7$	1,1	0
[135]	Eucalyptus	-	ATG 300 – 550	-	100-200	Air	142,00	$9,20.10^6$	0,9	0
[136]	Pin	Réacteur 600°C	ATG 300 – 450	-	80-106	2,25-36	125,00	$5,30.10^5$	0,49	0,53
[121]	Ouate de cellulose	ATG	ATG	2 – 30	-	0 – 21	176,00	$1,07.10^{12}$	2,15	1,26
[99]	Aiguilles de Pin	ATG	ATG	5 – 20	-	21	128,00	$3,16.10^7$	0,90	1,0
[42]	Pin blanc	ATG	ATG	-	-	0-21	192,40	$9,73.10^{13}$	1,86	1,04

3.2. Etudes à l'échelle matériau

Après avoir présenté les études conduites à l'échelle matière portant sur la dégradation thermique du bois, nous allons présenter les principales études réalisées à l'échelle matériau. Nous exposerons les principaux phénomènes mis en jeu lors de la phase de gazéification du bois quand il est soumis à une densité de flux radiatif. Nous présenterons ensuite les différents codes de calcul permettant d'étudier la dégradation thermique d'un matériau à cette échelle et nous terminerons par un résumé des études réalisées.

3.2.1. Modélisation de la dégradation thermique du bois soumis à une densité de flux de chaleur

Lorsque le bois sec est soumis à une densité de flux radiatif, sa décomposition démarre par le processus de gazéification. La gazéification d'un solide caractérise sa transformation en résidu charbonneux et en gaz. Elle est représentée par sa perte de masse et la quantité de gaz combustibles émis qui peuvent s'enflammer si les conditions de mélange et de température sont réunies. La gazéification est un processus endothermique généralement contrôlé par des réactions chimiques qui se déroulent en fonction de la température [11]. Elle peut être très complexe et dépend du combustible étudié. La dégradation du bois lors de sa chauffe suit différentes étapes qui peuvent être une succession de réactions chimiques séquentielles ou compétitives. Ces réactions peuvent être fortement influencées par la présence d'oxygène.

Torero [11] a proposé une représentation unidimensionnelle du phénomène de dégradation thermique à l'intérieur d'un solide (Figure 1.12). Quand un solide, initialement à température ambiante, est exposé à une source de chaleur externe de type densité de flux radiatif, une partie de ce flux permet le chauffage du solide par conduction. L'autre partie est perdue par re-rayonnement de la surface. La température du solide commence à augmenter à sa surface en fonction du temps puis en profondeur. Si la température est suffisante pour casser les liaisons entre les molécules condensées, le solide démarre sa décomposition à une vitesse $\dot{m}_p''$. Les gaz libérés durant sa décomposition incluent une multitude de composés oxydés tels que le dioxyde de carbone et de composés partiellement oxydés comme le monoxyde de carbone. La fraction massique initiale de solide ($Y_{F,S}$) est consommée et produit des composés gazeux de fraction massique $Y_{F,g}$ tandis que l'oxygène se diffuse à l'intérieur du solide avec une fraction massique $Y_{O_2,g}$. La gazéification se propage ensuite à l'intérieur du solide définissant au cours du temps une profondeur de gazéification ϵ_p parcourant l'épaisseur du bois à une vitesse V_p . Un second front se forme derrière celui de gazéification et correspond au front d'oxydation du résidu charbonneux ϵ_{CH} . Celui-ci va se propager à une vitesse V_{CH} et former des cendres. Dans la partie où le résidu charbonneux commence à s'oxyder, de larges craquèlements apparaissent permettant à l'oxygène de se diffuser à l'intérieur du bois. La dégradation thermique devient alors dépendante de la concentration locale en oxygène.

La description des transferts de masse à l'intérieur en phase solide nécessite un sous-modèle de dégradation thermique, la détermination des propriétés physiques, chimiques et thermiques du solide et le couplage avec d'autres sous-modèles pour décrire les transferts d'énergie [10].

Dans un modèle unidimensionnel de dégradation thermique, il est donc nécessaire de connaître la température du solide, la fraction massique initiale de solide, la fraction massique locale d'oxygène, la fraction massique de solide au cours du temps, la perméabilité, l'épaisseur de la zone de diffusion de

l'oxygène à l'intérieur du solide, l'épaisseur de la zone dégradée et les paramètres cinétiques pour représenter la perte de masse d'un solide caractérisant sa décomposition thermique [11].

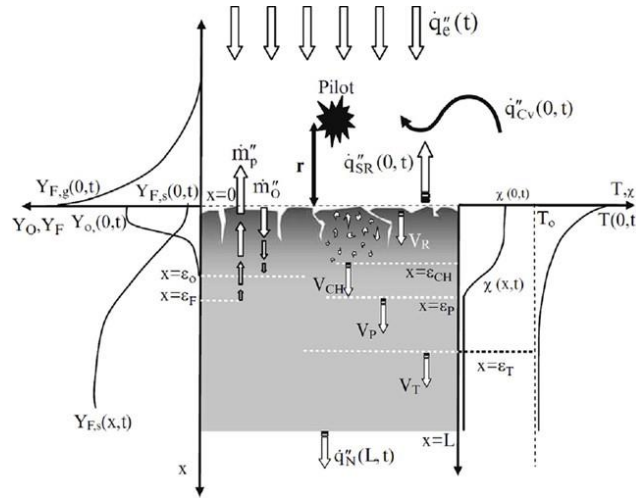


Figure 1.12 : Représentation de la dégradation thermique à l'intérieur d'un solide .

3.2.2. Codes de calcul pour la dégradation thermique d'un solide à l'échelle matériau

Récemment, des codes de calcul ont été développés par la communauté scientifique pour étudier la dégradation thermique des solides. C'est le cas par exemple de Generalized Pyrolysis Model for Combustible Solids (GPYRO) développé par Lautenberger [110]. Ce code est très général et permet d'étudier la dégradation thermique de différents types de matériaux, comme le bois ou les polymères en différentes dimensions allant du 0D (pour les tests réalisés en thermogravimétrie notamment) jusqu'à la 3D. Toutefois, il ne permet pas de considérer le couplage avec flamme. Dans ce code de calcul, il faut renseigner différentes propriétés du matériau considéré (propriétés thermo-physiques, mécanisme réactionnel, paramètres cinétiques) et une configuration expérimentale particulière avec des conditions aux limites et des conditions initiales. Les équations de conservation en phase gazeuse et en phase condensée sont ensuite résolues séparément par l'algorithme TDMA. Cet outil permet également de réaliser des optimisations de paramètres avec des algorithmes d'optimisation tels que l'algorithme génétique [123] ou l'algorithme « Shuffled Complex Evolution » [78] (pour déterminer les propriétés thermo-physiques du combustible étudié). GPYRO peut également être couplé à un code de mécanique des fluides comme Fire Dynamic Simulator (FDS) pour prendre en compte notamment le couplage avec flamme lors de la dégradation thermique de matériaux [137].

Pour étudier la dégradation thermique de matériaux polymères, Stoliarov [138] a développé un code de calcul particulier, ThermaKin. Chaque matériau dispose de propriétés intrinsèques le caractérisant ainsi que différents états subissant des réactions selon un mécanisme réactionnel. Les équations de conservation de la masse et de l'énergie sont implémentées et sont formulées en termes d'éléments finis rectangulaires. Ces équations sont ensuite résolues par la méthode de Crank-Nicholson [139]. ThermaKin permet l'étude de la décomposition de polymères qui forment du résidu charbonneux ou non [111,140] en différentes dimensions allant du 0D au 2D. La particularité de la modélisation mono et bidimensionnelle se trouve dans l'extension du modèle de dégradation thermique et son couplage avec une représentation analytique

de la flamme à la surface du matériau [111,141]. Une des différences qui l'oppose à GPYRO est qu'il est possible de renseigner l'évolution des propriétés thermiques du matériau en fonction de la température selon un polynôme d'ordre n tandis que dans GPYRO, les propriétés thermiques suivent une loi en puissance de la température (cf. Chapitre 2). Dans la cinétique de décomposition d'un matériau, il est également possible dans ThermaKin de renseigner un ou deux réactifs ainsi qu'un ou deux produits en phase solide dans le mécanisme réactionnel [141].

D'autres méthodes consistent à implémenter un modèle simplifié de dégradation thermique dans un code de mécanique des fluides comme Fire Dynamic Simulator (FDS). Guillaume et coll. [142] ont utilisé cette méthode pour étudier la dégradation thermique de matériau d'un siège de train soumis à une source de chaleur provenant d'un cône calorimètre. Marquis, quant à lui, a étudié la dégradation de matériaux composites avec FDS [143]. Sur le même principe, d'autres types d'étude ont été effectuées sur OpenFOAM comme celle menée par Ephraïm [144] sur la dégradation du bois et de déchets plastiques.

3.2.3. Principaux résultats à l'échelle matériau

Différentes études ont été menées à l'échelle matériau en utilisant une approche multi-échelle. GPYRO a été très utilisé pour étudier la dégradation thermique du bois [15,16,42,43] mais également pour étudier la dégradation thermique de végétaux [78] et de matériaux polymères [145]. Nous détaillons ci-dessous, à titre d'exemple, les résultats de l'étude de Fateh et coll. [15] portant sur du bois de contreplaqué.

Un mécanisme de dégradation thermique en cinq étapes, développé sur le même exemple que celui présenté par les équations 1.5 à 1.7, a été défini à l'échelle matière avec une détermination des paramètres cinétiques par algorithme génétique. Ce mécanisme réactionnel a été testé grâce au logiciel GPYRO en confrontant les prédictions aux résultats des expériences réalisées avec un cône calorimètre (à l'échelle matériau) pour des densités de flux radiatif de 20, 30, 40 et 50 kW/m². Les grandeurs thermo-physiques, telles que la masse volumique, la capacité calorifique, la conductivité thermique, l'émissivité, ont été obtenues en utilisant une optimisation par algorithme génétique se basant sur les courbes (températures et pertes de masse) obtenues à 30 kW/m². Les tests de comparaison ont ensuite été effectués sur les données obtenues avec les quatre densités de flux. La Figure 1.13 montre une comparaison des pertes de masse et des vitesses de perte de masse obtenues expérimentalement et numériquement pour quatre densités de flux : 20, 30, 40 et 50 kW/m². Pour chaque densité de flux, la perte de masse simulée est proche de la perte de masse expérimentale. La masse restante est sous-estimée par le modèle pour des densités de flux à partir de 30 kW/m². En revanche pour chaque densité de flux, le premier pic de la vitesse de perte de masse est surestimé par le modèle. Pour une densité de flux de 20 kW/m², le deuxième pic de vitesse de perte de masse intervient 300 s plus tôt dans la simulation que dans les expériences. Pour les autres densités de flux, les intensités des pics prédits et observés sont comparables avec une légère avance de la simulation à 40 et 50 kW/m².

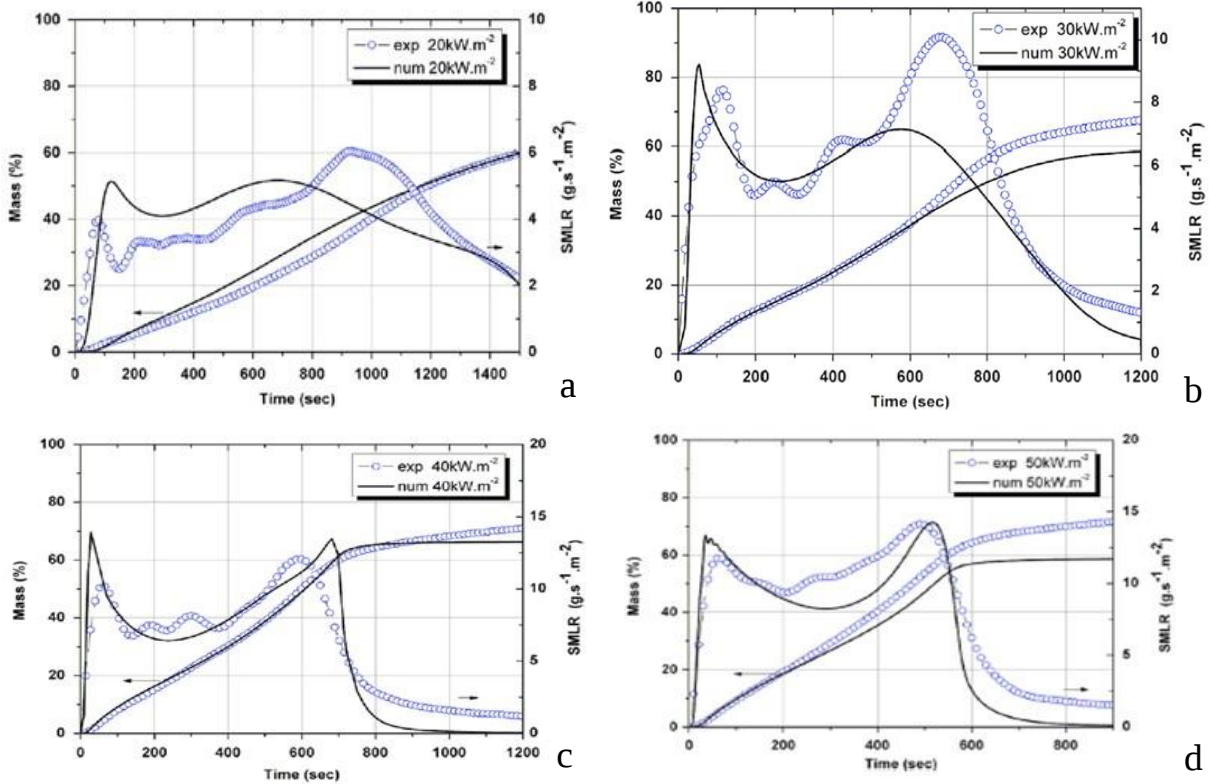


Figure 1.13 : Evolution de la perte de masse et du débit massique surfacique pour du bois de contreplaqué pour des densités de flux de : a) 20 kW/m^2 b) 30 kW/m^2 c) 40 kW/m^2 et d) 50 kW/m^2 [15].

Toutefois, l'utilisation de GPYRO est controversée et la solution obtenue dans l'étude précédente peut ne peut pas être complètement satisfaisante. Le résultat obtenu peut correspondre à l'addition de plusieurs degrés de liberté qui peuvent entraîner un phénomène de compensation dû au nombre important de paramètres inconnus [10]. Il faut donc être vigilant pour que les valeurs des propriétés thermo-physiques obtenues aient un sens physique.

ThermaKin a été essentiellement utilisé pour des études sur la dégradation thermique de matériaux polymères tels que le polycarbonate (PC) ou le polychlorure de vinyle (PVC) [111]. Ces études concernent également la dégradation thermique à l'échelle matériau, avec un développement préalable du mécanisme cinétique caractérisant sa décomposition, à l'échelle matière. Les résultats de Stoliarov [111] ont notamment permis de montrer qu'un modèle monodimensionnel de dégradation thermique peut être utilisé pour représenter les expériences à l'échelle matériau sous un cône calorimètre, réalisés sur des matériaux polymères charbonneux et intumescents. On peut par exemple citer son étude menée sur des matériaux polymères charbonneux [111] où Stoliarov a comparé à l'échelle matériau, des expériences réalisées sur du polycarbonate (PC) de deux épaisseurs : 5,5 et 6,0 mm, soumis à une densité de flux de chaleur de 75 kW/m^2 (Figure 1.14). Les simulations ont permis de bien représenter les résultats expérimentaux. Les différences observées s'expliquent par le fait qu'il a été difficile de maintenir une flamme soutenue durant les expériences.

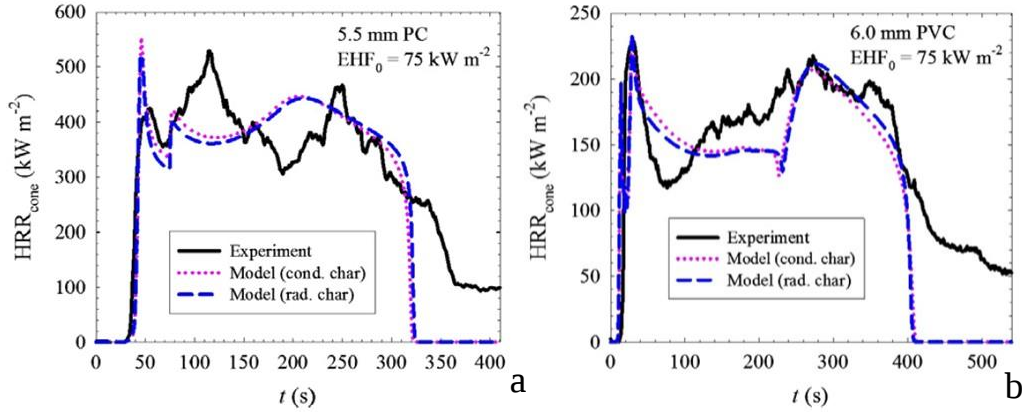


Figure 1.14 : Simulations numériques de tests réalisés sous un cône calorimètre de dégradation d'un matériau polymère d'épaisseur : a) 5,5 mm b) 6,0 mm.

En ce qui concerne l'implémentation d'un modèle de pyrolyse ainsi que des propriétés thermo-physiques d'un matériau dans FDS, Marquis a représenté la dégradation d'une résine polyester soumise à une densité de flux radiatif de 50 kW/m^2 [143]. Les résultats ont montré des différences importantes entre la vitesse de perte de masse simulée et expérimentale. Elles sont attribuées au modèle de pyrolyse introduit dans FDS qui ne représente pas la réalité des réactions physico-chimiques, notamment au niveau de l'oxydation du résidu charbonneux qui génère des instabilités numériques. En revanche, Guillaume et coll. [142] ont obtenu des résultats très satisfaisants sur la dégradation thermique de sièges de train à l'échelle matériau (Figure 1.15), ce qui leur a permis de valider leur modèle à cette échelle d'étude. Ces travaux concernent cependant des matériaux différents du bois. A notre connaissance, aucune étude sur la dégradation thermique du bois n'a été réalisée avec FDS.

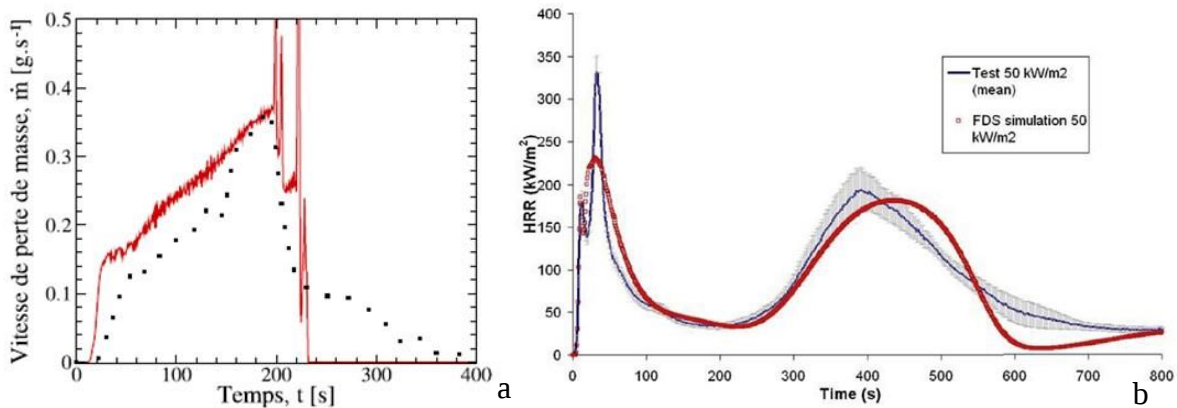
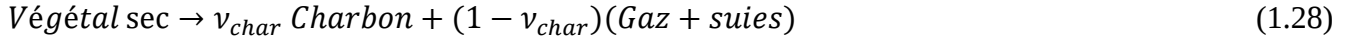


Figure 1.15 : Résultats obtenus en utilisant FDS à l'échelle matériau par : a) Marquis pour l'étude d'une résine polyester [143] b) Guillaume et coll. [142] pour l'étude de sièges de train.

4. Mécanismes réactionnels utilisés dans les modèles d'incendie de forêt

Dans les modèles physiques d'incendie de forêt, la dégradation thermique du combustible est représentée par un mécanisme réactionnel à deux étapes : une équation pour la gazéification et une autre pour

l'oxydation du résidu charbonneux. Ces modèles utilisent également une réaction supplémentaire pour décrire la dessiccation du combustible. Nous n'en tenons toutefois pas compte dans ce travail. La réaction de gazéification est généralement définie par [9] :



Pour cette réaction, le taux de réaction du végétal est représenté par une loi d'Arrhenius :

$$\dot{\omega}_{pyr} = \rho_{b,dry} A_{pyr} \exp\left(-\frac{E_{pyr}}{RT}\right) \quad (1.29)$$

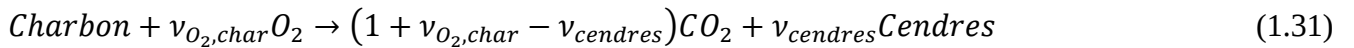
Où $\rho_{b,dry}$ correspond à la masse volumique apparente de végétal sec et $\dot{\omega}_{pyr}$ la vitesse de gazéification. Les paramètres cinétiques de cette étude sont recensés dans le Tableau 1-7.

Certains modèles de pyrolyse tiennent compte de la température et n'ont pas la même expression au-delà d'un certain seuil. C'est le cas du modèle de Houssami et coll. [41] où au-delà de 527°C le terme source de masse de gazéification s'exprime en fonction de la densité de flux incident et de l'énergie nécessaire à la gazéification. Son expression est la suivante :

$$\dot{\omega}_{pyr} = \begin{cases} \rho_{b,dry} A_{pyr} \exp\left(-\frac{E_{pyr}}{RT}\right) & T_s \leq 527^\circ\text{C} \\ \frac{\dot{q}_e''}{\Delta h_{pyr}} & T_s > 527^\circ\text{C} \end{cases} \quad (1.30)$$

Où $\dot{q}_e''$ est la densité de flux de chaleur incident, Δh_{pyr} la chaleur latente de gazéification. Cette approche a été reprise par d'autres auteurs dans la littérature [8,146]. Houssami et coll. [41] justifient cette approche par le fait qu'à cette échelle d'étude, la cinétique n'est pas le seul phénomène impliqué dans la gazéification comme en thermogravimétrie. Elle dépend aussi des propriétés géométriques du combustible comme son épaisseur ce qui implique de ne pas utiliser seulement une loi d'Arrhenius du premier ordre pour représenter la vitesse de réaction de gazéification.

A l'échelle matériau, la réaction d'oxydation du résidu charbonneux est principalement définie en une étape. Elle fait intervenir la consommation d'oxygène et une production de dioxyde de carbone et de cendres de la manière suivante [9,109,147] :



La production de cendres n'est pas toujours présente et l'équation est alors simplifiée de la manière suivante [7] :



Le taux de réaction du résidu charbonneux est défini également par une loi d'Arrhenius :

$$\dot{\omega}_{char} = \frac{A_{char}}{\nu_{O_2,char}} \rho_g Y_{O_2} \sigma_e \beta_e \exp\left(-\frac{E_{char}}{RT}\right) (1 + \beta_{char} \sqrt{Re_e}) \quad (1.33)$$

Avec $\nu_{O_2,char}$ une constante fixée à 1,65 par Kashiwagi et Nambu [148], ρ_g la masse volumique de gaz, σ_e le rapport surface-volume du résidu charbonneux, β_e la compacité du résidu charbonneux, β_{char} une

constante fixée à 0,2 par Porterie et coll. [149]. Le facteur $(1 + \beta_{char}\sqrt{Re_e})$ a été introduit à cette échelle pour prendre en compte les effets de la ventilation sur l'oxydation du charbon.

Le nombre de Reynolds Re_e est défini en terme de rayon d'une particule cylindrique tel que :

$$Re_e = \frac{2\rho|u|r_k}{\mu} \quad (1.34)$$

Où ρ est la masse volumique de l'air, $|u|$ la norme de la vitesse de l'air et μ la viscosité dynamique.

Le coefficient r_k est défini par :

$$r_k = \frac{2}{\sigma_k} \quad (1.35)$$

Où σ_k est le rapport surface-volume d'une particule. Les paramètres cinétiques A_{char} et E_{char} ont été déterminés par Grishin [150,151] pour des combustibles typiques de la végétation d'une forêt. Cette représentation du terme source de masse des charbons a été utilisée à de nombreuses reprises dans la littérature [7,8,146,152].

A cette échelle, il existe également des réactions d'oxydation du résidu charbonneux en deux étapes. Benkoussas et coll. [153] utilisent deux étapes pour modéliser l'oxydation du résidu charbonneux dans le but de proposer un modèle simple de dégradation de particules thermiquement épaisses prenant en compte les principales réactions chimiques ayant lieu lors de la dégradation thermique de particules de végétation de feux de forêt. Ces étapes considèrent tout d'abord une première oxydation des atomes de carbone en CO et une deuxième oxydation où CO réagit avec l'oxygène pour former du CO₂. Cette étude fait intervenir une formulation mathématique pour exprimer le taux de consommation global du résidu charbonneux qui ne suit pas une loi d'Arrhenius mais un modèle de diffusion. Son expression est définie dans l'équation suivante [154] :

$$\dot{\omega}_{char} = -\frac{3}{2}\left(\frac{D_0}{2R}\right)\rho_0\left(\frac{T}{T_0}\right)^{0,75}\left(\frac{1}{\gamma_s}\right)\ln(1 - \gamma_s Y_{O_2}) \quad (1.36)$$

Où D_0 représente la diffusivité de l'oxygène, ρ_0 la masse volumique de l'air, $\gamma_s = -0,3$ pour une cinétique à deux étapes pour l'oxydation du résidu charbonneux, T_0 une température de référence égale à 273 K et R le rayon de la particule. Si l'on considère que la particule est traversée par un flux d'air de vitesse u , le taux de formation du résidu charbonneux est alors modifié de la façon suivante :

$$\dot{\omega}_{char}^u = \dot{\omega}^{u=0} \left(1 + 0,272 Sc^{\frac{1}{3}} Re_p^{\frac{1}{2}}\right) \quad (1.37)$$

Où Sc et Re_p sont respectivement les nombres de Schmidt et Reynolds. $\dot{\omega}^{u=0}$ représente le taux de consommation du résidu charbonneux pour une vitesse de l'air nulle.

Le Tableau 1-7 présente les paramètres cinétiques de la gazéification et de l'oxydation du résidu charbonneux utilisés dans les modèles détaillés d'incendie de forêt. Ces paramètres sont très proches lorsque différents combustibles sont mis en jeu. On peut notamment noter que pour deux études différentes sur des aiguilles de Pin [7,9], les paramètres cinétiques (énergie d'activation et facteur pré-exponentiel) sont identiques avec des valeurs respectivement égales à 60,28 et 74,83 kJ/mol pour la gazéification et

l'oxydation du résidu charbonneux. Le facteur pré-exponentiel de la gazéification est également similaire avec une valeur de $3,64.10^4 \text{ s}^{-1}$. Une différence subsiste en ce qui concerne l'oxydation du résidu charbonneux puisque dans l'étude menée par Perez-Ramirez et coll. [9], le facteur pré-exponentiel a fait l'objet d'une détermination directe. En comparant les paramètres cinétiques utilisés pour l'étude sur le Ciste de Montpellier [109] et ceux pris pour les aiguilles de Pin, on remarque que l'énergie d'activation de la réaction de gazéification du Ciste est supérieure à celle des aiguilles de Pin avec une valeur de 61,43 kJ/mol tandis que celle de la réaction d'oxydation du résidu charbonneux est inférieure à celle déterminée pour les aiguilles de Pin avec une valeur de 68,10 kJ/mol.

Tableau 1-7 : Principaux résultats sur la dégradation thermique du bois et des végétaux dans les modèles détaillés d'incendie.

Réf.	Bois/Végétal	Epaisseur (mm)	Conductivité thermique (W/m.K)	Masse volumique (kg/m ³)	Energie d'activation (kJ/mol)	Facteur pré-exponentiel
[9]	Aiguilles de Pin	0,6	-	-	$E_{\text{pyr}} = 60,28$ $E_{\text{char}} = 74,83$	$A_{\text{pyr}} = 36300 \text{ s}^{-1}$ $A_{\text{char}} = 215 \text{ m/s}$
[153]	Pin Douglas	20	$\lambda_{\text{char}} = 0,10$	$\rho_{\text{bois}} = 710,0$ $\rho_{\text{char}} = 180,0$	$E_{\text{pyr}} = 60,27$	$A_{\text{pyr}} = 3,64.10^4 \text{ s}^{-1}$
[7]	Aiguilles de Pin	0,6	-	-	$E_{\text{pyr}} = 60,28$ $E_{\text{char}} = 74,83$	$A_{\text{pyr}} = 3,64.10^3 \text{ s}^{-1}$ $A_{\text{char}} = 4,30.10^{-4} \text{ ms}^{-1}$
[109]	Ciste de Montpellier	0,6-6	-	-	$E_{\text{pyr}} = 61,43$ $E_{\text{char}} = 68,10$	$A_{\text{pyr}} = 39929 \text{ K}^{0,5} \text{ s}^{-1}$ $A_{\text{char}} = 193,5 \text{ K}^{0,5} \text{ s}^{-1}$

Chapitre 2. Matériels et méthodes

Ce chapitre comprend quatre parties. Tout d'abord, les différents échantillons de bois utilisés à l'échelle matière et l'échelle matériau sont présentés (forme, caractéristiques physico-chimiques...). La deuxième partie a pour objectif de décrire les protocoles expérimentaux mis en place à l'échelle matière et à l'échelle matériau. Dans la troisième partie, nous présenterons l'étude menée sur les flux critiques d'inflammations, afin de caractériser le comportement thermiquement fin ou thermiquement épais de nos matériaux. Enfin, dans la dernière partie, nous décrirons les équations qui régissent le code de calcul Generalized Pyrolysis for Combustible Solids (GPYRO).

1. Présentation des matériaux utilisés

Notre étude s'est focalisée sur deux essences de bois : le chêne blanc (*Quercus alba*) (Figure 2.1) et l'eucalyptus globuleux (*Eucalyptus globulus*) (Figure 2.2). Pour le chêne blanc, trois épaisseurs de plaques ont été étudiées : 0,61 mm ($\pm 0,05$ mm), 1,51 mm ($\pm 0,03$ mm) et 20,87 mm ($\pm 0,13$ mm). Pour l'eucalyptus globuleux, une seule épaisseur a été considérée, à savoir 0,63 mm ($\pm 0,05$ mm).



Figure 2.1 : Photographie des différentes plaques de bois utilisées pour les expériences a) Chêne blanc de 20,87 mm d'épaisseur, b) Chêne blanc de 1,51 mm d'épaisseur, c) Chêne blanc de 0,61 mm d'épaisseur.



Figure 2.2 : Photographie de la plaque d'Eucalyptus globuleux de 0,63 mm d'épaisseur.

1.1. Analyse chimique des plaques de bois

Les analyses chimiques des deux bois ont été réalisées sur les plaques les plus fines (0,61 mm pour le chêne et 0,63 mm pour l'eucalyptus). Le Tableau 2-1 présente les résultats de l'analyse élémentaire (menée par l'entreprise SOCOR¹ selon la norme EN ISO 16948), en pourcentage massique sur matière sèche. Les écarts-types calculés à partir de deux répétitions sont donnés entre parenthèses. Le Tableau 2-1 présente également la teneur en cendres obtenue par calcination à 550°C et 815°C selon la norme ISO 1171. Ces résultats démontrent que la composition élémentaire des bois de chêne et d'eucalyptus sont très proches. Le carbone est l'élément prépondérant dans la composition élémentaire des deux bois avec des teneurs de 50,5 % pour le chêne et 51,1 % pour l'eucalyptus. L'oxygène est le deuxième composé le plus abondant avec des teneurs proches de 43,0 % pour les deux bois. L'hydrogène et l'azote sont présents en quantité beaucoup plus faibles. Ces résultats sont en accord avec ceux de la littérature avec des teneurs en carbone autour de 50 % et des teneurs en oxygène variant entre 43 et 48 % [155]. En ce qui concerne les quantités de cendres, elles sont de l'ordre de 0,2 % de la masse initiale sèche du chêne et inférieure à 0,1 % de la masse initiale sèche de l'eucalyptus. Ces résultats sont légèrement inférieurs à ceux de Pettersen [156] pour le chêne avec une teneur de 0,4 % de cendres et sont en accord avec les travaux de Pinto et coll. pour l'eucalyptus [157].

Tableau 2-1 : Analyse élémentaire des plaques de bois et teneur en cendres

Espèces	C (%)	H (%)	O (%)	N (%)	Cendres à 550 °C (%)	Cendres à 815 °C (%)
Chêne	50,5 (± 1,0)	5,71 (± 2,0)	43,1 (± 2,0)	<0,1 (± 15,0)	0,59 (± 10,0)	0,2 (± 10,0)
Eucalyptus	51,1 (± 1,0)	5,70 (± 2,0)	43,0 (± 1,0)	<0,1 (± 15,0)	<0,1 (± 15,0)	<0,1 (± 15,0)

Une analyse chimique permettant la détermination des proportions en hémicellulose, cellulose, lignine et en composés extractibles, a été réalisée pour les deux essences de bois par le laboratoire FCBA². Le Tableau 2-2 présente les résultats pour chaque essence avec, entre parenthèses, les écarts-types calculés à partir de deux répétitions. Afin de comparer ces résultats à ceux trouvés dans la littérature, nous avons également ajouté les valeurs obtenues par Silva et coll. [32] pour l'eucalyptus et par Pettersen [156] pour le chêne. Les analyses de nos bois montrent que la proportion d'hémicellulose du chêne est 1,45 fois plus élevée que celle de l'eucalyptus. Inversement, les proportions de cellulose et de lignine de l'eucalyptus sont 1,24 et 1,31 fois plus élevées que celles du chêne. Les composés extractibles sont présents en plus grande quantité dans le chêne que dans l'eucalyptus. Les résultats obtenus sont proches des résultats de Silva et coll. [32] pour l'eucalyptus même si dans l'étude de Silva et coll., il s'agit d'une autre espèce d'eucalyptus à savoir *Eucalyptus grandis*. Pour le chêne, les résultats obtenus pour l'hémicellulose et la lignine sont supérieurs à ceux de Pettersen [156] tandis que les valeurs de la cellulose et des extractibles sont inférieurs.

¹ SOCOR, Rue Barack Obama – ZAC du Luc – 59187 DECHY – Tél : 0327943370 – contact@socor.fr

² FCBA, 10 rue Galilée, 77420 Champs-sur-Marne – Tél : 01 72 84 97 84

Tableau 2-2 : Analyse chimique des plaques de bois

	Hémicellulose (%)	Cellulose (%)	Lignine (%)	Extractibles (%)	Réf.
Chêne	28,22 (± 0,86)	33,38 (± 0,03)	26,60 (± 0,10)	9,96 (± 0,10)	Cette étude
Eucalyptus	19,47 (± 0,42)	41,44 (± 0,06)	34,95 (± 0,15)	4,14 (± 0,01)	Cette étude
Chêne	20,00 (-)	47,00 (-)	20,00 (-)	13,00 (-)	[156]
Eucalyptus	15,65 (± 0,45)	48,73 (± 2,50)	33,90 (± 0,23)	7,97 (± 0,21)	[32]

1.2. Masse volumique

La masse volumique des plaques fines de chêne et d'eucalyptus a été déterminée par une mesure de la masse de chacune de ces plaques ainsi que de leur volume. La masse a été déterminée grâce à une balance METTLER TOLEDO d'une précision de 0,01 g et le volume a été mesuré à l'aide d'un pied à coulisse. La masse volumique a ensuite été déterminée comme suit :

$$\rho = \frac{m}{V_{\text{apparent}}} \quad (2.1)$$

Où m représente la masse de la plaque et V_{apparent} le volume de la plaque calculé de la manière suivante :

$$V_{\text{apparent}} = L \times l \times e \quad (2.2)$$

Où L représente la longueur de la plaque, l sa largeur et e son épaisseur. Pour chaque type de plaque, cinq mesures de la masse, de la largeur, de la longueur et de l'épaisseur ont été réalisées. Les résultats sont présentés dans le Tableau 2-3.

Tableau 2-3 : Mesure du volume et de la masse des plaques fines de chêne et d'eucalyptus.

	Longueur (mm)	Largeur (mm)	Epaisseur (mm)	Masse (g)	Volume (mm ³)
Chêne	100 (± 0,50)	94 (± 0,50)	0,61 (± 0,05)	3,20 (± 0,20)	5922 (± 476)
Eucalyptus	100 (± 0,50)	98 (± 0,50)	0,63 (± 0,05)	3,90 (± 0,40)	5978 (± 552)

Les masses volumiques ont été déterminées sur les plaques de chêne et d'eucalyptus les plus fines. Nous obtenons une valeur de $540 \pm 84 \text{ kg/m}^3$ pour le chêne et de $652 \pm 119 \text{ kg/m}^3$ pour l'eucalyptus. La masse volumique de l'eucalyptus est donc supérieure à celle du chêne. Ces résultats sont inférieurs aux données recensées dans la littérature pour le chêne qui donne des valeurs comprises entre 600 et 670 kg/m^3 [40,46,47]. En revanche pour l'eucalyptus, les valeurs obtenues sont supérieures à celles rencontrées dans la littérature qui varient entre 460 et 570 kg/m^3 [44].

1.3. Capacité calorifique

Les capacités calorifiques massiques des plaques de chêne et d'eucalyptus ont été mesurées par le laboratoire des Multimatériaux et interfaces³ à partir des plaques les plus fines. Les mesures ont été

³ Laboratoire des Multimatériaux et Interface, 6 Rue Victor Grignard, 69622 Villeurbanne Cedex – Tel : 04-72-43-15-70 – rodica.chiriac@univ-lyon1.fr.

réalisées avec un analyseur enthalpique différentiel (DSC) de marque METTLER TOLEDO en utilisant la méthode par comparaison avec un étalon saphir [158]. En utilisant cette méthode, les mesures ont été effectuées selon le protocole suivant :

- Les plaques les plus fines ont été découpées en échantillons de 4 mm de diamètre puis séchés dans une étuve à 105°C pendant 24 h.
- Un premier essai a été effectué avec deux creusets vides sans bois (appelé essai à blanc).
- Un deuxième essai a été réalisé avec une masse de bois m_{bois} dans le creuset en aluminium de 40 μ l, fermé avec couvercle percé. La masse de bois placée dans les creusets était d'environ 10 mg pour le chêne et 15 mg pour l'eucalyptus.
- Un troisième essai a été réalisé en mettant dans le creuset une masse de saphir m_{saphir} de 22,46 mg de capacité calorifique donnée par [159] : $C_{p_{saphir}} = 1,127 + 0,234 T - 0,217 T^2$. Le saphir a été choisi afin que le produit $m_{saphir} C_{p_{saphir}}$ soit le plus proche possible de celui du chêne et de l'eucalyptus.

La température de la DSC a été stabilisée à 20°C pendant 10 minutes puis une montée en température jusqu'à 40°C a été réalisée afin d'obtenir la capacité calorifique entre 20 et 40°C. Pendant l'ensemble de l'expérience, un balayage continu d'azote a été effectué à 100 ml/min. En notant HF_{blanc} , HF_{bois} et HF_{saphir} les flux thermiques mesurés pour l'essai à blanc, l'essai avec le bois et l'essai avec le saphir, la valeur moyenne de la capacité calorifique massique s'écrit [58] :

$$C_p = C_{p_{saphir}} \frac{m_{saphir}}{m_{bois}} \cdot \frac{\int_{293}^{313} HF_{bois} dT - \int_{293}^{313} HF_{blanc} dT}{\int_{293}^{313} HF_{saphir} dT - \int_{293}^{313} HF_{blanc} dT} \quad (2.3)$$

Entre 20 et 40°C, les capacités calorifiques du chêne et de l'eucalyptus sont très proches. Celle du chêne est toutefois légèrement inférieure à celle de l'eucalyptus avec une valeur de 1310°C contre une valeur de 1320°C. Ces valeurs sont cohérentes avec les données de la littérature pour le chêne, avec des capacités calorifiques comprises entre 1200 et 1400 J/kg.K [40]. Pour l'eucalyptus, la capacité calorifique obtenue est légèrement supérieure à celle déterminée par Moura Pinto avec une valeur de 1260 J/kg.K [45].

1.4. Conductivité thermique

La mesure de conductivité thermique a été réalisée par la société NEOTIM⁴ à l'aide d'un conductivimètre (modèle FP2C) reposant sur la méthode du fil chaud (Figure 2.3) [160,161]. Cette méthode consiste à placer une sonde constituée d'un thermocouple et d'un fil résistif entre deux éprouvettes de bois à caractériser. Une puissance de 0,18 W est imposée à la sonde pendant 40 s et l'évolution de la température est mesurée afin d'obtenir la conductivité thermique apparente. Compte tenu du dispositif expérimental, la conductivité thermique a été déterminée pour les plaques de chêne ayant une épaisseur de 20,87 mm. Les autres plaques avaient en effet une épaisseur trop faible pour pouvoir obtenir des mesures fiables.

⁴ NEOTIM, MDI – ZA Albitech, 54 rue Gustave Eiffel 81000 Albi – Tél : 05 63 48 14 38 – contact@neotim.fr



Figure 2.3 : Mesure de la conductivité des plaques de bois

La conductivité thermique des plaques de chêne a été mesurée perpendiculairement à la fibre du bois pour trois températures : 20, 120 et 180°C. Pour 120°C et 180°C, les plaques ont été placées dans une étuve chauffée à la température souhaitée. La mesure de conductivité thermique a ensuite été réalisée une fois que l'équilibre thermique entre l'étuve et les plaques de bois a été atteint. Pour compléter ces mesures, la conductivité thermique à température ambiante a également été mesurée pour une plaque de chêne de 20,87 mm ayant subi une dégradation thermique afin d'obtenir cette valeur pour le résidu charbonneux. Les résultats sont fournis dans le Tableau 2-4. Les écarts-types calculés à partir de cinq répétitions sont donnés entre parenthèses. La conductivité thermique du chêne à température ambiante, déterminée perpendiculairement à la fibre du bois, est de 0,134 W/m.K ce qui est en accord avec les données de la littérature pour des bois durs (entre 0,092 et 0,16 W/m.K [40]). La conductivité thermique a tendance à diminuer lorsque la température augmente. Cette tendance est contraire à celle rencontrée dans la littérature, où la conductivité thermique augmente avec la température [39,58,162]. Cependant, Suleiman et coll. [39], bien qu'ils obtiennent une augmentation de la conductivité thermique avec la température entre 20°C et 100°C, soulignent que cette évolution n'est pas naturelle puisque la masse volumique de l'air diminue lorsque la température augmente ce qui entraîne une plus faible conduction à l'intérieur des pores du bois. Concernant le résidu charbonneux, on observe une conductivité thermique très différente du bois vierge avec une valeur de 0,056 W/m.K. Cette différence provient d'une modification notable de la structure du bois transformé en résidu charbonneux. Cette valeur est proche de celles rencontrées dans la littérature [19,54,56] où les valeurs varient entre 0,05 et 0,10 W/m.K.

Tableau 2-4 : Conductivité thermique pour les plaques de chêne de 20,87 mm d'épaisseur.

Matériau	Conductivité thermique (W/m.K)		
	20°C	120°C	180°C
Plaque vierge	0,134 ($\pm$ 0,007)	0,129 ($\pm$ 0,006)	0,127 ($\pm$ 0,006)
Plaque dégradée	0,056 ($\pm$ 0,003)	-	-

1.5. Les propriétés radiatives

L'absorptivité et l'émissivité hémisphérique spectrale ont été déterminées à partir des mesures de la réflectivité directionnelle hémisphérique spectrale R_λ , et de la transmittivité directionnelle hémisphérique spectrale T_λ . Les mesures de R_λ et T_λ ont été réalisées par l'entreprise INFLUTHERM⁵ (pour une bande spectrale de 0,2-20 μm à température ambiante). Pour couvrir cette bande spectrale, deux appareils ont été employés : un spectromètre CARY 5000 (Agilent Technologies) pour la plage 0,2 à 2,5 μm et un CARY 670 FTIR (Agilent Technologies) pour la plage 2,5 à 20 μm . Les mesures ont été réalisées pour les plaques les plus fines (avec une épaisseur de 0,61 mm pour le chêne et de 0,63 mm pour l'eucalyptus). Pour chaque plaque, une première série de mesures a été effectuée puis les plaques ont été tournées à 90° afin de faire une deuxième série de mesures. Les résultats obtenus correspondent aux moyennes des valeurs obtenues. La Figure 2.4 présente les valeurs moyennes de l'absorptivité hémisphérique spectrale α_λ pour les plaques de chêne et d'eucalyptus obtenues à partir de la relation :

$$\alpha_\lambda = 1 - R_\lambda - T_\lambda \quad (2.4)$$

Les valeurs moyennes de la réflectivité et de la transmittivité sont fournies dans l'annexe A. Les absorptivités spectrales des deux plaques varient de manière significative avec la longueur d'onde. Ces plaques ne peuvent donc pas être considérées comme grises. Les deux essences étant constituées des mêmes composés (lignine, cellulose et hémicellulose), les courbes suivent globalement le même comportement. Les différents niveaux observés sont vraisemblablement dus aux variations de structure des deux essences. D'un point de vue quantitatif, pour des longueurs d'onde supérieures à 6 μm , l'absorptivité des deux plaques est très élevée (entre 0,91 et 0,98). Entre 3 et 6 μm , elle diminue avec une valeur minimale de 0,81 pour le chêne et de 0,79 pour l'eucalyptus. Toutefois, la plus grande variation d'absorptivité a lieu pour des longueurs d'onde comprises entre 0,2 et 2 μm . Sur ces plages, les valeurs diminuent très fortement jusqu'à atteindre des absorptivités égales à 0,03. Ce comportement général est en accord avec les résultats précédents obtenus pour des feuilles de végétaux [163], du bois [55] et du contre-plaqué [164]. Il faut toutefois noter que les valeurs minimales obtenues dans ces études étaient comprises entre 0,1 et 0,3. Les valeurs de notre étude sont donc très inférieures sur cet intervalle.

⁵ INFLUTHERM Parc Lyon Sud, 61 rue Mathieu Dussurgey, 69190 Saint-Fons – Tél : 0437478940 – info@influtherm.com

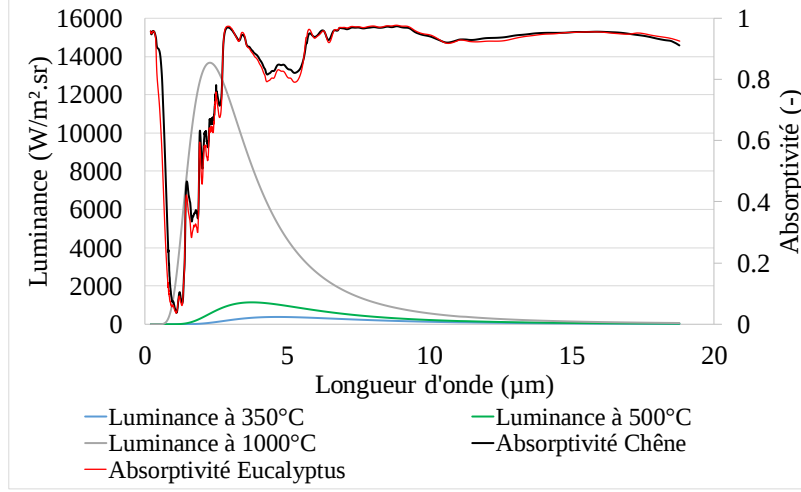


Figure 2.4 : Superposition de l'absorptivité spectrale du chêne et de l'eucalyptus entre 0 et 20 μm et de la luminance du corps noir à 350°C, 500°C et 1000°C calculée avec l'équation 2.7.

A partir des valeurs spectrales présentées ci-dessus, nous avons déterminé l'absorptivité (α_{eff}) et l'émissivité (ϵ_{eff}) effectives des deux plaques. Ces deux grandeurs ont été calculées à l'aide des relations suivantes [52,55] :

$$\alpha_{eff}(T_{c\hat{o}ne}) = \frac{\int_0^{20} \alpha(\lambda_l) L(\lambda_l, T_{c\hat{o}ne}) d\lambda_l}{\int_0^{20} L(\lambda_l, T_{c\hat{o}ne}) d\lambda_l} \quad (2.5)$$

$$\epsilon_{eff}(T_{plaque}) = \frac{\int_0^{20} \epsilon(\lambda) L(\lambda_l, T_{plaque}) d\lambda_l}{\int_0^{20} L(\lambda_l, T_{plaque}) d\lambda_l} \quad (2.6)$$

où λ est la longueur d'onde en μm et $L(\lambda_l, T)$ représente la luminance du corps noir en $\text{W/m}^3.\text{Sr}$ dont l'expression est donnée par :

$$L(\lambda, T) = \frac{C_1 \lambda_l^{-5}}{\exp\left(\frac{C_2}{\lambda_l T}\right) - 1} \quad (2.7)$$

$$\text{Avec } C_1 = 2h_p c^2 \text{ et } C_2 = \frac{h_p c}{k_B}$$

avec h_p la constante de Planck ($h_p = 6,6255.10^{-34} \text{J.s}$), c la vitesse de la lumière dans le vide ($c = 2,998.10^8 \text{m.s}^{-1}$), k_B la constante de Boltzmann ($k_B = 1,3805.10^{-23} \text{J.K}^{-1}$) et T (K) la température du corps noir prise à la valeur de la température du cône ($T_{c\hat{o}ne}$) ou de la plaque (T_{plaque}) suivant le cas. Le Tableau 2-5 présente les valeurs de l'absorptivité et de l'émissivité effectives pour les deux essences de bois en fonction de la température. La gamme de température utilisée pour le calcul de l'émissivité correspond à des températures atteintes par les plaques de bois lorsqu'elles sont soumises à une densité de flux radiatif inférieure à 28,5 kW/m^2 . L'émissivité diminue légèrement lorsque la température de la plaque de bois augmente avec des valeurs proches pour les deux essences. Nous observons un comportement en deux phases pour l'absorptivité : elle diminue jusqu'à ce que la température du cône calorimètre atteigne 500°C puis elle augmente au-delà de cette valeur. Les valeurs des deux essences sont

également très similaires. Les variations de l'absorptivité et de l'émissivité effectives avec la température sont faibles : elles ne varient que de 2 % sur la gamme de températures étudiée.

Tableau 2-5 : Absorptivité et émissivité effectives des plaques de bois.

Absorptivité α_{eff}			Emissivité ϵ_{eff}		
Température du cône (°C)	Chêne	Eucalyptus	Température de la plaque (°C)	Chêne	Eucalyptus
180	0,929	0,931	30	0,943	0,943
250	0,922	0,925	120	0,936	0,937
350	0,914	0,918	150	0,932	0,934
500	0,908	0,912	200	0,927	0,929
750	0,911	0,913	250	0,922	0,925
1000	0,922	0,921	400	0,911	0,915

2. Expériences réalisées à l'échelle matière

2.1. L'analyseur thermogravimétrique

L'étude de la dégradation thermique des deux essences de bois à l'échelle matière a été menée à l'aide d'un analyseur thermogravimétrique (ATG) Perkin Elmer *Pyris 1* (Figure 2.5). Un analyseur thermogravimétrique permet d'enregistrer l'évolution de la masse d'un échantillon soumis à une sollicitation thermique définie (isotherme ou rampe de température) [27]. La balance d'une ATG est constituée à une extrémité d'une tige en quartz soutenant une nacelle sur laquelle va reposer un creuset dans lequel est disposé l'échantillon à analyser. Le creuset mesure 5 mm de diamètre et est en platine pour éviter toutes réactions d'oxydo-réduction avec l'échantillon à analyser ainsi que pour résister aux températures élevées. Son faible diamètre permet d'éviter la présence de gradients thermiques au sein de l'échantillon, ce qui permet une répartition homogène de la température à l'intérieur de celui-ci lors du chauffage.



Figure 2.5 : Analyseur thermogravimétrique

L'ATG permet d'analyser des échantillons solides ou liquides dont les masses peuvent varier de 2 à 50 mg en moyenne. La balance de pesée est située dans une cloche qui est balayée par un gaz inerte (azote) avec un débit de 30 ml/min (Figure 2.6). L'ATG Pyris 1 dispose d'un four qui peut effectuer des rampes de température variant entre 0,1 et 60°C/min pour des températures allant de la température ambiante à 1000°C en fonction du type de nacelle et de tige. La température de la nacelle est mesurée par un thermocouple avec une précision de $\pm 2^{\circ}\text{C}$. Deux atmosphères ont été utilisées pour réaliser les expériences de thermogravimétrie : une atmosphère inerte obtenue avec de l'azote et une atmosphère oxydante constituée d'air synthétique 0 (79 % d'azote et 21 % d'oxygène). Le débit du gaz constituant l'atmosphère est régulé par un Thermal Analysis Gas Station (TAGS) de Perkin Elmer et a été fixé à 30 ml/min pour l'ensemble des essais effectués.

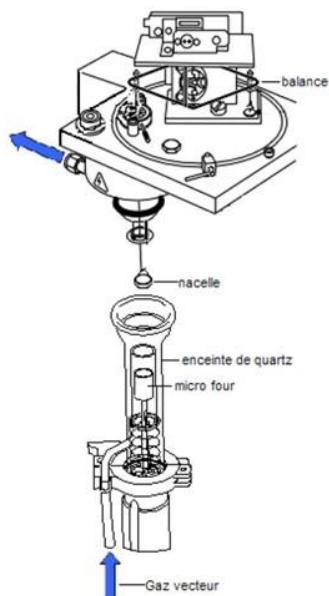


Figure 2.6 : Schéma de principe de l'ATG *Pyris 1* [27]

2.2. Protocole expérimental

Dans notre étude, les échantillons de chêne et d'eucalyptus ont été préparés à partir des plaques de bois les plus fines (avec une épaisseur de 0,61 mm pour le chêne et de 0,63 mm pour l'eucalyptus). Les plaques ont été placées pendant 24 h dans une étuve chauffée à 60°C puis ont été découpées en forme de disques de 4 mm de diamètre (Figure 2.7) ce qui a permis d'obtenir des échantillons avec une masse initiale m_0 de 4,6 mg ($\pm 0,6$ mg) pour le chêne et de 6,2 mg ($\pm 0,5$ mg) pour l'eucalyptus. Les disques ont été disposés dans le creuset en platine et cinq vitesses de chauffe différentes ont été appliquées : 2°C/min, 5°C/min, 10°C/min, 20°C/min et 30°C/min sous atmosphère inerte ou oxydante. Afin de se focaliser uniquement sur la dégradation thermique du bois sec, nous avons considéré la perte de masse enregistrée entre 150°C et 650°C pour le chêne et entre 150°C et 750°C pour l'eucalyptus. Pour chaque vitesse de chauffe, trois répétitions ont été réalisées.

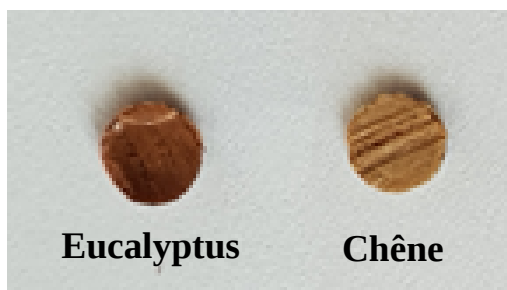


Figure 2.7 : Présentation de la forme des deux essences de bois à l'échelle matière.

Afin d'étudier plus en détail l'oxydation du résidu charbonneux, des expériences permettant de séparer la pyrolyse du bois de l'oxydation du résidu charbonneux ont été réalisées. Pour cela, les disques de bois ont

été placés dans l'ATG. Une vitesse de chauffe de 20°C/min a été appliquée sur les échantillons sous atmosphère inerte. A l'issue des expériences, le résidu charbonneux formé a été recueilli. Cette première étape a été répétée au moins trois fois afin de collecter une masse de résidu charbonneux de 2,5 mg ($\pm 0,1$ mg). Ensuite, cette masse de résidu charbonneux a été placée dans l'ATG sous atmosphère oxydante et chauffée à 20°C/min jusqu'à 650°C. Trois répétitions de cette étape ont été réalisées pour chaque type de bois afin de s'assurer de la répétabilité des résultats obtenus.

3. Expériences réalisées à l'échelle matériau

3.1. Présentation générale

Les expériences à l'échelle matériau ont été réalisées en utilisant un cône calorimètre (Figure 2.8 et Figure 2.9) constitué des éléments suivants :

- Un cône chauffant permettant de chauffer un échantillon avec une densité de flux constante pouvant aller jusqu'à 100 kW/m².
- Une cellule de pesée d'une précision de 0,1 g.
- Un allumeur piézo-électrique permettant de créer une étincelle et de piloter l'inflammation des échantillons.
- Une hotte de 41 × 41 × 15 cm³.
- Un conduit d'extraction des gaz émis lors de la combustion avec un débit volumique d'extraction fixé à 24 l/s.
- Un laser He-Ne (0,5 mW) émettant dans l'infrarouge à une longueur d'onde de 633 nm (non-utilisé dans cette étude).
- Un analyseur de gaz infrarouge non dispersif (IRND) permettant d'analyser le CO et le CO₂ (non-utilisé dans cette étude).
- Un analyseur paramagnétique pour analyser l'O₂ (non-utilisé dans cette étude).



Figure 2.8 : Cône calorimètre : a) photographie générale b) gros plan sur la partie se situant sous le cône chauffant.

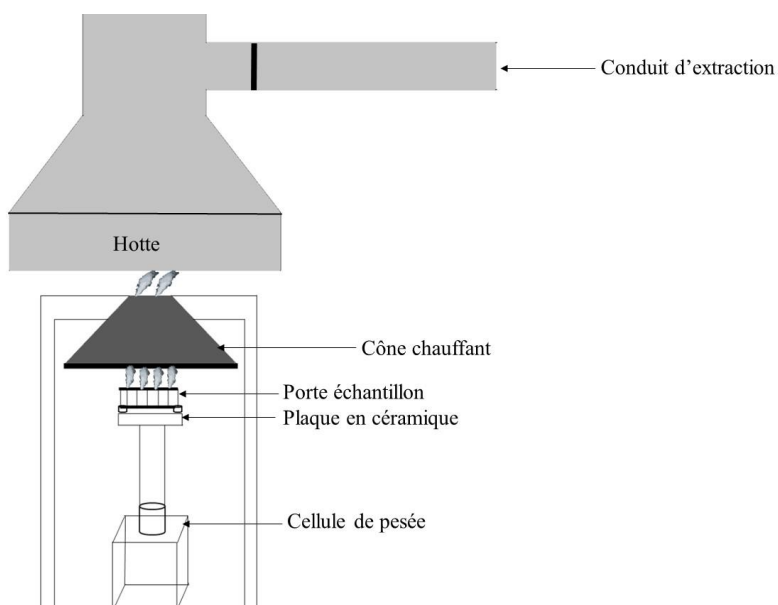


Figure 2.9 : Schéma de principe du Cône calorimètre

Les différentes plaques de bois ont été découpées afin d'obtenir des échantillons de $10 \times 10 \text{ cm}^2$. Avant chaque expérience, les échantillons ont été placés dans une étuve à 60°C pendant 24 heures pour les déshumidifier. Les plaques ont ensuite été pesées. Nous avons obtenu des masses initiales de $3,20 \text{ g} (\pm 0,40 \text{ g})$ pour les plaques de chêne de $0,61 \text{ mm}$ d'épaisseur, de $3,90 \text{ g} (\pm 0,40 \text{ g})$ pour les plaques d'eucalyptus de $0,63 \text{ mm}$ d'épaisseur, de $9,22 \text{ g} (\pm 0,45 \text{ g})$ pour les plaques de chêne de $1,51 \text{ mm}$ d'épaisseur et de $140,15 \text{ g} (\pm 1,89 \text{ g})$ pour les plaques de chêne de $20,87 \text{ mm}$ d'épaisseur. Les plaques ont ensuite été disposées sur un porte-échantillon de $10 \times 10 \text{ cm}^2$ fait en acier inoxydable grillagé. Pour les

plaques fines, un grillage supplémentaire avec une surface d'échange de 10 cm² a été placé au-dessus des plaques afin d'éviter leur déformation au cours des expériences. Deux conditions aux limites ont été étudiées sous la face inférieure des plaques de bois les plus fines c'est-à-dire sur la partie non-exposée au cône chauffant (Figure 2.10). Pour la première, une laine en céramique a été disposée sous les plaques afin d'obtenir une condition limite adiabatique. Dans le second cas, la face inférieure des plaques de bois a été laissée en contact avec l'air libre, créant ainsi des pertes thermiques par convection. Le porte-échantillon a ensuite été disposé sur la cellule de pesée protégée par une plaque céramique isolante.



Figure 2.10 : Photographie des dispositifs expérimentaux permettant d'obtenir en face arrière : a) une condition adiabatique, b) une condition avec pertes thermiques par convection.

3.2. Dispositifs de mesure de la température des échantillons

Pour mesurer la température des plaques à l'échelle matériau, deux méthodes ont été mises en œuvre : une méthode intrusive avec des thermocouples et une méthode non intrusive avec une caméra infrarouge.

3.2.1. Les thermocouples

3.2.1.1. Plaques fines

La température des plaques les plus fines (0,61 mm pour le chêne et 0,63 mm pour l'eucalyptus) a été mesurée à l'aide de thermocouples de type K à jonction gainée de marque OMEGA KMTSS-IM025G-300. Ils possèdent une gaine ayant un diamètre de 250 µm. Ces thermocouples ont été positionnés sous la face inférieure des plaques de bois, qui n'est pas soumise au rayonnement du cône chauffant, afin d'éviter de les exposer au flux radiatif. Nous avons fait l'hypothèse que les plaques sont suffisamment fines pour que les températures des faces avant et arrière soient très proches (la justification de cette hypothèse est fournie dans le paragraphe 4 de ce chapitre). Dans un premier temps, deux thermocouples ont été utilisés. Le premier a été disposé au centre de la plaque et le deuxième à 1 cm du bord de la plaque. Cette configuration est indiquée par des croix sur la Figure 2.11. Dans un deuxième temps, seize thermocouples ont été disposés sur la plaque afin d'obtenir un champ spatial de température. Le premier thermocouple a

été placé à 2 cm du côté gauche de la plaque et chaque thermocouple a ensuite été espacé de 2 cm suivant la longueur et la largeur de la plaque (configuration indiquée par des disques noirs sur la Figure 2.11). Les mesures de perte de masse et de température ont été réalisées séparément car la présence de thermocouples induit une pression sur la cellule de pesée qui altère les mesures de perte de masse. Pour ces expériences, l'espacement adopté entre le bas du cône chauffant et la surface des plaques a été fixé à 25 mm. Pour chaque configuration, trois répétitions ont été réalisées.

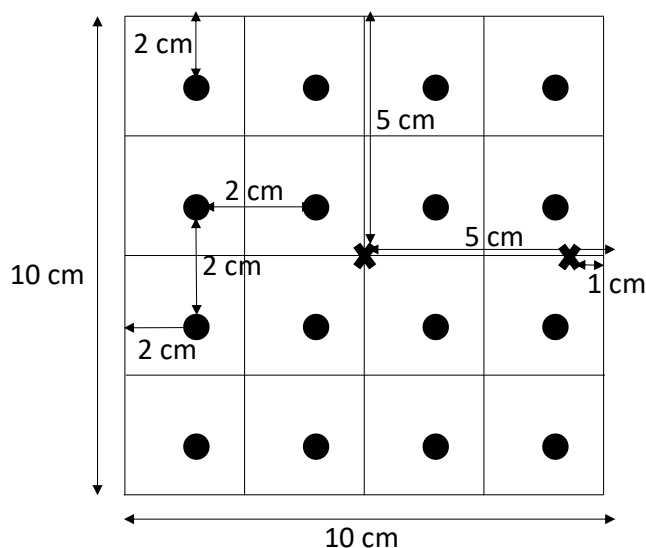


Figure 2.11 : Localisation des thermocouples sur la plaque de bois.

3.2.1.2. Plaques de 20,87 mm d'épaisseur

La température des plaques de chêne de 20,87 mm d'épaisseur a été mesurée par des thermocouples de type K à jonction gainée ayant un diamètre de 500 μm . Nous avons utilisé des gaines plus épaisses que précédemment pour gagner en robustesse. Afin de s'assurer de la fiabilité des mesures de température, nous avons réalisé une étude comparative entre les thermocouples de type K à jonction gainée de 500 μm et ceux à jonction gainée de 250 μm utilisés pour les plaques fines. Celle-ci a montré que l'épaisseur de la gaine avait peu d'influence sur les mesures de température (Annexe B).

Afin de suivre l'évolution de température dans les plaques, des trous d'1 mm de diamètre ont été percés à différentes hauteurs : 3 mm, 10 mm et 17 mm sur 4 cm de profondeur. 3 thermocouples ont été placés dans les trous de la face avant et 3 autres ont été disposés dans les trous réalisés dans la face perpendiculaire afin d'examiner la symétrie de l'évolution de la température (Figure 2.12.b). Pour ces expériences, l'espacement adopté entre le bas du cône chauffant et la surface des plaques a été fixé à 40 mm. Pour chaque mesure de température, six répétitions ont été effectuées.

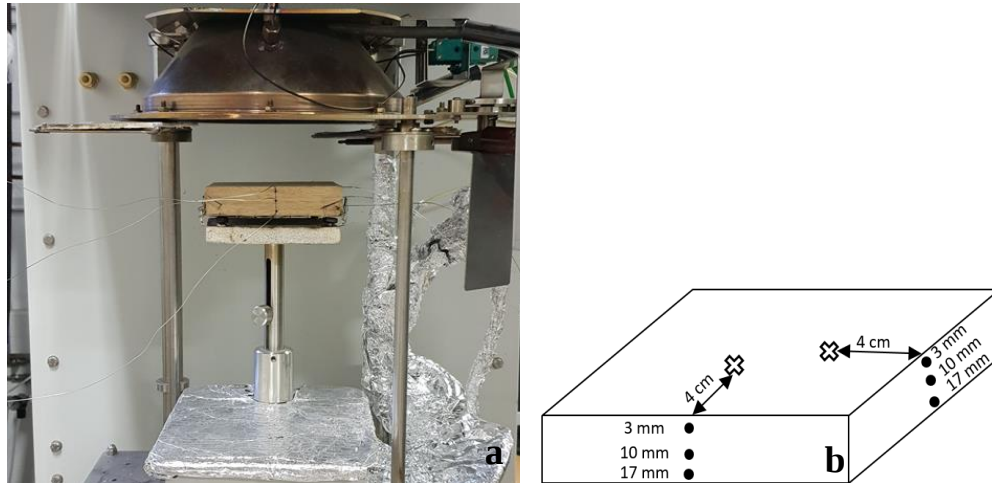


Figure 2.12 : Localisation des thermocouples dans la plaque de bois de 20 mm d'épaisseur a) Photographie du dispositif b) Schéma en coupe du dispositif de mesure.

3.2.2. La caméra infra-rouge

Afin d'étudier l'évolution de la température sur la face supérieure des plaques de bois avec une méthode non intrusive, nous avons utilisé une caméra infrarouge. Un corps ayant une température supérieure au zéro absolu, c'est-à-dire $-273,15^{\circ}\text{C}$ émet un rayonnement électromagnétique proportionnel à sa température. Une partie de ce rayonnement est le rayonnement infrarouge qui peut être divisé en trois gammes (Norme ISO 20473 : 2007) : l'infrarouge proche entre $0,78$ et $3,0\ \mu\text{m}$, l'infrarouge moyen entre $3,0$ et $50\ \mu\text{m}$ et l'infrarouge lointain entre 50 et $5\ \text{mm}$. L'imagerie thermique utilise principalement des bandes spectrales correspondant au proche et au lointain infrarouge. Le rayonnement infrarouge est ensuite focalisé par une lentille sur un élément de détection appelé bolomètre. Ce capteur a pour rôle de convertir l'énergie du rayonnement électromagnétique absorbée en énergie interne. Une conversion analogique-numérique permet d'afficher la température du corps observé à l'écran. Nous avons utilisé une caméra de marque FLIR, type T650SC possédant une résolution de 640×480 pixels (Tableau 2-6), dont la gamme de détection varie entre $7,5$ et $13\ \mu\text{m}$. Elle est étalonnée sur une plage de température allant de -40°C à 2000°C sur trois gammes distinctes : -40 à 150°C , 100 à 650°C et 300 à 2000°C . La précision de la mesure est de $\pm 1^{\circ}\text{C}$ quelle que soit la gamme de température utilisée, pour des températures ambiantes comprises entre 10 et 35°C .

Tableau 2-6 : Caractéristiques de la caméra infrarouge.

Caractéristiques	Données
Dimensions (mm)	143 × 195 × 95
Masse (kg)	1,3
Marque/Modèle	FLIR/T650SC
Résolution (pixels)	640 × 480
Fréquence d'acquisition (Hz)	{7,5 ; 15 ; 30}
Gamme de détection (µm)	[7,5 ; 13]
Pas du détecteur (µm)	17
Paramètre de résolution spatiale (mrad)	0,69
Gamme de température (°C)	[-40 ; 2000]
Objectifs IR (mm)	18

Pour les expériences avec caméra infrarouge, l'espacement adopté entre le bas du cône chauffant et la surface des plaques a été fixé à 50 mm pour les plaques fines et à 40 mm pour les plaques épaisses. Bien que non intrusive, la mesure de température par caméra infrarouge a nécessité une étude préliminaire, notamment à cause de la présence du cône chauffant et du faible espacement entre le cône et les plaques de bois. L'annexe B présente les différents tests réalisés sur l'effet de l'inclinaison de la caméra ainsi que l'effet des paramètres de la caméra sur la mesure de température. A l'issue de ces différents essais, nous avons choisi de positionner la caméra à une distance de 1 m afin de voir correctement l'échantillon compte tenu de la résolution spatiale de la caméra infrarouge. Par ailleurs, la caméra a été inclinée à 35° (Figure 2.13) afin d'enregistrer la température de l'ensemble de la plaque de bois tout en garantissant une mesure fiable. La fréquence d'acquisition de la caméra a été fixée à 7,5 Hz. Concernant l'émissivité des plaques, nous avons utilisé une valeur correspondant à la moyenne des données expérimentales (Tableau 2-5) et des valeurs de l'émissivité du résidu carbonneux recensées dans la littérature [54]. Nous avons obtenu une valeur de 0,95 pour les deux essences de bois. Enfin, la température apparente réfléchie a été fixée à 20°C en ayant au préalable étudié l'influence de sa variation sur la mesure de température (Annexe B). Pour chaque densité de flux, il a été possible d'enregistrer simultanément la perte de masse et la température des plaques de bois. Trois répétitions ont été réalisées à chaque fois.

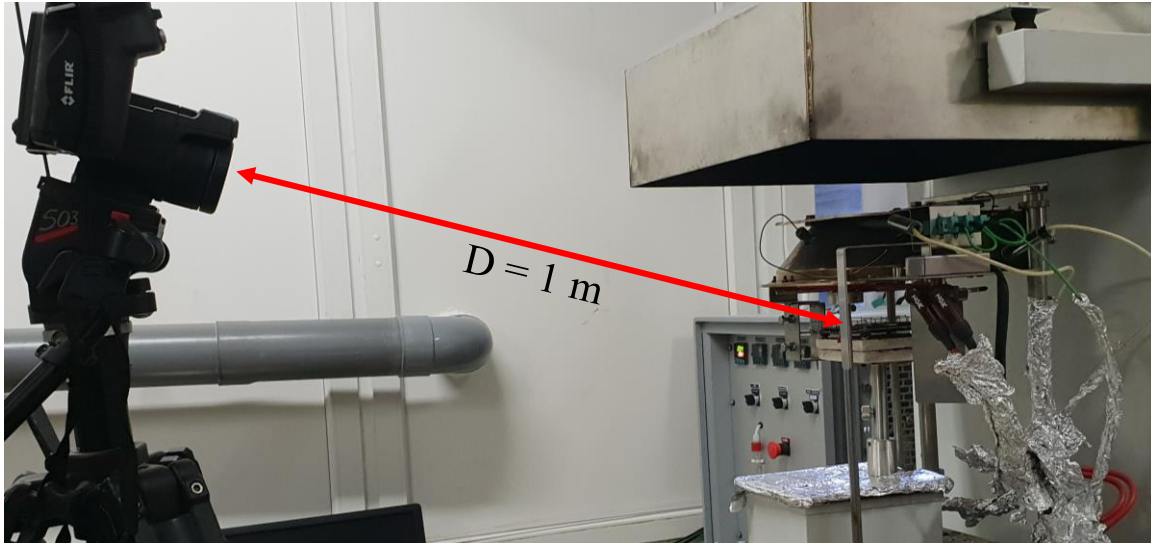


Figure 2.13 : Photographie de la configuration expérimentale adoptée pour la mesure de température par caméra infrarouge lors des expériences de dégradation thermique.

L'enregistrement des données a été effectué à l'aide du logiciel Research IR data. Pour cela, la plaque a été divisée en seize carrés comme définis pour la mesure avec les thermocouples (Figure 2.11). La température moyenne de chaque carré est calculée sur une ligne horizontale correspondant à une surface de $2 \times 0,5\text{ cm}^2$, soit 42 pixels par carré (Figure 2.14.a). La température des sommets de la plaque (surfaces hachurées sur la Figure 2.14.b) n'a pas été mesurée à cause du grillage en acier qui maintient les plaques pour les empêcher de se déformer. Nous avons donc fait l'hypothèse que leur température est égale à la température moyenne des carrés externes les plus proches.

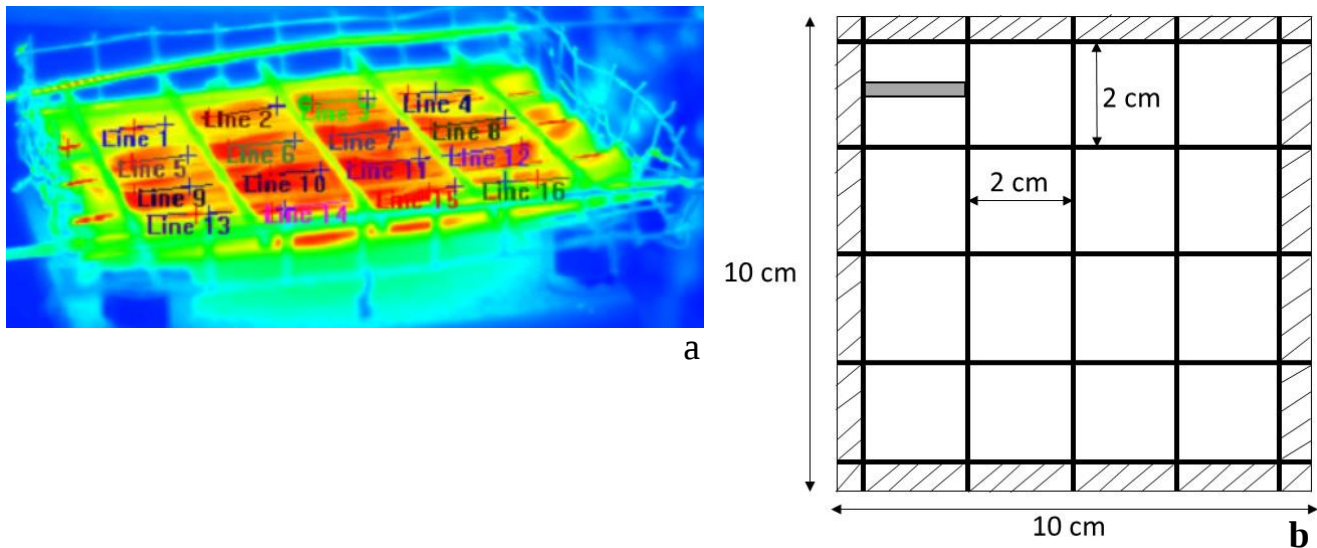


Figure 2.14 : Mesure de la température à la surface des plaques de bois par caméra infrarouge avec : a) le dispositif utilisé sur le logiciel Research IR data b) le schéma des zones de mesure.

3.3. Détermination de la densité de flux reçue à la surface des plaques

Les études de Wilson et coll. [25] et Boulet et coll. [26] ont montré que la densité de flux reçue par un échantillon placé sous un cône calorimètre n'était pas homogène. Afin de déterminer la densité de flux effectivement reçue par les plaques de bois, nous avons étudié la variabilité de cette grandeur pour différents espacements avec le cône chauffant à savoir 25, 40 et 50 mm et pour deux valeurs de densités de flux mesurées au centre du cône : 2,3 et 24 kW/m². La variabilité de la densité de flux a ensuite été examinée en plaçant un fluxmètre total refroidi (précision de 0,1 kW/m²) à la hauteur considérée tous les centimètres le long du diamètre du cône entre -5 et 5 cm autour du centre. La Figure 2.15 présente les résultats obtenus pour un espacement de 50 mm. Les résultats pour les autres espacements sont donnés en annexe C. Pour l'ensemble des expériences, nous constatons que la densité de flux varie peu sur un diamètre de 2 cm autour du centre (variation de 1,1 %). Par contre, au-delà de 3 cm, on observe une décroissance du flux. Le Tableau 2-7 présente le ratio entre la densité de flux mesurée au centre de la plaque et la densité de flux moyenne calculée sur l'ensemble de la plaque avec les valeurs expérimentales. Le ratio varie entre 1,01 et 1,11 suivant la densité de flux imposée et l'espacement considéré. Ces valeurs sont en accord avec les valeurs données dans la littérature pour un espacement de 25 mm (entre 1,00 et 1,06) [165,166]. Pour un espacement de 40 et 50 mm, les valeurs obtenues sont supérieures aux valeurs préconisées par Babrauskas [166] pour justifier l'homogénéité du flux à la surface de l'échantillon. On constate toutefois que le ratio a tendance à augmenter lorsque que l'espacement sous le cône chauffant augmente. Cette augmentation est due aux effets de la convection qui sont plus prononcés lorsque la distance sous le cône chauffant augmente [166].

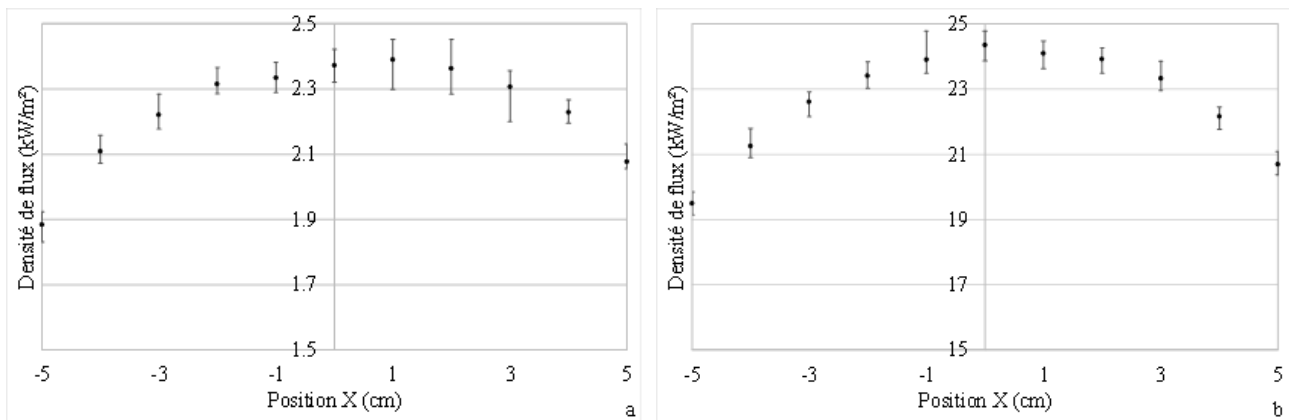


Figure 2.15 : Densité de flux reçue à la surface d'une plaque de bois située à 50 mm sous le cône chauffant pour une densité de flux au centre de : a) 2,3 kW/m² (température du cône fixée à 221°C) et b) 24 kW/m² (température du cône fixée à 635°C).

Tableau 2-7 : Ratio entre la densité de flux mesurée au centre de la plaque et la densité de flux moyenne calculée sur l'ensemble de la plaque

Espacement (mm)	Température du cône (°C)	Densité de flux mesurée au centre (kW/m²)	Densité de flux moyenne calculée sur la plaque (kW/m²)	Ratio
25	197	2,15	2,13	1,01
25	571	22,91	22,70	1,01
40	215	2,25	2,09	1,08
40	613	24,48	22,60	1,08
50	235	2,37	2,16	1,10
50	635	24,35	21,93	1,11

Afin d'éviter la mesure du champ de densité de flux pour les différentes valeurs utilisées lors des expériences avec le cône calorimètre, nous avons modélisé le transfert radiatif entre le cône chauffant et la plaque puis calculé une valeur moyenne de la densité de flux incidente à la surface de la plaque. Le détail de cette démarche est présenté en Annexe C. Ainsi, la densité de flux de chaleur à la surface des plaques de bois peut être reliée à la température du cône T_c par la relation suivante :

$$\dot{q}_e'' = \epsilon_c \sigma T_c^4 F_{dA_1-S_3} \quad (2.8)$$

Avec ϵ_c l'émissivité du cône prise égale à 0,99 d'après [167] et $F_{dA_1-S_3}$ le facteur de vue entre un élément surfacique dA_1 de la plaque de bois et la surface S_3 du cône chauffant, défini par :

$$\text{Pour } a \neq 0, F_{dA_1-S_3} = \frac{1}{2} \left[\left(1 - \frac{1+H_2^2-R_2^2}{\sqrt{Z_2^2-4R_2^2}} \right) - \left(1 - \frac{1+H_1^2-R_1^2}{\sqrt{Z_1^2-4R_1^2}} \right) \right] \quad (2.9)$$

$$\text{Pour } a = 0, F_{dA_1-S_3} = \frac{r_2^2}{z^2+r_2^2} - \frac{r_1^2}{(z+h_a)^2+r_1^2} \quad (2.10)$$

Où a est la distance entre l'élément dA_1 et l'axe du cône chauffant, r_1 et r_2 sont les rayons supérieur et inférieur du cône chauffant ($r_1 = 40$ mm et $r_2 = 80$ mm), h_a est la hauteur du cône chauffant ($h_a=80$ mm), et z est la distance verticale entre la base inférieure du cône chauffant et la surface de l'échantillon (une figure détaillée est fournie en Annexe C). Les paramètres H_1 , H_2 , R_1 , R_2 , Z et Z_2 sont définis par :

$$H_1 = \frac{h_a+z}{a} \quad (2.11)$$

$$H_2 = \frac{z}{a} \quad (2.12)$$

$$R_1 = \frac{r_1}{a} \quad (2.13)$$

$$R_2 = \frac{r_2}{a} \quad (2.14)$$

$$Z_1 = 1 + H_1^2 + R_1^2 \quad (2.15)$$

$$Z_2 = 1 + H_2^2 + R_2^2 \quad (2.16)$$

On calcule la densité de flux moyenne sur la plaque de bois en prenant un espacement de 5 mm sur l'axe des abscisses et en considérant une symétrie sur l'autre axe. La valeur moyenne de la densité de flux à la surface des plaques est alors donnée par :

$$\dot{q}_e'' = \frac{1}{N+1} \sum_{k=0}^N \dot{q}_e''(5k) \quad (2.17)$$

Où $r = 5k$ est la distance en mm du centre vers l'extrémité de la plaque et N le nombre de points où la densité de flux est calculée.

Pour les expériences à l'échelle matériau, nous avons soumis les échantillons de chêne et d'eucalyptus à des densités moyennes de flux incident comprises entre 18 et 28,5 kW/m² (calculées avec l'équation 2.18) dans le but d'éviter l'auto-inflammation des plaques de bois. Au-delà de 28,5 kW/m², les plaques de chêne et d'eucalyptus subissent une auto-inflammation. Il a été nécessaire d'utiliser différents espacements entre le cône et les plaques suivant les dispositifs expérimentaux (25, 40 et 50 mm). Les expériences avec les thermocouples ont été réalisées à 25 mm du cône chauffant. Les expériences utilisant la caméra thermique ont nécessité un espacement plus important afin de pouvoir visualiser l'échantillon. Les expériences avec les plaques fines ont donc été réalisées à 50 mm du cône chauffant et celles avec les plaques épaisses à 40 mm. Le Tableau 2-8 présente les correspondances entre la densité de flux moyenne calculée, les densités de flux calculée et mesurée au centre de la plaque pour les différentes conditions expérimentales.

Tableau 2-8 : Correspondances entre la densité de flux mesurée au centre de la plaque et les valeurs calculées de la densité de flux moyenne et de la densité de flux au centre de la plaque.

Distance base du cône – surface de l'échantillon (mm)	25	40	50	25	40	50
Densité de flux moyenne calculée (kW/m ²)	Densité de flux mesurée au centre des plaques (kW/m ²)			Densité de flux calculée au centre des plaques (kW/m ²)		
18	19,14		19,17	19,14		19,16
19		19,68			20,04	
20	21,03		21,32	21,00		21,41
21			22,40			22,40
23		24,16	24,31		24,57	24,38
25	26,39		26,37	26,43		26,37
27			28,54			28,49
28	28,31	29,82	29,92	28,28	30,33	29,84
28,5			30,46			30,47

4. Détermination du comportement thermique des plaques de bois

Avant de commencer l'étude de la dégradation thermique des plaques de chêne et d'eucalyptus, il a été nécessaire de connaître leur comportement thermique, afin d'identifier si les plaques de bois se comportent comme un matériau thermiquement fin ou thermiquement épais. Pour cela, nous avons étudié la relation entre le temps d'allumage et la densité de flux reçue par les différentes plaques. Pour chaque dimension de plaque, un échantillon carré de $10 \times 10 \text{ cm}^2$ a été posé sur une laine en céramique isolante puis placé à 25 mm en-dessous du cône chauffant. L'allumeur piézo-électrique a été disposé au-dessus des échantillons. Les plaques ont été soumises à différentes densités de flux variant de 10 à 35 kW/m². Nous avons considéré qu'il n'y avait pas allumage lorsque le temps d'allumage dépassait 15 min selon les recommandations du SFPE Handbook [168].

Le Tableau 2-9 présente les temps d'allumage moyens en fonction de la densité de flux imposée pour les différentes plaques de bois étudiées. Les écart-types calculés sur 5 répétitions sont indiqués entre parenthèses. Pour les plaques de chêne, le temps d'allumage augmente lorsque l'épaisseur de la plaque augmente quelle que soit la densité de flux imposée. L'évolution du temps d'allumage de chaque type de plaques de bois suit une tendance similaire. Il décroît lorsque la densité de flux augmente. Pour des épaisseurs de plaque équivalentes, l'eucalyptus s'allume plus tardivement que le chêne. En définissant le flux critique d'inflammation comme étant le plus petit flux pour lequel une flamme s'établit, on obtient un flux critique d'inflammation de 10 kW/m² pour les plaques de chêne ayant une épaisseur de 0,61 mm et 1,51 mm ainsi que pour la plaque d'eucalyptus. Pour les plaques de chêne de 20,87 mm d'épaisseur, le flux critique d'inflammation est de 12 kW/m². Ces résultats sont en accord avec les valeurs obtenues par Spearpoint et Quintiere [169] pour du chêne rouge de 5 cm d'épaisseur (10,8 kW/m²).

Tableau 2-9 : Temps d'allumage des différentes plaques de bois en fonction de la densité de flux imposée.

Temps d'allumage (s)				
Bois	Chêne			Eucalyptus
Epaisseur (mm) Densité de flux (kW/m²)	0,61	1,51	20,87	0,63
10	108,0 (± 20,0)	138,0 (± 14,8)	-	155,3 (± 15,3)
11	83,0 (± 4,0)	106,0 (± 8,3)	-	119,0 (± 7,0)
12	-	-	330,0 (± 66,6)	-
14	37,4 (± 2,7)	71,8 (± 6,5)	142,7 (± 13,5)	59,5 (± 7,5)
20	19,6 (± 2,5)	40,3 (± 1,7)	77,0 (± 14,6)	26,3 (± 3,7)
25	13,3 (± 0,5)	25,4 (± 4,4)	46,0 (± 8,3)	20,3 (± 1,2)
30	11,0 (± 1,0)	19,7 (± 0,5)	35,3 (± 2,7)	14,7 (± 0,5)
35	9,0 (± 0,6)	17,6 (± 2,1)	25 (± 2,9)	11,3 (± 0,5)

D'après Quintiere [170] pour un matériau thermiquement fin, le temps d'allumage est donné par (Annexe D) :

$$t_{ig} = \frac{\rho c_p e (T_{ig} - T_{\infty})}{\dot{q}_e''} \quad (2.18)$$

où t_{ig} est le temps d'allumage du matériau, ρ la masse volumique, c_p la capacité calorifique, e l'épaisseur de l'échantillon, T_{ig} la température d'allumage, T_{∞} la température ambiante et $\dot{q}_e''$ la densité de flux incidente.

Pour un matériau thermiquement épais, le temps d'allumage est donné par :

$$t_{ig} = \frac{\pi}{4} \lambda \rho c_p \left(\frac{T_{ig} - T_0}{\dot{q}_e''} \right)^2 \quad (2.19)$$

Où λ est la conductivité thermique du matériau.

Ainsi, il est possible de définir le comportement thermique des différentes plaques en étudiant l'évolution de l'inverse du temps d'inflammation et l'évolution de l'inverse de la racine carrée du temps d'inflammation en fonction de la densité de flux (Figure 2.16). A partir de ces courbes, il est en effet possible de définir si les plaques sont thermiquement fines ou thermiquement épaisses en comparant leur coefficient de corrélation R^2 [171]. Une plaque thermiquement fine aura un coefficient de corrélation plus important pour la courbe représentant l'inverse du temps d'inflammation en fonction de la densité de flux. Par contre, si la plaque est thermiquement épaisse, le coefficient de corrélation sera plus grand pour les courbes représentant l'inverse de la racine carrée du temps d'inflammation en fonction de la densité de flux. D'après la Figure 2.16, le coefficient de corrélation R^2 de l'inverse du temps d'inflammation est supérieur à celui de l'inverse de la racine carrée du temps d'inflammation pour les plaques de chêne ayant des épaisseurs de 0,61 et 1,51 mm. Pour une épaisseur de 20,87 mm, c'est la tendance inverse qui est observée. En ce qui concerne l'eucalyptus, le coefficient de corrélation de l'inverse du temps d'allumage est supérieur à celui de l'inverse de la racine carrée du temps d'allumage avec une valeur proche de celle obtenue pour les plaques de chêne de 0,61 mm d'épaisseur. Par conséquent, les plaques de chêne de 0,61 mm d'épaisseur sont considérées comme thermiquement fines et les plaques de chêne de 20,87 mm d'épaisseur comme thermiquement épaisses pour les conditions de flux considérées. En ce qui concerne les plaques de chêne de 1,51 mm d'épaisseur, les coefficients de corrélation sont très proches entre les deux comportements thermiques. Cette épaisseur de plaque constitue donc une épaisseur de transition entre le comportement thermiquement fin et thermiquement épais. Les plaques d'eucalyptus sont quant à elles considérées comme thermiquement fines dans ces mêmes conditions. Les travaux de Benkoussas et coll. [172] ont permis de déterminer une courbe de transition entre les matériaux thermiquement fins et épais à partir de la représentation du rayon critique en fonction de la densité de flux imposée. Le comportement thermiquement fin déterminé pour les plaques de chêne de 0,61 mm d'épaisseur et d'eucalyptus est en accord avec les résultats de Benkoussas et coll. [172] où pour un rayon critique de 0,3 mm (correspondant à une épaisseur de plaque de 0,6 mm), le matériau reste thermiquement fin pour des densités de flux allant jusqu'à 40 kW/m². En revanche pour la plaque de chêne de 1,51 mm, son comportement en tant que matériau thermiquement fin n'est valable que jusqu'à une densité de flux de 20 kW/m².

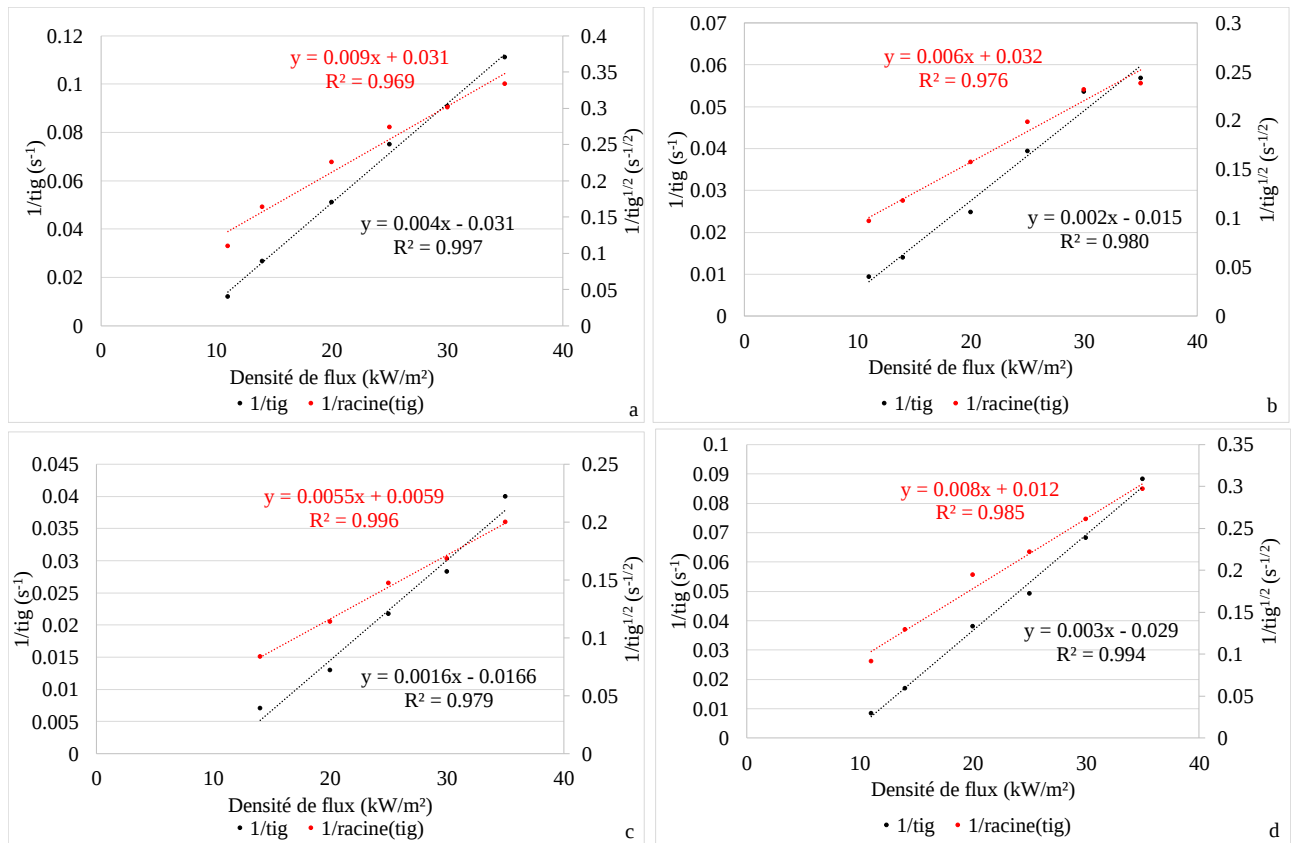


Figure 2.16 : Evolution de l'inverse du temps d'ignition et de l'inverse de la racine carrée du temps d'ignition en fonction de la densité de flux imposée pour : a) le chêne de 0,61 mm d'épaisseur b) le chêne de 1,51 mm d'épaisseur c) le chêne de 20,87 mm d'épaisseur et d) l'eucalyptus de 0,63 mm d'épaisseur.

5. Présentation du code de calcul GPYRO

Pour modéliser la réponse thermique des plaques de bois lors de leur dégradation thermique sous le cône calorimètre, nous avons utilisé le code de calcul open source GPYRO - Generalized Pyrolysis Model for Combustible Solids. Dans GPYRO, Le solide initial est composé de M espèces en phase condensée chimiquement distinctes. Lorsque le solide est chauffé, il se dégrade pour former N espèces gazeuses grâce à K réactions. Les espèces gazeuses peuvent être consommées ou produites par des réactions hétérogènes (solide / gaz) et homogènes (gaz / gaz). Les équations de conservation implémentées dans GPYRO considèrent des propriétés effectives calculées à l'aide de moyennes pondérées. Dans notre étude, nous avons considéré que la dégradation thermique des plaques de bois pouvait se rapporter à un problème monodimensionnel. Par ailleurs, nous avons fait l'hypothèse que la plaque de bois ne subissait aucun rétrécissement ni gonflement lors de la dégradation.

5.1. Définition des grandeurs moyennes

La masse volumique moyenne $\bar{\rho}$ est calculée en sommant sur l'ensemble des espèces en phase condensée le produit de la masse volumique de la phase condensée i (ρ_i) par sa fraction volumique X_i :

$$\bar{\rho} = \sum_{i=1}^M X_i \rho_i \quad (2.20)$$

Où M représente le nombre d'espèces présentes en phase condensée. La fraction volumique X_i est définie par :

$$X_i = \bar{\rho} \frac{Y_i}{\rho_i} \quad (2.21)$$

Où Y_i est la fraction massique de la phase condensée i .

La masse volumique moyenne peut également être obtenue en utilisant l'équation suivante :

$$\bar{\rho} = \left(\sum_{i=1}^M \frac{Y_i}{\rho_i} \right)^{-1} \quad (2.22)$$

La conductivité thermique moyenne $\bar{\lambda}$ est également calculée en sommant sur l'ensemble des espèces en phase condensée le produit de la conductivité thermique de la phase condensée i , λ_i par sa fraction volumique X_i :

$$\lambda = \sum_{i=1}^M X_i \lambda_i \quad (2.23)$$

De manière analogue aux équations 2.21 et 2.23, les expressions de la perméabilité moyenne $\bar{\mathcal{K}}$, de l'émissivité moyenne $\bar{\epsilon}$ et de la porosité moyenne $\bar{\Psi}$ sont définies par les équations suivantes :

$$\bar{\mathcal{K}} = \sum_{i=1}^M X_i \mathcal{K}_i \quad (2.24)$$

$$\bar{\epsilon} = \sum_{i=1}^M X_i \epsilon_i \quad (2.25)$$

$$\bar{\Psi} = \sum_{i=1}^M X_i \Psi_i \quad (2.26)$$

Où $\mathcal{K}_i$, ϵ_i et Ψ_i représentent respectivement la perméabilité, l'émissivité et la porosité de la phase condensée i .

La capacité calorifique moyenne $\bar{c}_p$ et l'enthalpie moyenne $\bar{h}$ sont calculées grâce aux relations suivantes :

$$\bar{c}_p = \sum_{i=1}^M Y_i c_{p_i} \quad (2.27)$$

$$\bar{h} = \sum_{i=1}^M Y_i h_i \quad (2.28)$$

Avec c_{p_i} et h_i la capacité calorifique massique et l'enthalpie massique de la phase condensée i .

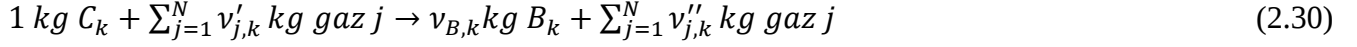
Dans la suite de la thèse, l'indice i sera utilisé pour les phases condensées et l'indice j pour les phases gazeuses. La masse molaire moyenne de la phase gazeuse est définie par :

$$\bar{M} = \sum_{j=1}^N X_j M_j \quad (2.29)$$

Où M_j représente la masse molaire de la phase gazeuse j et N le nombre de gaz présents.

5.2. Taux de réaction

Le code de calcul GPYRO permet d'implémenter des mécanismes cinétiques de dégradation. Les réactions hétérogènes sont représentées de la manière suivante :



Où C_k et B_k sont des espèces en phase condensée et k est le numéro de la réaction. Les coefficients v sont définis sur une base massique avec :

$$v_{B,k} = \frac{\rho_{B_k}}{\rho_{C_k}} \quad (2.31)$$

Les coefficients stœchiométriques $v'_{j,k}$ et $v''_{j,k}$ relatifs aux gaz sont définis par :

$$v'_{j,k} = -(1 - v_{B,k}) \min(y_{s,j,k}, 0) \quad (2.32)$$

$$v''_{j,k} = (1 - v_{B,k}) \max(y_{s,j,k}, 0) \quad (2.33)$$

Où $y_{s,j,k}$ est une matrice $J \times K$ correspondant aux gaz émis dans chaque réaction. K représente le nombre d'étapes présent dans le mécanisme réactionnel et s correspond à la phase condensée concernée. Cette matrice est définie par l'utilisateur et permet d'établir les valeurs de $v'_{j,k}$ et $v''_{j,k}$. Ses entrées sont positives pour la formation d'espèces gazeuses et négatives pour leur consommation [42].

La vitesse de disparition de l'espèce C_k par la réaction k est calculée de la façon suivante :

$$\dot{\omega}_{dC_k}''' = \left(\frac{\bar{\rho} Y_{C_k}}{(\bar{\rho} Y_{C_k})_\Sigma} \right)^{n_k} (\bar{\rho} Y_{C_k})_\Sigma A_k \exp \left(-\frac{E_{a_k}}{RT} \right) \quad (2.34)$$

$$\dot{\omega}_{dC_k}''' = \left(\frac{\bar{\rho} Y_{C_k}}{(\bar{\rho} Y_{C_k})_\Sigma} \right)^{n_k} (\bar{\rho} Y_{C_k})_\Sigma [(1 + Y_{O_2})^{n_{O_2,k}} - 1] A'_k \exp \left(-\frac{E_{a_k}}{RT} \right) \quad (2.35)$$

$$(\bar{\rho} Y_i)_\Sigma = (\bar{\rho} Y_i)_{t=0} + \int_0^t \dot{\omega}_{fi}'''(\tau) d\tau \quad (2.36)$$

Où t représente la durée de la dégradation thermique, Y_{C_k} la fraction massique de l'espèce C , n_k l'ordre de la réaction k , A_k et E_{a_k} , respectivement le facteur pré-exponentiel et l'énergie d'activation de la réaction k . Σ sert à décrire que les équations 2.34 et 2.35 contiennent une intégrale (évaluée numériquement comme une sommation) [110]. $\dot{\omega}_{fi}'''$ est la vitesse de formation de l'espèce en phase condensée i . Le terme $(\bar{\rho} Y_i)_\Sigma$ peut être relié au degré d'avancement par la relation suivante :

$$(\bar{\rho} Y_i)_\Sigma = \frac{\bar{\rho} Y_i}{1 - \alpha_i} \quad (2.37)$$

Où α_i est le degré d'avancement de la phase condensée i . L'équation 2.37 n'est utilisée que pour la réaction d'oxydation du résidu charbonneux afin de tenir compte de la sensibilité de l'oxygène de cette réaction. Le paramètre A'_k a été déterminé en cohérence avec le paramètre A_{ATG} déterminé à l'échelle matière :

$$A'_k ((1 + Y_{O_2})^{n_{O_2,k}} - 1) = A_{ATG} \quad (2.38)$$

En prenant $n_{O_2,k} = 1$ et en considérant Y_{O_2} constant à l'échelle matière et égal à 0,23, il vient :

$$A'_k = \frac{A_{ATG}}{0,23} \quad (2.39)$$

Le taux de formation de la phase condensée B_k $\dot{\omega}_{fB_k}'''$ et le taux de formation des gaz produits $\dot{\omega}_{fg_k}'''$ s'écrivent :

$$\dot{\omega}_{fB_k}''' = v_{B_k} \dot{\omega}_{dC_k}''' \quad (2.40)$$

$$\dot{\omega}_{fg_k}''' = (1 - v_{B_k}) \dot{\omega}_{dC_k}''' \quad (2.41)$$

Il est à noter que l'équation 2.41 donne le taux de formation de l'ensemble des gaz de la réaction k . Les taux de formation ou de destruction de chaque gaz sont obtenus en utilisant la matrice $y_{s,j,k}$ de la manière suivante

$$\dot{\omega}_{fj,k}''' = v_{j,k}' \dot{\omega}_{dC_k}''' = \dot{\omega}_{fg,k}''' \max(y_{s,j,k}, 0) \quad (2.42)$$

$$\dot{\omega}_{dj,k}''' = v_{j,k}' \dot{\omega}_{dC_k}''' = -\dot{\omega}_{fg,k}''' \min(y_{s,j,k}, 0) \quad (2.43)$$

5.3. Equations de conservation en phase condensée

Pour la phase condensée, l'équation de conservation de la masse s'écrit de la manière suivante [110] :

$$\frac{\partial \bar{\rho}}{\partial t} = -\dot{\omega}_{fg}''' \quad (2.44)$$

Où $\dot{\omega}_{fg}'''$ représente le taux de formation des gaz pour l'ensemble des K réactions se produisant lors de la dégradation du solide donné par :

$$\dot{\omega}_{fg}''' = \sum_{k=1}^K \dot{\omega}_{fg_k}''' \quad (2.45)$$

L'équation de conservation des espèces en phase condensée est donnée par :

$$\frac{\partial \bar{\rho} Y_i}{\partial t} = \dot{\omega}_{fi}''' - \dot{\omega}_{di}''' \quad (2.46)$$

Où $\dot{\omega}_{fi}'''$ et $\dot{\omega}_{di}'''$ représentent respectivement les taux de formation et disparition de l'espèce i :

$$\dot{\omega}_{fi}''' = \sum_{k=1}^K \delta_{i,B_k} \dot{\omega}_{fB_k}''' \quad (2.47)$$

$$\dot{\omega}_{di}''' = \sum_{k=1}^K \delta_{i,C_k} \dot{\omega}_{dC_k}''' \quad (2.48)$$

Où $\delta_{l,m}$ est le symbole de Kronecker défini par :

$$\delta_{l,m} = \begin{cases} 1 & \text{si } l = m \\ 0 & \text{si } l \neq m \end{cases} \quad (2.49)$$

L'équation de conservation de l'énergie en phase condensée s'écrit :

$$\frac{\partial \bar{\rho} \bar{h}}{\partial t} = -\frac{\partial \dot{q}''}{\partial z} - \dot{Q}_{s-g}''' + \sum_{k=1}^K \dot{Q}_{s,k}''' + \sum_{i=1}^M (\dot{\omega}_{fi}''' - \dot{\omega}_{di}''') h_i \quad (2.50)$$

Où h_i est l'enthalpie et $\dot{q}''$ est le flux conductif de la phase condensée qui s'exprime par :

$$\dot{q}'' = -\bar{\lambda} \frac{\partial T}{\partial z} \quad (2.51)$$

$\dot{Q}_{s-g}'''$ est la densité volumique d'énergie permettant de réaliser le transfert thermique de la phase solide à la phase gazeuse :

$$\dot{Q}_{s-g}''' = \dot{m}_g'' c_{pg} \frac{\partial T_g}{\partial z} \quad (2.52)$$

Avec $\dot{m}_g''$ le débit massique de gaz, c_{pg} la capacité calorifique de gaz fixée à 1000 J/kg.K et $\frac{\partial T_g}{\partial z}$ le gradient de la température des gaz dans l'épaisseur de l'échantillon. $\dot{Q}_{s,k}'''$ est la densité volumique de chaleur dégagée ou absorbée par la phase solide due à la réaction k :

$$\dot{Q}_{s,k}''' = -\dot{\omega}_{dC_k}''' \Delta H_k \quad (2.53)$$

Avec :

$$\Delta H_k = \Delta H_{sol,k} + \Delta H_{vol,k} \quad (2.54)$$

Où $\Delta H_{sol,k}$ est la chaleur latente de transformation de l'espèce C_k en B_k et $\Delta H_{vol,k}$ est la chaleur latente de vaporisation de l'espèce C_k en gaz.

5.4. Equations de conservation en phase gazeuse

L'équation de conservation de la masse en phase gazeuse s'écrit de la manière suivante :

$$\frac{\partial \rho_g \bar{\psi}}{\partial t} + \frac{\partial \dot{m}''}{\partial z} = \dot{\omega}_{fg}''' \quad (2.55)$$

Où ρ_g représente la masse volumique de gaz qui peut s'exprimer à l'aide de l'équation d'état des gaz parfaits : $\rho_g = \frac{P\bar{M}}{RT_g}$ avec P la pression, $\bar{M}$ la masse molaire moyenne des gaz, R la constante des gaz parfaits et T_g la température des gaz. $\bar{\psi}$ est la porosité moyenne du solide et $\dot{m}''$ le débit massique de gaz.

L'équation de conservation des espèces en phase gazeuse s'écrit de la manière suivante :

$$\frac{\partial \rho_g \bar{\psi} Y_j}{\partial t} + \frac{\partial \dot{m}'' Y_j}{\partial z} = -\frac{\partial j_j''}{\partial z} + \dot{\omega}_{fj}''' - \dot{\omega}_{dj}''' \quad (2.56)$$

Y_j est la fraction massique de l'espèce gazeuse j , j_j'' est le flux massique de diffusion calculé à partir de la loi de Fick : $j_j'' = -\bar{\psi} \rho_g \frac{\partial Y_j}{\partial z}$. $\dot{\omega}_{fj}'''$ et $\dot{\omega}_{dj}'''$ sont respectivement les taux de formation et de disparition de l'espèce gazeuse j définis par :

$$\dot{\omega}_{fj}''' = \sum_{k=1}^K \dot{\omega}_{fj,k}''' \quad (2.57)$$

$$\dot{\omega}_{dj}''' = \sum_{k=1}^K \dot{\omega}_{dj,k}''' \quad (2.58)$$

La phase solide et la phase gazeuse sont en équilibre thermique, il vient que :

$$T_g = T \quad (2.59)$$

Enfin, l'équation de conservation de la quantité de mouvement en phase gazeuse s'écrit :

$$\frac{\partial \rho_g}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\bar{K}}{\nu_c} \frac{\partial P}{\partial z} \right) + \dot{\omega}_{fg}''' \quad (2.60)$$

Où ν_c est la viscosité cinématique du gaz et $\frac{\partial P}{\partial z}$ le gradient de pression dans l'épaisseur de l'échantillon.

5.5. Définition des propriétés thermo-physiques

Dans GPYRO, les propriétés thermo-physiques (k_i , ρ_i et c_{pi}) de chaque phase condensée sont supposées varier avec la température de la manière suivante :

$$\rho_i(T) = \rho_{0,i} \left(\frac{T}{T_r} \right)^{n_{\rho,i}} \quad (2.61)$$

$$c_{pi}(T) = c_{p0,i} \left(\frac{T}{T_r} \right)^{n_{c,i}} \quad (2.62)$$

$$\lambda_i(T) = \lambda_{0,i} \left(\frac{T}{T_r} \right)^{n_{\lambda,i}} \quad (2.63)$$

Où T_r est une température de référence fixée à 300 K. $\rho_{0,i}$, $c_{p0,i}$ et $\lambda_{0,i}$ sont les valeurs respectives à la température de référence de la masse volumique, de la capacité calorifique et de la conductivité thermique de chaque phase condensée i . Il est à noter que la contribution des transferts radiatifs à l'intérieur des pores n'a pas été prise en compte dans la conductivité thermique. Pour la masse volumique, la valeur du bois sec a été fixée à 540 kg/m³ pour le chêne et à 652 kg/m³ pour l'eucalyptus. Aucune variation avec la température n'est considérée pour ce paramètre afin de ne pas modifier la cinétique. En ce qui concerne la conductivité thermique à 300 K, elle a été fixée à 0,134 W/m.K pour les deux bois. Cette valeur correspond à la valeur expérimentale déterminée pour le chêne d'une épaisseur de 20,87 mm à 300 K. La capacité calorifique a été fixée à 1310 J/kg.°C pour le chêne et à 1320 J/kg.°C pour l'eucalyptus. Ces valeurs correspondent aux valeurs corrigées à 300 K après prise en compte de la variation de la masse à cette température. Dans l'approche par constituants (voir chapitre 3), les propriétés thermiques de l'hémicellulose, de la cellulose et de la lignine ont été prises égales à celles du bois sec.

5.6. Résolution numérique

Dans GPYRO, les équations de conservation de l'énergie en phase condensée, de conservation des espèces en phase gazeuse, de la quantité de mouvement en phase gazeuse sont résolues à l'aide d'un système de résolution traité par l'algorithme des matrices tri-diagonales (TDMA). Les équations de conservation de la masse et des espèces en phase condensée sont résolues par un solveur entièrement implicite qui utilise un paramètre de relaxation (fixé à 1) pour éviter la divergence du calcul. Les méthodes de résolution sont présentées en détail dans les travaux de Lautenberger [110]. Les équations qui y sont présentées aboutissent à un système d'équations algébriques qui sont résolues numériquement. Les recommandations de Patankar pour la résolution sont suivies [173]. La présence des termes sources et la dépendance en température des propriétés thermo-physiques introduisent une non-linéarité de ces équations. Pour cela, une formulation entièrement implicite est adoptée. Les termes sources sont divisés en composants négatifs et positifs pour s'assurer que les fractions massiques et les masses volumiques ne prennent pas de valeurs négatives [173]. Pour extraire la température de l'enthalpie moyenne et des fractions massiques de l'équation de conservation des espèces en phase condensée, GPYRO utilise l'itération de Newton. Le nombre d'itérations de chaque équation de conservation est fixé à 1000. Le Tableau 2-10 présente les seuils de convergence des paramètres physiques inhérents à chaque équation de conservation. Enfin, le paramètre ε empêche les divisions par zéro après que les équations de conservation aient été discrétisées [110]. Il est fixé à 1×10^{-10} .

Tableau 2-10 : Seuils de convergence des paramètres physiques des équations de conservation

Paramètre Physique	Seuil de tolérance
Température (K)	1×10^{-4}
Enthalpie du solide (J/kg)	1×10^{-9}
Fraction massique des solides (-)	1×10^{-4}
Pression (Pa)	1×10^{-4}
Fraction massique des gaz (-)	1×10^{-4}
Enthalpie des gaz (J/kg)	1×10^{-1}

5.7. Paramètres de calcul

5.7.1. Maillage

Dans ces travaux de thèse, la dégradation thermique des plaques de bois (fines et épaisses) est étudiée à l'aide d'une modélisation monodimensionnelle. Seuls les transferts de masse et d'énergie dans le sens de l'épaisseur du bois sont considérés. Afin de résoudre les équations de conservation, un maillage cartésien a été adopté dans le sens de l'épaisseur du bois. Pour déterminer le meilleur compromis entre taille des mailles et temps de calcul, nous avons testé trois tailles de maille à savoir : 0,1, 0,012 et 0,006 mm pour simuler la dégradation de plaques de chêne de 0,61 mm soumises à une densité de flux de 21 kW/m². La Figure 2.17 présente les résultats obtenus pour les 3 maillages. Le temps de calcul pour ces trois tests a été de 6, 22 et 40 s respectivement pour 0,1, 0,012 et 0,006 mm avec un pas de temps de calcul de 0,01 s. Pour les trois tailles de mailles, la température simulée et la perte de masse correspondante sont quasiment superposées. La différence entre les données calculées avec des mailles de 0,012 et 0,006 mm est en effet de 0,04 % par rapport aux données obtenues avec une taille de maille de 0,1 mm. Utiliser un maillage de 0,1 mm semble donc être un très bon compromis entre temps de calcul et performance de la simulation. Cette taille a donc été utilisée pour l'ensemble des simulations. Le nombre de maille étant donné par l'expression suivante :

$$N_{maille} = E \left(\frac{e}{0.1} + 1 \right) \quad (2.64)$$

Où $E(x)$ est la partie entière de x et e l'épaisseur en mm des plaques. Nous avons pris 7 mailles pour les plaques fines de chêne et d'eucalyptus et 201 mailles pour les plaques de chêne de 20,87 mm. Dans toutes les simulations, le pas de temps de calcul sera fixé à 0,01 s.

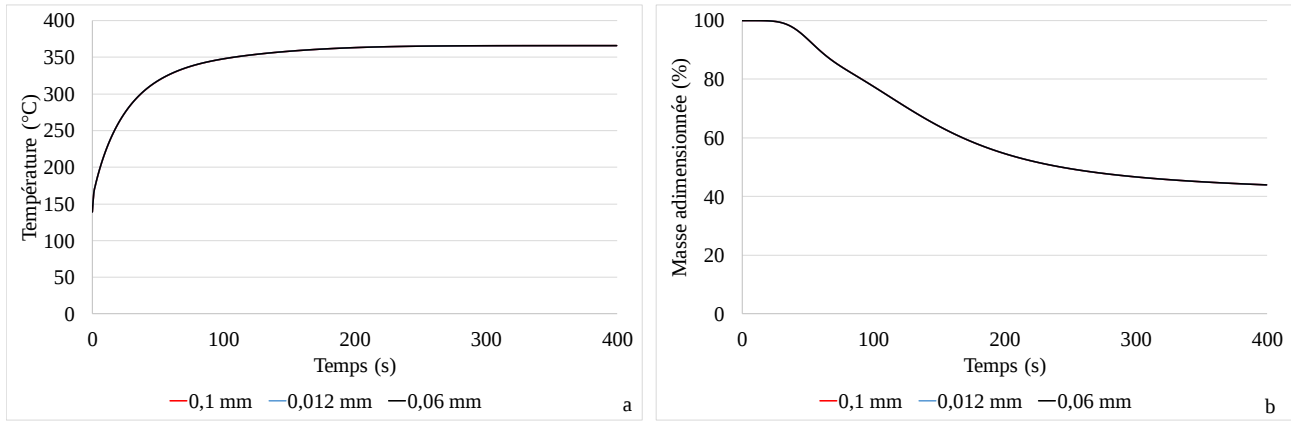


Figure 2.17 : Influence de la taille du maillage sur : a) la température b) la perte de masse pour la dégradation de plaques fines de chêne soumises à une densité de flux de 21 kW/m².

5.7.2. Conditions aux limites

Afin de modéliser les expériences de dégradation réalisées avec le cône calorimètre, notre étude a nécessité d'imposer les conditions aux limites suivantes (Figure 2.18) :

Pour l'équation de conservation de l'énergie en phase condensée :

- Sur la face supérieure des plaques de bois, c'est-à-dire pour $z=0$:

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{z=0} = \bar{\epsilon} \dot{q}_e'' - h_{c,h}(T - T_\infty) - \bar{\epsilon} \sigma (T^4 - T_\infty^4) \quad (2.65)$$

Avec $h_{c,h}$ le coefficient de transfert convectif de la face supérieure de la plaque, T_∞ la température ambiante et σ la constante de Stefan-Boltzmann.

- Pour les expériences où la plaque est en contact avec l'air ambiant, la condition aux limites s'écrit :

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{z=e} = h_{c,b}(T - T_\infty) \quad (2.66)$$

Avec $h_{c,b}$ le coefficient de transfert convectif de la face inférieure de la plaque.

$$\begin{aligned}
-\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{z=0} &= \bar{\epsilon} \dot{q}_e'' - h_{c,h}(T - T_\infty) - \bar{\epsilon} \sigma (T^4 - T_\infty^4) \\
&\uparrow \quad \downarrow \\
&\text{e} \quad \boxed{\text{Maillage des plaques de chêne et d'eucalyptus}} \\
&\quad \quad \quad 0,1 \text{ mm} \quad -\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{z=e} = h_{c,b}(T - T_\infty)
\end{aligned}$$

Figure 2.18 : Maillage des plaques de chêne et d'eucalyptus.

L'équation de conservation des espèces gazeuses requiert deux conditions aux limites pour chaque espèce gazeuse j [110]. Sur la face supérieure de la plaque, le flux massique de diffusion des espèces gazeuses est donné par l'expression suivante :

$$-\bar{\psi} \rho_g D \frac{\partial Y_j}{\partial z} \Big|_{z=0} \simeq \frac{h_{c,h}}{c_{pg}} (Y_j^\infty - Y_j(z=0)) \quad (2.67)$$

Dans le cas des plaques thermiquement fines, le flux massique de diffusion des espèces gazeuses sous la face inférieure est donnée par :

$$-\bar{\psi} \rho_g D \frac{\partial Y_j}{\partial z} \Big|_{z=e} \simeq \frac{h_{c,b}}{c_{pg}} (Y_j(z=e) - Y_j^\infty) \quad (2.68)$$

Où D représente le coefficient de diffusion moléculaire de l'espèce j , c_{pg} la capacité calorifique des gaz fixée à 1000 J/kg.K et $h_{c,h}$ le coefficient de transfert convectif de la face supérieure de la plaque. Dans cette expression, le flux massique de diffusion des espèces gazeuses est approximé en utilisant une analogie entre les transferts de masse et de chaleur. Dans le cas de la plaque thermiquement épaisse, la face inférieure est supposée imperméable. On considère donc que le gradient d'espèces est nul :

$$\frac{\partial Y_j}{\partial z} \Big|_{z=e} = 0 \quad (2.69)$$

L'équation de conservation de la quantité de mouvement en phase gazeuse nécessite également deux conditions aux limites. Sur la face supérieure, la pression est supposée égale à la pression atmosphérique :

$$P(z=0) = P_\infty \quad (2.70)$$

Pour les plaques thermiquement fines, on considère que la pression sous la face inférieure est égale à la pression atmosphérique :

$$P(z=e) = P_\infty \quad (2.71)$$

Pour les plaques thermiquement épaisses, la face inférieure est supposée imperméable, le gradient de pression est donc pris égal à 0 :

$$\frac{\partial P}{\partial z} \Big|_{z=e} = 0 \quad (2.72)$$

Les coefficients de convection $h_{c,h}$ et $h_{c,b}$ présents dans les équations 2.65 à 2.68 ont été calculés à l'aide de la relation suivante :

$$h_c = \frac{Nu \cdot \lambda}{L_c} \quad (2.73)$$

Où Nu représente le nombre de Nusselt, λ la conductivité thermique de l'air et L_c le rapport entre la surface de la plaque et son périmètre. Le nombre de Nusselt pour la face supérieure de la plaque (Nu_h) et celui de la face inférieure (Nu_b) ont été déterminés à partir de relations empiriques données pour des plaques chaudes horizontales [163]. Pour la face supérieure, nous avons utilisé les expressions suivantes :

$$Nu_h = 0,54 Ra^{\frac{1}{4}} \text{ pour } (10^4 \leq Ra \leq 10^7) \quad (2.74)$$

$$Nu_h = 0,15 Ra^{\frac{1}{3}} \text{ pour } (10^7 \leq Ra \leq 10^{11}) \quad (2.75)$$

Avec Ra le nombre de Rayleigh donné par :

$$Ra = \frac{g \beta_c (T - T_\infty) L_c^3}{\alpha_c \nu_c} \quad (2.76)$$

Où g est l'accélération de la pesanteur, β_c est le coefficient de dilatation thermique de l'air à température ambiante, ν_c et α_c sont respectivement la viscosité cinématique et la diffusivité thermique de l'air à température ambiante.

Pour la face inférieure, le nombre de Nusselt est déterminé grâce à la relation suivante :

$$Nu_b = 0,27 Ra^{\frac{1}{4}} \quad (2.77)$$

Comme la température de la plaque varie au cours du temps, le coefficient de transfert convectif a été calculé en fonction de l'évolution de la température expérimentale au cours du temps puis moyenné sur la durée de l'expérience. Les valeurs obtenues pour les différentes densités de flux radiatif utilisées et les deux espèces de bois sont présentées dans le Tableau 2-11. Nous remarquons que le coefficient de transfert convectif augmente avec la densité du flux pour les deux bois. Les valeurs obtenues pour le chêne et l'eucalyptus sont sensiblement égales. Les coefficients de transfert convectif pour la face supérieure des plaques de bois sont compris entre 6,7 et 12,3 W/m².K. Pour des densités de flux supérieures ou égales à 27 kW/m², ces valeurs sont supérieures à celles utilisées dans la littérature pour le même type de problème, où une valeur de 10 W/m².K est couramment employée pour le bois [15,42]. En revanche, pour des densités de flux inférieures à 27 kW/m², les valeurs obtenues sont inférieures à 10 W/m².K. Toutefois pour des densités de flux comprises entre 20 et 40 kW/m², Janssens a déterminé une valeur moyenne de 13,5 kW/m² comme valeur du coefficient de transfert convectif sur la face exposée au cône chauffant [174]. Pour la face inférieure des plaques de bois, les coefficients de transfert convectif sont compris entre 3,3 et 6,2 W/m².K. Les valeurs sont donc environ deux fois plus faibles que celle de la face exposée au cône chauffant. La littérature donne un coefficient de convection proche des valeurs obtenues pour le chêne et l'eucalyptus à 27 et 28,5 kW/m² pour la face inférieure des échantillons avec une valeur de 6 W/m².K [17].

Tableau 2-11 : Coefficient de transfert convectif (W/m².K) moyen du chêne et de l'eucalyptus en fonction de la densité de flux.

Densité de flux (kW/m ²)	Chêne		Eucalyptus	
	$h_{c,h}$	$h_{c,b}$	$h_{c,h}$	$h_{c,b}$
21	6,7	3,3	6,8	3,4
23	7,3	3,7	7,4	3,7
25	8,5	4,2	7,6	3,8
27	11,1	5,5	11,8	5,9
28,5	12,3	6,2	12,2	6,1

5.7.3. Conditions initiales

Les conditions initiales ont été directement déduites des données expérimentales :

- La pression initiale a été fixée à $1,013 \times 10^5$ Pa.
- La température initiale de la phase gazeuse a été prise égale à 300 K.
- La température initiale de la phase condensée correspond à la température relevée au moment de l'ouverture de l'obturateur du cône calorimètre.

L'air ambiant est constitué (en massique) de 23 % d'oxygène et de 77 % d'azote.

Chapitre 3. Etude de la dégradation thermique des plaques de bois thermiquement fines à l'échelle matière

L'objectif de cette partie est de déterminer les mécanismes réactionnels de la dégradation thermique de deux essences de bois, à savoir le chêne et l'eucalyptus, à l'échelle de la matière et d'identifier les paramètres des lois cinétiques associées. Dans un premier temps, nous comparons les différents résultats expérimentaux obtenus par analyse thermogravimétrique dans des conditions d'atmosphères inerte et oxydante. Nous présentons ensuite les mécanismes cinétiques de dégradation thermique du bois étudiés dans le cadre de cette thèse. Puis nous décrivons les méthodes mises en œuvre pour identifier les paramètres cinétiques associés aux mécanismes déterminés. Pour finir, les différents mécanismes réactionnels sont testés dans le cadre d'expériences réalisées à l'échelle de la matière.

1. Dégradation thermique du chêne et de l'eucalyptus sous atmosphère inerte et sous atmosphère oxydante

1.1. Description de la dégradation thermique sous atmosphère inerte

La Figure 3.1 présente l'évolution de la perte de masse adimensionnée ainsi que celle de sa dérivée (MLR/m_0) en fonction de la température pour les deux essences de bois et les différentes vitesses de chauffe sous azote. Afin de faciliter la comparaison des deux essences, le Tableau 3-1 présente pour chaque étape, les valeurs des pics de MLR et les températures associées pour le chêne et l'eucalyptus aux différentes vitesses de chauffe étudiées. En comparant l'influence de la vitesse de chauffe sur les résultats, on remarque que les pics de vitesse de perte de masse augmentent avec la vitesse de chauffe pour chaque réaction. En effet, ces pics sont décalés vers des valeurs de température plus élevées lorsque la vitesse de chauffe augmente. Ces résultats sont en accord avec ceux de la littérature [12,35,77]. Si on compare à présent l'influence de l'essence de bois, on remarque que la dégradation thermique des deux bois a un comportement similaire. La pyrolyse suit en effet trois étapes :

- Entre 200°C et 350°C, une première réaction apparaît où le pic de vitesse de perte de masse est plus élevé pour le chêne. Ce pic correspond principalement à la dégradation de l'hémicellulose [127]. D'après l'analyse chimique, les proportions d'hémicellulose sont respectivement de 28,22 % et 19,47 % pour le chêne et l'eucalyptus. Le chêne contient donc plus d'hémicellulose que l'eucalyptus, ce qui explique que le pic de vitesse de perte de masse de cette étape soit plus intense pour le chêne. L'intensité de cette étape est en moyenne 1,69 fois plus élevée pour le chêne que pour l'eucalyptus. Le ratio entre la proportion d'hémicellulose du chêne et celui de l'eucalyptus est de 1,45. La différence entre les deux rapports est vraisemblablement due au fait que d'autres polymères se dégradent sur cette plage de température en parallèle de la dégradation de l'hémicellulose [29].
- Entre 350°C et 400°C, une deuxième réaction apparaît et donne lieu au pic de MLR le plus intense pour les deux types de bois. Cette étape de la dégradation thermique correspond principalement à la dégradation de la cellulose [127]. A la fin de cette étape, la perte de masse est d'environ 60 %

pour le chêne et l'eucalyptus. A l'inverse de la première réaction, l'intensité du MLR des deux types de bois est presque similaire, avec une légère supériorité pour l'eucalyptus qui contient plus de cellulose.

- Au-delà de 370°C pour la vitesse de chauffe la plus faible, la masse des deux essences de bois décroît lentement, ce qui entraîne la formation d'un plateau sur la courbe de la vitesse de perte de masse. Cette étape correspond principalement à la dégradation de la lignine [127]. L'intensité et la longueur du plateau sont légèrement plus élevées pour l'eucalyptus que pour le chêne. Ce résultat est en accord avec les proportions de lignine contenues dans les deux types de bois. En effet, d'après l'analyse chimique, les proportions de lignine du chêne et de l'eucalyptus sont respectivement de 26,60 % et 34,95 %, soit un rapport de 1,31. Le rapport des intensités de cette étape est quant à lui égal à 1,42.

Bien que les trois étapes apparaissent dans des gammes de température similaires pour les deux essences de bois, on observe cependant que les réactions du chêne commencent à des températures légèrement inférieures à celles de l'eucalyptus. En moyenne, le chêne se dégrade 8°C avant l'eucalyptus. La quantité de résidus produite à la fin de la pyrolyse varie également selon l'essence de bois. Elle est quasiment constante quelle que soit la vitesse de chauffe considérée pour le chêne. Toutefois, pour l'eucalyptus les valeurs obtenues diminuent lorsque la vitesse de chauffe augmente. Les résidus charbonneux représentent en moyenne 22 % de la masse initiale du chêne et 26 % de celle de l'eucalyptus. Ces valeurs sont représentatives de celles rencontrées dans la littérature [24,115,124,175].

Tableau 3-1 : Températures, MLR/m₀ et résidus obtenus par analyse thermogravimétrique sous atmosphère inerte.

Bois	Vitesse de chauffe (°C/min)	Température (°C) et MLR/m ₀ (×10 ⁻³ s ⁻¹)			Résidus (%)
		Etape 1	Etape 2	Etape 3	
Chêne	2	278 (0,13)	342 (0,49)	372 (0,01)	22,0
	5	290 (0,32)	359 (1,06)	388 (0,07)	20,9
	10	304 (0,68)	364 (1,94)	400 (0,15)	21,8
	20	319 (1,32)	384 (3,48)	420 (0,28)	22,1
	30	332 (2,01)	395 (4,81)	464 (0,39)	21,4
Eucalyptus	2	281 (0,07)	341 (0,43)	380 (0,03)	28,0
	5	295 (0,19)	356 (1,01)	400 (0,07)	25,7
	10	310 (0,41)	370 (2,15)	422 (0,15)	25,1
	20	322 (0,81)	385 (4,12)	452 (0,30)	24,8
	30	340 (1,23)	395 (5,78)	470 (0,41)	23,8

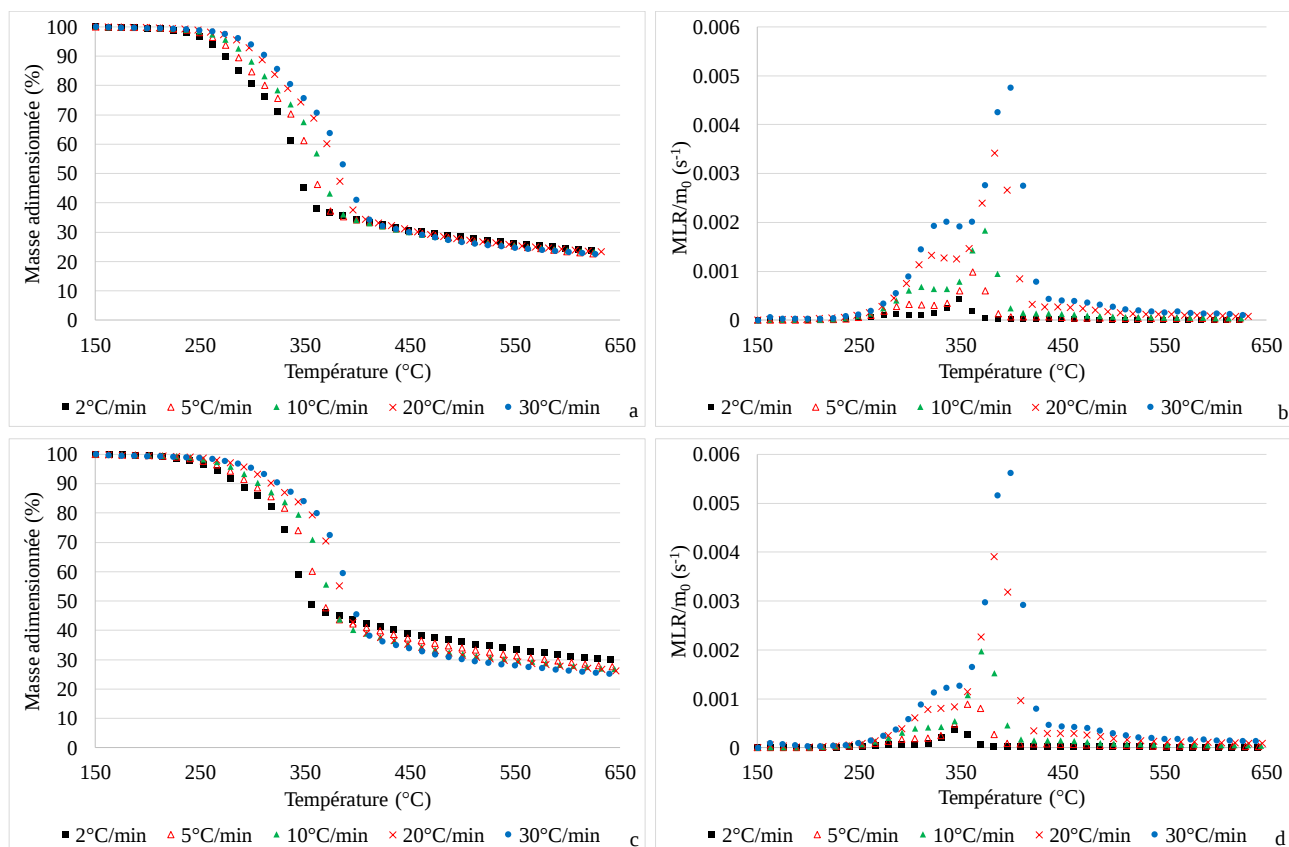


Figure 3.1 : Résultats des analyses thermogravimétriques sous atmosphère inerte de : a) la perte de masse adimensionnée du chêne b) la vitesse de perte de masse adimensionnée du chêne c) la perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus et d) la vitesse de perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus.

1.2. Description de la dégradation thermique sous atmosphère oxydante

La Figure 3.2 présente l'évolution de la perte de masse adimensionnée ainsi que celle de sa dérivée en fonction de la température pour les deux essences de bois et les différentes vitesses de chauffe étudiées sous air. Comme pour l'étude sous atmosphère inerte, les courbes sous air ont la même allure pour les deux essences de bois. On retrouve en effet les trois étapes présentées ci-dessus qui correspondent à la dégradation de l'hémicellulose, de la cellulose et de la lignine. Cependant, une étape supplémentaire de perte de masse apparaît pour chaque type de bois après 400°C. Cette étape correspond à l'oxydation du résidu charbonneux. Pour le chêne, le résidu charbonneux est totalement oxydé avant 650°C quelle que soit la vitesse de chauffe testée. En revanche pour l'eucalyptus, il est nécessaire d'avoir une température supérieure à 720°C pour oxyder totalement l'échantillon pour une chauffe de 30°C/min. Afin de faciliter la comparaison des deux essences, le Tableau 3-2 présente pour chaque étape, les valeurs des pics de MLR et les températures associées pour le chêne et l'eucalyptus aux différentes vitesses de chauffe étudiées. Concernant l'influence de la vitesse de chauffe, on retrouve le même comportement que celui observé sous azote. Les pics de vitesse de perte de masse augmentent avec la vitesse de chauffe pour chaque réaction et sont décalés vers des températures plus élevées lorsque la vitesse de chauffe augmente. Pour chaque type de bois, la quantité de résidus reste quasiment constante quelle que soit la vitesse de chauffe.

On obtient, en effet, en moyenne une proportion de résidus de 0,57 % de la masse initiale pour le chêne et de 0,17 % de la masse initiale pour l'eucalyptus. Les résultats obtenus sont en accord avec l'analyse de la quantité de cendres (Tableau 2-1).

Tableau 3-2 : Températures, MLR/ m_0 et résidus obtenus par analyse thermogravimétrique sous atmosphère oxydante.

Bois	Vitesse de chauffe (°C/min)	Température (°C) et MLR/ m_0 ($\times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$)				Résidus (%)
		Etape 1	Etape 2	Etape 3	Etape 4	
Chêne	2	275 (0,12)	321 (0,37)	358 (0,06)	465 (0,21)	0,62
	5	293 (0,32)	339 (0,91)	386 (0,15)	480 (0,41)	0,66
	10	307 (0,66)	358 (1,77)	406 (0,21)	511 (0,69)	0,47
	20	316 (1,35)	374 (3,77)	420 (0,38)	545 (1,02)	0,49
	30	328 (2,08)	382 (5,41)	430 (0,56)	551 (1,39)	0,63
Eucalyptus	2	282 (0,07)	335 (0,28)	374 (0,05)	506 (0,16)	0,16
	5	298 (0,19)	346 (0,84)	395 (0,12)	543 (0,35)	0,16
	10	305 (0,40)	365 (1,92)	420 (0,22)	573 (0,58)	0,19
	20	318 (0,83)	376 (3,74)	450 (0,44)	610 (0,93)	0,17
	30	330 (1,36)	385 (5,70)	470 (0,52)	664 (1,21)	0,19

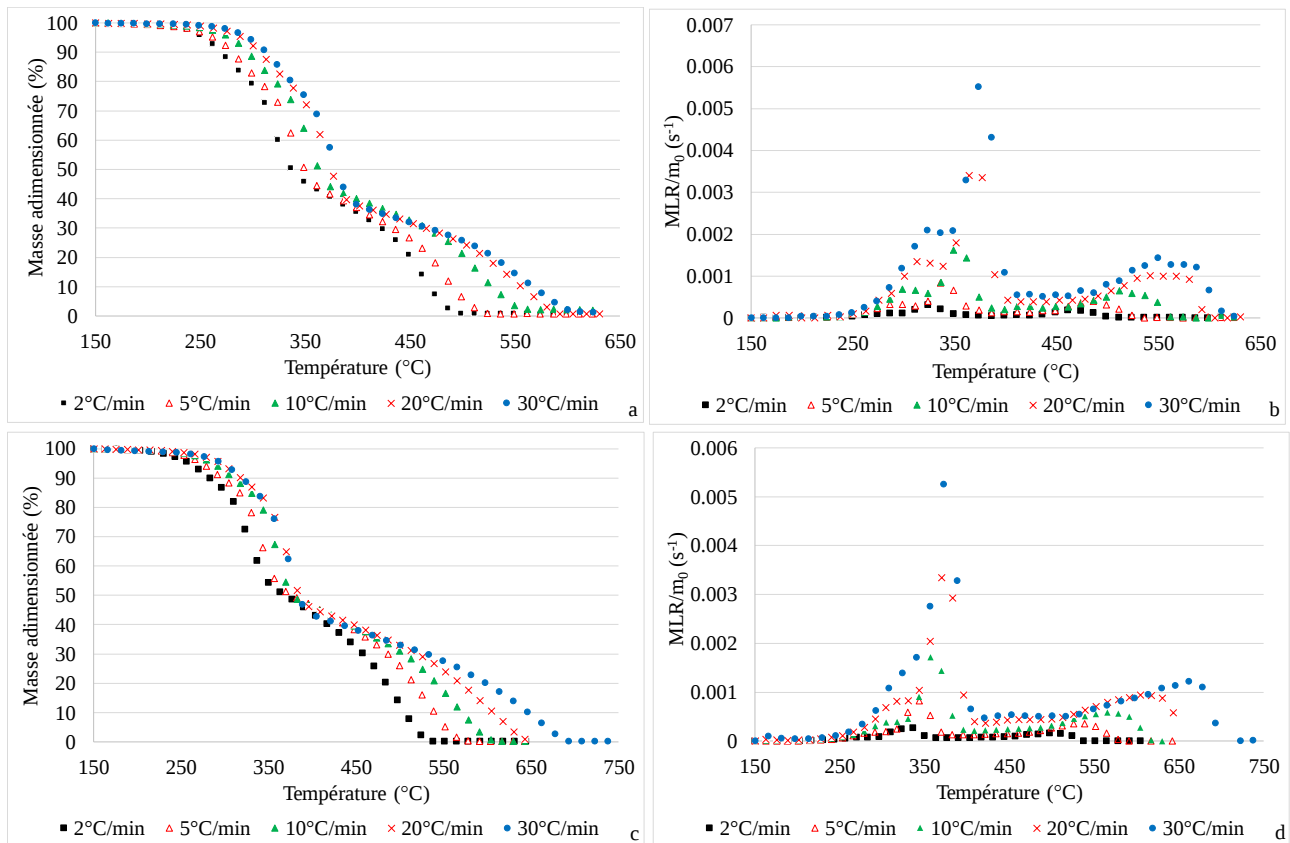


Figure 3.2 : Résultats des analyses thermogravimétriques sous atmosphère oxydante de : a) la perte de masse adimensionnée du chêne b) la vitesse de perte de masse adimensionnée du chêne c) la perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus et d) la vitesse de perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus.

Afin de mettre en évidence l'effet de l'atmosphère sur la dégradation thermique, les courbes de vitesses de perte de masse au cours du temps obtenues sous air et sous azote ont été comparées pour les deux types de bois. La Figure 3.3 illustre les différences pour le chêne et l'eucalyptus pour une vitesse de chauffe de 10°C/min. Ces résultats sont représentatifs des autres vitesses de chauffe étudiées. La discussion est focalisée dans un premier temps sur les deux premières étapes de la dégradation thermique car l'oxydation du résidu charbonneux sous air débute pendant la troisième étape [77,124]. Cette dernière ne sera pas discutée car le dispositif utilisé ne permet pas d'isoler cette troisième étape des trois autres. Pour la première étape de la dégradation thermique, il y a peu de différence de comportement entre les expériences sous atmosphère inerte et oxydante. Par contre, la deuxième réaction est décalée vers de plus hautes températures sous azote. Ce résultat est en accord avec les données de la littérature [77,176,177]. La présence d'oxygène réduit la force de pression sur la surface de l'échantillon car la diffusivité de l'oxygène dans l'air est plus importante que celle de l'azote, ce qui permet une diffusion plus rapide des gaz de dégradation dans l'atmosphère environnante [61,176] et donc une perte de masse plus précoce. Concernant l'intensité des pics, on remarque que la vitesse de perte de masse est plus élevée sous atmosphère inerte que sous atmosphère oxydante. Les données de la littérature montrent généralement un comportement inverse pour les matériaux ligno-cellulosiques [77,176,177]. Afin de nous assurer que ce résultat était dû aux matériaux et non pas au conditionnement de nos échantillons sous forme de disque, des analyses

supplémentaires ont été effectuées avec de la poudre (Annexe E). Les mêmes résultats ont été obtenus confirmant ainsi que ce phénomène est dû à la nature des bois testés.

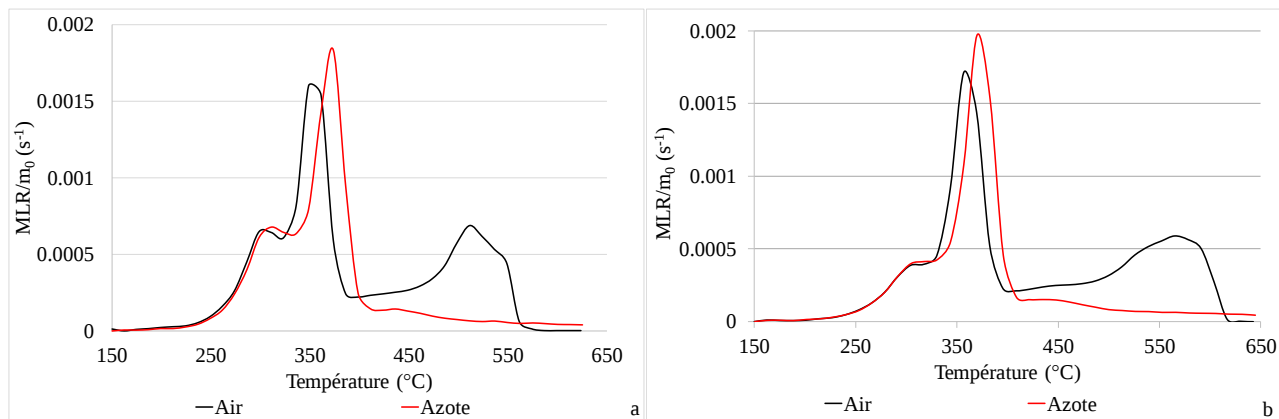


Figure 3.3 : Comparaison de la dégradation thermique sous atmosphère inerte et oxydante à 10°C/min pour : a) le chêne b) l'eucalyptus.

1.3. Isolation de la réaction d'oxydation du résidu carbonneux

Pour mettre en évidence l'influence de l'essence de bois sur l'oxydation du résidu carbonneux, nous avons isolé expérimentalement l'étape d'oxydation du résidu carbonneux des autres étapes de la dégradation thermique. Pour cela, nous avons tout d'abord effectué la pyrolyse de l'échantillon sous azote afin d'obtenir le résidu carbonneux de l'échantillon correspondant. Ensuite, ce résidu a été oxydé sous air. La Figure 3.4.a présente la vitesse de perte de masse adimensionnée de la dégradation obtenue pour le résidu carbonneux de chêne et d'eucalyptus à une vitesse de chauffe de 20°C/min. Nous avons également superposé les courbes de vitesse de perte de masse de la dégradation complète des deux bois. Toutefois, la réaction apparaît à des températures différentes. A 20°C/min, l'oxydation du résidu carbonneux a lieu entre 350°C et 570°C avec un maximum observé à 538°C pour le chêne et entre 390°C et 650°C avec un maximum observé à 601°C pour l'eucalyptus. L'oxydation de l'eucalyptus est donc plus tardive que celle du chêne. Nous pouvons remarquer que, lorsque la réaction d'oxydation du résidu carbonneux est isolée du processus de dégradation thermique, elle se produit à des températures légèrement inférieures que lorsque cette réaction a lieu pendant le processus de dégradation thermique complet. Dans la Figure 3.4.b, la comparaison des MLR adimensionnés du résidu carbonneux isolé avec les MLR des matériaux vierges après avoir adimensionné par la masse restante à 500°C montre que les intensités des pics sont cohérentes entre les deux protocoles d'étude et pour les deux bois. On observe toutefois que la valeur maximale obtenue en isolant la réaction d'oxydation du résidu carbonneux est légèrement inférieure aux valeurs obtenues lors de la dégradation thermique du matériau vierge. Ces différences sont dues à une masse initiale de résidu carbonneux supérieure de 1 mg dans les expériences où cette réaction est isolée par rapport à la masse restante à 500°C lors de la dégradation thermique complète des deux bois.

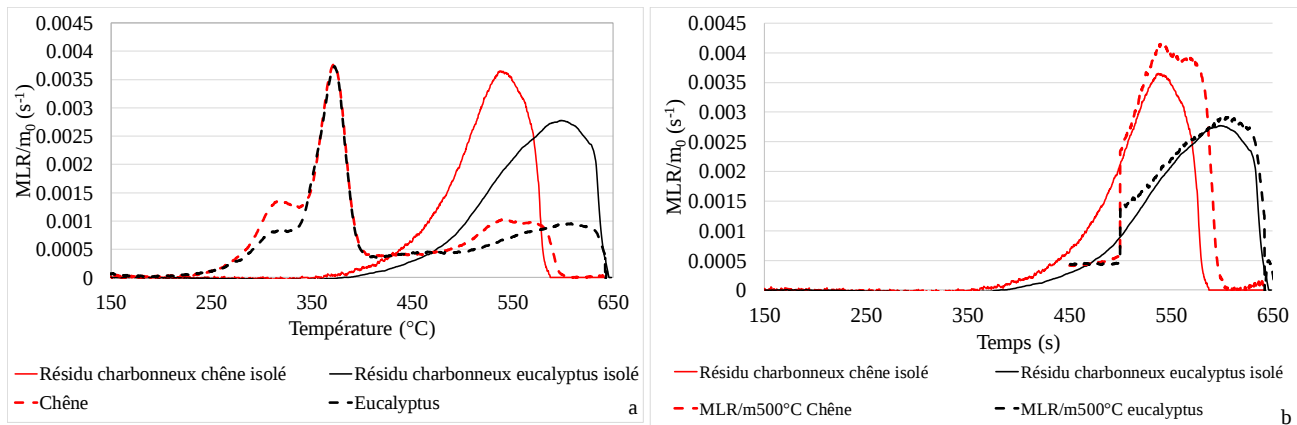


Figure 3.4 : Comparaison pour une vitesse de chauffe de 20°C/min, des : a) MLR adimensionnés par la masse initiale du chêne et de l'eucalyptus avec les réactions d'oxydation du résidu carbonneux isolées b) MLR adimensionnés par la masse restante à 500°C du chêne et de l'eucalyptus avec les réactions d'oxydation du résidu carbonneux isolées.

2. Les mécanismes réactionnels sous atmosphère oxydante

Afin de définir des mécanismes réactionnels capables de représenter la dégradation thermique de plaques de bois sous air, nous avons utilisé les résultats obtenus sous atmosphère oxydante présentés précédemment.

2.1. Analyse cinétique de la dégradation du chêne et de l'eucalyptus

Les réactions cinétiques en phase condensée hétérogène sont habituellement décrites par l'équation suivante [178] :

$$\frac{d\alpha}{dt} = \beta \frac{d\alpha}{dT} = f(\alpha) \cdot A \cdot \exp\left(-\frac{E_a}{R \cdot T}\right) \quad (3.1)$$

Où α est le degré d'avancement d'une réaction, t le temps, T la température absolue, β la vitesse de chauffe supposée constante, A et E_a sont les paramètres de la loi d'Arrhenius (respectivement le facteur pré-exponentiel et l'énergie d'activation), R est la constante des gaz parfaits et $f(\alpha)$ représente le modèle cinétique de la réaction.

Pour déterminer les mécanismes réactionnels permettant de modéliser la dégradation thermique des deux types de bois sous atmosphère oxydante, nous avons utilisé une méthode d'iso-conversion afin de mesurer l'évolution de l'énergie d'activation E_a en fonction du degré d'avancement α . D'après Vyazovkin [178], cette dépendance est en effet une source d'information sur la cinétique des réactions. L'énergie d'activation a été calculée pour les deux bois avec la méthode d'iso-conversion proposée par Friedman [107] basée sur une forme logarithmique de l'équation 3.1 :

$$\ln\left(\frac{d\alpha}{dt}\right) = \ln A + \ln f(\alpha) - \frac{E_a}{RT} \quad (3.2)$$

Le degré d'avancement global α a été défini comme suit :

$$\alpha = \frac{m - m_0}{m_{cendres, \infty} - m_0} \quad (3.3)$$

Où m représente la masse de l'échantillon au cours du temps, m_0 est sa masse initiale et $m_{cendres}$ la masse des cendres à 815°C (Tableau 2-1) correspondant respectivement à 0,2 % et 0,1 % de la masse initiale du chêne et de l'eucalyptus. Ces valeurs correspondent aux masses minimales qui peuvent être atteintes par les échantillons si on augmente la température finale de la dégradation.

En supposant que le modèle cinétique de réaction $f(\alpha)$ est indépendant de la vitesse de chauffe et de la température, l'énergie d'activation est obtenue par l'équation suivante :

$$\frac{d \ln \left[\frac{d\alpha}{dt} \right]_{\alpha}}{d T^{-1}} = - \frac{E_{a\alpha}}{R} \quad (3.4)$$

où $\ln \left[\frac{d\alpha}{dt} \right]_{\alpha}$ et $E_{a\alpha}$ sont les valeurs de $\ln \frac{d\alpha}{dt}$ (calculé avec les courbes de vitesse de perte de masse sous TG) et de E_a pour une valeur fixée du degré d'avancement α . La Figure 3.5 présente, pour différentes valeurs du degré d'avancement, les valeurs de $\ln \frac{d\alpha}{dt}$ en fonction de l'inverse de la température pour l'ensemble des vitesses de chauffe étudiées.

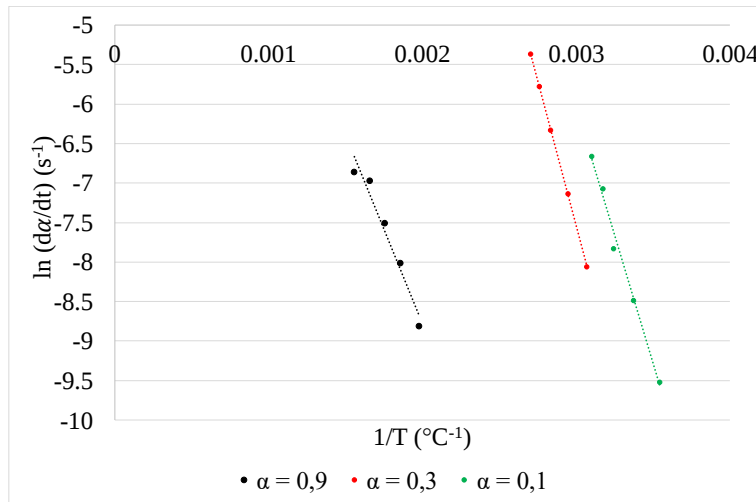


Figure 3.5 : Droites d'iso-conversion par la méthode de Friedman pour la dégradation de l'eucalyptus sous air.

La Figure 3.6 présente l'évolution de l'énergie d'activation en fonction du degré d'avancement pour les deux bois. Une première étape a lieu lorsque le degré d'avancement est inférieur à 0,2. Pour cette étape, l'énergie d'activation varie entre 120 et 178 kJ/mol pour l'eucalyptus et entre 143 et 188 kJ/mol pour le chêne. Cette étape correspond au début de la dégradation de l'hémicellulose et de la lignine [34]. Pour un degré d'avancement compris entre 0,2 et 0,45 l'énergie d'activation augmente fortement avec le degré d'avancement. Cette tendance est généralement caractéristique de réactions compétitives, bien que certaines réactions indépendantes ou consécutives peuvent aussi créer une augmentation de l'énergie d'activation en fonction de α [178]. Cette partie des courbes correspond à la dégradation de la cellulose

et de la lignine. La décroissance de l'énergie d'activation pour un degré d'avancement compris entre 0,5 et 0,7 peut s'expliquer par un changement de régime. On passe en effet d'un régime contrôlé par la dégradation thermique des bio-polymères à un régime dominé par la diffusion moléculaire lors de l'oxydation du résidu charbonneux [178,179]. Lorsque α est supérieur à 0,7, l'énergie d'activation devient presque constante pour les deux bois (autour de 109 kJ/mol pour l'eucalyptus et 106 kJ/mol pour le chêne) montrant une étape unique d'oxydation du résidu charbonneux.

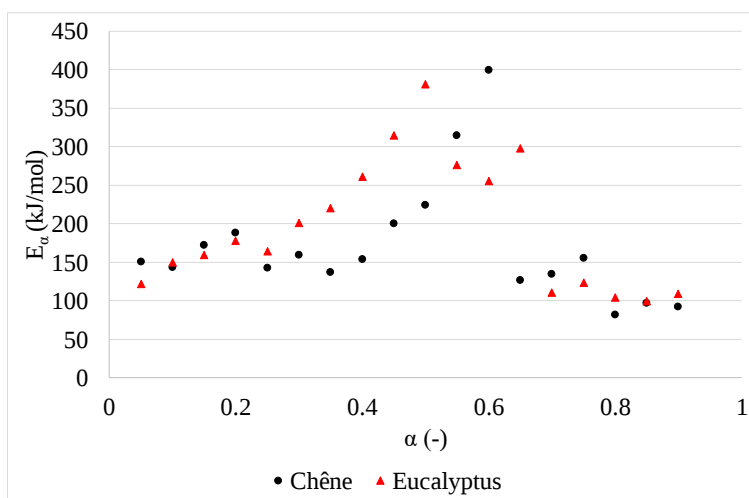


Figure 3.6 : Energie d'activation du chêne et de l'eucalyptus en fonction du degré d'avancement.

2.2. Présentation des mécanismes réactionnels

En se basant sur les résultats de l'analyse thermogravimétrique et de l'analyse cinétique précédente, nous avons décidé de tester des mécanismes réactionnels en quatre étapes pour représenter la dégradation thermique des deux bois sous air : les trois premières étapes correspondent à la gazéification du bois et la dernière à l'oxydation du résidu charbonneux formé lors de la gazéification. Trois mécanismes ont été développés afin de rendre compte des différents schémas réactionnels rencontrés dans la littérature [35,62,64,67,77–79,88] à savoir le mécanisme par constituants, le mécanisme global, un mécanisme faisant apparaître une forme activée du matériau initial. Pour compléter cette étude, nous avons également développé un mécanisme simplifié comportant uniquement deux réactions. Ce type de mécanisme est en effet couramment utilisé dans les modèles détaillés d'incendie [8,9,41]. La comparaison des performances de ce mécanisme réactionnel avec ceux des mécanismes plus détaillés permettra de déterminer si genre de schéma réactionnel est adéquat pour la modélisation de la dégradation du bois.

2.2.1. Mécanisme par constituants

Le premier mécanisme réactionnel est basé sur un mécanisme par constituants [61,79,127]. On suppose que le bois sec (BS) est majoritairement constitué d'hémicellulose, de cellulose et de lignine, de fractions massiques respectives p_1 , p_2 et p_3 . Le principal inconvénient de ce mécanisme est qu'il néglige les interactions entre les différents bio-polymères qui sont liés à l'intérieur du bois dans une matrice commune. Pour limiter ce défaut, les paramètres cinétiques de ce mécanisme ont été identifiés sur des

courbes de perte de masse du bois où les interactions entre les différents constituants du bois ont lieu. Par conséquent, même si les interactions entre l'hémicellulose, la cellulose et la lignine n'apparaissent pas explicitement dans le mécanisme réactionnel, les paramètres cinétiques les prennent intrinsèquement en compte. On considère que chaque constituant du bois sec se décompose indépendamment des autres, ce qui entraîne la formation de gaz et de résidu charbonneux. L'oxydation du résidu charbonneux est représentée par une réaction à une étape produisant des gaz et des cendres :

$$BS = p_1 \text{Hémicellulose} + p_2 \text{Cellulose} + p_3 \text{Lignine} \quad (3.5)$$

$$\text{Hémicellulose} \xrightarrow{1} v_1 \text{Charbon} + (1 - v_1) \text{Gaz} \quad (3.6)$$

$$\text{Cellulose} \xrightarrow{2} v_2 \text{Charbon} + (1 - v_2) \text{Gaz} \quad (3.7)$$

$$\text{Lignine} \xrightarrow{3} v_3 \text{Charbon} + (1 - v_3) \text{Gaz} \quad (3.8)$$

$$\text{Charbon} + v_{O_2} O_2 \xrightarrow{4} v_4 \text{Cendres} + ((1 - v_4) + v_{O_2}) \text{Gaz} \quad (3.9)$$

où v_i (pour $i = [1,4]$) représentent les coefficients stœchiométriques massiques. Comme la dégradation thermique des composés extractibles a principalement lieu en dessous de 150°C, les fractions massiques d'hémicellulose, de cellulose et de lignine données dans le Tableau 2-2 ont été modifiées pour éliminer la partie correspondante à ces composés (Tableau 3-4). Ces proportions sont fixées et ne sont pas optimisées.

Les vitesses de réaction $\dot{\omega}_i = \frac{d\alpha_i}{dt}$ des différentes étapes sont définies comme suit :

$$\dot{\omega}_i = (1 - \alpha_i)^{n_i} \cdot A_i \cdot \exp\left(-\frac{E_{a_i}}{R.T}\right) \quad \text{pour } 1 \leq i \leq 3 \quad (3.10)$$

$$\dot{\omega}_4 = (p_1 \alpha_1 + p_2 \alpha_2 + p_3 \alpha_3 - \alpha_4)^{n_4} \cdot A_4 \cdot \exp\left(-\frac{E_{a_4}}{R.T}\right) \quad (3.11)$$

où n_i est l'ordre de la réaction.

Ainsi, les vitesses de conversion en gaz de l'hémicellulose, de la cellulose et de la lignine sont données par les équations suivantes :

$$V_1 = (1 - v_1) \frac{d\alpha_1}{dt} \quad (3.12)$$

$$V_2 = (1 - v_2) \frac{d\alpha_2}{dt} \quad (3.13)$$

$$V_3 = (1 - v_3) \frac{d\alpha_3}{dt} \quad (3.14)$$

La vitesse de conversion en gaz du résidu charbonneux est donnée par :

$$V_4 = (1 - v_4)(v_1 p_1 + v_2 p_2 + v_3 p_3) \frac{d\alpha_4}{dt} \quad (3.15)$$

Enfin, la production de cendres est donnée par :

$$V_{\text{cendres}} = v_4 \frac{d\alpha_{\text{cendres}}}{dt} \quad (3.16)$$

Avec :

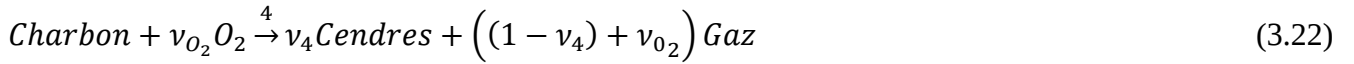
$$\alpha_{cendres} = \frac{m_{cendres}(t)}{m_{cendres}(\infty)} \quad (3.17)$$

La vitesse de transformation totale du bois en gaz est obtenue ensuite par l'équation suivante :

$$\frac{d\alpha}{dt} = p_1 V_1 + p_2 V_2 + p_3 V_3 + V_4 \quad (3.18)$$

2.2.2. Mécanisme global

Le deuxième mécanisme est basé sur un mécanisme global [35,77,78]. Il considère que le bois sec se décompose en suivant des étapes successives. Deux formes de bois intermédiaires (notées BS_1 et BS_2) sont créés pendant ces étapes avant de produire du résidu charbonneux puis des cendres :



Pour ce mécanisme, les vitesses de réaction des différentes étapes sont définies par les relations suivantes :

$$\dot{\omega}_1 = (1 - \alpha_1)^{n_1} A_1 \exp\left(-\frac{E_{a_1}}{RT}\right) \quad (3.23)$$

$$\dot{\omega}_i = (\alpha_{i-1} - \alpha_i)^{n_i} A_i \exp\left(-\frac{E_{a_i}}{RT}\right) \quad \text{pour } 2 \leq i \leq 4 \quad (3.24)$$

La vitesse de conversion du bois sec BS en gaz est donnée par l'équation suivante :

$$V_1 = (1 - \nu_1) \frac{d\alpha_1}{dt} \quad (3.25)$$

La vitesse de conversion en gaz de BS_1 est donnée par :

$$V_2 = (1 - \nu_2) \nu_1 \frac{d\alpha_2}{dt} \quad (3.26)$$

La vitesse de conversion en gaz de BS_2 correspond à :

$$V_3 = (1 - \nu_3) \nu_1 \nu_2 \frac{d\alpha_3}{dt} \quad (3.27)$$

La vitesse de conversion du résidu charbonneux en gaz est donnée par :

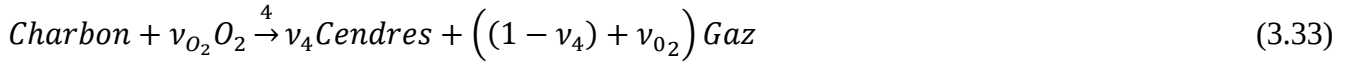
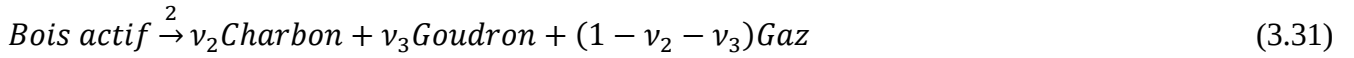
$$V_4 = (1 - \nu_4) \nu_1 \nu_2 \nu_3 \frac{d\alpha_4}{dt} \quad (3.28)$$

Le taux de production de cendres possède la même expression que pour le précédent mécanisme réactionnel, qui est donné par l'équation 3.16. La vitesse de transformation totale du bois en gaz est ensuite obtenue grâce à l'équation suivante :

$$\frac{d\alpha}{dt} = V_1 + V_2 + V_3 + V_4 \quad (3.29)$$

2.2.3. Mécanisme actif

Dans ce troisième mécanisme [82,88], la dégradation du bois sec inclut une première étape qui aboutit à la formation d'un composé appelé « bois actif ». Cette étape correspond à une réduction du degré de polymérisation du bois. Ensuite, le « bois actif » se dégrade en formant des gaz, des goudrons ainsi qu'un résidu charbonneux. Enfin, les goudrons et le résidu charbonneux subissent respectivement une gazéification et une oxydation :



Les vitesses de réaction de ce mécanisme réactionnel sont calculées grâce aux relations suivantes :

$$\dot{\omega}_1 = (1 - \alpha_1)^{n_1} A_1 \exp\left(-\frac{E_{a1}}{RT}\right) \quad (3.34)$$

$$\dot{\omega}_2 = (\alpha_1 - \alpha_2)^{n_2} A_2 \exp\left(-\frac{E_{a2}}{RT}\right) \quad (3.35)$$

$$\dot{\omega}_3 = (\alpha_2 - \alpha_3)^{n_3} A_3 \exp\left(-\frac{E_{a3}}{RT}\right) \quad (3.36)$$

$$\dot{\omega}_4 = (\alpha_2 - \alpha_4)^{n_4} A_4 \exp\left(-\frac{E_{a4}}{RT}\right) \quad (3.37)$$

La vitesse de conversion en gaz du bois sec *BS* correspond à :

$$V_1 = (1 - \nu_1) \frac{d\alpha_1}{dt} \quad (3.38)$$

La vitesse de transformation du « bois actif » en gaz est donnée par :

$$V_2 = (1 - \nu_2 - \nu_3) \nu_1 \frac{d\alpha_2}{dt} \quad (3.39)$$

La vitesse de conversion en gaz des goudrons est donnée par :

$$V_3 = \nu_1 \nu_3 \frac{d\alpha_3}{dt} \quad (3.40)$$

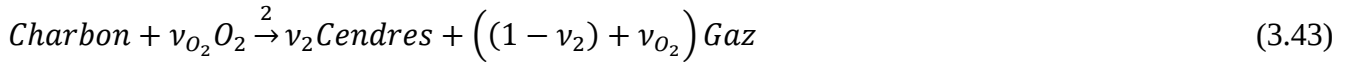
La vitesse de conversion du résidu charbonneux en gaz correspond à :

$$V_4 = (1 - \nu_4) \nu_1 \nu_2 \frac{d\alpha_4}{dt} \quad (3.41)$$

La production de cendres est donnée par l'équation 3.16. La vitesse de transformation totale du bois en gaz est obtenue ensuite par l'équation 3.29.

2.2.4. Mécanisme simplifié

Etant donné que le but de notre étude est de fournir un mécanisme simple et efficace pour représenter la dégradation thermique du bois, nous avons tenu à développer un mécanisme simplifié avec un nombre réduit d'étapes. Le schéma qui a été choisi comporte deux étapes [27,62] :



Pour ce mécanisme, les vitesses de réaction des différentes étapes sont définies par les relations suivantes :

$$\dot{\omega}_1 = (1 - \alpha_1)^{n_1} A_1 \exp\left(-\frac{E_{a_1}}{RT}\right) \quad (3.44)$$

$$\dot{\omega}_2 = (\alpha_1 - \alpha_2)^{n_2} A_2 \exp\left(-\frac{E_{a_2}}{RT}\right) \quad (3.45)$$

La vitesse de conversion du bois en gaz est donnée par l'équation suivante :

$$V_1 = (1 - \nu_1) \frac{d\alpha_1}{dt} \quad (3.46)$$

La vitesse de conversion en gaz du résidu charbonneux en gaz est donnée par :

$$V_2 = (1 - \nu_2) \nu_1 \frac{d\alpha_2}{dt} \quad (3.47)$$

Enfin, la production de cendres est donnée par :

$$\frac{d\alpha_{cendres}}{dt} = \nu_2 \dot{\omega}_2 \quad (3.48)$$

La vitesse de transformation totale du bois en gaz est obtenue ensuite par l'équation suivante :

$$\frac{d\alpha}{dt} = V_1 + V_2 \quad (3.49)$$

3. Choix de l'algorithme d'optimisation des paramètres cinétiques

Pour déterminer les paramètres cinétiques utilisés dans les différents mécanismes, à savoir le facteur pré-exponentiel, l'énergie d'activation, l'ordre de la réaction et les coefficients stœchiométriques, il est nécessaire d'utiliser une méthode d'optimisation. L'optimisation d'un mécanisme à paramètres passe par l'estimation de l'erreur entre les valeurs calculées et les données expérimentales. Les paramètres cinétiques optimisés sont obtenus lorsque cette erreur est minimale. Dans notre cas, pour évaluer la performance des paramètres, nous avons utilisé une fonction d'évaluation se basant sur une erreur

quadratique, qui évalue la somme des différences au carré des degrés de conversion globaux expérimentaux et modélisés :

$$\mathcal{F} = \sum_{i=1}^N \left[(\alpha_i^{exp} - \alpha_i^{cal})^2 \right] \quad (3.50)$$

Où les exposants *exp* et *cal* représentent respectivement les valeurs expérimentales et calculées et *N* est le nombre total de points de mesure.

La Figure 3.7 présente un schéma du fonctionnement général d'un algorithme d'optimisation [180]. Dans notre étude, nous nous sommes intéressés à deux méthodes d'optimisation heuristiques déjà utilisées dans le cadre de la détermination des paramètres cinétiques pour la dégradation thermique de matériaux à savoir : les algorithmes génétiques [100,123,143,181–183] et l'algorithme du gradient descendant ou algorithme de Levenberg-Marquardt [121].

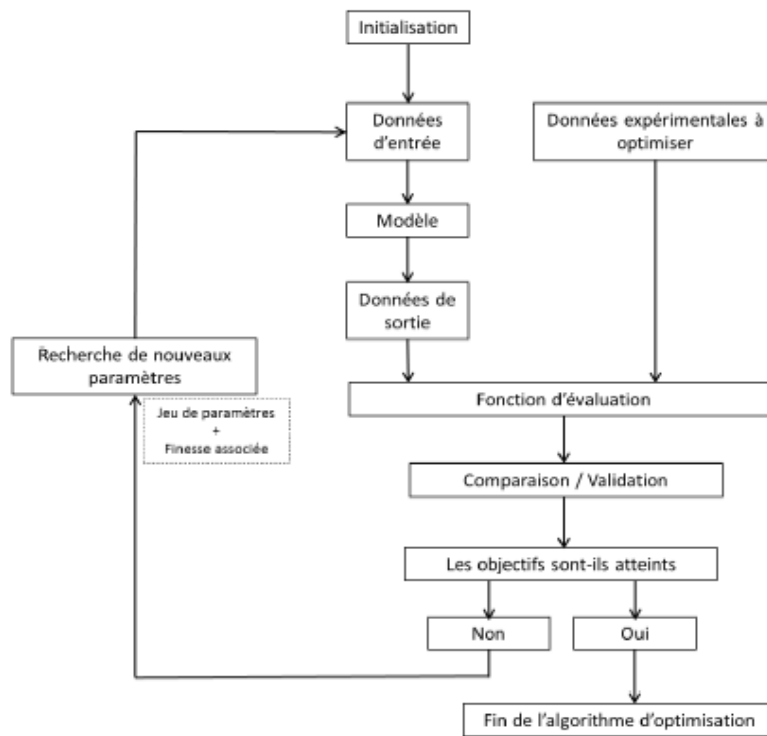


Figure 3.7 : Schéma de fonctionnement d'un algorithme d'optimisation [184].

3.1. Présentation des algorithmes testés

3.1.1. L'algorithme génétique

3.1.1.1. Généralités

Les algorithmes génétiques sont des algorithmes d'optimisation fondés sur les mécanismes de la sélection naturelle et de la génétique [184,185]. On part avec une population de solutions potentielles initiales,

appelées individus et arbitrairement choisis. On évalue leur performance à l'aide de la fonction d'évaluation choisie. Sur la base de cette valeur, on crée une nouvelle population de solutions potentielles en utilisant des opérateurs évolutionnaires : la sélection par élitisme, le croisement et la mutation. La sélection par élitisme permet de déterminer les individus les plus propices à obtenir les meilleurs résultats. Ce processus est inspiré de la sélection naturelle où les individus les plus adaptés gagnent la reproduction tandis que les moins adaptés meurent. Lors du processus de croisement, deux chromosomes s'échangent des parties de leurs chaînes pour former de nouveaux chromosomes. Ces croisements peuvent être simples ou multiples. Le but est d'enrichir la diversité de la population en manipulant la structure des individus. Il s'agit du processus essentiel du fonctionnement de l'algorithme génétique. Enfin, la mutation est un processus où un gène peut, de manière aléatoire à l'intérieur d'un chromosome, en remplacer un autre. De manière analogue au processus de croisement, on définit une probabilité de mutation généralement comprise entre 0,1 % et 1 %. Plus la probabilité est faible, plus le principe de sélection et de croisement est conservé. La mutation sert à éviter une convergence trop rapide de l'algorithme génétique. On recommence ce cycle jusqu'à ce que l'on trouve une solution satisfaisante.

3.1.1.2. Paramètres utilisés

Les optimisations utilisant l'algorithme génétique ont été effectuées sur MATLAB à l'aide du code qui est implémenté dans la boîte à outils « Global Optimization Toolbox ». Tout d'abord, la taille de la population a été fixée à 400 individus et la population initiale correspond aux paramètres cinétiques initiaux (dont la détermination est expliquée dans le paragraphe 3.2). Une fonction de mise à l'échelle de type *Rank* a été choisie. Cette méthode affecte à chaque individu un rang en fonction de sa performance (ou score brut). Ensuite, afin d'éviter une trop grande dispersion de ces scores (ce qui affecterait l'efficacité de l'algorithme), un nouveau score est calculé en divisant le score brut par la racine carrée de son rang.

La génération suivante de la population a été créée en utilisant l'élitisme, le croisement et la mutation avec la méthode de sélection *Stochastic*. Cette méthode consiste à répartir aléatoirement les individus sur un segment. La place que chacun occupera sera proportionnelle à son score. On répartit ensuite un ensemble de points équidistants sur ce segment, la position de chaque point correspondant à un futur parent.

A chaque étape, 5 % des individus sont directement sélectionnés pour la nouvelle génération (élitisme). Il s'agit des individus de la population ayant les scores les plus élevés. Les autres individus sont sélectionnés de manière aléatoire pour être croisés ou mutés. Le croisement des individus a été effectué avec la fonction *Scattered*. Lors du croisement, un vecteur binaire est créé de manière aléatoire et sélectionne les gènes du premier parent lorsque la valeur vaut 1 et les gènes du deuxième parent lorsque la valeur vaut 0. Nous avons choisi d'utiliser un taux de croisement de 76 %. Pour réaliser les mutations des individus, nous avons utilisé la fonction *Adaptive Feasible* qui est utilisée par défaut lorsque le problème est contraint. Les individus subissant une mutation correspondent à 19 % de la population initiale après sélection des élites.

Enfin, nous avons choisi un critère d'arrêt basé sur une fonction de tolérance. L'arrêt de l'algorithme est fixé lorsque la variation de la fonction d'évaluation entre deux itérations est inférieure à 10^{-6} .

3.1.2. L'algorithme du gradient descendant ou algorithme de Levenberg-Marquardt

L'algorithme du gradient descendant [186–188] est basé sur la régression par la méthode des moindres carrés. Il consiste à minimiser l'erreur $\mathcal{F}(q)$ qui est une fonction du vecteur q représentant l'ensemble des paramètres cinétiques [188]. La méthode du gradient descendant a pour objectif de déterminer q_0 de sorte que $\mathcal{F}(q_0)$ soit un minimum local de la fonction $\mathcal{F}(q)$. Lorsque q_0 est déterminé, les paramètres cinétiques obtenus minimisent l'erreur entre le calcul et les données expérimentales.

L'erreur $\mathcal{F}$ est définie comme le carré de la différence entre le degré d'avancement défini à partir des données expérimentales aux temps t_i et l'estimation du degré d'avancement modélisé α_q à ces mêmes instants :

$$\mathcal{F}(q) = \sum_{i=1}^n \left(\alpha_q(t_i) - \alpha(t_i) \right)^2 \quad (3.51)$$

Un développement limité de $\mathcal{F}(q)$ à l'ordre 2 permet d'écrire [188] :

$$\mathcal{F}(q + dq) = dq^T \frac{H}{2} dq + J^T dq + \mathcal{F}(q) + o(dq) \quad (3.52)$$

où J et H représente respectivement la matrice Jacobienne et Hessienne de $\mathcal{F}(q)$ estimée en q . Si H est définie positive, $\mathcal{F}(q + dq)$ est un minimum local lorsque :

$$dq = -H^{-1}J \quad (3.53)$$

Le changement des paramètres cinétiques à travers les itérations de l'algorithme s'exprime de la façon suivante :

$$q_{n+1} = q_n - H^{-1}J \quad (3.54)$$

Si le problème n'est pas linéaire ou que la matrice H n'est pas définie positive, la variation de q est diminuée avec l'utilisation d'un paramètre θ positif :

$$q_{n+1} = q_n - (H + \theta.I)^{-1}.J \quad (3.55)$$

Où I est la matrice identité.

Cette méthode d'optimisation des paramètres cinétiques permet d'obtenir une convergence de la solution en un nombre fini d'itérations [188]. Cependant, l'inconvénient est que la convergence se situe dans un extrémum local et dépend donc des conditions initiales. Le jeu de paramètres cinétiques obtenus n'est pas forcément le jeu de paramètres optimal.

3.2. Test de performance des deux algorithmes d'optimisation

Avant de déterminer les paramètres cinétiques des quatre mécanismes développés dans cette étude, un test de performance a été réalisé sur les deux algorithmes d'optimisation. Les calculs ont été effectués avec MATLAB. Pour comparer les deux algorithmes, deux critères ont été utilisés : le temps de simulation et le facteur de performance moyen défini par la relation suivante :

$$Fit = \sqrt{\frac{\mathcal{F}}{N}} \quad (3.56)$$

Où N est le nombre total de points de mesure. Le test de performance a été réalisé en utilisant l'algorithme génétique et l'algorithme du gradient descendant sur les courbes expérimentales du chêne sous atmosphère inerte avec le mécanisme réactionnel global. Pour les deux algorithmes, nous avons initialisé le calcul avec le même jeu de paramètres initiaux donnés dans le Tableau 3-3. Les résultats obtenus sont indiqués dans le Tableau 3-3. Dans le cas de l'algorithme du gradient descendant, la méthode d'optimisation étant déterministe, une seule répétition a été effectuée. Le critère d'arrêt de cet algorithme se base sur l'erreur relative de la fonction $\mathcal{F}$ entre l'itération N et l'itération N+1 qui doit être inférieure à 10^{-15} . Le temps de calcul est de 98 min. Le facteur de performance est par ailleurs très satisfaisant ($1,06 \times 10^{-2}$). Dans le cas de l'algorithme génétique, trois répétitions ont été réalisées. Elles ont produit deux jeux de paramètres différents avec des facteurs de performance de $1,08 \times 10^{-2}$ (jeu A) et de $1,59 \times 10^{-2}$ (jeu B). Le jeu A a été obtenu avec deux répétitions. Le temps de calcul est en moyenne six fois supérieur à celui du gradient descendant. Les calculs ont en effet duré 423 min pour le jeu A et 870 min pour le jeu B. La Figure 3.8 présente les résultats de simulation pour les trois jeux de paramètres identifiés. Les simulations obtenues avec les paramètres de l'algorithme du gradient descendant ainsi que celles correspondant au jeu A de l'algorithme génétique sont très proches des données expérimentales. Par contre, dans le cas du jeu B de l'algorithme génétique, les paramètres cinétiques obtenus ont tendance à anticiper la première réaction, à sous-estimer l'intensité de la deuxième réaction et à lisser la troisième réaction.

Tableau 3-3 : Résultat du test de performance des deux algorithmes d'optimisation.

Algorithme	Essai	Réactions	n_i	$\ln(A_i)$ (s ⁻¹)	E_{ai} (kJ/mol)	v_i	Facteur de performance moyen (-)	Temps de calcul (min)
Paramètres initiaux	-	1	1,00	30,00	160,00	0,90	-	-
		2	1,00	30,00	190,00	0,50		
		3	1,00	20,00	160,00	0,60		
Génétique	Essais 1 et 3 (jeu A)	1	2,98	32,63	178,1	0,69	$1,08 \times 10^{-2}$	423
		2	0,57	30,92	190,8	0,45		
		3	3,00	35,70	250,0	0,79		
	Essai 2 (jeu B)	1	1,68	45,32	230,8	0,84	$1,59 \times 10^{-2}$	870
		2	3,00	33,26	194,6	0,62		
		3	2,06	44,42	250,0	0,49		
Gradient descendant	-	1	1,89	31,72	171,69	0,78	$1,06 \times 10^{-2}$	98
		2	1,17	34,25	206,41	0,42		
		3	3,00	35,71	250,00	0,73		

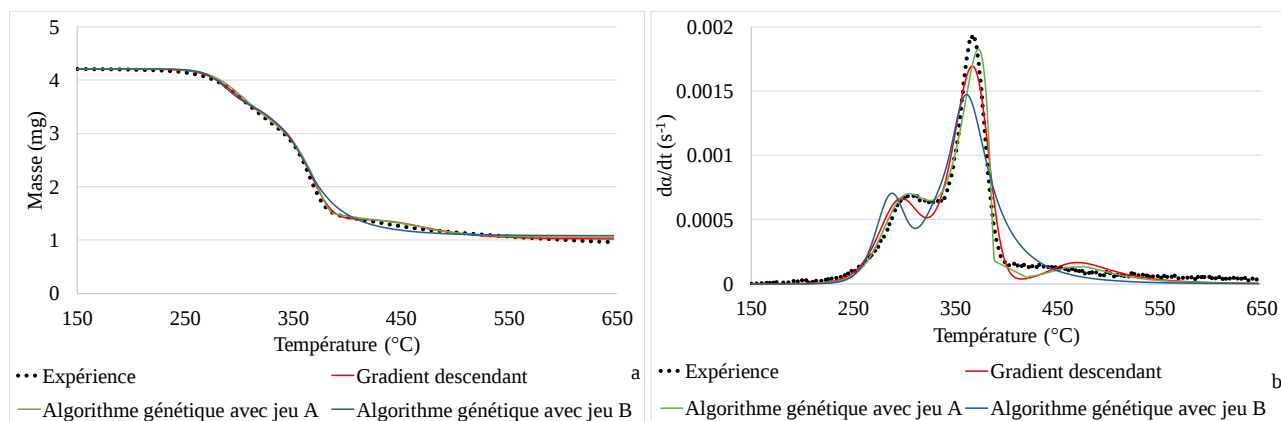


Figure 3.8 : Résultats du test de performance sur les expériences du chêne sous atmosphère inerte avec une vitesse de chauffe de 10 °C/min. Courbes de : a) perte de masse b) vitesse de conversion.

Pour conclure sur ce test de performance, les résultats ont montré qu'avec l'algorithme génétique le jeu de paramètre trouvé était variable même en partant toujours d'une même population initiale, et que chaque répétition n'entraînait pas le même résultat. De plus, les simulations obtenues présentent des facteurs de performance variables et les temps de calculs sont longs. En revanche, dans les mêmes conditions, en utilisant l'algorithme du gradient descendant, le résultat obtenu est toujours le même avec un temps de calcul très inférieur. Compte tenu du temps de calcul et de la valeur du facteur de performance moyen obtenu, nous avons choisi d'utiliser pour la suite de la thèse l'algorithme du gradient descendant pour déterminer les paramètres cinétiques des différents mécanismes.

Avant de lancer les calculs d'optimisation, les valeurs optimisées ont été encadrées par des bornes inférieures et supérieures pour s'assurer que les résultats restent cohérents. En se basant sur la Figure 3.6, nous avons encadré la valeur de l'énergie d'activation de la première réaction entre 120 et 190 kJ/mol, celles de la deuxième réaction et de la troisième réaction entre 120 et 400 kJ/mol et la dernière pour l'oxydation du résidu carbonneux entre 100 et 140 kJ/mol. Les ordres de réactions ont été bornés entre 0 et 5. Pour le facteur pré-exponentiel, nous avons décidé de travailler sur ce paramètre en prenant son logarithme afin de réduire de manière conséquente sa plage de variation. Pour l'optimisation, nous avons considéré des valeurs pour lesquelles $\ln(A)$ varie entre 0 et 50 s⁻¹ [35,62,77,78]. Les coefficients stœchiométriques ont été bornés entre 0 et 1. L'optimisation des paramètres cinétiques a été réalisée en utilisant les courbes expérimentales obtenues par analyse thermogravimétrique sous atmosphère oxydante avec les cinq vitesses de chauffe.

4. Evaluation des mécanismes cinétiques sur les expériences à l'échelle matière sous atmosphère oxydante

4.1. Mécanisme par constituants

La Figure 3.9 présente les pertes de masse expérimentales et calculées avec l'approche par constituants pour une vitesse de chauffe de 10°C/min. La représentation des pertes de masse expérimentales et calculées aux autres vitesses de chauffe est donnée en Annexe F. Ce mécanisme cinétique permet de représenter de manière efficace la dégradation thermique des deux types de bois. En effet, la perte de masse calculée est très proche de la perte de masse expérimentale de chaque bois. Les facteurs de

performance sont respectivement de $1,49 \times 10^{-2}$ et $1,34 \times 10^{-2}$ pour le chêne et l'eucalyptus. La représentation de la dégradation thermique de l'eucalyptus est donc légèrement meilleure que celle du chêne.

Le Tableau 3-4 présente les valeurs des paramètres cinétiques obtenues pour les deux bois. Les énergies d'activation pour la dégradation de l'hémicellulose, de la cellulose et de la lignine valent respectivement 162,16 kJ/mol, 190,53 kJ/mol et 168,13 kJ/mol pour le chêne et 143,99 kJ/mol, 164,56 kJ/mol et 204,29 kJ/mol pour l'eucalyptus. Pour la première étape de la dégradation thermique correspondant à la dégradation de l'hémicellulose, la plage de variation de l'énergie d'activation rencontrée dans la littérature s'étend entre 147,00 kJ/mol, valeur déterminée par Branca et coll. [35] jusqu'à 169,07 kJ/mol [81]. Les valeurs obtenues pour le chêne et l'eucalyptus sont en accord avec ces données même si l'énergie d'activation obtenue pour l'eucalyptus est légèrement inférieure à la valeur minimale obtenue par Branca et coll. [35]. La valeur obtenue pour le chêne est très proche de celle déterminée par Batiot pour du sapin, avec une valeur de 166,44 kJ/mol [81]. Pour la deuxième réaction correspondant à la dégradation de la cellulose, les énergies d'activation rencontrées dans la littérature varient entre 154,05 et 193,00 kJ/mol [24,35,81] ce qui est en accord avec les valeurs obtenues dans notre étude. Pour la troisième réaction correspondant à la dégradation de la lignine, la plage des énergies d'activation est plus étendue et varie entre 155,25 et 211,77 kJ/mol [24,81]. L'énergie d'activation de l'eucalyptus est légèrement supérieure à la valeur maximale obtenue par Chen et coll. [24] (201,60 kJ/mol) mais notre valeur reste cohérente avec la littérature.

En ce qui concerne les ordres de réaction, ils ne dépassent pas 2,34 pour le chêne et 3,00 pour l'eucalyptus. Les ordres de réaction obtenus pour le chêne et l'eucalyptus sont supérieurs aux valeurs rencontrées dans la littérature qui ne dépassent pas respectivement 1,17 et 1,00 pour la dégradation de l'hémicellulose et de la cellulose. Pour la lignine, les valeurs de la littérature varient entre 1,00 et 2,91 [35,81] ce qui est en accord avec les résultats obtenus pour le chêne. Ces ordres de réaction élevés traduisent la présence de réactions complexes [27] vraisemblablement due aux interactions entre les bio-polymères. Pour l'eucalyptus, la valeur obtenue est légèrement supérieure aux valeurs rencontrées dans la littérature.

Les valeurs $\ln(A_i)$ obtenues pour le facteur pré-exponentiel varient pour les trois premières réactions entre 21,97 et 31,84 s^{-1} pour le chêne et entre 26,36 et 30,50 s^{-1} pour l'eucalyptus. Chen et coll. [24] obtiennent des valeurs variant entre 27,59 et 28,22 s^{-1} pour l'hémicellulose, entre 27,87 et 31,47 s^{-1} pour la cellulose et entre 26,37 et 29,42 s^{-1} pour la lignine. En ce qui concerne le chêne, la valeur obtenue est très proche pour la dégradation de la cellulose et respectivement légèrement supérieure et inférieure pour la dégradation de l'hémicellulose et de la lignine. Pour l'eucalyptus, les valeurs obtenues pour la dégradation de l'hémicellulose et de la cellulose sont légèrement inférieures à celles de Chen et coll. [24] tandis que pour la dégradation de la lignine, la valeur obtenue est légèrement supérieure. Pour l'oxydation du résidu charbonneux, les valeurs des énergies d'activation obtenues après optimisation sont autour de 120,00 kJ/mol pour les deux bois. Il est difficile de comparer cette valeur à la littérature car il existe une grande variabilité de données. Néanmoins, nous pouvons observer que nos résultats sont par exemple très inférieurs à ceux obtenus par Benkorichi et coll. [78] et par Branca et Di Blasi [80], où les valeurs varient entre 172,00 et 183,00 kJ/mol pour des aiguilles de pin, du sapin et du hêtre. Par contre, nos valeurs sont proches de celles obtenues par Cancellieri et coll. [62] pour du ciste ou de la bruyère où les valeurs varient entre 114,00 et 126,00 kJ/mol. Si on compare les paramètres cinétiques des trois premières réactions avec ceux de l'oxydation du résidu charbonneux, on remarque que les valeurs de $\ln(A_i)$ sont inférieures

d'environ 9 s^{-1} pour le chêne et d'environ 15 s^{-1} pour l'eucalyptus. Les ordres de réaction sont également inférieurs aux valeurs obtenues pour les réactions précédentes, avec une valeur de 0,55 pour le chêne et de 0,67 pour l'eucalyptus. Les ordres de réactions obtenus pour le chêne et l'eucalyptus étant faibles, l'oxydation du résidu charbonneux semble correctement modélisée avec une seule étape [27].

En ce qui concerne les coefficients stœchiométriques, la somme $\sum_i v_i p_i$ pour les trois premières réactions correspond à la conversion du bois en résidu charbonneux. Nous obtenons une valeur de 22 % pour le chêne et une valeur de 33 % pour l'eucalyptus. La fraction massique de résidu charbonneux déterminée par le mécanisme par constituants pour la dégradation thermique du chêne est en accord avec celle déterminée lors des expériences sous atmosphère inerte. Toutefois, pour l'eucalyptus la valeur obtenue est supérieure de 7 % à la valeur déterminée expérimentalement sous atmosphère inerte. Les résultats obtenus pour les deux bois montrent que la lignine est le composé qui forme majoritairement du résidu charbonneux, ce qui est en accord avec les résultats de la littérature. Les valeurs obtenues pour les deux bois sont en accord avec les résultats de Richter et Rein et de Batiot [81,189]. L'hémicellulose forme ensuite une partie importante du résidu charbonneux avec un coefficient stœchiométrique de 0,26 pour le chêne et de 0,48 pour l'eucalyptus. L'eucalyptus présente une valeur plus importante que celle rencontrée dans la littérature, qui est de 0,35 tandis que pour le chêne, elle est inférieure [81,189]. En revanche, lorsque la cellulose est dégradée, les résultats de l'approche par constituants montre que la majeure partie de la conversion se fait en gaz et non en résidu charbonneux. Ce résultat a également été trouvé par Richter et Rein [189] avec une valeur de 0,13, qui est toutefois supérieure aux valeurs obtenues pour le chêne et l'eucalyptus. Le coefficient stœchiométrique v_4 de la réaction d'oxydation du résidu charbonneux est de 0,04 pour le chêne et nul pour l'eucalyptus. Ce résultat est en accord avec les proportions de cendres obtenues lors de l'analyse chimique où le chêne produit plus de cendres que l'eucalyptus (Tableau 2-1).

Tableau 3-4 : Paramètres cinétiques obtenus avec le mécanisme par constituants pour le chêne et l'eucalyptus.

Bois	Réactions	n_i	$\ln(A_i)$ (s^{-1})	E_{ai} (kJ/mol)	v_i	p_i	Facteur de performance moyen (-)
Chêne	1	2,34	29,56	162,16	0,26	0,32	$1,49 \times 10^{-2}$
	2	1,32	31,84	190,53	0,01	0,38	
	3	1,63	21,97	168,13	0,45	0,30	
	4	0,55	12,50	119,86	0,04	-	
Eucalyptus	1	2,06	26,36	143,99	0,48	0,20	$1,34 \times 10^{-2}$
	2	0,57	26,39	164,56	0,07	0,43	
	3	3,00	30,50	204,29	0,54	0,37	
	4	0,67	11,79	121,90	0,00	-	

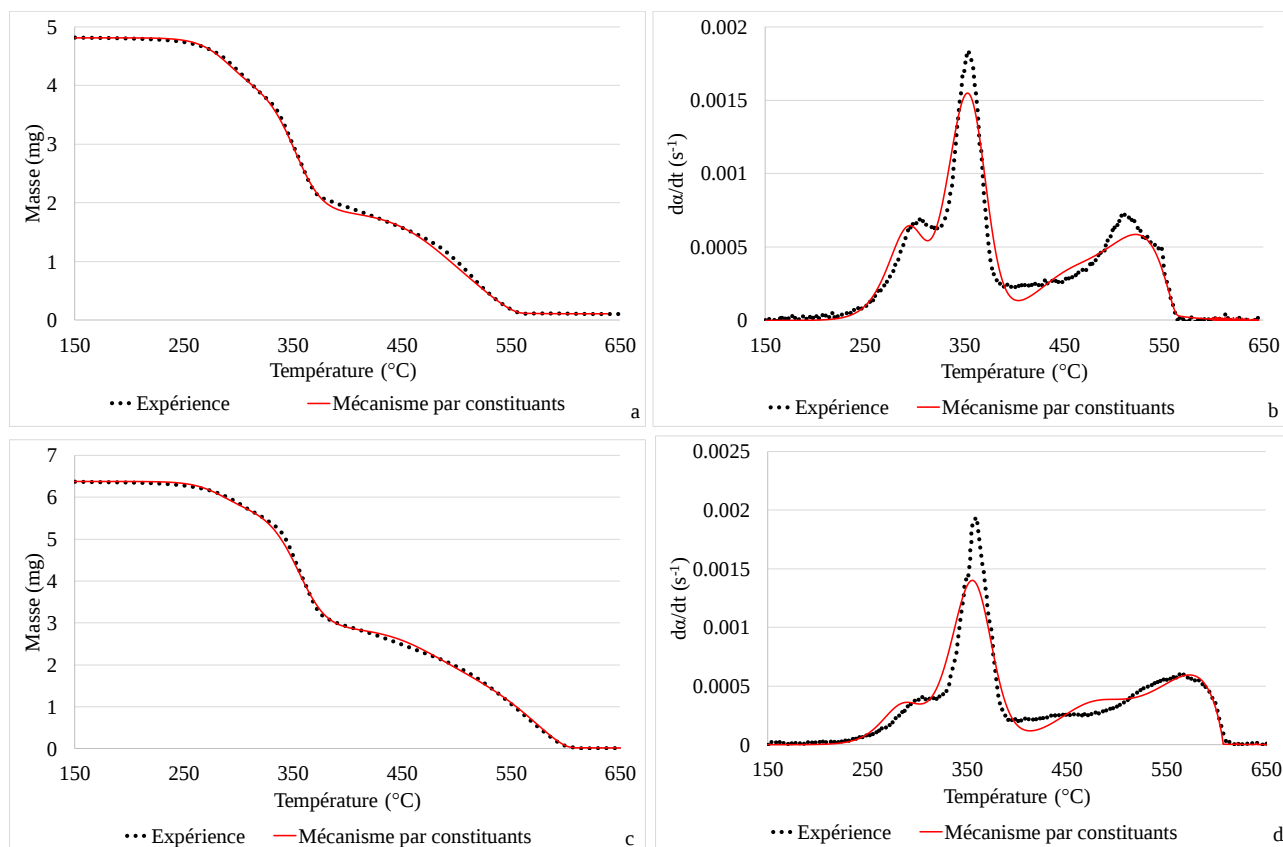


Figure 3.9 : Résultats de l'optimisation des paramètres cinétiques avec le mécanisme par constituants avec une vitesse de chauffe de 10 °C/min pour : a) la perte de masse du chêne b) la vitesse de conversion du chêne c) la perte de masse de l'eucalyptus et d) la vitesse de conversion de l'eucalyptus.

Afin d'étudier plus en détail chaque étape du mécanisme par constituants, nous avons tracé dans la Figure 3.10 les vitesses de conversion en gaz de chaque réaction pour une vitesse de chauffe de 20°C/min. A cette vitesse de chauffe, la première réaction démarre à 200°C et finit à 384°C avec un maximum à 297°C pour l'eucalyptus. On considère qu'une réaction est terminée lorsque la vitesse de conversion est inférieure à 0,01 s⁻¹. Pour le chêne, cette réaction démarre à 200°C et finit à 426°C avec un maximum à 309°C. Ce résultat est en accord avec la plage de température sur laquelle se décompose l'hémicellulose (entre 215°C et 400°C) [33,34]. La deuxième réaction a lieu entre 275°C et 394°C avec un maximum à 379°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, elle a lieu entre 275°C et 425°C avec un maximum à 369°C. Ce résultat est en accord avec la plage de température observée dans la littérature pour la décomposition de la cellulose (entre 320°C et 400°C) [34]. La troisième réaction a lieu entre 335°C et 605°C avec une valeur maximale à 432°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, cette réaction a lieu entre 370°C et 600°C avec un maximum observé à 491°C. Ce résultat situe la décomposition de la lignine dans une plage de température plus restreinte que celles observées dans la littérature (entre 200°C et 1000°C) [34,35,38]. Enfin, l'oxydation du résidu carbonneux commence à 420°C et finit à 660°C avec une vitesse maximale de perte de masse à 604°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, cette réaction démarre à 400°C et se termine à 600°C avec un maximum à 561°C. Dans la littérature [62], cette réaction se situe entre 370°C et 600°C avec un pic maximum se situant à des températures inférieures à 500°C. Cette réaction a donc lieu plus tardivement pour nos espèces de bois.

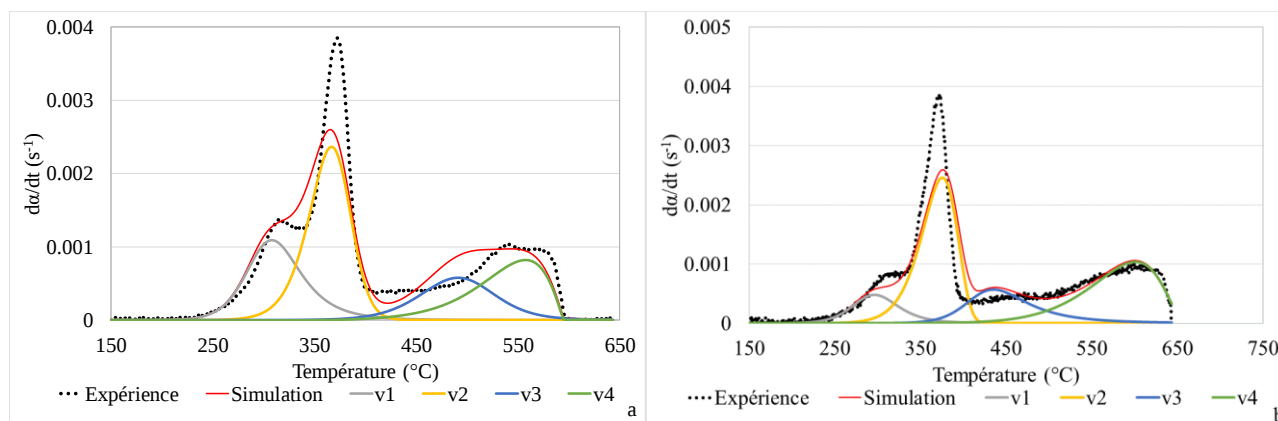


Figure 3.10 : Evolution du taux de conversion global et des taux de conversion en gaz des réactions pour le mécanisme par constituants en fonction de la température à une vitesse de chauffe de 20°C/min : a) du chêne et b) de l'eucalyptus.

4.2. Mécanisme global

La Figure 3.11 présente les pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme global pour une vitesse de chauffe de 10°C/min pour les deux bois. Les courbes des autres vitesses de chauffe sont données en Annexe F. Les valeurs correspondantes des paramètres cinétiques sont indiquées dans le Tableau 3-5. Comme pour le mécanisme par constituants, le mécanisme global permet de modéliser la dégradation thermique des deux bois de manière satisfaisante. On obtient en effet des facteurs de performance moyens de $1,32 \times 10^{-2}$ pour l'eucalyptus et de $1,38 \times 10^{-2}$ pour le chêne. Ces valeurs sont légèrement plus faibles que celles obtenues avec le mécanisme par constituants pour les deux espèces de bois, avec toujours une meilleure précision pour l'eucalyptus. Concernant les paramètres cinétiques, les valeurs des énergies d'activation des trois premières réactions varient entre 160,15 kJ/mol et 188,78 kJ/mol pour le chêne et entre 144,31 kJ/mol et 206,08 kJ/mol pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont globalement plus élevées que celles obtenues dans la littérature pour du bois de contreplaqué et des aiguilles de Pin où les valeurs des énergies d'activation sont comprises entre 96,50 et 206,20 kJ/mol [15,77,78]. On observe une correspondance entre l'énergie d'activation obtenue par Fateh et coll. [77] pour la troisième réaction, qui est de 206,20 kJ/mol et la valeur obtenue pour la troisième réaction de l'eucalyptus.

En ce qui concerne le facteur pré-exponentiel $\ln(A_i)$, les valeurs obtenues varient entre 24,19 et 31,79 s⁻¹ pour le chêne et entre 26,43 et 30,25 s⁻¹ pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont très proches de celles obtenues avec le mécanisme par constituants. Les valeurs de la littérature varient entre 2,30 et 38,91 s⁻¹ [15,31,77,78]. Nous obtenons des valeurs proches de celles obtenues par Fateh et coll. pour du bois de contreplaqué [77] pour leur deuxième réaction, avec une valeur de $\ln(A_i)$ de 25,33 s⁻¹ qui est proche de celle de l'eucalyptus.

Les ordres de réaction des trois premières réactions varient entre 1,21 et 1,59 pour le chêne et entre 0,71 et 2,38 pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont plus faibles que celles obtenues avec le mécanisme par constituants avec toujours une valeur plus élevée pour la troisième réaction de l'eucalyptus afin de permettre une bonne modélisation du plateau caractéristique de cette troisième étape sur la courbe de la

vitesse de conversion (Figure 3.11). Les valeurs de la littérature varient entre 0,90 et 2,70 [15,77,78]. L'ordre de réaction obtenu pour la première réaction du chêne et de l'eucalyptus est proche des résultats de Fateh et coll. [77] qui ont déterminé une valeur de 1,2. L'ordre de réaction de la troisième réaction de l'eucalyptus est proche de celui déterminé par Benkorichi et coll. pour des aiguilles de Pin, avec une valeur de 2,70 [78]. La valeur obtenue pour la deuxième réaction de l'eucalyptus est inférieure à la valeur minimale de 1,00 donnée par Benkorichi et coll. [78]. Les valeurs obtenues des énergies d'activation pour l'oxydation du résidu charbonneux sont respectivement de 117,96 kJ/mol et de 121,46 kJ/mol pour le chêne et l'eucalyptus. Elles sont très proches des valeurs obtenues avec le mécanisme par constituants, ce qui est cohérent avec le type de loi cinétique utilisé pour les deux mécanismes réactionnels. En ce qui concerne les facteurs pré-exponentiels, ils varient entre 11,80 et 12,38 s⁻¹. La valeur obtenue pour le chêne est supérieure à celle de l'eucalyptus et ces valeurs sont similaires à celles obtenues avec le mécanisme par constituants. Pour les ordres de réactions, nous obtenons respectivement une valeur de 0,58 pour le chêne et de 0,76 pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont légèrement supérieures à celles de Cancellieri et coll. [62] qui obtiennent des ordres de réaction variant entre 0,43 et 0,52 et sont similaires à celles obtenues avec le mécanisme par constituants. Enfin, le coefficient stœchiométrique ν_4 de cette réaction est de 0,03 pour le chêne. Cette valeur est légèrement inférieure à celle déterminée avec le mécanisme par constituants. Elle est en accord avec les données de la littérature [16,189].

En ce qui concernent les coefficients stœchiométriques des trois premières réactions, leur produit correspondant à $\prod_i \nu_i$ est égal à 25 % pour le chêne et 33 % pour l'eucalyptus. Ces résultats sont semblables à ceux obtenus avec le mécanisme par constituants avec une légère surestimation de la conversion en résidu charbonneux pour le chêne.

Tableau 3-5 : Paramètres cinétiques obtenus avec le mécanisme global pour le chêne et l'eucalyptus.

Bois	Réactions	n_i	$\ln(A_i)$ (s ⁻¹)	E_{ai} (kJ/mol)	ν_i	Facteur de performance moyen (-)
Chêne	1	1,21	29,66	160,15	0,85	1,38×10 ⁻²
	2	1,58	31,79	188,78	0,45	
	3	1,59	24,19	178,04	0,66	
	4	0,58	12,38	117,96	0,03	
Eucalyptus	1	1,21	26,47	144,31	0,91	1,32×10 ⁻²
	2	0,71	26,43	164,46	0,52	
	3	2,38	30,25	206,08	0,69	
	4	0,76	11,80	121,46	0,00	

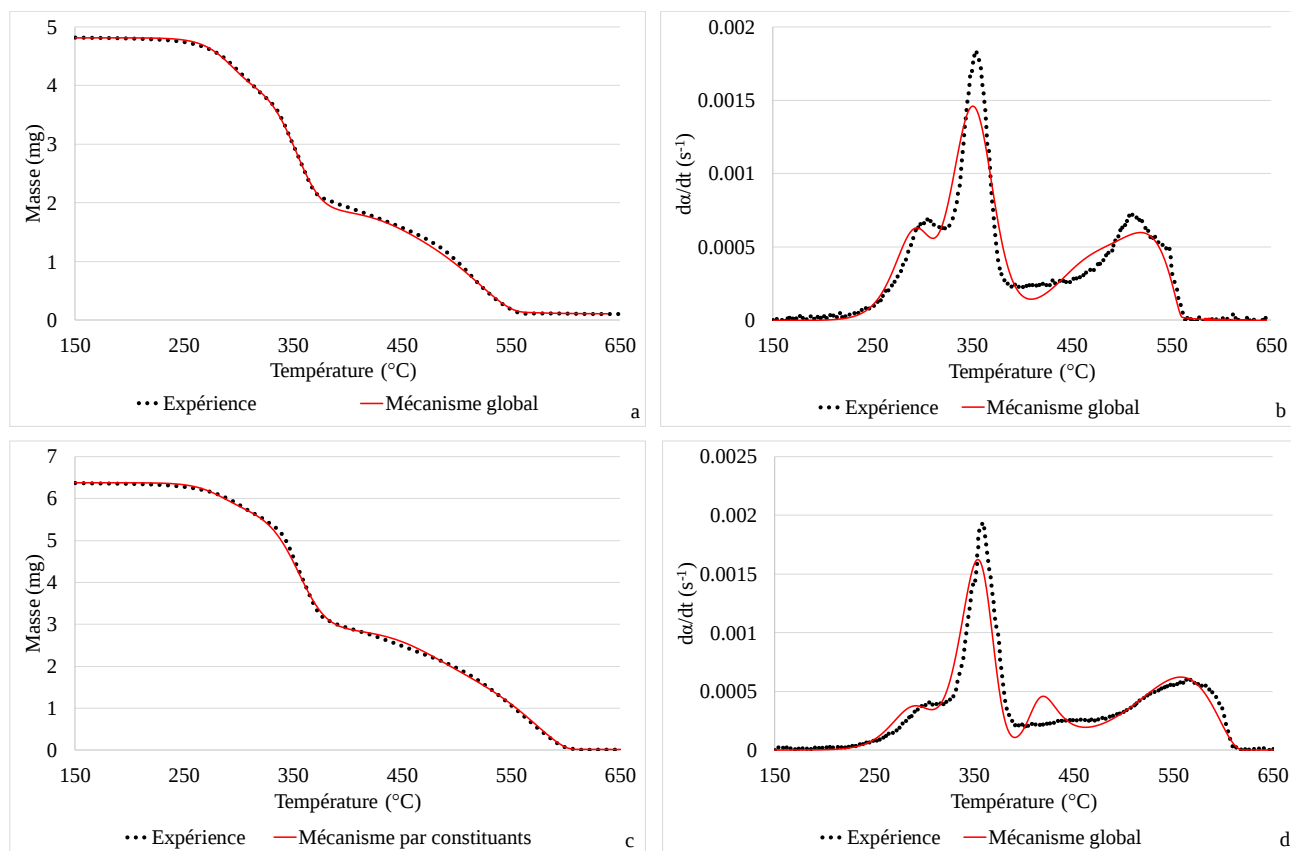


Figure 3.11 : Résultats de l'optimisation des paramètres cinétiques avec le mécanisme global avec une vitesse de chauffe de 10°C/min pour : a) la perte de masse du chêne b) la vitesse de conversion du chêne c) la perte de masse de l'eucalyptus et d) la vitesse de conversion de l'eucalyptus.

Afin de mettre en évidence les différentes étapes de la dégradation, les vitesses de conversion de chaque réaction ont été tracées pour les deux bois pour une vitesse de chauffe de 20°C/min (Figure 3.12). A cette vitesse de chauffe, la première réaction démarre à 230°C et finit à 340°C avec un maximum à 300°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, cette réaction démarre à 225°C et finit à 347°C avec un maximum à 303°C. Le mécanisme global situe cette première réaction dans la même plage de température que le mécanisme par constituants. On observe une différence de 3°C sur le maximum observé pour l'eucalyptus et de 6°C pour le chêne. La deuxième réaction a lieu entre 283°C et 400°C avec un maximum à 377°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, elle a lieu entre 290°C et 442°C avec un maximum à 363°C. Ce résultat est similaire à celui observé avec le mécanisme par constituants où l'on observe les mêmes écarts en température que pour la première réaction. La troisième réaction a lieu entre 377°C et 565°C avec une valeur maximale à 449°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, cette réaction a lieu entre 385°C et 570°C avec un maximum observé à 477°C. On observe une différence pour cette réaction entre l'approche par constituants et l'approche globale où l'écart est plus important que pour les deux premières réactions, avec une valeur de 18°C pour l'eucalyptus et de 12°C pour le chêne. Enfin, l'oxydation du résidu carbonneux commence à 433°C et finit à 660°C avec une vitesse maximale de perte de masse à 600°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, cette réaction démarre à 429°C et se termine à 595°C avec un maximum à 555°C. On constate très peu de différence sur le positionnement de cette réaction entre le mécanisme par constituants et le mécanisme global avec un écart de 9°C pour le chêne et de 3°C pour l'eucalyptus.

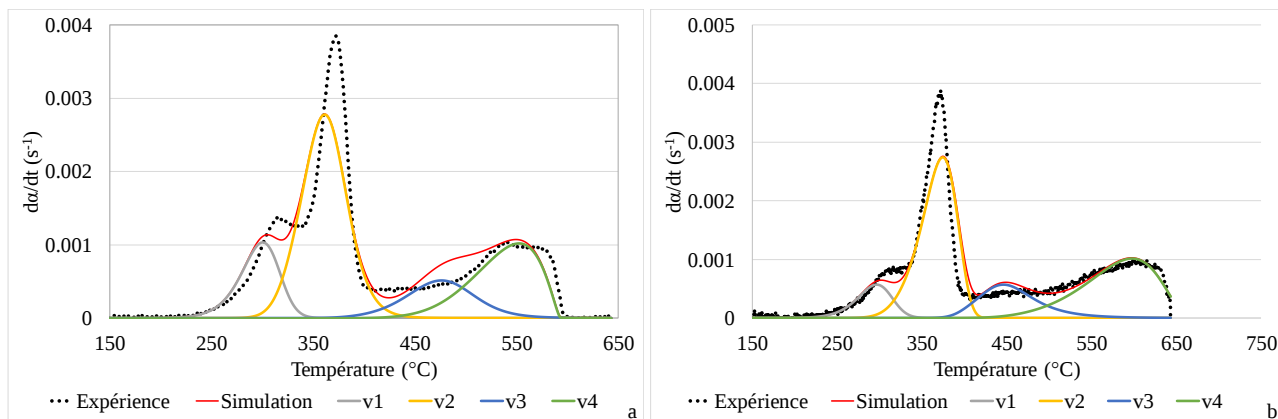


Figure 3.12 : Evolution du taux de conversion global et des taux de conversion en gaz des réactions pour le mécanisme global en fonction de la température à une vitesse de chauffe de 20°C/min : a) du chêne et b) de l'eucalyptus.

4.3. Mécanisme actif

La Figure 3.13 présente la comparaison des pertes de masse ainsi que des vitesses de conversion expérimentales et calculées avec le mécanisme actif pour une vitesse de chauffe de 10°C/min pour les deux bois. Les courbes des autres vitesses de chauffe sont données en Annexe F. Le Tableau 3-6 présente les valeurs des paramètres cinétiques correspondants pour les deux espèces de bois. Comme pour les deux autres mécanismes, ce schéma réactionnel permet de représenter de manière satisfaisante la perte de masse des disques de bois. Les facteurs de performance valent en effet respectivement $1,49 \times 10^{-2}$ pour l'eucalyptus et $1,73 \times 10^{-2}$ pour le chêne. Comme pour les autres mécanismes, les simulations réalisées pour l'eucalyptus sont toujours légèrement meilleures que celles du chêne. Toutefois, on remarque que les facteurs de performance de cette approche sont plus élevés que ceux obtenus pour les deux précédents mécanismes réactionnels. Le mécanisme actif est donc légèrement moins performant que le mécanisme par constituants et le mécanisme global.

Concernant les valeurs des paramètres cinétiques, les énergies d'activations des trois premières réactions valent respectivement 110,50 kJ/mol, 144,05 kJ/mol et 187,35 kJ/mol pour le chêne et 109,66 kJ/mol, 151,85 kJ/mol et 207,09 kJ/mol pour l'eucalyptus. La première réaction correspond à une activation du bois. Dans la littérature, cette étape est attribuée à l'activation des trois bio-polymères [67,82,88,190]. Les valeurs obtenues pour le chêne et l'eucalyptus sont inférieures aux énergies d'activation trouvées dans la littérature pour l'activation de la cellulose, avec une valeur de 186,40 kJ/mol [190] et de la lignine, avec une valeur de 147,70 kJ/mol [67]. Les énergies d'activation du chêne et de l'eucalyptus sont également inférieures à celle attribuée pour l'activation de l'hémicellulose par Koufopoulos et coll. [67], qui est de 72,4 kJ/mol. La deuxième réaction correspond à la transformation du bois activé en goudron et en résidu charbonneux. Dans la littérature, cette réaction se déroule généralement en deux étapes parallèles [67,82,88]. L'énergie d'activation obtenue pour le chêne est proche de la valeur obtenue par Koufopoulos et coll. pour la transformation de la lignine en goudron [67], avec une valeur de 137,10 kJ/mol. Pour l'eucalyptus, l'énergie d'activation obtenue est proche de la valeur déterminée par Miller et Bellan pour la transformation de la cellulose en goudron [82], avec une valeur de 150,50 kJ/mol. Les valeurs obtenues pour le chêne et l'eucalyptus sont plus proches des paramètres rencontrés dans la littérature pour la

transformation du composé activé en goudrons car le taux de conversion en goudron (0,44 et 0,43 pour le chêne et l'eucalyptus, respectivement), qui correspond au produit des coefficients stœchiométriques ν_1 et ν_3 , est plus important que celui du résidu charbonneux (0,34 et 0,37 pour le chêne et l'eucalyptus, respectivement), qui correspond au produit des coefficients stœchiométriques ν_1 et ν_2 . Dans le mécanisme actif, la troisième réaction correspond à l'évaporation des goudrons en gaz. Les énergies d'activation obtenues pour le chêne et l'eucalyptus sont supérieures à celle déterminée par Rath et coll. [191], avec une valeur de 93,37 kJ/mol.

En ce qui concerne les ordres de réaction, les valeurs des deux premières réactions sont inférieures à 1,00 pour les deux espèces de bois tandis que pour la troisième réaction, elles atteignent respectivement 2,74 et 3,00 pour le chêne et l'eucalyptus. Les valeurs des deux premières réactions sont plus faibles que celles obtenues dans les deux précédents mécanismes réactionnels tandis que pour la troisième réaction, elles sont égales pour l'eucalyptus avec le mécanisme par constituants et supérieures pour le chêne. Les ordres de réaction obtenus pour la deuxième réaction sont éloignés des valeurs de la littérature qui considèrent les deux premières réactions comme ayant un ordre de 1,5 [67,82]. En ce qui concerne les facteurs pré-exponentiels $\ln(A_i)$, les valeurs obtenues pour les deux premières réactions sont de 18,19 et 24,37 s⁻¹ pour le chêne et de 18,97 et 25,57 s⁻¹ pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont proches des valeurs de la littérature obtenues pour la dégradation de la lignine, avec des valeurs comprises entre 17,60 et 28,82 s⁻¹ [67,82]. Pour les autres bio-polymères, les valeurs $\ln(A_i)$ sont supérieures aux valeurs obtenues pour le chêne et l'eucalyptus [67,82]. Pour la troisième réaction, l'évaporation des goudrons donne un facteur pré-exponentiel $\ln(A_i)$ de 31,97 s⁻¹ pour le chêne et 35,14 s⁻¹ pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont plus élevées que celles rencontrées dans la littérature où les facteurs pré-exponentiels $\ln(A_i)$ varient autour de 12 s⁻¹ [191]. A la différence des deux précédents mécanismes réactionnels, le mécanisme actif donne lieu à de plus faibles différences d'énergie d'activation entre les deux espèces de bois. Pour le mécanisme par constituants et le mécanisme global, les différences moyennes entre les énergies d'activation sont respectivement de 27 et 22 kJ/mol pour le chêne et l'eucalyptus, tandis que la différence est de l'ordre de 10 kJ/mol pour le mécanisme actif. Elle est principalement générée par la troisième réaction. Les énergies d'activation sont donc moins sensibles à l'espèce de bois avec cette approche. Pour l'oxydation du résidu charbonneux, nous obtenons une valeur plus élevée que celle des deux précédents modèles avec des valeurs pour les deux espèces de bois autour de 130,00 kJ/mol. Ces valeurs sont en accord avec celles obtenues par Cancellieri et coll. pour des aiguilles de pin maritime et des feuilles d'arbusier (autour de 128,00 kJ/mol [62]). En ce qui concerne les ordres de réactions, la valeur obtenue pour le chêne est du même ordre de grandeur que celles obtenues avec les modèles précédents tandis que pour l'eucalyptus, nous obtenons une valeur de 1,00 qui est supérieure à celles obtenues avec le mécanisme global et le mécanisme par constituants. L'ordre de réaction du chêne est supérieur à ceux déterminés par Cancellieri et coll. et Leroy [27,62] qui varient entre 0,43 et 0,52. Pour l'eucalyptus, nous retrouvons la même valeur que celle déterminée par Benkorichi et coll. et par Richter et Rein [78,189]. En ce qui concerne les facteurs pré-exponentiels $\ln(A_i)$, les valeurs obtenues sont de 14,39 s⁻¹ pour le chêne et de 13,55 s⁻¹ pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont supérieures à celles obtenues avec les mécanismes précédents, mais restent en accord avec les valeurs de la littérature [27,62] qui varient entre 12,80 et 14,10 s⁻¹.

En ce qui concernent les coefficients stœchiométriques, la conversion en résidu charbonneux est de 33 % pour le chêne et de 37 % pour l'eucalyptus. Pour le chêne, la valeur obtenue avec le mécanisme actif est supérieure d'environ 10 % aux valeurs obtenues avec les deux précédents mécanismes. Pour l'eucalyptus,

la valeur reste cohérente même si elle est légèrement supérieure. Pour les deux types de bois, ces valeurs sont supérieures aux fractions massiques de résidu charbonneux déterminées avec les expériences de pyrolyse sous atmosphère inerte. La conversion en goudrons est très forte et correspond à une valeur de 44 % pour le chêne et une valeur de 43 % pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont plus élevées que celles obtenues par Richter et coll. [16] pour la transformation de l'hémicellulose et de la cellulose en goudrons avec un taux de conversion de 26 %.

Tableau 3-6 : Paramètres cinétiques obtenus avec le mécanisme actif pour le chêne et l'eucalyptus.

Espèces	Réactions	n_i	$\ln(A_i)$ (s ⁻¹)	E _{ai} (kJ/mol)	v _i		Facteur de performance moyen (-)
Chêne	1	0,70	18,19	110,50	0,82		1,73×10 ⁻²
	2	0,95	24,37	144,05	0,41*	0,54	
	3	2,74	31,97	187,35	-		
	4	0,64	14,39	130,58	0,03		
Eucalyptus	1	0,61	18,97	109,66	0,94		1,49×10 ⁻²
	2	0,95	25,57	151,85	0,39 ⁶	0,46	
	3	3,00	35,14	207,09	-		
	4	1,00	13,55	131,77	0,00		

⁶ Coefficient stœchiométrique du résidu charbonneux

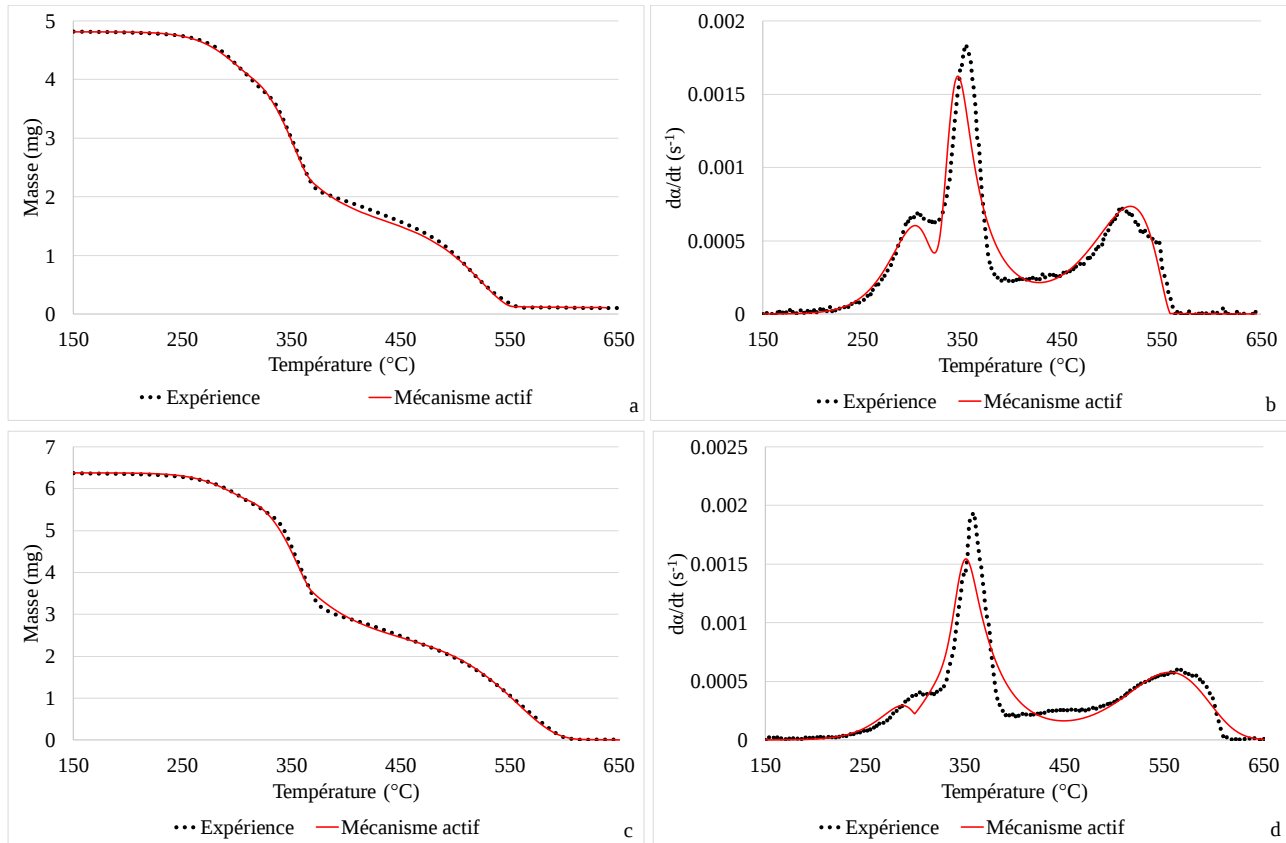


Figure 3.13 : Résultats de l'optimisation des paramètres cinétiques avec le mécanisme actif avec une vitesse de chauffe de 10°C/min pour : a) la perte de masse du chêne b) la vitesse de conversion du chêne c) la perte de masse de l'eucalyptus et d) la vitesse de conversion de l'eucalyptus.

Afin de visualiser les différentes réactions du mécanisme actif, les vitesses de conversion de chaque réaction ont été tracées pour chaque type de bois pour une vitesse de chauffe de 20°C/min, représentative des autres conditions (Figure 3.14). A cette vitesse de chauffe, la première réaction démarre à 215°C et finit à 315°C avec un maximum à 300°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, cette réaction démarre à 215°C et finit à 350°C avec un maximum à 320°C. L'approche active situe cette première réaction dans la même plage de température que les deux précédents mécanismes. Cette réaction correspond principalement à l'activation des bio-polymères. La réaction observée pour le chêne et l'eucalyptus a lieu dans une plage de température légèrement supérieure à celle de la dépolymérisation de la cellulose [64,88], qui a lieu entre 295°C et 329°C. La deuxième réaction a lieu entre 280 et 380°C avec un maximum à 345°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, elle a lieu entre 295°C et 370°C avec un maximum à 342°C. Dans la littérature, cette réaction, correspondant à la dégradation du bois activé en résidu charbonneux et en goudron, se déroule entre 300°C et 360°C [67]. Ces valeurs sont donc en accord avec nos résultats. Contrairement aux deux mécanismes précédents, le maximum de perte de masse est ici attribué à la troisième réaction qui correspond à la gazéification des goudrons. Celle-ci a lieu entre 328°C et 530°C avec une valeur maximale à 368°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, cette réaction a lieu entre 323°C et 520°C avec un maximum observé à 361°C. La localisation de cette réaction intervient à des températures plus faibles que celles rencontrées dans la littérature [38], qui a lieu entre 500°C et 900°C. Enfin, l'oxydation du résidu charbonneux commence à 416°C et finit à 660°C avec une vitesse maximale de

perte de masse à 587°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, cette réaction démarre à 385°C et se termine à 588°C avec un maximum à 550°C. Cette réaction a lieu dans une plage de températures similaire à celle déterminée par l'approche par constituants et par l'approche globale.

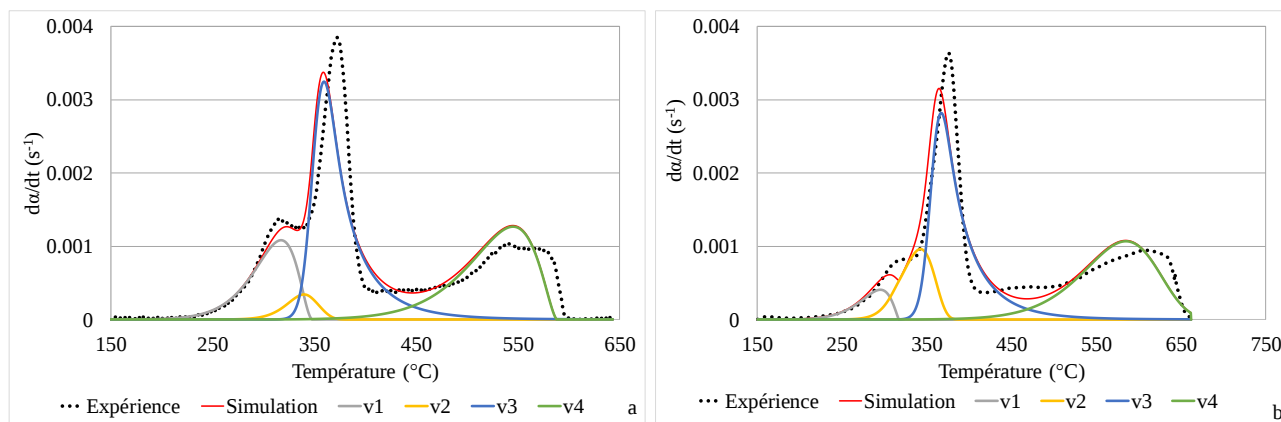


Figure 3.14 : Evolution du taux de conversion global et des taux de conversion en gaz des réactions pour le mécanisme actif en fonction de la température à une vitesse de chauffe de 20°C/min : a) du chêne et b) de l'eucalyptus.

4.4. Mécanisme simplifié

La Figure 3.15 présente la comparaison des pertes de masse et des vitesses de conversion expérimentales et calculées avec le mécanisme simplifié pour une vitesse de chauffe de 10°C/min pour les deux bois. Le Tableau 3-7 présente les paramètres cinétiques obtenus pour chaque espèce de bois dans le cas du mécanisme simplifié. Les courbes pour les autres vitesses de chauffe sont données en Annexe F. Les facteurs de performance valent respectivement $2,41 \times 10^{-2}$ pour l'eucalyptus et $2,31 \times 10^{-2}$ pour le chêne. La représentation de la dégradation thermique des deux essences de bois est moins bien représentée par ce mécanisme que pour les trois précédents mécanismes. Toutefois, ce mécanisme ne comportant que deux étapes (contre quatre pour les autres) donne tout de même des résultats proches des valeurs expérimentales.

En ce qui concerne la transformation du bois en résidu charbonneux, nous obtenons une énergie d'activation de 143,87 kJ/mol pour le chêne et de 170,02 kJ/mol pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont plus élevées que celles déterminées par Cancellieri et coll. [62] pour le pin maritime, le ciste de Montpellier, la bruyère et l'arbousier (entre 80 et 120 kJ/mol), par Lautenberger et Fernandez-Pello [42] pour du pin blanc avec une valeur de 135 kJ/mol. En ce qui concerne les facteurs pré-exponentiels $\ln(A_i)$, les valeurs obtenues avec le mécanisme simplifié sont similaires à celles obtenues avec le mécanisme par constituants et le mécanisme global pour les deux premières réactions. Les ordres de réactions valent 2,44 pour le chêne et 3,00 pour l'eucalyptus. Ces valeurs élevées sont caractéristiques de réactions simultanées et sont en accord avec celles déterminées pour le ciste de Montpellier et pour la bruyère par Cancellieri et coll. [62] valant respectivement 3,19 et 2,63. Elles sont également semblables à celle obtenues par Matala et coll. [192] pour du bouleau avec une valeur de 3,12. Pour ce type de réaction, les ordres de réaction sont souvent supérieurs à 3,00 [62,192,193]. En ce qui concerne la réaction d'oxydation du résidu charbonneux, les énergies d'activation sont de 130,34 kJ/mol pour le chêne et 126,90 kJ/mol pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont en accord avec celles déterminées pour le ciste, le pin maritime et l'arbousier par Cancellieri

et coll. [62] (entre 126,00 et 128,00 kJ/mol). Ces valeurs sont toutefois supérieures aux valeurs déterminées avec le mécanisme global et le mécanisme par constituants et sont similaires aux valeurs obtenues avec le mécanisme actif. L'ordre de réaction de l'oxydation est égal à 0,69 pour le chêne et 0,83 pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont proches de celles obtenues par Cancellieri et coll. [62] pour les quatre espèces de la végétation corse. En ce qui concerne les coefficients stœchiométriques, la conversion en résidu charbonneux est de 33 % pour le chêne et de 37 % pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont similaires à celles obtenues avec l'approche active. Ces taux de conversion sont proches de ceux obtenus par Cancellieri et coll. [62] pour la transformation des rameaux de ciste, de bruyère et de pin en résidu charbonneux. Les coefficients stœchiométriques déterminés pour la conversion du résidu charbonneux en cendres sont similaires aux valeurs obtenues avec les trois autres mécanismes réactionnels.

Comme la loi cinétique caractérisant l'oxydation du résidu charbonneux est similaire pour les quatre mécanismes cinétiques, nous avons recensé dans le Tableau 3-8 les valeurs des paramètres cinétiques obtenus avec les quatre mécanismes réactionnels. On peut remarquer qu'entre le mécanisme global et le mécanisme par constituants, il n'y a pas beaucoup de différences quel que soit le bois. Pour le chêne, les paramètres cinétiques obtenus avec le mécanisme actif et le mécanisme simplifié sont également similaires. En revanche, on constate une différence plus importante entre les deux premiers mécanismes réactionnels et le mécanisme actif ainsi que le mécanisme simplifié. Pour le chêne, les énergies d'activation présentent une différence de 13 kJ/mol tandis que pour l'eucalyptus la différence varie entre 5 et 10 kJ/mol. Les coefficients stœchiométriques sont en revanche similaires quel que soit le mécanisme réactionnel et dépendent donc uniquement, de l'espèce de bois.

Tableau 3-7 : Paramètres cinétiques obtenus avec le mécanisme simplifié pour le chêne et l'eucalyptus

Bois	Réactions	n_i	$\ln(A_i)$ (s ⁻¹)	E_{ai} (kJ/mol)	v_i	Facteur de performance moyen (-)
Chêne	1	2,44	23,63	143,87	0,33	$2,31 \times 10^{-2}$
	2	0,69	14,38	130,34	0,03	
Eucalyptus	1	3,00	28,52	170,02	0,37	$2,42 \times 10^{-2}$
	2	0,83	12,81	126,90	0,00	

Tableau 3-8 : Paramètres cinétiques obtenus pour l'oxydation du résidu charbonneux avec les quatre mécanismes cinétiques.

Bois	Mécanisme réactionnel	n_i	$\ln(A_i)$ (s^{-1})	E_{ai} (kJ/mol)	ν_i
Chêne	Constituants	0,55	12,50	119,86	0,04
	Global	0,58	12,38	117,96	0,03
	Actif	0,64	14,39	130,58	0,03
	Simplifié	0,69	14,38	130,34	0,03
Eucalyptus	Constituants	0,67	11,79	121,90	0,00
	Global	0,76	11,80	121,46	0,00
	Actif	1,00	13,55	131,77	0,00
	Simplifié	0,83	12,81	126,90	0,00

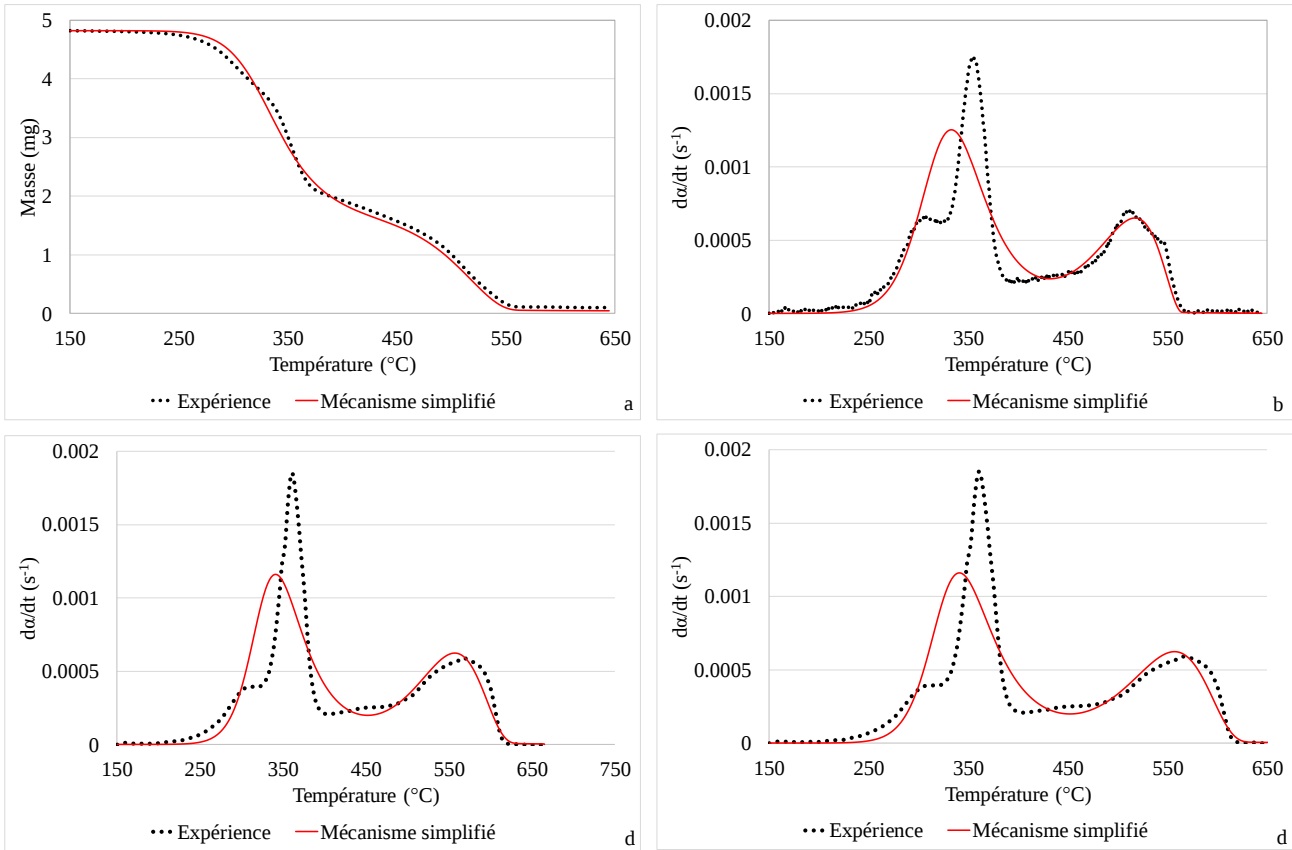


Figure 3.15 : Résultats de l'optimisation des paramètres cinétiques avec le mécanisme simplifié à une vitesse de chauffe de 10°C/min pour : a) la perte de masse du chêne b) la vitesse de conversion du chêne c) la perte de masse de l'eucalyptus et d) la vitesse de conversion de l'eucalyptus.

Afin de mettre en évidence les différentes étapes de la dégradation, les vitesses de conversion de chaque réaction ont été tracées pour les deux bois pour une vitesse de chauffe de 20°C/min (Figure 3.16). A cette vitesse de chauffe, la première réaction qui correspond à la transformation du bois en résidu charbonneux et à l'émission des gaz de dégradation démarre à 240°C et finit à 550°C avec un maximum à 343°C pour

l'eucalyptus. Pour le chêne, cette réaction démarre à 230°C et finit à 540°C avec un maximum à 350°C. Le mécanisme simplifié situe cette première réaction dans une plage moyenne de température entre celle correspondant à la dégradation de l'hémicellulose, qui a lieu entre 215°C et 400°C [33,34] et celle correspondant à la dégradation de la cellulose qui a lieu entre 320°C et 400°C [34]. L'oxydation du résidu carbonneux commence à 396°C et finit à 625°C avec une vitesse maximale de perte de masse à 561°C pour l'eucalyptus. Pour le chêne, cette réaction démarre à 396°C et se termine à 595°C avec un maximum à 549°C. Le mécanisme simplifié situe le pic maximum d'oxydation du résidu carbonneux du chêne dans la même gamme de température que les trois précédents mécanismes tandis que pour l'eucalyptus, la température du pic maximum obtenu est plus faible (de l'ordre de 30°C) que celle des autres mécanismes.

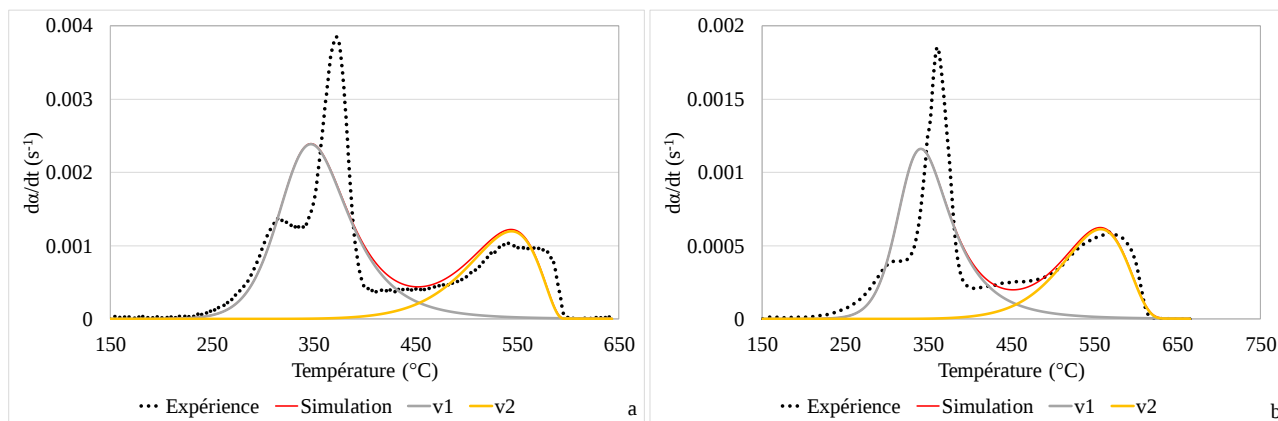


Figure 3.16 : Evolution du taux de conversion global et des taux de conversion en gaz des réactions pour le mécanisme simplifié en fonction de la température à une vitesse de chauffe de 20°C/min : a) du chêne et b) de l'eucalyptus.

Chapitre 4. Etude expérimentale de la dégradation thermique du bois à l'échelle matériau

L'objectif de ce chapitre est d'étudier la dégradation thermique de plaques de bois de différentes épaisseurs afin de mettre en évidence les phases de dégradation et les différences entre les deux essences de bois testées. Ce chapitre comprend deux parties. La première partie est consacrée à l'étude des plaques thermiquement fines de chêne et d'eucalyptus. La seconde partie présentera les résultats obtenus pour des plaques thermiquement épaisses de chêne.

1. Etude de la dégradation des plaques thermiquement fines

Des plaques thermiquement fines de chêne et d'eucalyptus d'épaisseur respective 0,61 et 0,63 mm ont été soumises à des densités de flux radiatif comprises entre 18 et 28,5 kW/m² à l'aide d'un cône calorimètre. Ces densités de flux, imposées sur la face supérieure des plaques, ont été sélectionnées afin de dégrader les échantillons tout en évitant leur auto-inflammation. Deux conditions aux limites sous la face inférieure des plaques ont été étudiées : une condition adiabatique obtenue grâce à la présence de laine céramique et une condition avec pertes convectives pour laquelle la face inférieure est directement au contact de l'air environnant (convection libre).

1.1. Détermination de la température des plaques thermiquement fines

Contrairement aux expériences réalisées à l'échelle matière, la mesure de température à l'échelle matériau n'est pas directement accessible. L'obtention de cette grandeur doit donc faire l'objet d'un dispositif expérimental complémentaire au cône calorimètre. Trois dispositifs ont ainsi été testés afin d'obtenir cette mesure cruciale pour l'application des mécanismes de dégradation. Tout d'abord un dispositif avec deux thermocouples placés sous la plaque et un dispositif comprenant seize thermocouples placés sous la plaque. Ensuite, une méthode non intrusive correspondant à une caméra infrarouge observant la face supérieure des plaques. Les plaques étant thermiquement fines, nous avons fait l'hypothèse qu'il n'y avait pas de gradient thermique dans l'épaisseur de la plaque. Pour chaque densité de flux et chaque combustible, au minimum trois répétitions ont été réalisées.

1.1.1. Comparaison des méthodes de mesure de température utilisant des thermocouples

La Figure 4.1 présente les températures enregistrées avec les deux dispositifs utilisant des thermocouples (2 et 16 thermocouples) pour les deux bois en imposant une densité de flux de 20 kW/m² et avec une condition limite adiabatique sur la face inférieure. Pour la mesure avec seize thermocouples et dans un souci de clarté de la figure, nous avons seulement représenté la température moyenne de toutes les expériences (en noir) ainsi que les valeurs maximales et minimales (respectivement en rouge et en vert). La Figure 4.2 présente les photographies à différents instants de la plaque de chêne dans les mêmes conditions. Après l'ouverture de l'obturateur du cône chauffant, la température des plaques augmente pendant 200 s pour le chêne et 230 s pour l'eucalyptus. Durant cette phase, les plaques noircissent et leur

dégradation entraîne un dégagement de fumée (Figure 4.2.b). Les courbes de température atteignent ensuite des asymptotes. Les valeurs de température moyenne obtenues pour ces asymptotes sont proches pour les deux méthodes. On observe en effet moins de 19°C d'écart entre les deux dispositifs (Tableau 4-1). Pour le chêne à 20 kW/m², on obtient environ 571°C alors que pour l'eucalyptus, la valeur est d'environ 537°C. Comme le montre la Figure 4.2.c, la température des plaques n'est pas homogène sur leur surface. On voit clairement que le front d'oxydation du résidu charbonneux se propage à la surface. Afin de déterminer si les méthodes de mesure de température permettent de rendre compte de ces phénomènes, nous avons comparé les valeurs maximales ainsi que l'écart entre les valeurs minimales et maximales enregistrées à un temps donné.

Quelle que soit la densité de flux, les températures maximales sont supérieures en utilisant 16 thermocouples. À titre d'exemple, à 20 kW/m², celles-ci atteignent, avec deux thermocouples, 591°C pour le chêne et 580°C pour l'eucalyptus, alors qu'avec seize thermocouples, on obtient 703°C pour le chêne et 665°C pour l'eucalyptus. Cette différence de valeurs observées entre les deux méthodes s'explique par le décrochement des thermocouples. En effet, à cause de la déformation des plaques (malgré la présence d'un grillage en acier au-dessus) et de l'épaisseur de la gaine des thermocouples, ces derniers se décrochent souvent. La probabilité de saisir le front d'oxydation du résidu charbonneux avec deux thermocouples est donc moins forte qu'avec seize. Concernant l'hétérogénéité du champ de température, en passant de 2 à 16 thermocouples, on observe une plus grande variabilité de la température notamment au début des expériences. Avec deux thermocouples, la différence maximale de température à tout instant entre les deux mesures est comprise entre 38°C et 162°C. Par contre, avec seize thermocouples, la différence entre les températures maximales et minimales se situe entre 190°C et 331°C. Au vu de l'ensemble de ces éléments, il semble donc préférable d'utiliser seize thermocouples plutôt que deux afin d'obtenir une représentation plus fiable du champ de température de la plaque.

Tableau 4-1 : Comparaison des températures des asymptotes mesurées des plaques de chêne et d'eucalyptus avec 2 et 16 thermocouples.

Bois	Densité de flux (kW/m ²)	Température moyenne de l'asymptote (°C)	Température maximale de l'asymptote (°C)	Ecart maximal à tout instant entre les températures maximale et minimale (°C)
Mesure avec 2 thermocouples (°C)				
Chêne	20	571 ± 15	591 ± 15	94
	25	627 ± 10	644 ± 10	162
Eucalyptus	20	537 ± 17	580 ± 17	79
	25	620 ± 4	626 ± 4	38
Mesure avec 16 thermocouples (°C)				
Chêne	20	554 ± 39	703 ± 39	246
	25	634 ± 46	748 ± 46	331
Eucalyptus	20	556 ± 36	665 ± 36	190
	25	629 ± 21	701 ± 21	198

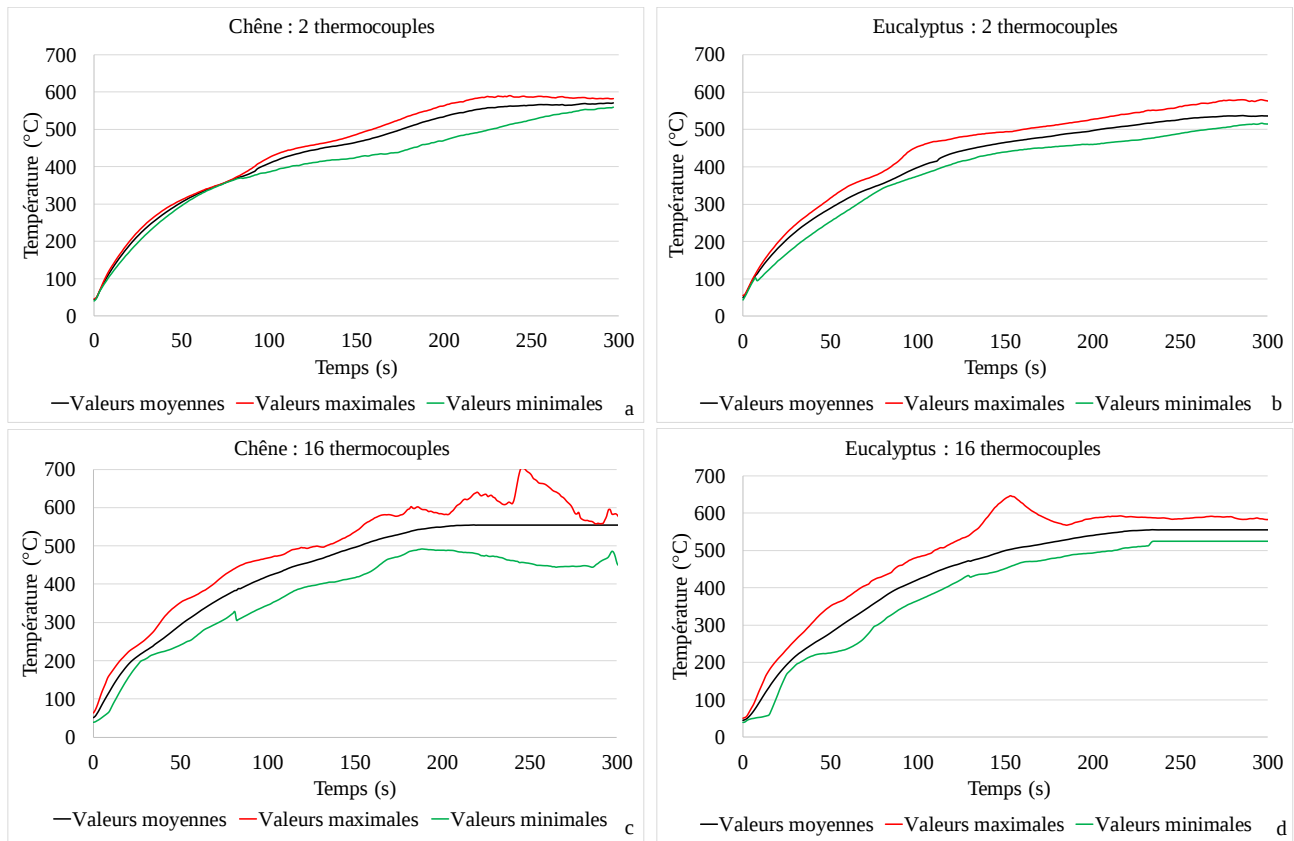


Figure 4.1 : Evolution de la température moyenne des plaques soumises à une densité de flux de 20 kW/m² et avec condition limite adiabatique en fonction du temps pour : a) le chêne avec deux thermocouples b) l'eucalyptus avec deux thermocouples c) le chêne avec seize thermocouples et d) l'eucalyptus avec seize thermocouples.

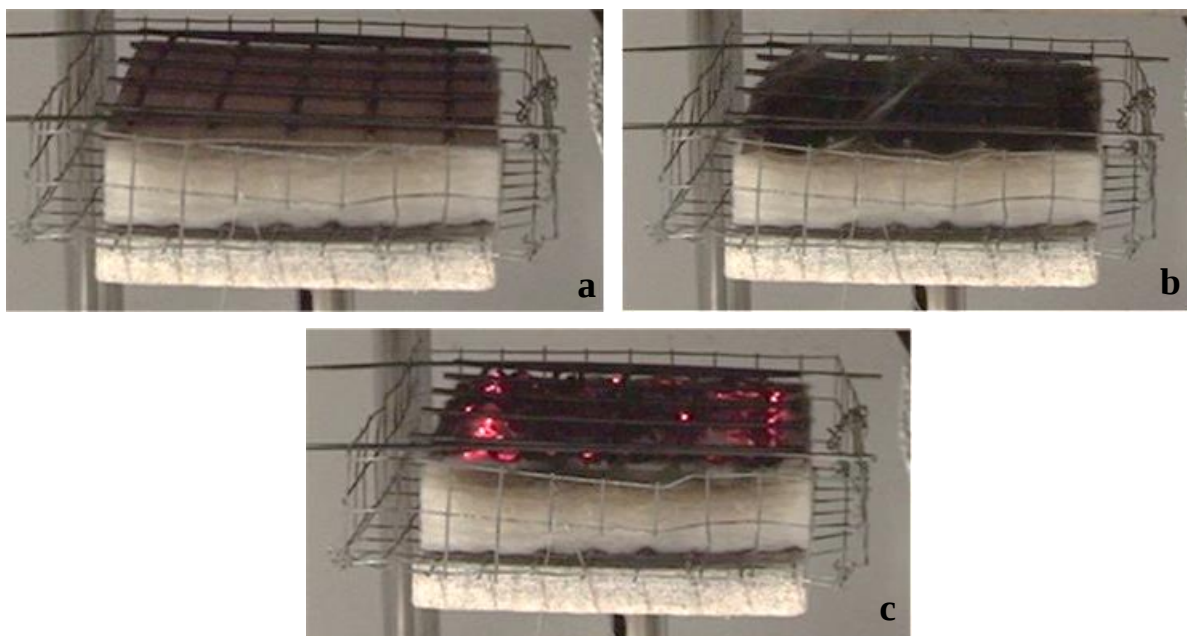


Figure 4.2 : Photographies d'une plaque de chêne soumise à une densité de flux de 20 kW/m^2 avec une condition adiabatique sur la face inférieure à différents instants a) 0 s b) 150 s c) 300 s.

1.1.2. Mesure de la température avec la caméra infrarouge

Compte tenu du décrochement des thermocouples lors du passage du front d'oxydation, nous avons cherché à obtenir le champ de température par une autre méthode. Nous avons utilisé une caméra infrarouge car ce dispositif est non intrusif. La Figure 4.3 présente l'évolution temporelle des températures minimales, maximales et moyennes enregistrées avec la méthode des seize thermocouples et avec la caméra infrarouge pour les plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à une densité de flux de 20 kW/m^2 . Après l'ouverture de l'obturateur du cône chauffant, la température des plaques enregistrée par caméra infrarouge, augmente pendant 150 s pour le chêne et 180 s pour l'eucalyptus. La mesure par caméra thermique raccourcit la durée de cette phase instationnaire de 50 s par rapport à celle observée avec les thermocouples. La différence majeure entre les deux méthodes de mesure concerne la température moyenne des plaques de bois dans le régime asymptotique. Avec la caméra infrarouge, nous obtenons une valeur de 625°C pour le chêne et de 550°C pour l'eucalyptus tandis qu'avec les thermocouples nous avons une valeur de 554°C pour le chêne et de 556°C pour l'eucalyptus. Pour l'eucalyptus, les deux méthodes donnent des valeurs très proches. En revanche, pour le chêne, nous constatons une différence d'environ 70°C entre les deux méthodes de mesure. Pour ces plaques, qui se dégradent plus rapidement que celles d'eucalyptus, les thermocouples ont tendance à perdre le contact avec la plaque plus tôt ce qui fausse la mesure de température. Pour l'eucalyptus, les thermocouples restent collés car l'oxydation du résidu carbonneux n'est pas complète entre 20 et 25 kW/m^2 . La température reste en effet inférieure à 650°C correspondant à la température d'oxydation du résidu carbonneux pour l'eucalyptus.

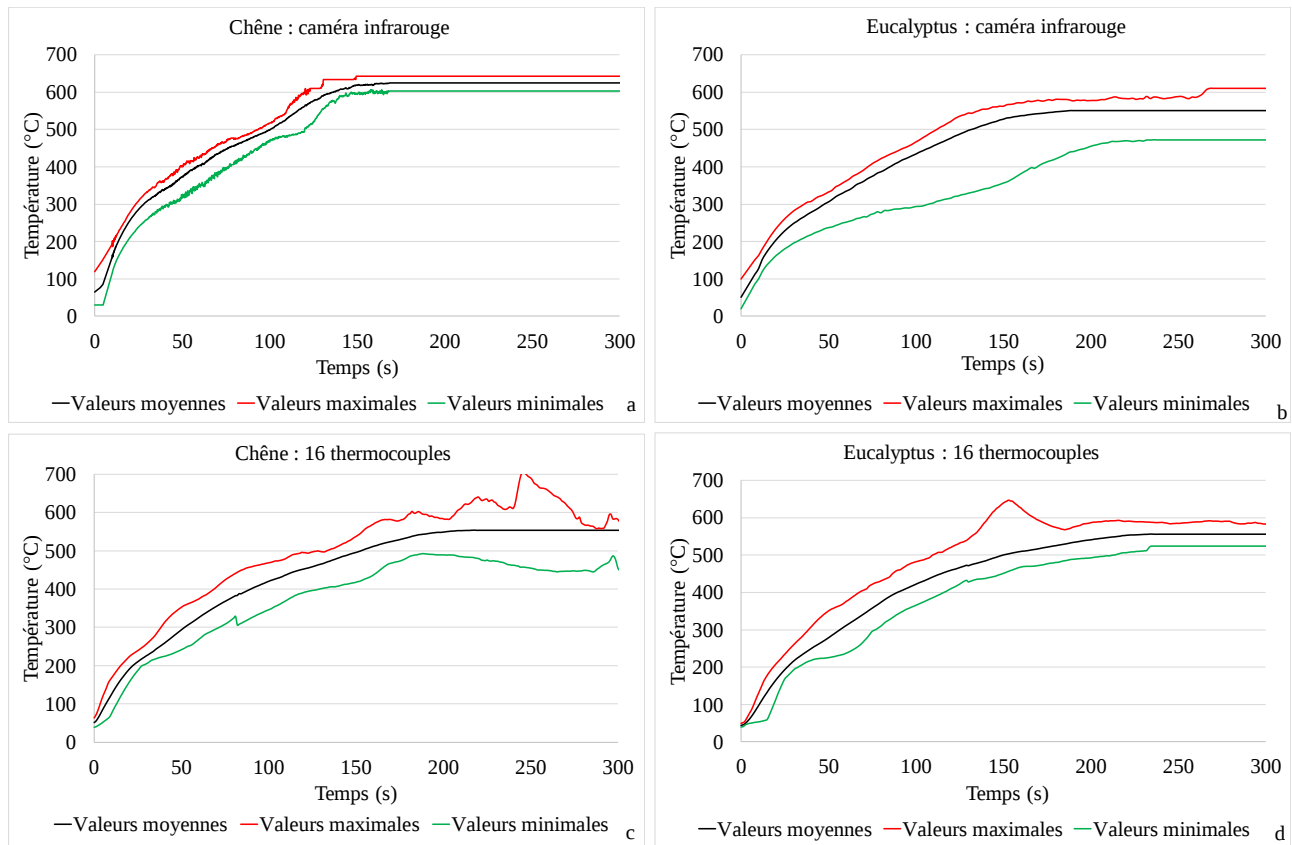


Figure 4.3 : Evolution de la température moyenne des plaques soumises à une densité de flux de 20 kW/m² et avec condition limite adiabatique en fonction du temps pour : a) le chêne avec la caméra infrarouge b) l'eucalyptus avec la caméra infrarouge c) le chêne avec seize thermocouples et d) l'eucalyptus avec seize thermocouples.

Afin d'apprécier la prise en compte de l'hétérogénéité de la température à la surface des plaques par les deux méthodes, nous avons tracé les champs de température à différents instants de la dégradation pour les plaques de chêne soumises à une densité de flux de 20 kW/m². Pour cela, nous avons réalisé à l'aide du logiciel MATLAB, une interpolation harmonique de type spline à partir des seize points de mesure des thermocouples ou de la caméra. La Figure 4.4 présente les résultats obtenus pour la moyenne des expériences. Les deux méthodes de mesure de température montrent des tendances similaires. Nous pouvons en effet observer qu'au bout d'une durée de 100 s, la température de la plaque n'est pas la même en différents points de sa surface. Nous constatons que la température est plus élevée dans un rayon de 3 cm autour du centre de la plaque. Au bout de 100 s, les thermocouples donnent, sur ce rayon, une température comprise entre 420°C et 500°C et la caméra infrarouge une température comprise entre 440°C et 520°C. A l'extérieur de cette zone, autrement dit au centre et sur les bords de la plaque, la température est jusqu'à 100°C plus faible. Au bout de 200 s, nous observons toujours une hétérogénéité de la température à la surface de la plaque de chêne. Les valeurs les plus fortes se situent toujours dans une zone située à 3 cm du centre de la plaque. Les températures y varient entre 580°C et 650°C avec les deux méthodes de mesure. Ces températures traduisent l'apparition de braises rougeoyantes caractérisant l'oxydation du résidu charbonneux. A l'extérieur de ces zones, les températures sont inférieures d'environ 80°C à 100°C.

Au vu de la similarité des résultats obtenus avec les deux méthodes de mesure et compte tenu de la mise en œuvre contraignante de la mesure de températures par thermocouples (Annexe C), nous avons décidé de poursuivre la mesure de température des plaques de bois uniquement avec la caméra infrarouge.

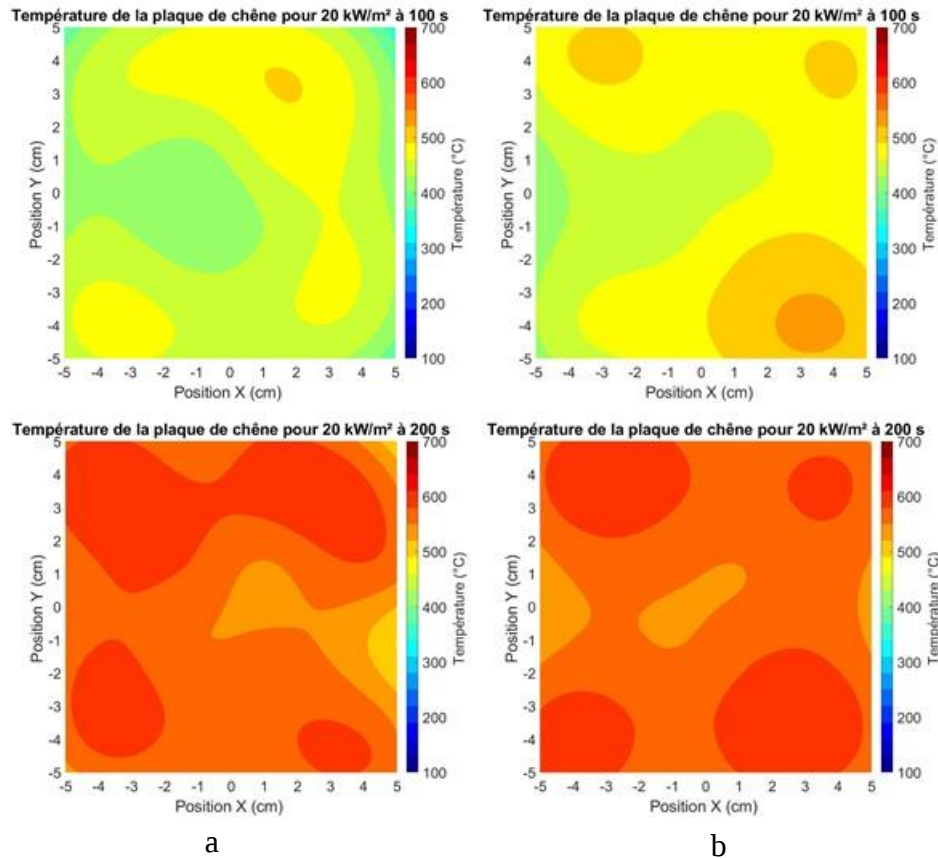


Figure 4.4 : Champ de température à différents instants d'une plaque de chêne soumise à une densité de flux de 20 kW/m² avec une condition limite adiabatique obtenu à partir des données mesurées avec : a) seize thermocouples b) une caméra infrarouge.

1.2. Description de la dégradation thermique en imposant une condition limite adiabatique sous la face inférieure des plaques de bois

1.2.1. Evolution de la température

Les Figure 4.5 et Figure 4.6 présentent le champ de température obtenu avec la caméra infrarouge ainsi que les images thermiques à cinq différents instants pour les plaques de chêne et six différents instants pour les plaques d'eucalyptus avec une densité de flux de 18 kW/m². Pour les deux types de bois, la température à la surface de la plaque est hétérogène. Cette hétérogénéité est clairement visible pour les deux bois dès 100 s. En effet, la température sur les plaques de chêne et d'eucalyptus est plus élevée en différents points de la plaque situés dans un rayon de 3 cm autour du centre. L'apparition de cette hétérogénéité est due à deux phénomènes. Tout d'abord, la distribution de la densité de flux à la surface

des plaques n'est pas homogène à cause de la forme du cône calorimètre. Wilson et coll. [165,167] et Boulet et coll. [165,167] ont montré que pour une plaque de 10 cm de côté, placée à une distance de 25 mm sous le cône chauffant, la densité de flux incidente est homogène sur un disque de 2 cm centré sur le centre du cône calorimètre. Cette homogénéité se retrouve au niveau des températures au bout de 50 s pour le chêne (Figure 4.5.a) Au-delà de ce disque, et plus spécifiquement au-delà de 3 cm du centre, la valeur de la densité de flux incidente décroît de manière significative. La plaque va donc chauffer plus rapidement au centre que sur les côtés. Parallèlement, l'air nécessaire à l'oxydation du résidu charbonneux va provenir des bords de la plaque. Le développement de l'oxydation du résidu charbonneux va par conséquent être favorisé dans cette zone située autour de 3 cm du centre du cône calorimètre. La simultanéité de ces deux phénomènes va entraîner l'apparition des premières braises sur l'anneau se situant à 3 cm du centre. A 100 s, on voit ainsi apparaître des « points chauds » avec des températures pouvant aller jusqu'à 500°C pour le chêne et 450°C pour l'eucalyptus. Pour la plaque de chêne, ces points se situent respectivement à -3 et - 4 cm et de part et d'autre du centre de la plaque sur l'axe des ordonnées. Pour l'eucalyptus, on distingue trois zones situées dans un rayon de 3 cm de part et d'autre du centre de la plaque où la température est la plus élevée. Le lieu d'apparition de ces zones plus chaudes peut varier d'une expérience à l'autre car elles sont très sensibles aux conditions environnantes. De manière générale, elles apparaissent dans un rayon de 3 cm autour du centre.

L'oxydation de la plaque va ensuite se développer à partir de ces premières braises ce qui va se traduire par une augmentation de la température au niveau de ces zones chaudes. Ainsi, au bout de 150 s pour le chêne et 200 s pour l'eucalyptus, l'oxydation du résidu charbonneux va se localiser au niveau des points les plus chauds de la plaque avec des températures atteignant 580°C pour le chêne et 550°C pour l'eucalyptus. Le front d'oxydation du résidu charbonneux se propage ensuite à l'ensemble de la plaque. Toutefois, à cette densité de flux, ce phénomène n'est clairement visible que pour le chêne. L'ensemble de la plaque atteint en effet des températures supérieures à 600°C ce qui coïncide avec l'observation des braises lumineuses associées au front d'oxydation du résidu charbonneux et qui contribuent à une oxydation complète de la plaque. Pour l'eucalyptus, les températures atteintes dans les zones les plus chaudes au bout de 250 s n'excèdent pas 550°C, ce qui est insuffisant pour observer la propagation du front d'oxydation du résidu charbonneux (absence de braises lumineuses). La température continue ensuite d'augmenter jusqu'à 350 s pour atteindre des valeurs proches de 550°C sur la quasi-totalité de la surface de la plaque excepté sur les bords. Toutefois cette température n'est pas suffisante pour oxyder totalement la plaque d'eucalyptus.

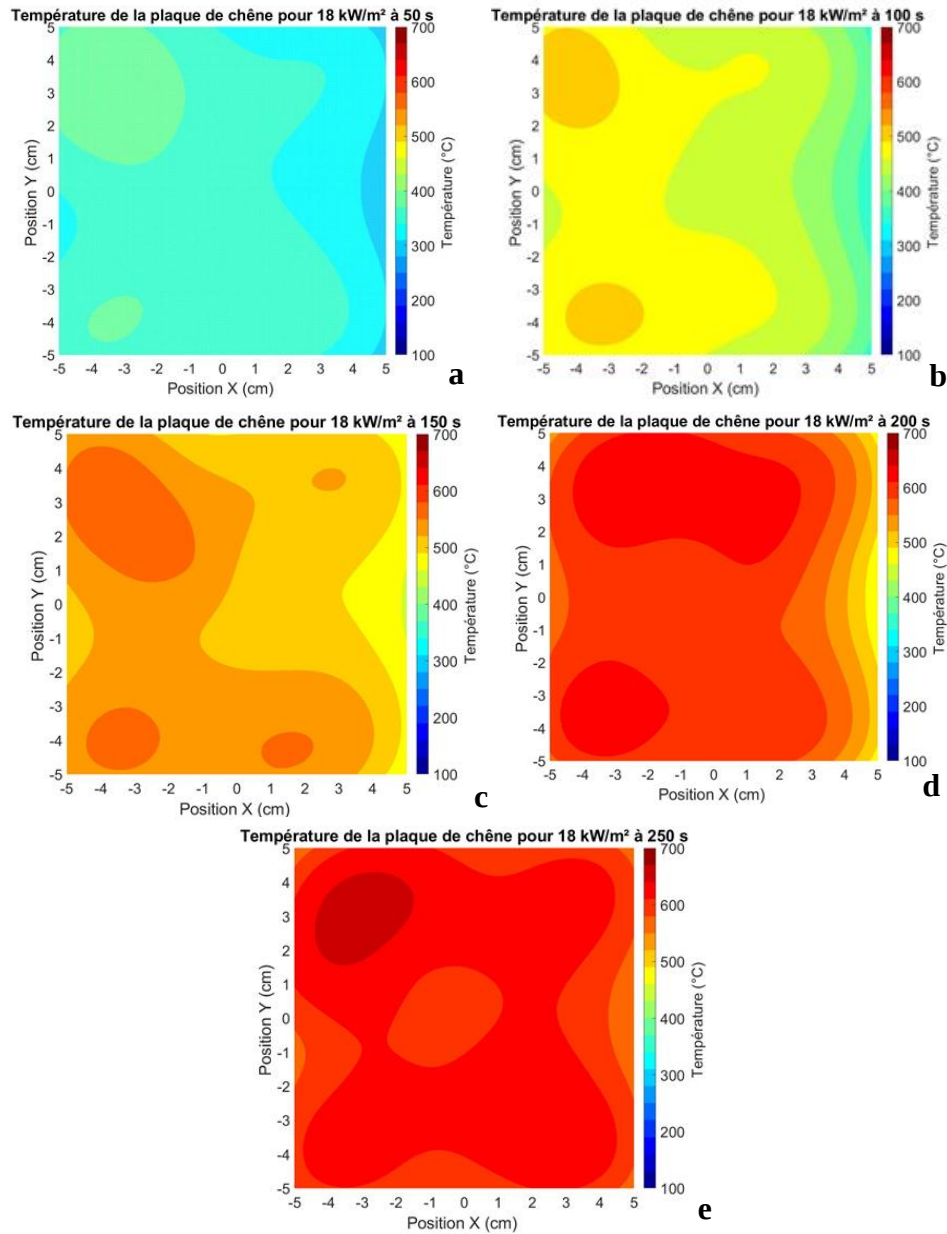


Figure 4.5 : Champ de température obtenu par caméra infra-rouge d'une plaque de chêne soumise à une densité de flux de 18 kW/m^2 à différents instants : a) 50 s b) 100 s c) 150 s d) 200 s et e) 250 s.

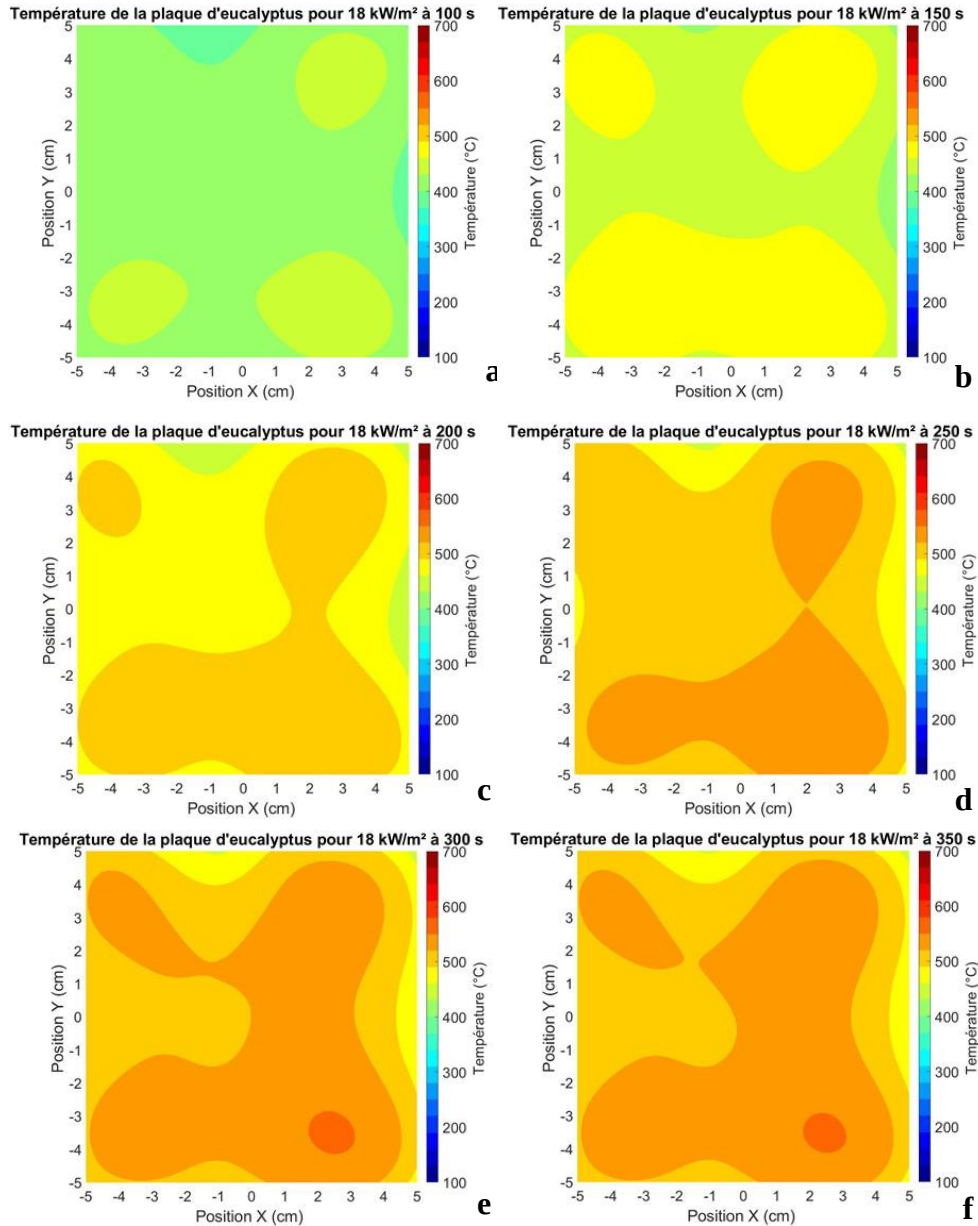


Figure 4.6 : Champ de température obtenu par caméra infra-rouge d'une plaque d'eucalyptus soumise à une densité de flux de 18 kW/m² à différents instants : a) 100 s b) 150 s c) 200 s d) 250 s e) 300 s f) 350 s.

Afin de comparer le comportement des deux bois, nous avons superposé les températures des plaques de chêne et d'eucalyptus sur la Figure 4.7 pour les différentes densités de flux. Pour une raison de clarté des figures, nous avons uniquement tracé la température moyenne encadrée par des valeurs minimales et maximales. Quelles que soient l'essence de bois ou la densité de flux imposée, la température suit trois phases. Après l'ouverture des obturateurs du cône, la température des plaques augmente rapidement pendant environ 30 s de manière quasi-linéaire. Durant ce régime transitoire, la vitesse de chauffe moyenne de la plaque varie entre 425 et 518 °C/min selon la densité de flux imposée avec des valeurs maximales supérieures à 750°C/min au début de l'expérience pour le chêne. Pour l'eucalyptus, la vitesse

de chauffe moyenne varie entre 345 et 465°C/min selon la densité de flux avec des valeurs maximales supérieures à 700°C/min au début de l'expérience pour l'eucalyptus. La vitesse de chauffe moyenne augmente avec la densité de flux pour les deux bois. Durant les vingt premières secondes de la dégradation thermique, l'évolution de la température du chêne et de l'eucalyptus est similaire puis celle du chêne augmente plus rapidement. Après 30 s, pour les deux bois, la température va augmenter moins rapidement. La température atteint finalement une asymptote entre 150 et 250 s pour l'eucalyptus quelle que soit la densité de flux. C'est également le cas pour le chêne pour des densités de flux de 18 et 20 kW/m² et après 100 s pour les plaques de chêne soumises à des densités de flux de 25 et 27 kW/m². Une fois la température maximale atteinte, celle-ci reste constante jusqu'à ce que la dégradation thermique soit terminée. Les températures maximales sont plus importantes pour le chêne que pour l'eucalyptus avec des valeurs variant respectivement entre 607°C et 625°C pour le chêne et entre 497°C et 597°C pour l'eucalyptus.

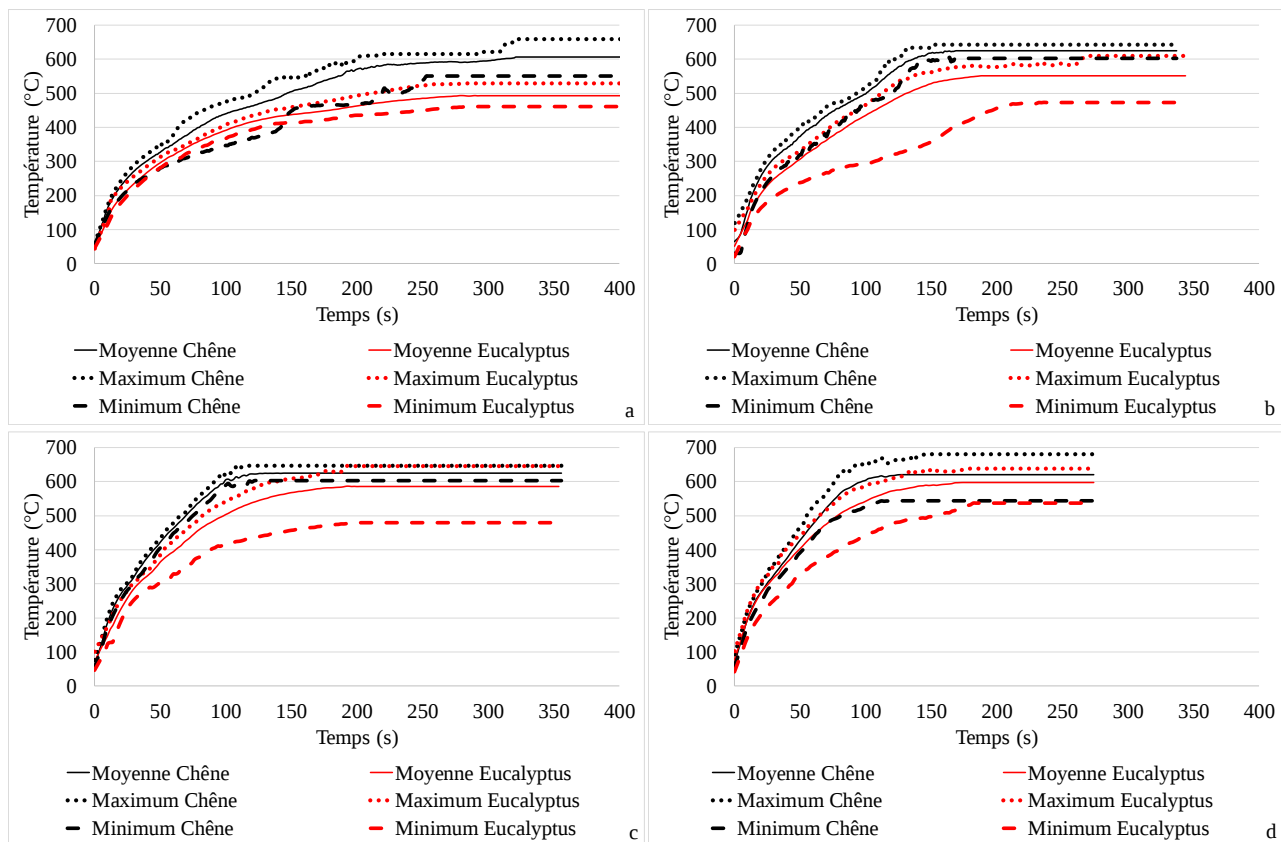


Figure 4.7 : Evolution de la température des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à des densités de flux de : a) 18 kW/m² b) 20 kW/m² c) 25 kW/m² et d) 27 kW/m².

Afin de mettre en évidence l'influence de la densité de flux sur la montée en température des différentes plaques, nous avons tracé pour chaque type de bois les températures moyennes obtenues avec les quatre densités de flux sur le même graphique. La Figure 4.8 met en évidence le fait que plus la densité de flux augmente, plus la température des plaques de bois augmente rapidement. Pour l'eucalyptus, les valeurs asymptotiques des températures augmentent avec la densité de flux en variant entre 551°C et 597°C. En revanche, pour le chêne, une même valeur asymptotique de température est obtenue pour une densité de flux supérieure ou égale à 20 kW/m². Pour 18 kW/m², la valeur de l'asymptote est légèrement inférieure

(607°C au lieu de 625°C). Les valeurs d'asymptote obtenues sont supérieures aux valeurs rencontrées dans la littérature. Fateh et coll. ont en effet obtenu des asymptotes variant entre 400°C et 500°C pour une étude sur la dégradation du bois de contreplaqué soumis à des densités de flux variant entre 20 et 30 kW/m² [15] et Lautenberger et Fernandez-Pello ont mesuré des températures de 500°C pour du pin blanc soumis à une densité de flux de 25 kW/m² [42].

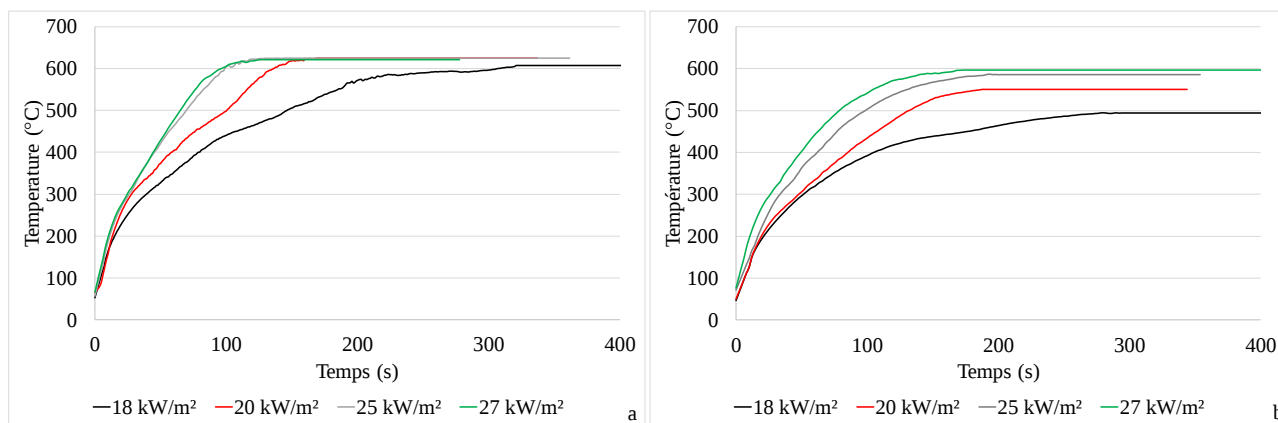


Figure 4.8 : Evolution de la température moyennes pour les différentes densités de flux pour les plaques de a) chêne et b) d'eucalyptus.

1.2.2. Evolution de la masse des plaques de bois

La Figure 4.9 présente l'évolution de la perte de masse adimensionnée et de la vitesse de perte de masse adimensionnée (MLR/m_0) en fonction du temps pour les deux essences de bois et les différentes densités de flux à savoir 18, 20, 25 et 27 kW/m². Le Tableau 4-2 présente pour le chêne et l'eucalyptus aux différentes densités de flux étudiées : la température (T_{max}) et le temps (t_{max}) pour lesquels la vitesse de perte de masse est maximale, la valeur maximale de la vitesse de perte de masse adimensionnée (MLR_{max}/m_0) et la fraction massique résiduelle. Pour l'ensemble des densités de flux, la perte de masse des plaques suit trois phases. Tout d'abord, la masse reste constante jusqu'à ce que les plaques de bois atteignent environ 250°C. La masse décroît ensuite. Plus la densité de flux imposée est importante, plus la perte de masse est intense et rapide. Ces résultats sont en accord avec ceux de Fateh et coll. pour du bois de contreplaqué et des aiguilles de Pin [22,99]. Quelle que soit la densité de flux, le maximum de perte de masse se produit lorsque la température moyenne des plaques se situe entre 387°C et 471°C pour le chêne et entre 416°C et 480°C pour l'eucalyptus. Les pics de vitesse de perte de masse augmentent par ailleurs de manière linéaire lorsque la densité de flux augmente (Figure 4.10).

Tableau 4-2 : Paramètres caractéristiques associés aux pertes de masse des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à différentes densités de flux sur la face supérieure et avec une condition adiabatique sur la face inférieure.

Espèce	Densité de flux (kW/m ²)	T _{max} (°C)	t _{max} (s)	MLR _{max} /m ₀ (×10 ⁻³ s ⁻¹)	Résidus (%)
Chêne	18	387 ± 9	94 ± 2	5,96 ± 0,38	0,2 ± 0,0
	20	395 ± 18	71 ± 9	7,65 ± 0,35	0,2 ± 0,0
	25	431 ± 43	62 ± 5	11,75 ± 0,45	0,2 ± 0,0
	27	471 ± 43	56 ± 11	13,41 ± 2,23	0,2 ± 0,0
Eucalyptus	18	416 ± 24	92 ± 16	4,85 ± 1,75	8,8 ± 1,6
	20	422 ± 24	64 ± 4	6,49 ± 1,24	2,1 ± 0,2
	25	439 ± 7	62 ± 2	10,34 ± 0,82	0,1 ± 0,0
	27	480 ± 36	54 ± 9	12,89 ± 2,57	0,1 ± 0,0

Pour illustrer ce résultat, nous avons tracé dans la Figure 4.10 l'évolution des pics maximums de vitesse de perte de masse adimensionnée en fonction de la densité de flux imposée. Nous remarquons que, pour les deux espèces de bois, ces pics augmentent linéairement avec la densité de flux avec un coefficient de détermination très proche de 1. Pour le chêne, nous obtenons une augmentation de $0,83 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ pour 1 kW/m². Pour l'eucalyptus, l'augmentation est légèrement supérieure ($0,86 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ pour 1 kW/m²) même si les valeurs de MLR_{max}/m₀ restent plus faibles que celles du chêne. L'essence de bois influence également la perte de masse. La vitesse maximale de perte de masse est en effet plus importante (entre 4 et 19 % suivant la densité de flux imposée) pour les plaques de chêne que pour les plaques d'eucalyptus. Ce pic intervient cependant à une température plus élevée pour l'eucalyptus que pour le chêne ce qui est en accord avec les résultats obtenus en thermogravimétrie (cf. Chapitre 3). Enfin, la masse atteint une asymptote. On observe deux comportements différents pour cette dernière phase. Pour le chêne, quelle que soit la densité de flux, il ne reste en fin de dégradation que des cendres soit 0,2 % de la masse initiale. Pour l'eucalyptus, la dégradation est également totale avec des densités de flux supérieures ou égales à 25 kW/m². En revanche, pour des densités de flux de 18 et 20 kW/m², nous observons une masse résiduelle respective de 8,8 % et 2,1 %. Pour ces deux cas, l'oxydation du résidu carbonneux n'est pas complète car les températures atteintes sur les plaques d'eucalyptus ne sont pas suffisantes pour permettre son oxydation totale.

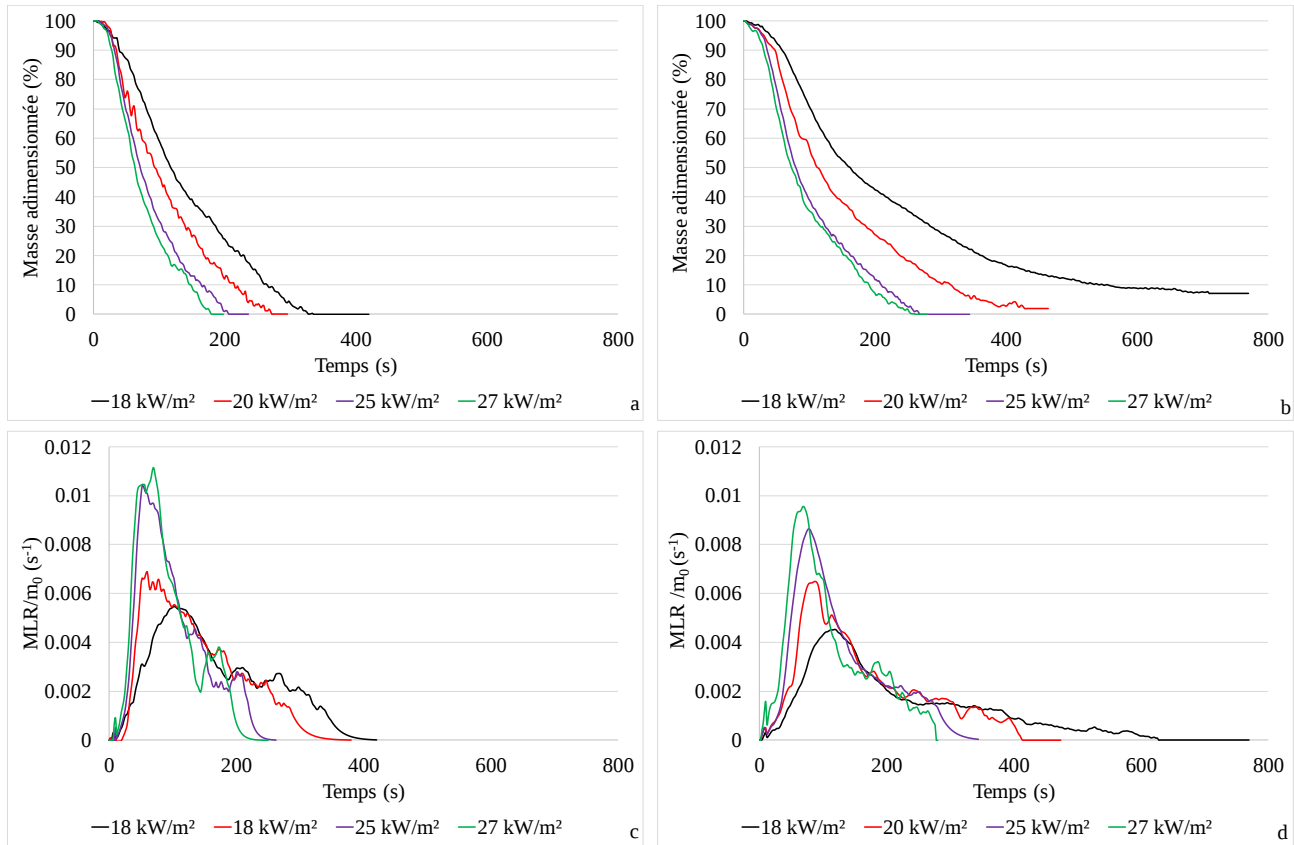


Figure 4.9 : Perte de masse et vitesse de perte de masse adimensionnées des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à différentes densités de flux avec une condition adiabatique sur la face inférieure : a) perte de masse adimensionnée du chêne b) perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus c) vitesse de perte de masse adimensionnée du chêne et d) vitesse de perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus.

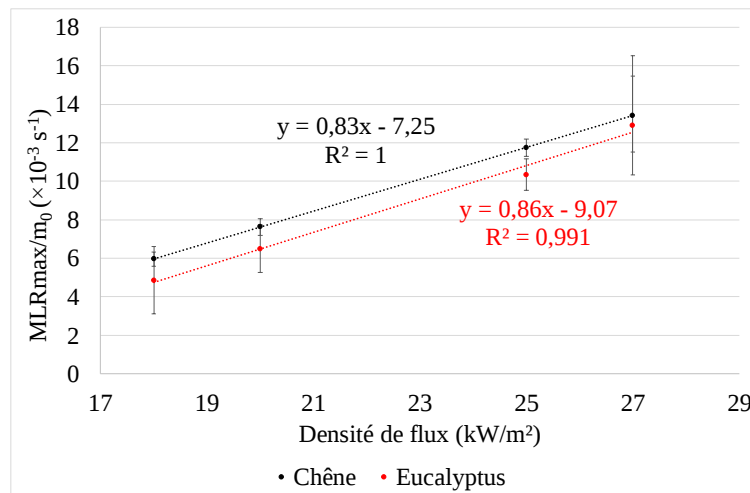
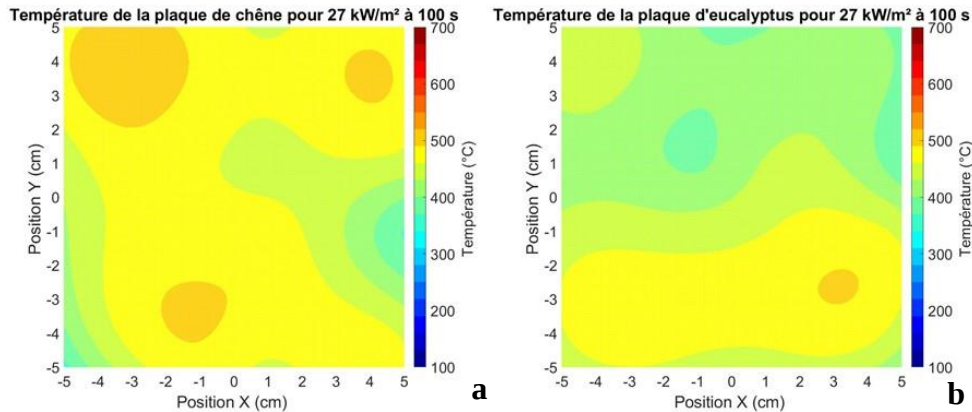


Figure 4.10 : Pic de vitesse de perte de masse adimensionnée en fonction de la densité de flux imposée sur la face supérieure pour une condition limite adiabatique appliquée sur la face inférieure des plaques.

1.3. Description de la dégradation thermique en imposant une condition limite avec pertes convectives sous la face inférieure des plaques de bois

1.3.1. Evolution de la température

La Figure 4.11 présente le champ de température obtenu avec la caméra infrarouge à 100 s pour les plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à une densité de flux de 27 kW/m^2 avec une condition limite avec pertes convectives sous la face inférieure des plaques de bois. En modifiant la condition aux limites, nous constatons toujours une hétérogénéité de la température à la surface des plaques. En effet, au bout de 100 s, nous observons des zones où la température est plus élevée. Elles se situent à partir de 3 cm de part et d'autre du centre de la plaque. Les températures maximales atteintes au bout de 100 s, sont respectivement de 550°C et 500°C pour le chêne et l'eucalyptus. Nous observons ainsi le même phénomène qu'en imposant une condition adiabatique sous la face inférieure des plaques de bois avec la formation de « points chauds » à 3 cm du centre des plaques.



Au-delà de 100 s, la température continue d'augmenter sur l'ensemble de la plaque jusqu'à atteindre des valeurs suffisantes pour amorcer l'oxydation du résidu charbonneux. Afin de visualiser ce phénomène, les images thermiques obtenues grâce à la caméra infrarouge pour le chêne et l'eucalyptus sont données dans les Figures 4.12 et 4.13 pour une densité de flux de 27 kW/m^2 . L'oxydation du résidu charbonneux démarre au bout de 220 s pour le chêne et de 260 s pour l'eucalyptus. Des braises rougeoyantes apparaissent à plusieurs endroits de la plaque ce qui se caractérise par des températures enregistrées comprises entre 650 et 700°C . La position de ces premières braises varie d'une expérience à l'autre, notamment à cause des mouvements d'air dans la pièce lors des expériences. La présence des braises entraîne la consommation du résidu charbonneux ce qui se traduit par l'apparition de trous dans les plaques (représentés sur les Figures 4.12 et 4.13 par des cercles noirs). Les zones où la couleur rouge prédomine correspondent à du résidu charbonneux non oxydé. Ces trous vont alors s'étendre vers le centre et les bords des plaques de bois montrant la propagation du front d'oxydation vers ces zones. La propagation de ce front est rapide puisqu'au bout respectivement de 80 et 90 s pour le chêne et l'eucalyptus, plus de la

moitié de la surface de la plaque a été consommée. La température du front d'oxydation reste comprise entre 650°C et 700°C tout au long de sa propagation.

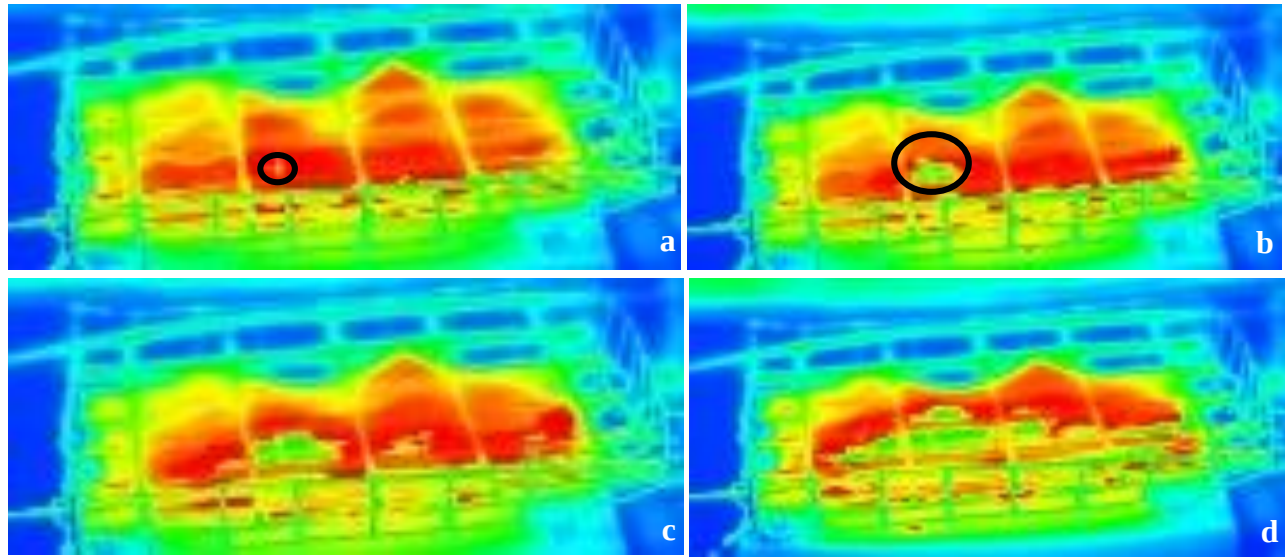


Figure 4.12 : Propagation de l'oxydation du résidu charbonneux sur une plaque de chêne soumise à une densité de flux de 27 kW/m² à différents instants : a) 220 s b) 240 s c) 260 s et d) 290 s.

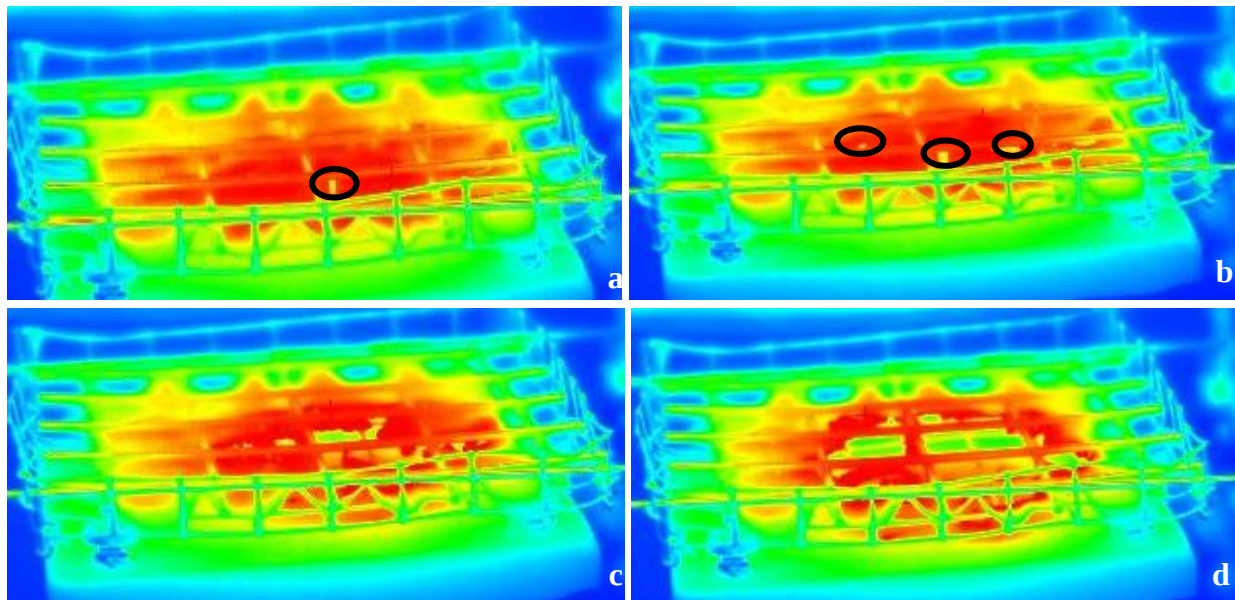


Figure 4.13 : Propagation de l'oxydation du résidu charbonneux d'une plaque d'eucalyptus soumise à une densité de flux de 27 kW/m² à différents instants: a) 260 s b) 290 s c) 310 s et d) 340 s.

La Figure 4.14 présente la superposition de la température des plaques de chêne et d'eucalyptus enregistrée avec la caméra infrarouge pour les différentes densités de flux étudiées (21, 23, 25, 27 et 28,5 kW/m²) pour la condition limite de type convection libre. Pour une raison de clarté de la figure, nous avons uniquement tracé la température moyenne encadrée par des valeurs minimales et maximales. Les comportements observés en fonction de la densité de flux imposée sont différents. Pour des densités de

flux inférieures ou égales à 23 kW/m² pour le chêne et inférieures ou égales à 25 kW/m² pour l'eucalyptus, l'évolution de la température des deux bois se fait en trois phases. Après l'ouverture de l'obturateur du cône chauffant, la température des plaques augmente de manière quasi-linéaire pendant environ 30 s. Durant cette phase, la vitesse de chauffe moyenne des plaques se situe autour de 400°C/min avec des valeurs maximales supérieures à 650°C/min pour le chêne et à 600°C/min pour l'eucalyptus en début d'expérience. Par la suite, la température augmente moins rapidement et atteint une asymptote entre 170 et 250 s. Pour une densité de flux donnée, les températures des deux essences sont très proches : 365°C et 367°C à 21 kW/m² et 381 et 372°C à 23 kW/m² pour le chêne et l'eucalyptus respectivement. Pour des densités de flux supérieures à 25 kW/m² pour le chêne et à 27 kW/m² pour l'eucalyptus, l'évolution de la température suit quatre phases. Dès le début de l'expérience, la température des plaques de bois augmente rapidement de manière quasi-linéaire pendant environ 30 s. Durant cette phase, la vitesse de chauffe moyenne se situe autour de 500°C/min avec des valeurs maximales supérieures à 900°C/min pour le chêne et 800°C/min pour l'eucalyptus. La température augmente ensuite moins rapidement pour les deux bois durant 100 à 120 s pour le chêne et 180 à 250 s pour l'eucalyptus. Une fois cette phase terminée, l'augmentation de la température est plus rapide jusqu'à atteindre une valeur asymptotique. Cette valeur varie en fonction du bois et de la densité de flux. Cette augmentation correspond à une réaction exothermique caractérisant l'oxydation du résidu carbonneux. Une fois la température maximale atteinte, cette dernière reste constante jusqu'à ce que la dégradation thermique soit terminée. Les valeurs asymptotiques sont plus élevées pour le chêne que pour l'eucalyptus quelle que soit la densité de flux. Elles varient entre 580°C et 609°C pour l'eucalyptus et valent respectivement 566°C, 582 °C et 633°C pour une densité de flux de 25, 27 et 28,5 kW/m² pour le chêne.

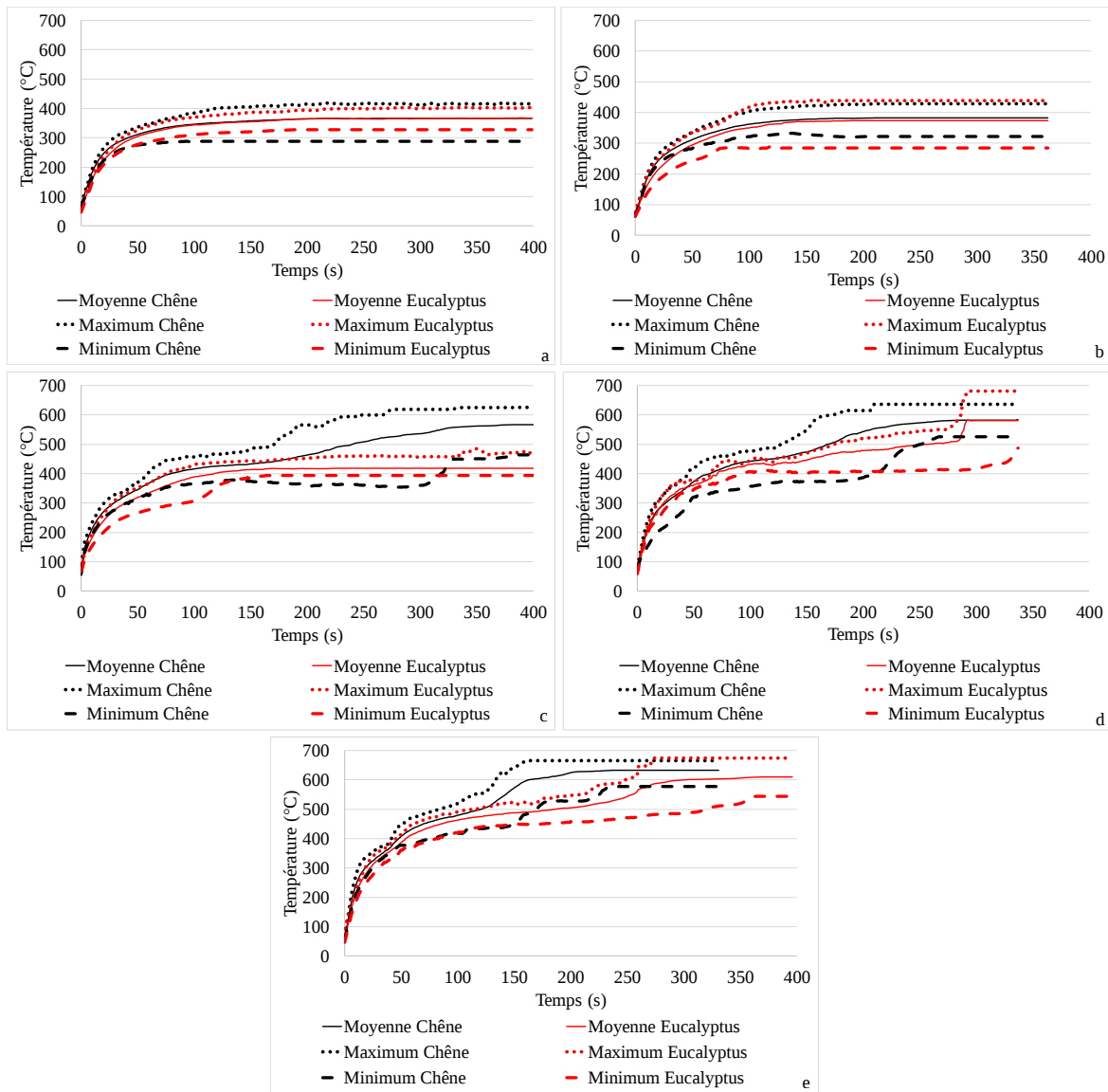


Figure 4.14 : Evolution de la température des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à des densités de flux de : a) 21 kW/m² b) 23 kW/m² c) 25 kW/m² d) 27 kW/m² et e) 28,5 kW/m².

Afin de mettre en évidence l'influence de la densité de flux sur l'évolution de la température des plaques de bois, nous avons tracé sur la Figure 4.15 les températures moyennes pour chaque essence de bois obtenues avec les cinq densités de flux. La température des plaques de chêne et d'eucalyptus augmente plus rapidement lorsque la densité de flux augmente. En présence d'oxydation du résidu charbonneux, on remarque que la valeur asymptotique de la température des plaques d'eucalyptus varie moins que celles des plaques de chêne. En effet, les valeurs atteintes se situent entre 598°C et 609°C à partir de 27 kW/m² tandis que pour le chêne elles varient entre 566°C et 633°C entre 25 et 28,5 kW/m². Ces résultats sont en accord avec ceux de McAllister et Finney qui situent la plage de température d'oxydation du résidu charbonneux de combustibles végétaux thermiquement fins entre 500°C et 600°C [194].

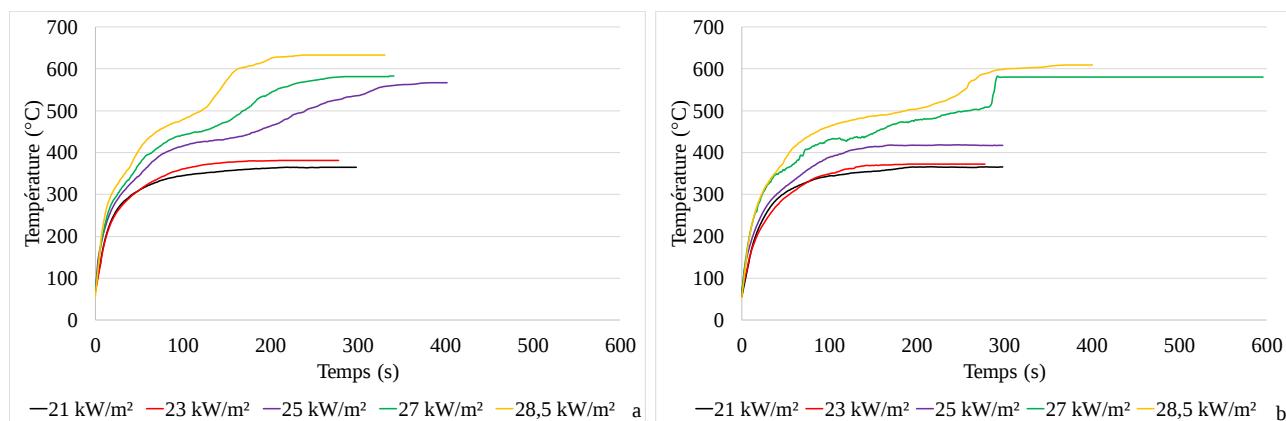


Figure 4.15 : Evolution de la température moyennes pour les différentes densités de flux pour les plaques de a) chêne et b) d'eucalyptus.

Afin de comparer l'évolution de la température en fonction du type de condition limite utilisée (condition adiabatique ou condition de convection libre sur la face inférieure des plaques de bois), nous avons tracé sur la Figure 4.16 la température au cours du temps pour une densité de flux de 25 kW/m^2 pour les deux conditions limites et pour les deux bois. Le comportement des plaques change à partir de 20 s pour le chêne et de 30 s pour l'eucalyptus. Dans le cas de la configuration avec convection libre, l'augmentation de température de la plaque est plus faible. L'air ambiant, qui est au contact de la face inférieure, refroidit la plaque et limite l'accroissement de sa température. Ces pertes n'empêchent pas les plaques de chêne d'être complètement dégradées et d'avoir des valeurs asymptotiques de température proches pour les deux conditions aux limites. En revanche, pour l'eucalyptus, ces pertes empêchent l'oxydation du résidu carbonneux. Dans ce cas, les valeurs des températures finales (asymptotes) sont très différentes pour les deux conditions limites (586°C pour la condition adiabatique et 415°C pour la condition de convection libre).

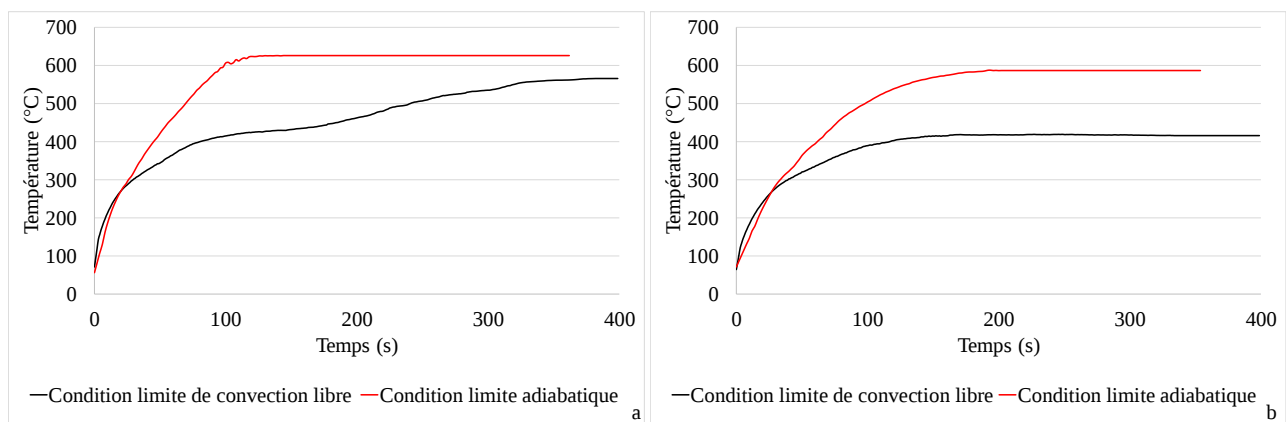


Figure 4.16 : Comparaison de la température des plaques en fonction du type de condition limite imposée sur la face inférieure (adiabatique ou convection libre) pour une densité de flux de 25 kW/m^2 appliquée à la face supérieure : a) chêne b) eucalyptus.

1.3.2. Evolution de la masse

La Figure 4.17 présente l'évolution de la perte de masse adimensionnée et de la vitesse de perte de masse adimensionnée (MLR/m_0) en fonction du temps pour les deux essences de bois et pour les différentes densités de flux imposées sur la face supérieure à savoir 21, 23, 25, 27 et 28,5 kW/m² et la condition de convection libre sur la face inférieure. Comme pour la condition adiabatique, le Tableau 4-3 présente les principaux paramètres de la dégradation thermique du chêne et de l'eucalyptus aux différentes densités de flux étudiées pour la condition de convection libre. L'évolution de la perte de masse au cours du temps suit trois phases. La masse n'évolue pas tant que la température des plaques de bois n'a pas atteint 250°C. Elle commence ensuite sa décroissance. Plus la densité de flux augmente, plus la perte de masse est rapide et forte, ce qui est en accord avec les résultats de la littérature [17,18]. La vitesse maximale de perte de masse est plus importante pour le chêne que pour l'eucalyptus (entre 8 et 35 % en fonction de la densité de flux). L'écart entre les pics de MLR de chaque espèce de bois se réduit lorsque la densité de flux augmente. La perte de masse maximale des plaques de bois se produit lorsque les températures moyennes du chêne se situent entre 323°C et 429°C et celles de l'eucalyptus entre 342°C et 431°C. De manière générale, les vitesses maximales de perte de masse ont lieu à des températures plus élevées pour l'eucalyptus, ce qui est en accord avec les résultats obtenus à l'échelle matière (Figure 3.3). Comme pour la condition adiabatique, les pics des maxima de vitesse de perte de masse augmentent de manière linéaire avec la densité de flux (Figure 4.18). Cette augmentation est plus importante pour l'eucalyptus ($0,75 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ pour 1 kW/m²) que pour le chêne ($0,66 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ pour 1 kW/m²) mais les valeurs sont inférieures à celles obtenues avec la condition adiabatique. Dans la dernière phase, la perte de masse atteint une asymptote où nous observons trois comportements différents. Pour des densités de flux inférieures ou égales à 23 kW/m² pour le chêne et inférieures ou égales à 25 kW/m² pour l'eucalyptus, nous obtenons des masses résiduelles supérieures à 39 %. D'après les analyses thermogravimétriques réalisées sous atmosphère inerte (Tableau 3-1), le pourcentage de résidu charbonneux est d'environ 22 % pour le chêne et 26 % pour l'eucalyptus. Pour ces densités de flux, les plaques sont en cours de dégradation et la totalité de la plaque n'a pas été transformée en résidu charbonneux en raison des trop faibles températures. Pour une densité de flux de 27 kW/m², la masse résiduelle est de 6 % pour l'eucalyptus. Dans ce cas, l'ensemble de la plaque s'est transformée en résidu charbonneux mais les températures n'ont pas été suffisantes pour permettre une oxydation complète. En revanche, pour des densités de flux supérieures ou égales à 25 kW/m² pour le chêne et pour 28,5 kW/m² pour l'eucalyptus, la masse finale des plaques est proche de 0 ce qui est caractéristique d'une dégradation complète des plaques et donc de la transformation complète du résidu charbonneux en cendres.

Tableau 4-3 : Paramètres caractéristiques associés aux pertes de masse des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à différentes densités de flux sur la face supérieure et avec une condition de convection libre sur la face inférieure.

Bois	Densité de flux (kW/m ²)	T _{max} (°C)	t _{max} (s)	MLR _{max} /m ₀ (×10 ⁻³ s ⁻¹)	Résidu (%)
Chêne	21	323 ± 9	84 ± 16	4,81 ± 0,25	50,0 ± 0,6
	23	346 ± 1	77 ± 6	6,27 ± 0,21	42,8 ± 2,4
	25	381 ± 17	70 ± 9	7,89 ± 0,65	0,4 ± 0,3
	27	403 ± 19	58 ± 6	8,51 ± 0,90	0,2 ± 0,0
	28,5	429 ± 6	49 ± 2	9,98 ± 0,54	0,2 ± 0,0
Eucalyptus	21	342 ± 7	92 ± 6	3,14 ± 0,10	53,9 ± 0,5
	23	351 ± 3	91 ± 9	5,28 ± 0,25	46,2 ± 0,4
	25	358 ± 20	67 ± 9	6,61 ± 0,58	39,4 ± 2,5
	27	423 ± 17	64 ± 7	7,48 ± 0,36	6,0 ± 1,3
	28,5	431 ± 10	63 ± 4	9,15 ± 0,38	0,1 ± 0,0

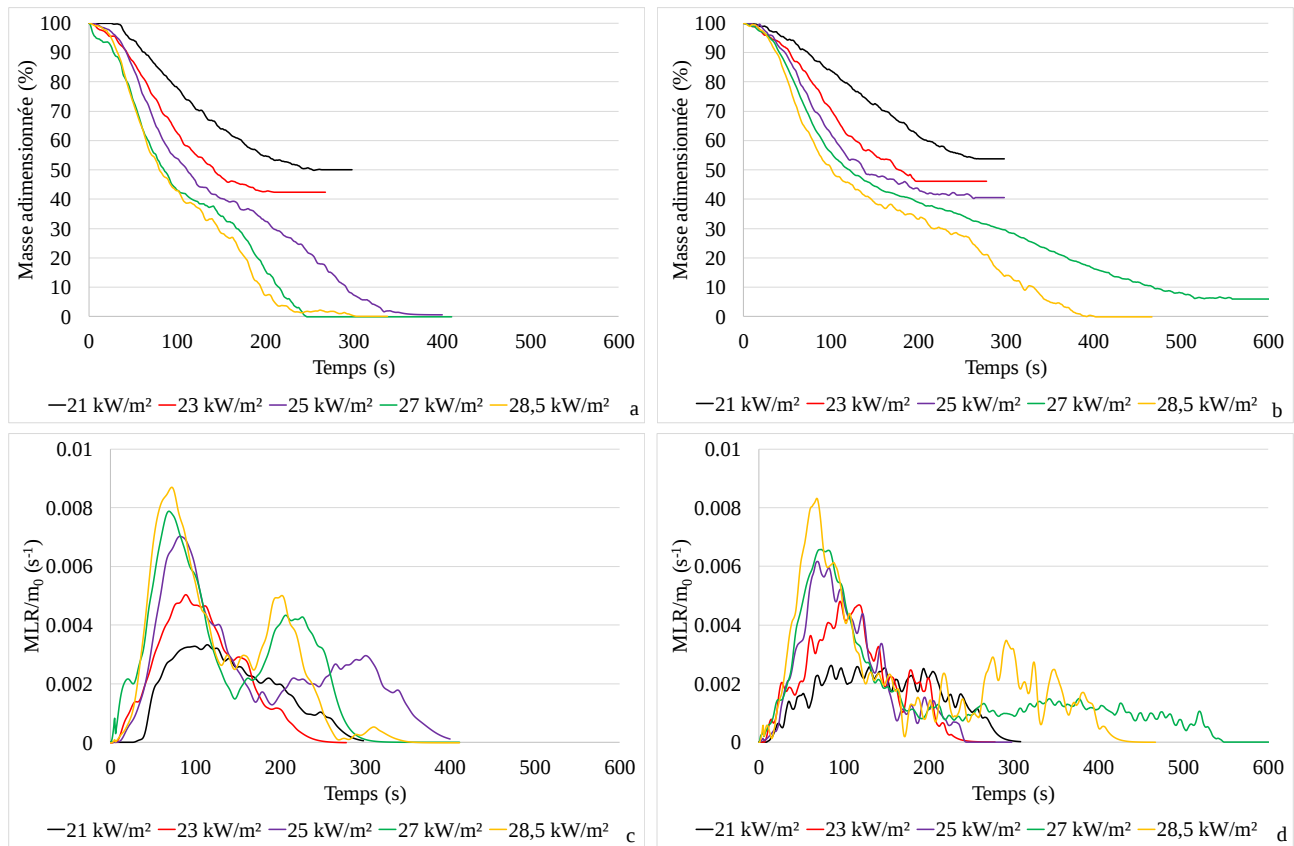


Figure 4.17 : Perte de masse et vitesse de perte de masse adimensionnées des plaques de chêne et d'eucalyptus soumises à différentes densité de flux avec une condition de convection libre sur la face inférieure : a) perte de masse adimensionnée du chêne b) perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus c) vitesse de perte de masse adimensionnée du chêne et d) vitesse de perte de masse adimensionnée de l'eucalyptus.

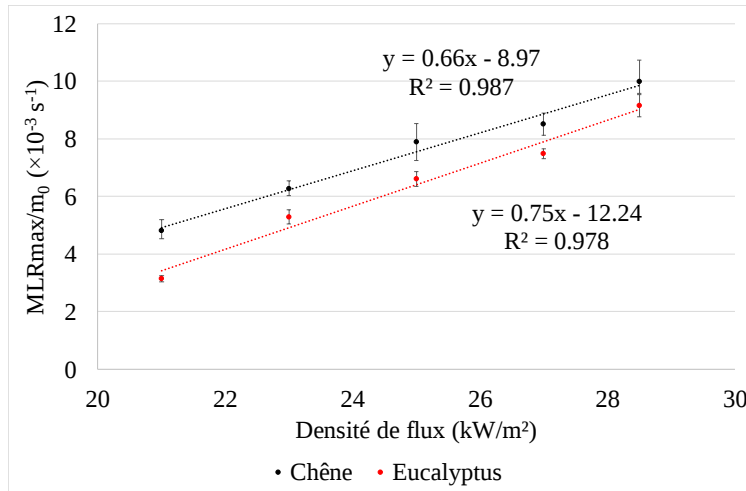


Figure 4.18 : Pic de vitesse de perte de masse adimensionnée et la densité de flux imposée sur la face supérieure pour une condition limite avec pertes convectives appliquée sur la face inférieure des plaques.

Comme pour la température, nous avons comparé l'évolution de la masse des plaques au cours du temps, obtenue avec les deux conditions aux limites. La Figure 4.19 présente les résultats obtenus pour une densité de flux de 25 kW/m². Pour les deux bois, la perte de masse est beaucoup plus rapide pour la condition adiabatique. Ce résultat est cohérent avec l'évolution de la température observée sur la Figure 4.16. La température des plaques posées sur la laine en céramique (condition adiabatique) augmente en effet de manière plus rapide que lorsque la face inférieure est en contact avec l'air ambiant. Cela engendre donc une dégradation plus précoce et donc une perte de masse plus rapide et plus forte.

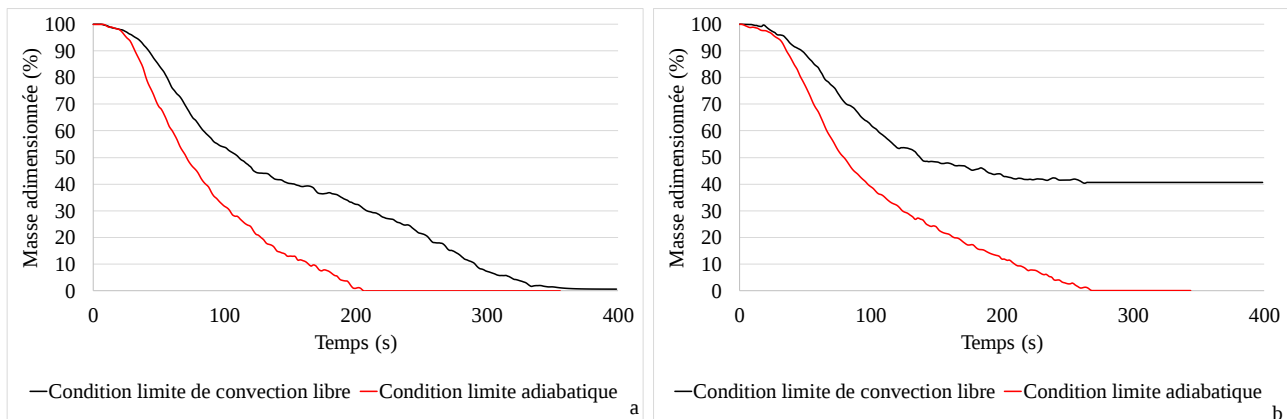


Figure 4.19 : Perte de masse des plaques pour une condition limite adiabatique et une condition limite en convection libre sur la face inférieure et pour une densité de flux de 25 kW/m² appliquée sur la face supérieure : a) chêne b) eucalyptus.

1.4. Evolution des surfaces de dégradation des plaques

Nous avons déterminé l'évolution des surfaces de gazéification et d'oxydation du résidu charbonneux des plaques de chêne et d'eucalyptus afin de pouvoir réaliser une convolution du résultat numérique lors des tests des mécanismes réactionnels avec le code de calcul GPYRO (cf. Chapitre 5). Pour cela, nous avons utilisé les températures mesurées à la surface des plaques de chêne et d'eucalyptus avec la caméra infrarouge. Nous avons considéré que la plaque se gazéifiait lorsque sa température était comprise entre 250 et 580°C. Au-delà de 580°C, nous avons fait l'hypothèse qu'il y avait oxydation du résidu charbonneux. Ces températures ont été choisies en se basant sur le début des pertes de masse des plaques et sur l'apparition des premières braises. De manière pratique, la surface de dégradation a été calculée de la façon suivante. Nous avons utilisé les seize zones de mesure de température puis nous avons réalisé une interpolation de type SPLINE à l'aide du logiciel MATLAB tous les centimètres. A partir des données interpolées, nous avons compté le nombre de zones qui étaient compris entre 250°C et 580°C pour la gazéification et au-delà de 580°C pour l'oxydation du résidu charbonneux. Les surfaces ont été calculées avec la relation suivante :

$$S(t) = \frac{S_{\text{plaque}} n_b(t)}{N} \quad (4.1)$$

Où $S(t)$ est la surface de gazéification ou d'oxydation du résidu charbonneux selon le cas considéré, S_{plaque} la surface de la plaque égale à 0,01 m², $n_b(t)$ le nombre de zones à la surface de la plaque correspondant à une température comprise entre 250°C et 580°C pour la gazéification et supérieure à 580°C pour l'oxydation du résidu charbonneux, N le nombre total de valeurs de température à la surface de la plaque après interpolation et t le temps d'expérience.

1.4.1. Surface gazéifiée

La Figure 4.20 présente la surface des plaques de chêne et d'eucalyptus pour cinq densités de flux : 21, 23, 25, 27 et 28,5 kW/m². Pour les deux bois, la surface est tout d'abord nulle puis augmente quasi-linéairement à partir de 5 s pour des densités de flux de 27 et 28,5 kW/m² et à partir de respectivement 10 et 13 s pour le chêne et l'eucalyptus pour des densités de flux inférieures à 27 kW/m². La surface augmente ensuite jusqu'à atteindre une asymptote égale à la valeur de la surface totale des plaques (0,01 m²). Pour les densités de flux où il y a oxydation du résidu charbonneux, à savoir à partir respectivement de 25 et 27 kW/m² pour le chêne et l'eucalyptus, la surface gazéifiée diminue ensuite jusqu'à revenir à 0. Cette diminution intervient respectivement au bout de 175 et 240 s à 27 et 28,5 kW/m² pour l'eucalyptus et au bout respectivement de 125, 127 et 186 s à 25, 27 et 28,5 kW/m². Bien que les courbes suivent toutes les mêmes tendances, des différences apparaissent en fonction de la densité de flux et de l'espèce. Lorsque la densité de flux augmente, la surface gazéifiée va augmenter plus rapidement. Pour l'eucalyptus, il faut entre 17 et 51 s pour que la gazéification atteigne toute la surface de la plaque pour des densités de flux comprises entre 21 et 28,5 kW/m². Pour le chêne, on observe le même comportement avec des temps plus courts compris entre 14 et 24 s pour les mêmes densités de flux.

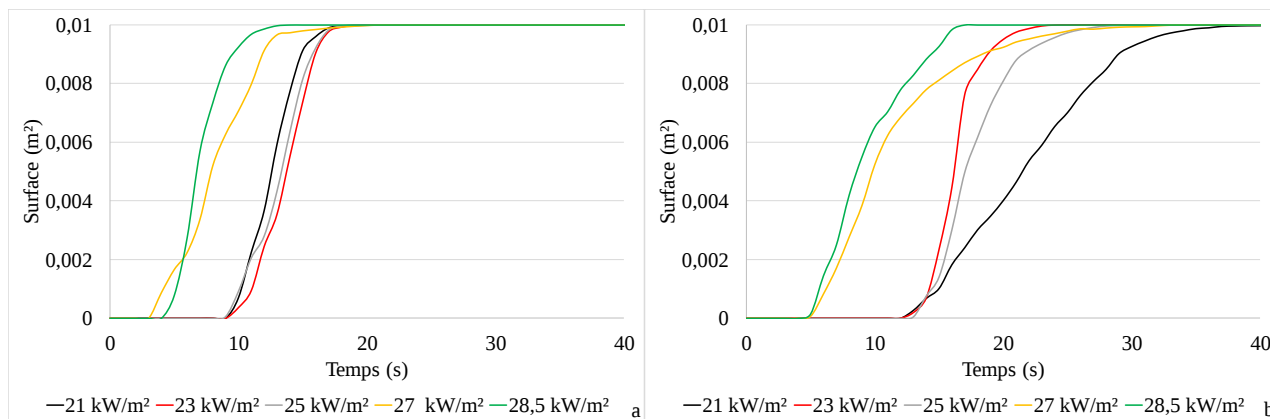


Figure 4.20 : Surface dégradée au cours de la gazéification des plaques de : a) chêne b) eucalyptus.

1.4.2. Surface d'oxydation du résidu charbonneux

La Figure 4.21 présente les surfaces d'oxydation du résidu charbonneux pour le chêne et l'eucalyptus. Les résultats sont donnés pour des densités de flux comprises entre 25 et 28,5 kW/m² pour le chêne et pour 27 et 28,5 kW/m² pour l'eucalyptus. L'oxydation démarre respectivement au bout de 123, 127 et 188 s pour une densité de flux de 25, 27 et 28,5 kW/m² pour le chêne et au bout respectivement de 176 et 249 s pour une densité de flux de 27 et 28,5 kW/m² pour l'eucalyptus. L'oxydation du résidu charbonneux démarre donc respectivement 49 et 61 s plus tard pour l'eucalyptus à 27 et 28,5 kW/m². Pour les deux bois, en augmentant la densité de flux, l'oxydation du résidu charbonneux débute plus tôt et concerne une plus grande surface de plaque. Pour le chêne, les surfaces d'oxydation du résidu charbonneux sont supérieures à celles rencontrées pour l'eucalyptus. En revanche, l'oxydation a lieu sur une durée plus courte pour le chêne (entre 60 et 105 s) que pour l'eucalyptus (entre 115 et 209 s). Pour l'eucalyptus, l'oxydation du résidu charbonneux n'est pas complète à 27 kW/m² vraisemblablement à cause du fait que l'oxydation ne dure pas assez longtemps. En effet, d'après la Figure 4.14, au bout de 250 s la température de la plaque d'eucalyptus atteint son maximum, avec une valeur moyenne de 580°C et une valeur maximale de 681°C. La durée de ce palier n'est que de 50 s, ce qui est insuffisant pour oxyder la totalité de la plaque (la quantité finale restante correspond à 6 % de la masse initiale d'eucalyptus).

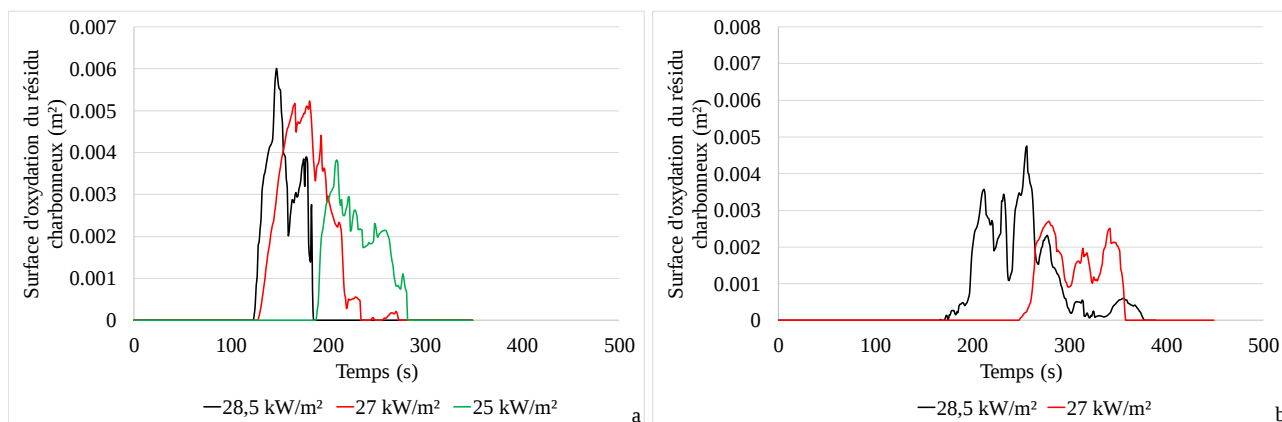


Figure 4.21 : Surface d'oxydation du résidu charbonneux pour : a) le chêne b) l'eucalyptus.

2. Etude de la dégradation des plaques de chêne thermiquement épaisses

Dans cette partie, nous présentons les résultats expérimentaux concernant la dégradation thermique des plaques de chêne de 20,87 mm d'épaisseur. Des densités de flux comprises entre 19 et 28 kW/m² ont été imposées à la surface des échantillons. Cette plage a été choisie afin d'éviter l'auto-inflammation des plaques de bois. Pour cette partie de l'étude, la face inférieure des plaques a été laissée en contact avec l'air ambiant afin d'obtenir une condition aux limites de type convection libre.

2.1. Description de la dégradation thermique des plaques

La dégradation thermique d'une plaque épaisse de chêne entraîne l'apparition des mêmes processus que ceux rencontrés lors de la dégradation des plaques fines : évaporation, gazéification, oxydation du résidu charbonneux et apparition des cendres. La Figure 4.22 présente les photographies de l'état de la plaque à différents instants de la dégradation pour une densité de flux imposée de 23 kW/m². Après l'ouverture de l'obturateur du cône chauffant, les bio-polymères du bois commencent à se dégrader ce qui se caractérise par un noircissement de la plaque [195,196] et par un dégagement de fumée. La zone de noircissement correspond à une zone de gazéification où le bois se transforme progressivement en résidu charbonneux. Tout d'abord, le noircissement n'a lieu qu'en surface puis celui-ci se propage dans l'épaisseur de la plaque (Figure 4.22.b). Le front de gazéification, correspondant à la limite entre les zones noircies et vierges du bois, présente une forme incurvée car la dégradation est plus rapide au centre de la plaque de bois qu'aux bords. Ce phénomène est dû aux pertes thermiques par convection sur les bords de la plaque de bois et à l'inhomogénéité du flux engendré par le cône chauffant. En se dégradant, la plaque va également se craqueler dans le sens des fibres du bois en formant des stries (repérées dans la Figure 4.23 par des cercles rouges). Lorsque les températures sont suffisantes, le résidu charbonneux formé au cours de la dégradation des plaques va s'oxyder et former des braises incandescentes au contact de l'air. Comme pour la gazéification, l'oxydation du résidu charbonneux débute sur la face supérieure de la plaque de bois au niveau du centre de la plaque (Figure 4.22.c) puis se propage vers les bords et dans l'épaisseur. La propagation de l'oxydation du résidu charbonneux dans l'épaisseur de la plaque est favorisée par le craquèlement de celle-ci. Les stries vont en effet permettre à l'air ambiant de pénétrer à l'intérieur du bois (Figure 4.22.d). Une fois l'oxydation terminée, une couche de cendres se forme. Cette dernière débute en surface avant d'apparaître progressivement dans l'épaisseur de la plaque (Figure 4.22.d) derrière le front d'oxydation du résidu charbonneux. Afin de visualiser l'évolution de la dégradation thermique dans l'épaisseur du bois, nous avons représenté dans la Figure 4.24 les différentes zones correspondantes aux étapes de cette dégradation. Lorsque la couche de cendres apparaît à la surface du bois, les différentes étapes de la décomposition du bois ont lieu simultanément dans l'épaisseur jusqu'à ce que le bois soit intégralement consommé.

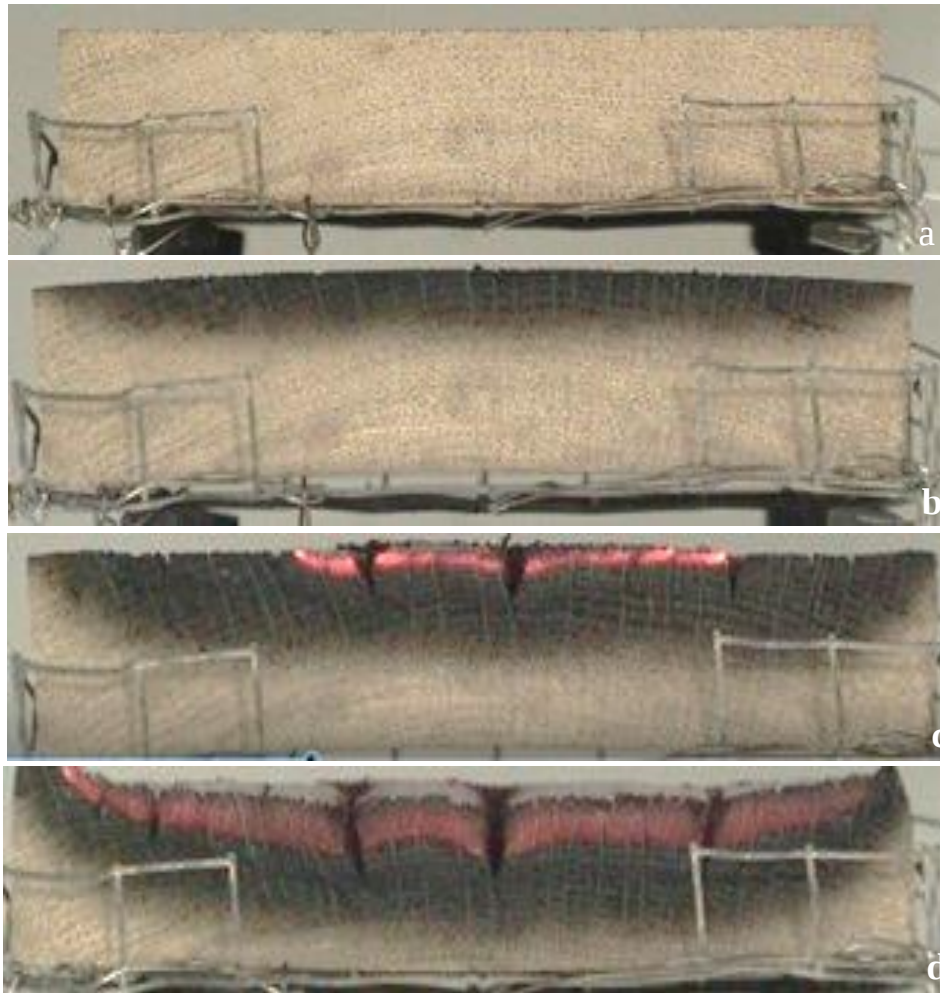


Figure 4.22 : Dégradation thermique d'une plaque de chêne de 20,87 mm d'épaisseur soumise à une densité de flux de 23 kW/m^2 , au cours du temps : a) $t = 0 \text{ s}$ b) $t = 660 \text{ s}$ c) $t = 1260 \text{ s}$ et d) $t = 1800 \text{ s}$.

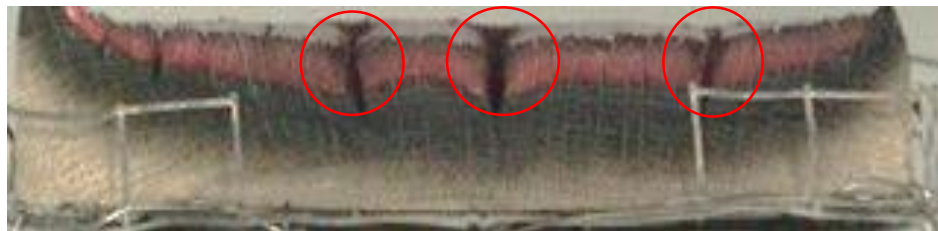


Figure 4.23 : Apparition du craquellement à la surface de la plaque de bois.

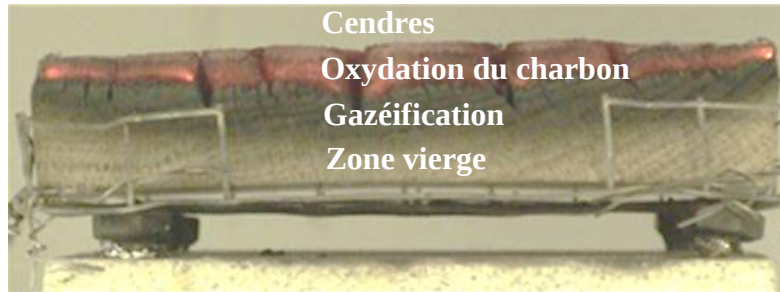


Figure 4.24 : Etapes de la dégradation thermique dans l'épaisseur de la plaque de bois.

2.2. Evolution de la température en surface et à l'intérieur des plaques

La Figure 4.25 présente l'évolution du champ de température à la surface de la plaque de chêne, mesurée avec une caméra infrarouge, pour une exposition à une densité de flux de 23 kW/m^2 . Après l'ouverture de l'obturateur du cône, la plaque s'échauffe et au bout de 150 s, la totalité de la surface a atteint 300°C . On observe ensuite, à partir de 500 s, l'apparition de deux zones chaudes situées dans un rayon de 3 cm autour du centre de la plaque, où les températures sont les plus élevées avec des valeurs atteignant 480°C . Ce phénomène est similaire à celui observé pour les plaques thermiquement fines. Les températures situées dans ces zones présentent une différence maximale de 120°C avec les températures du bord de la plaque et de 80°C avec celles du centre de la plaque. Afin de visualiser ces différences, l'échelle de température de la Figure 4.25.b a été limitée entre 350°C et 500°C . La température dans ces zones, tout comme sur le reste de la plaque, va ensuite augmenter jusqu'à atteindre des valeurs supérieures à 530°C permettant d'initier l'apparition de braises rougeoyantes. L'oxydation du résidu charbonneux va donc commencer dans ces deux zones à partir de 750 s et va se propager vers le centre et les bords de la plaque. A partir de 1000 s, l'ensemble de la surface de la plaque a atteint des températures supérieures à 550°C ce qui est caractéristique de la présence de braises due à l'oxydation du résidu charbonneux.

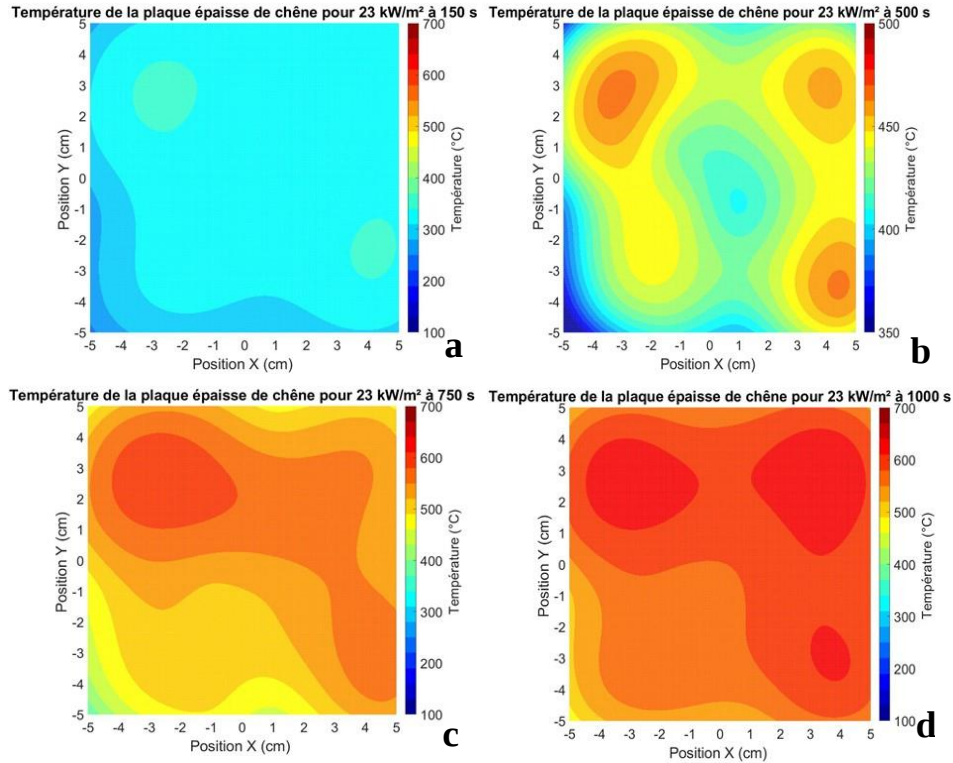


Figure 4.25 : Champ de température à la surface d'une plaque de chêne de 20,87 mm d'épaisseur soumise à une densité de flux de 23 kW/m² aux instants : a) 150 s, b) 500 s, c) 750 s et d) 1000 s.

Afin de comparer le comportement de la température de surface des plaques thermiquement fines et épaisses, la Figure 4.26 représente l'évolution de la température moyenne de surface des plaques thermiquement fines et épaisses. Pour une même densité de flux et des conditions expérimentales similaires, à savoir l'utilisation d'une condition limite de convection libre sous la face inférieure des plaques de bois, nous pouvons remarquer que l'évolution de la température de surface est très différente entre les deux types de plaque de bois. Pour une densité de flux de 23 kW/m², la température de surface de la plaque épaisse de chêne met en moyenne 600 s de plus pour atteindre son asymptote finale. Cette différence est due à la différence d'épaisseur des deux bois. La plaque de chêne s'échauffe plus lentement car la chaleur se propage progressivement dans l'épaisseur. De plus, les asymptotes finales présentent d'importantes différences. La plaque fine atteint une valeur moyenne maximale de 365°C tandis que la plaque épaisse atteint une valeur de 563°C. Ces différences s'expliquent par le fait que la plaque fine est en effet refroidie par la convection au niveau de la face inférieure. Du fait de sa faible épaisseur et de l'absence de gradient thermique, l'évolution de sa température est fortement impactée par les pertes par convection libre. Pour la plaque épaisse, la condition limite n'a pas d'influence sur la température de surface car la surface exposée n'est pas directement en contact avec la zone de refroidissement par convection. Ce résultat est en accord avec les observations de Quintiere [170] concernant l'influence de la condition limite de la face inférieure sur le comportement thermique d'un matériau thermiquement épais. Pour une densité de flux de 28 kW/m², nous observons le même comportement qu'à 23 kW/m². La plaque épaisse atteint son asymptote plus tardivement que l'eucalyptus à cause d'une épaisseur plus importante. L'asymptote de la plaque épaisse est atteinte 540 s plus tard que celle de la plaque fine.

Toutefois, les différences des températures asymptotiques sont moins importantes que celles observées à 23 kW/m². Ce résultat s'explique par le fait que l'oxydation du résidu charbonneux se produit pour les deux types de plaque lorsqu'une densité de flux de 28 kW/m² est imposée. La température moyenne d'oxydation du résidu charbonneux est légèrement inférieure pour les plaques épaisses, avec une valeur de 568°C contre une valeur de 582°C pour les plaques fines.

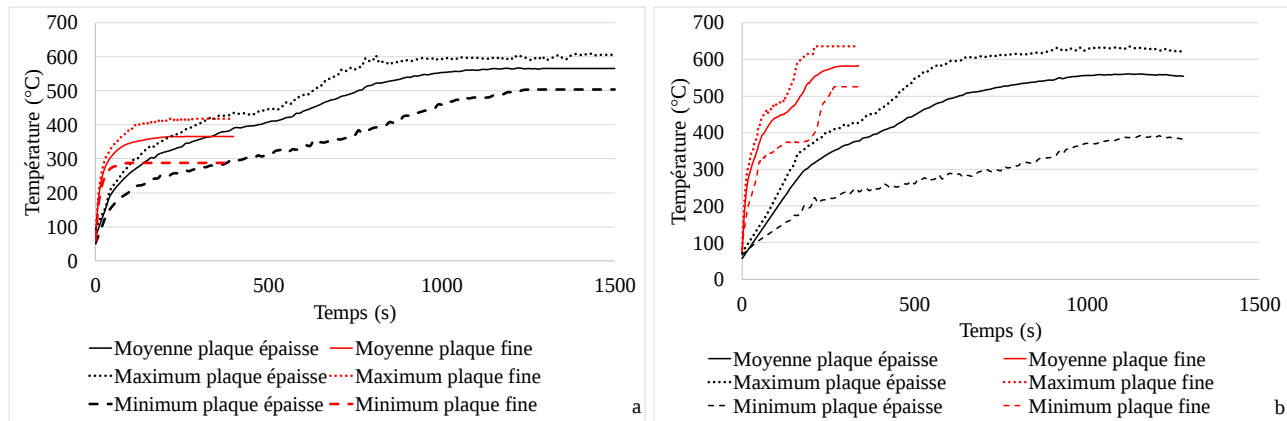


Figure 4.26 : Comparaison de la température de surface des plaques de bois thermiques fines et épaisses pour une densité de flux de : a) 23 kW/m² b) 28 kW/m².

Afin de déterminer l'influence de la densité de flux sur la température de surface des plaques thermiquement épaisses, nous avons superposé sur la même figure les températures moyennes de surface pour chaque densité de flux testée. Comme le montre la Figure 4.27, la température augmente plus rapidement lorsque la densité de flux augmente. La température de surface augmente en suivant trois phases distinctes. Dès l'ouverture de l'obturateur du cône chauffant, la température augmente linéairement durant respectivement 250, 150 et 90 s pour des densités de flux de 28, 23 et 19 kW/m². La durée de cette phase diminue lorsque la densité de flux augmente. Ensuite, l'augmentation de la température ralentit. La durée de cette phase diminue lorsque la densité de flux augmente, avec des durées respectives de 600 s, 1000 s et 1850 s pour des densités de flux de 28, 23 et 19 kW/m². Enfin, la température atteint une asymptote comprise entre 550°C et 568°C. La valeur de l'asymptote augmente légèrement lorsque la densité de flux augmente (augmentation de 18°C entre 19 et 28 kW/m²). Ces valeurs sont supérieures à celles observées dans la littérature [15,42]. En effet, Fateh et coll. ont mesuré des asymptotes variant entre 400°C et 500°C pour la dégradation de plaques de 18 mm de bois de contreplaqué soumises à des densités de flux comprises entre 20 et 30 kW/m². De même, Lautenberger et Fernandez-Pello ont obtenu une asymptote de 500°C pour la dégradation d'une plaque de Pin blanc de 18 mm d'épaisseur soumise à une densité de flux de 25 kW/m².

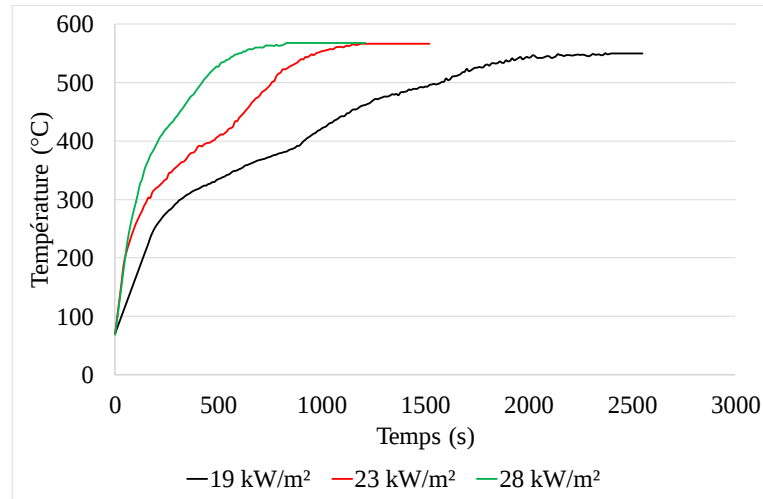


Figure 4.27 : Evolution de la température de surface des plaques de chêne en fonction de la densité de flux imposée à la surface de l'échantillon.

Afin de suivre la propagation du front de dégradation, nous nous sommes intéressés aux mesures de température réalisées à l'intérieur de la plaque. La Figure 4.28 présente l'évolution des températures moyennes à 3 mm, 10 mm et 17 mm de profondeur (en partant de la surface exposée) et à 4 cm du bord pour les différentes densités de flux imposées à la surface de l'échantillon. Pour une raison de clarté des figures et afin de tenir compte de la variabilité de la mesure, nous avons encadré les températures moyennes par les valeurs minimales et maximales. La température à l'instant initial se situe autour de 60°C car les plaques sont issues de l'étuve dans laquelle elles ont été séchées à 60°C durant 24 h. Quelle que soit la densité de flux et la position du thermocouple, la température augmente tout d'abord de manière quasi-linéaire. Cette phase est d'autant plus longue que l'on se situe loin de la surface exposée au flux. Ce résultat a déjà été observé par Tran et White [46] et Bryden et coll. [197]. Nous obtenons ainsi à 3 mm, une durée de 250, 90 et 60 s pour des densités de flux de 19, 23 et 28 kW/m². A 10 mm elle est de 2150, 1250 et 1070 s pour ces mêmes densités de flux. A 17 mm, la durée est de 2600, 2430 et 1790 s pour des densités de flux de 19, 23 et 28 kW/m². La durée de cette première phase a donc tendance à diminuer lorsque la densité de flux devient plus élevée. Après cette première phase d'accroissement linéaire, la température continue d'augmenter mais de manière moins rapide. Le résidu charbonneux formé a en effet une conductivité thermique plus faible que le bois [54] ce qui a tendance à ralentir l'élévation de température. Pour les mesures réalisées à 3 mm de profondeur et celles faites à 10 mm exceptées à 19 kW/m², la température continue de monter jusqu'à atteindre une asymptote. Pour les autres profils (à 17 mm et à 10 mm pour 19 kW/m²), il y a deux phases distinctes dans l'élévation de la température. Après le ralentissement de la montée en température, une nouvelle phase de croissance importante apparaît. Cette augmentation correspond à l'oxydation du résidu charbonneux formé en profondeur. Les couches supérieures ayant été dégradées, l'air peut en effet atteindre le résidu charbonneux et l'oxyder. Finalement, pour tous les profils, la température atteint une asymptote (variant entre 570°C et 676°C). Les valeurs des asymptotes obtenues avec les thermocouples sont plus élevées d'environ 30°C que celles données par la caméra infrarouge pour la température de surface. Ces différences sont dues au fait qu'il y a moins de pertes thermiques à l'intérieur du bois qu'à la surface. Par conséquent, la température d'oxydation du résidu charbonneux est plus élevée à l'intérieur du bois.

Afin de mettre en évidence l'influence de la densité de flux sur la température au sein de l'épaisseur de la plaque de bois, nous avons tracé dans la Figure 4.29 l'évolution des températures moyennes aux différentes épaisseurs en fonction de la densité de flux. Aux trois profondeurs examinées (3, 10 et 17 mm), l'augmentation de la température est plus rapide lorsque la densité de flux augmente. Le front de gazéification se propage donc plus vite lorsque la densité de flux est importante. Afin de caractériser cette dynamique, la vitesse du front a été déterminée à l'aide de deux méthodes. La première utilise les mesures de températures décrites ci-dessus tandis que la seconde correspond à un traitement d'images enregistrées par une caméra filmant une face latérale des plaques de chêne au cours des expériences.

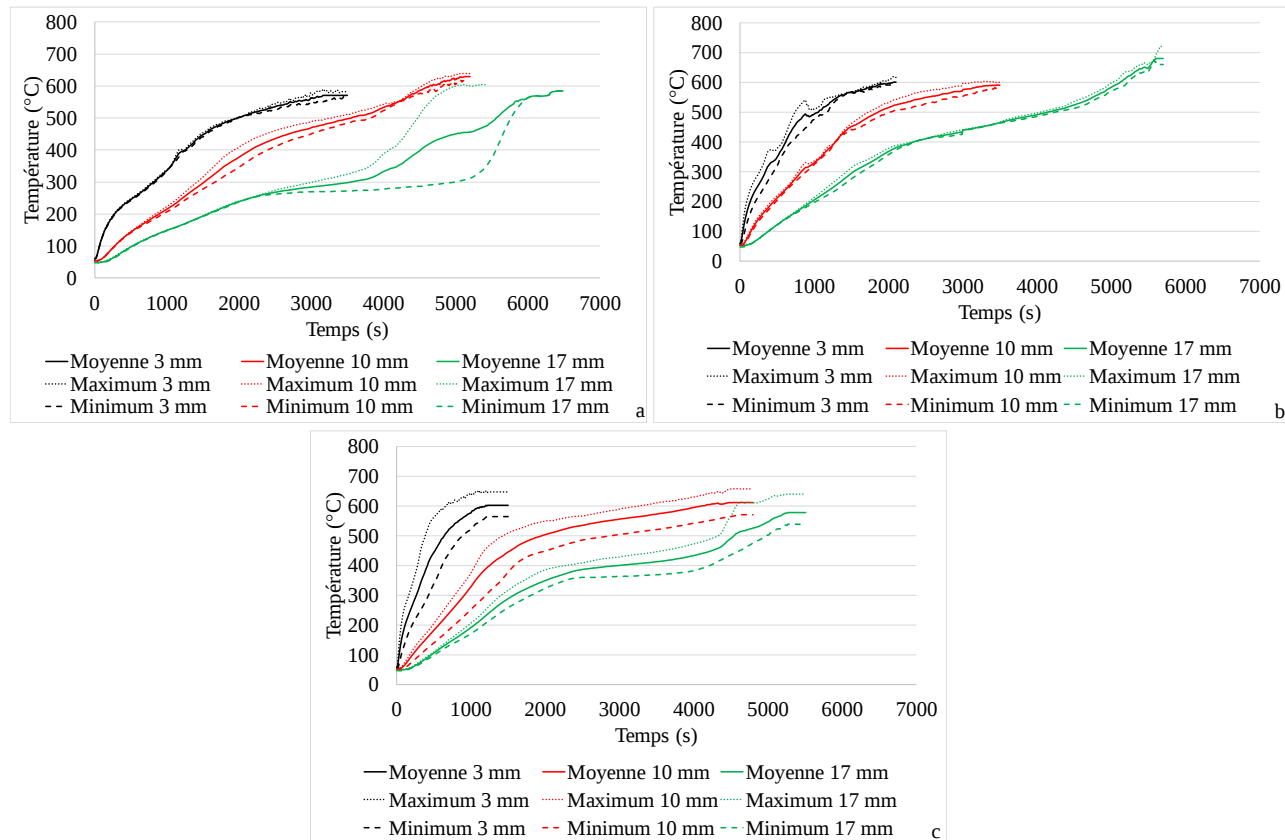


Figure 4.28 : Evolution de la température au sein de l'épaisseur des plaques de chêne exposées à des densités de flux de : a) 19 kW/m², b) 23 kW/m² et c) 28 kW/m².

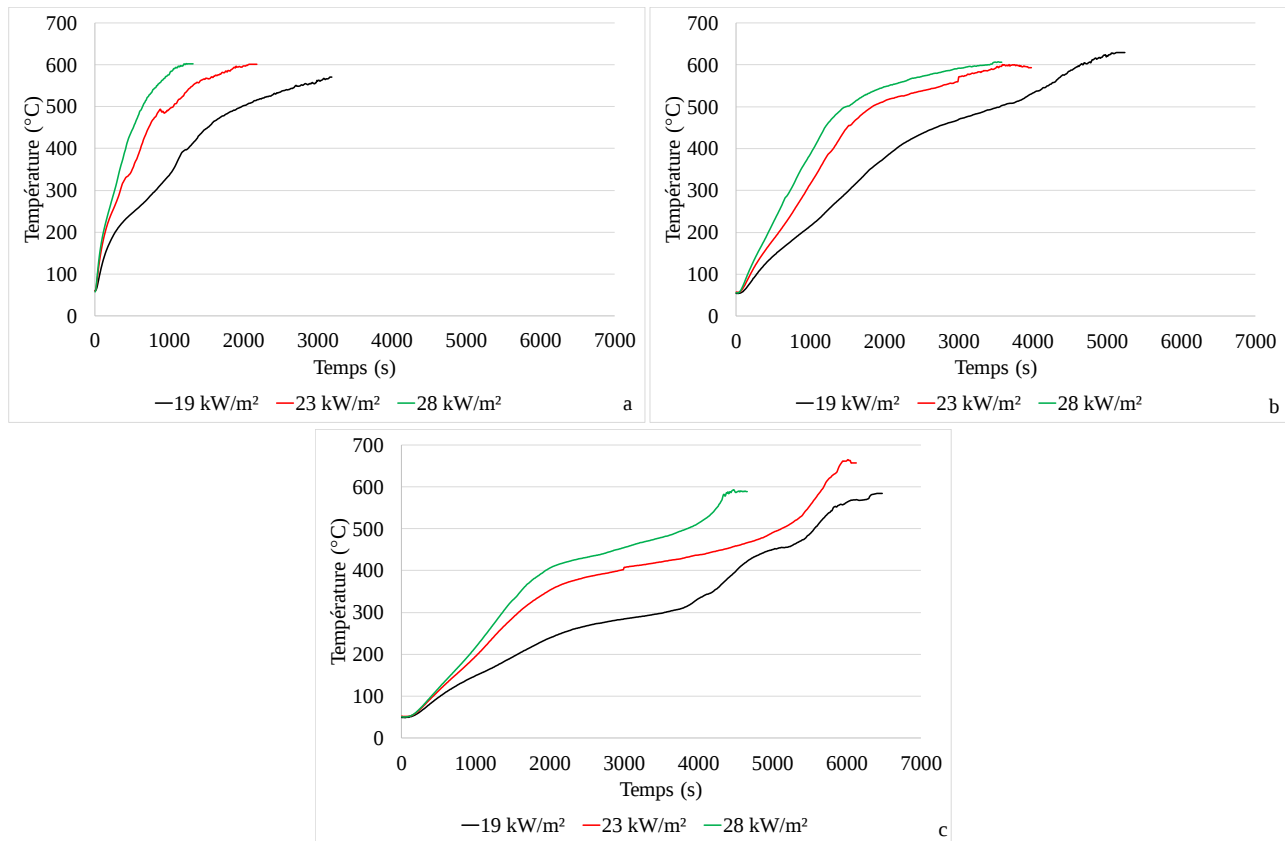


Figure 4.29 : Evolution de la température moyenne, en fonction de la densité de flux imposée à la surface de l'échantillon, aux profondeurs de : a) 3 mm, b) 10 mm et c) 17 mm.

2.3. Vitesse de propagation du front de gazéification dans l'épaisseur de la plaque de bois

La progression du front de gazéification au sein de l'épaisseur des plaques de bois a été évaluée grâce aux mesures de températures obtenues avec les thermocouples. Pour la température à la surface des plaques, les données relevées par la caméra infrarouge ont été utilisées. Nous avons considéré que la tête du front de gazéification correspond à une température de 300°C. Cette valeur a été fixée grâce aux données obtenues en TG (Tableau 3-2). En effet, pour une vitesse de chauffe supérieure à 10°C/min, la dégradation du chêne et de l'eucalyptus démarre au-delà de 300°C. La Figure 4.30 présente la position de la tête du front pour les différentes densités de flux. La surface de la plaque de bois atteint 300°C après respectivement 45, 114 et 132 s pour les densités de flux de 28, 23 et 19 kW/m². Cette durée diminue lorsque la densité de flux augmente. Les résultats présentés permettent de considérer que la position de la tête du front de gazéification évolue de manière linéaire avec le temps (coefficient de détermination compris entre 0,989 et 0,998). Les vitesses moyennes de propagation du front (correspondant à la pente de ces courbes) sont de 8,0, 11,0 et 13,0 $\mu\text{m/s}$ pour des densités de flux respectives de 19, 23 et 28 kW/m². Plus la densité de flux imposée en surface est importante, plus la vitesse du front de gazéification est élevée. Ces valeurs sont en accord avec les travaux de Galgano et coll. [198] qui ont évalué la vitesse de propagation du front de gazéification entre 12,5 et 15 $\mu\text{m/s}$ lors de la dégradation de particules cylindriques

de chêne de 1,9 cm d'épaisseur soumises à des densités de flux comprises entre 50 et 140 kW/m². Toutefois, les conditions expérimentales utilisées dans cette étude sont différentes des nôtres puisque le bois est positionné perpendiculairement à la source de chaleur, ce qui peut expliquer des vitesses de propagation aussi faibles pour des densités de flux aussi fortes. Tran et White [46] ont évalué la vitesse de formation du résidu carbonneux (autrement dit la vitesse de propagation du front de gazéification) entre 6,33 et 12,50 µm/s pour des densités de flux comprises entre 18 et 25 kW/m² et pour quatre espèces de bois de 6,4 cm d'épaisseur. Ces valeurs se situent dans une plage proche de celle obtenue pour les plaques de chêne. Toutefois, nos valeurs à 19 et 28 kW/m² sont plus importantes que celles obtenues dans l'étude de Tran et White. Ces différences sont probablement dues aux conditions expérimentales. Dans leur étude, le cône chauffant a été disposé de manière perpendiculaire aux fibres de bois tandis que dans nos expériences, il est parallèle.

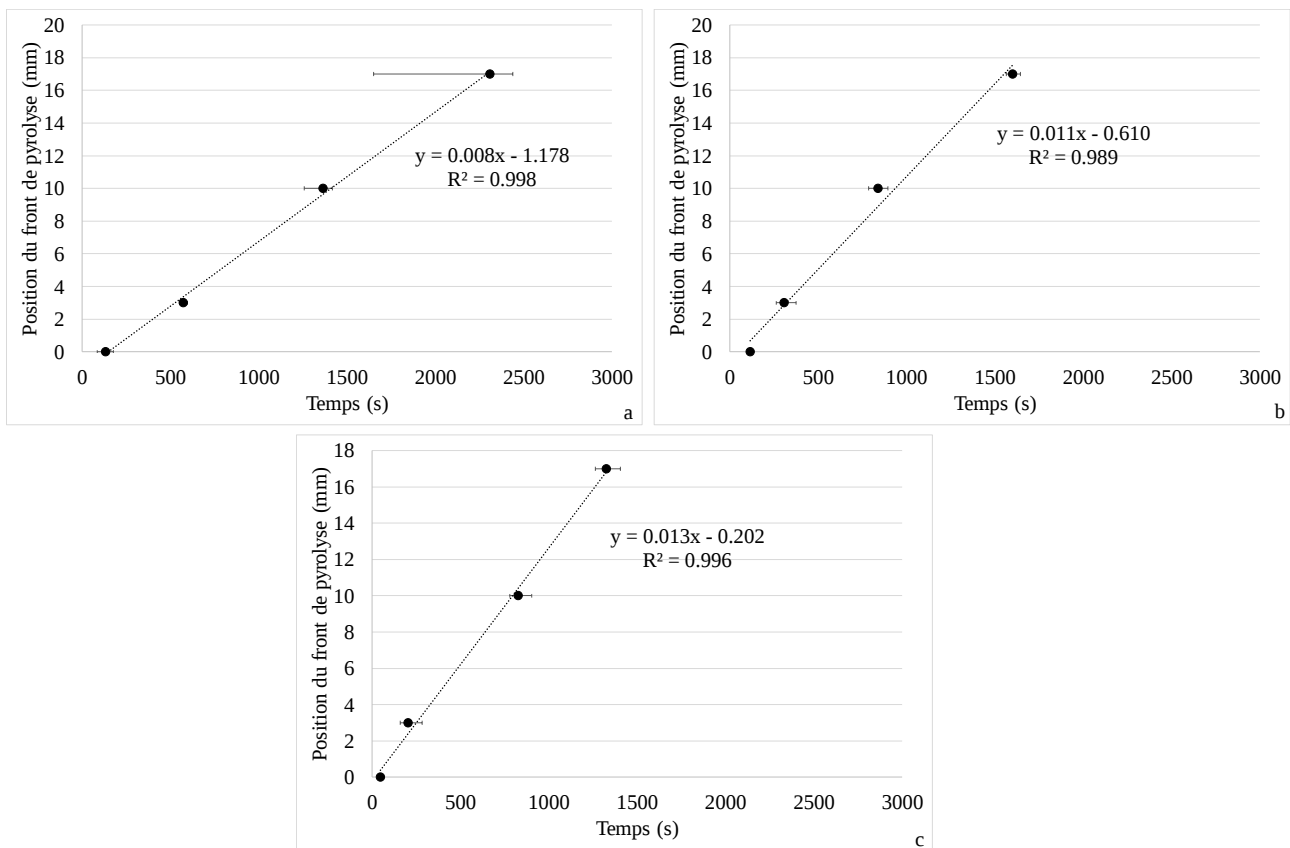


Figure 4.30 : Position du front de gazéification en fonction du temps, évaluée par la méthode des thermocouples pour des densités de flux imposées de : a) 19 kW/m², b) 23 kW/m² et c) 28 kW/m².

La position de la tête du front de gazéification a également été déterminée en utilisant les vidéos enregistrées lors des expériences de dégradation [195,196]. Les images ont été extraites des films avec une fréquence de 0,2 Hz (une image toutes les 5 s). La détection du front de gazéification a été réalisée avec un programme développé sur MATLAB. Les images ont tout d'abord été converties en niveau de gris. Puis une procédure de segmentation par seuillage a été utilisée afin de substituer les informations des

niveaux de gris par des informations binaires : noir pour les pixels correspondants au bois dégradé et blanc pour les autres pixels de l'image. Enfin, pour chaque image, nous avons déterminé la position du point noir le plus bas sur une zone de 4 cm de large centrée sur le milieu de la plaque. Un exemple de ce traitement d'images est donné par la Figure 4.31. La position de la tête du front de gazéification a ensuite été obtenue en calculant la différence entre les coordonnées verticales de la surface de la plaque et celles du pixel noir le plus bas et en leur appliquant un facteur de mise à l'échelle pixels-centimètres. Pour chaque densité de flux, six répétitions ont été effectuées.

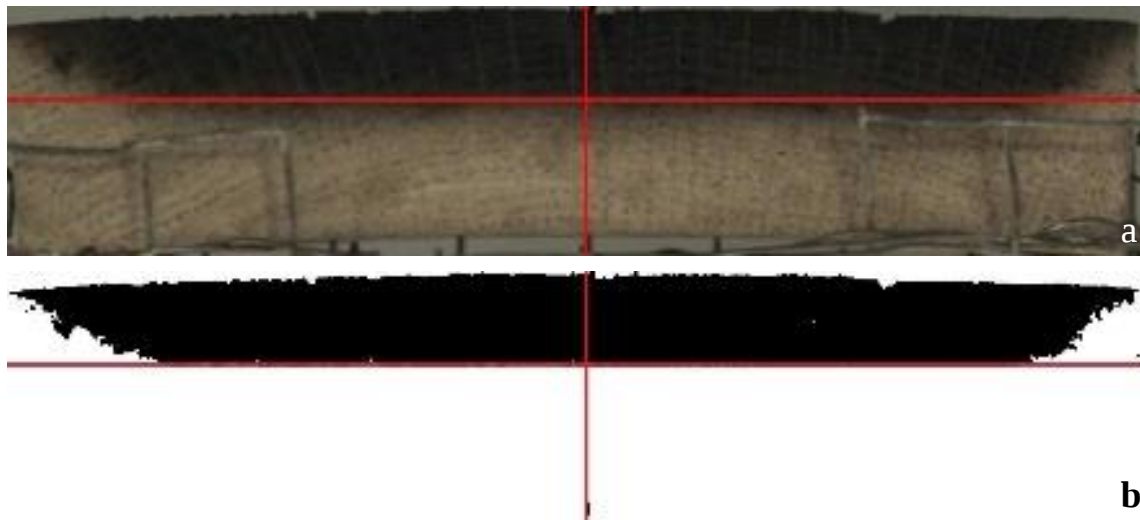


Figure 4.31 : Localisation par traitement d'image du pixel noir le plus avancé pendant l'évolution du front de gazéification sur : a) l'image en couleur b) l'image binarisée.

La Figure 4.32 présente la position moyenne de la tête du front de gazéification au cours du temps, obtenue avec cette méthode pour les différentes densités de flux. L'évolution du front de gazéification a été encadrée par des valeurs minimales et maximales afin de tenir compte de la variabilité observée pour les différents réplicas. Pour les différentes densités de flux étudiées, la position de la tête du front de gazéification évolue de manière quasi linéaire avec le temps. En fin de dégradation, on remarque toutefois que les courbes présentent de petits paliers. Ceux-ci sont dus au dégagement de fumée qui altère le traitement d'images. Malgré ce biais expérimental, le coefficient de détermination est compris entre 0,987 et 0,994. Les vitesses de propagation obtenues sont respectivement de $4,70 (\pm 0,83) \mu\text{m/s}$, $9,60 (\pm 0,56) \mu\text{m/s}$ et $11,30 (\pm 1,03) \mu\text{m/s}$ pour des densités de flux de 19, 23 et 28 kW/m^2 . Ainsi, plus la densité de flux appliquée à la surface des plaques augmente, plus la vitesse du front de gazéification est élevée au sein des plaques de bois.

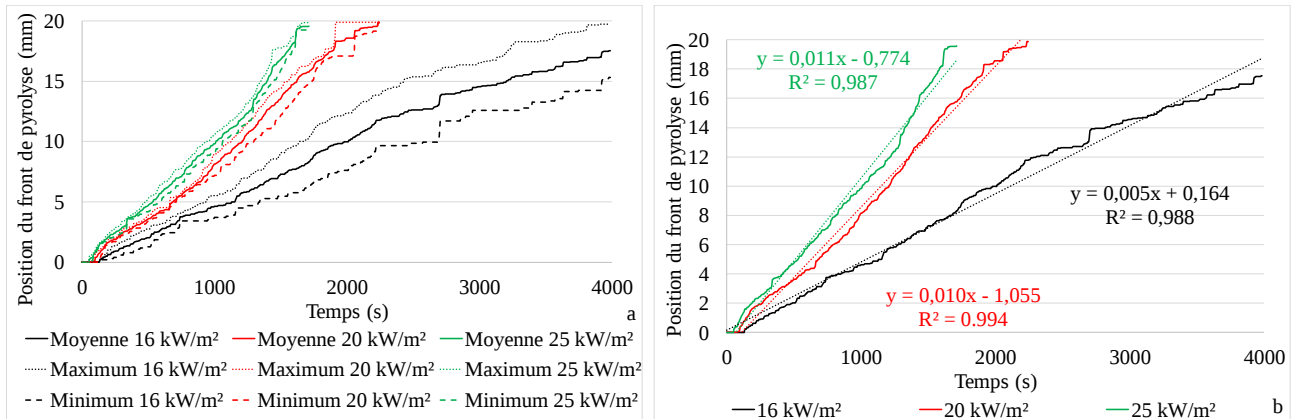


Figure 4.32 : Position du front de gazéification en fonction du temps évalué par traitement d'images : a) Variation des valeurs moyennes, maximales et minimales b) Variation des valeurs moyennes.

Afin de comparer les résultats obtenus par les deux méthodes, nous avons superposé dans la Figure 4.33 la vitesse de propagation du front de gazéification en fonction de la densité de flux pour les deux méthodes de mesure utilisées. La vitesse obtenue avec les thermocouples est plus élevée que celle déterminée par traitement d'images. Pour des densités de flux de 23 et 28 kW/m², cet écart est plus faible avec des vitesses supérieures obtenues avec les thermocouples environ 1,2 fois supérieures à celles obtenues avec le traitement d'images. En revanche, pour une densité de flux de 19 kW/m², l'écart est plus important avec une vitesse obtenue avec les thermocouples 2 fois plus importante que celle obtenue avec le traitement d'images. Cette variation peut avoir plusieurs raisons. Tout d'abord, les thermocouples sont situés à une profondeur de 4 cm et non pas directement sur la face pour laquelle l'évolution du front de gazéification est observée avec la caméra visible. A cause des pertes thermiques au niveau des bords et à l'inhomogénéité de la densité de flux en surface, la vitesse du front de gazéification a tendance à être plus importante au centre de la plaque que sur les bords. Ces refroidissements sur les bords pourraient jouer un rôle plus important lorsque la densité de flux est plus faible ce qui expliquerait des écarts plus importants à 19 kW/m². La seconde raison peut également provenir du dispositif expérimental. En effet, pour positionner les thermocouples au sein de la plaque de bois, des trous d'1 mm de diamètre ont été percés. Comme la gaine des thermocouples mesure 500 µm de diamètre, le capteur peut ne pas être positionné au centre du trou mais sur un point quelconque de son diamètre. Cette erreur de positionnement des thermocouples peut induire une erreur sur la vitesse de propagation du front de gazéification comprise entre 4 et 11 %.

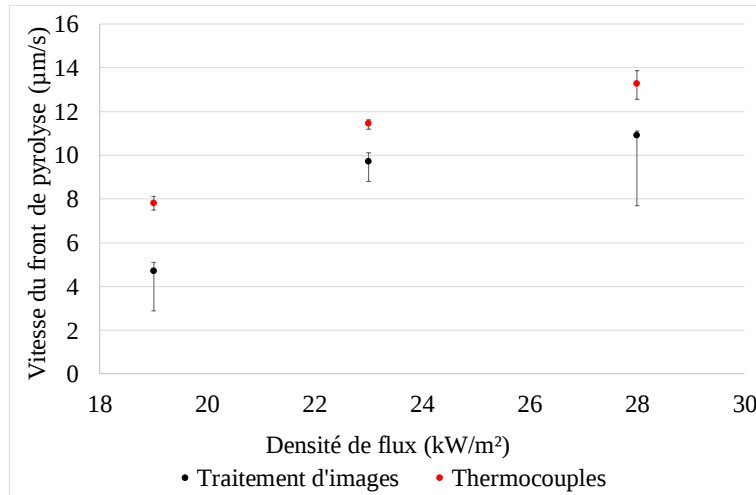


Figure 4.33 : Evolution de la vitesse de propagation du front de gazéification en fonction de la densité de flux imposée à la surface des plaques de bois déterminée par deux méthodes : mesure de température dans l'épaisseur du bois et traitement d'images de la face latérale.

2.4. Evolution de la masse des plaques de bois

La Figure 4.34 présente l'évolution de la perte de masse et de la vitesse de perte de masse adimensionnée des plaques de chêne soumises à des densités de flux de 19, 23 et 28 kW/m². Le Tableau 4-4 présente les paramètres de la dégradation thermique des plaques aux différentes densités de flux imposées à savoir : la température ($T_{\max}$) et le temps ($t_{\max}$) pour lesquels la vitesse de perte de masse est maximale, la valeur maximale de la vitesse de perte de masse adimensionnée ($MLR_{\max}/m_0$) et la fraction massique résiduelle. Les pertes de masse se produisent en trois phases. Après l'ouverture de l'obturateur du cône chauffant, la masse reste constante pendant environ 50 s. Ensuite, elle décroît de façon quasi-linéaire. Cette phase dure environ 5370 (± 198) s, 2534 (± 26) s et 2100 (± 100) s pour 19, 23 et 28 kW/m² respectivement. La perte de masse maximale est obtenue durant cette phase avec des pics de vitesse de perte de masse variant entre 0,231 et 0,407 s⁻¹. La vitesse de perte de masse maximale augmente avec la densité de flux de manière linéaire ce qui est en accord avec la littérature [15,17,42]. Une fois la phase de décroissance quasi-linéaire terminée, la perte de masse présente un ralentissement. Pour l'ensemble des densités de flux, à l'issue de la phase quasi-linéaire, les températures enregistrées à 10 mm de profondeur (Figure 4.29) sont supérieures à 540°C. La moitié de la plaque est donc déjà complètement oxydée. Seule la partie inférieure continue à se dégrader. A la fin de la dégradation, il ne reste que 0,2 % de la masse initiale pour des densités de flux imposées de 23 et 28 kW/m². La totalité du bois a donc été consommée et il ne reste que les cendres. En revanche pour une densité de flux de 19 kW/m², il reste en moyenne 8,3 % de la masse initiale de chêne. Le résidu charbonneux formé au cours de la dégradation thermique n'a pas été totalement oxydé. Cette quantité est d'environ 12 g de bois, ce qui correspond à une épaisseur de résidu charbonneux non oxydé légèrement inférieure à 2 mm. Toutefois l'asymptote atteinte à 17 mm de profondeur est de 587°C ce qui correspond à une température suffisante pour oxyder le résidu charbonneux. Ce résultat est probablement dû au recouvrement du résidu charbonneux par la couche de cendres qui a éteint les braises à cause du refroidissement par convection et d'un manque d'oxygène à la fin de la dégradation thermique.

Tableau 4-4 : Paramètres caractéristiques associés aux pertes de masse des plaques de chêne thermiquement épaisses soumises à différentes densités de flux sur la face supérieure.

Espèce	Densité de flux (kW/m ²)	T _{max} (°C)	t _{max} (s)	MLR _{max} /m ₀ (×10 ⁻³ s ⁻¹)	Résidus (%)
Chêne	19	429 ± 8	1391 ± 87	0,231 ± 0,002	8,3 ± 2,3
	23	457 ± 10	916 ± 4	0,339 ± 0,012	0,2 ± 0,0
	28	490 ± 16	607 ± 95	0,407 ± 0,021	0,2 ± 0,0

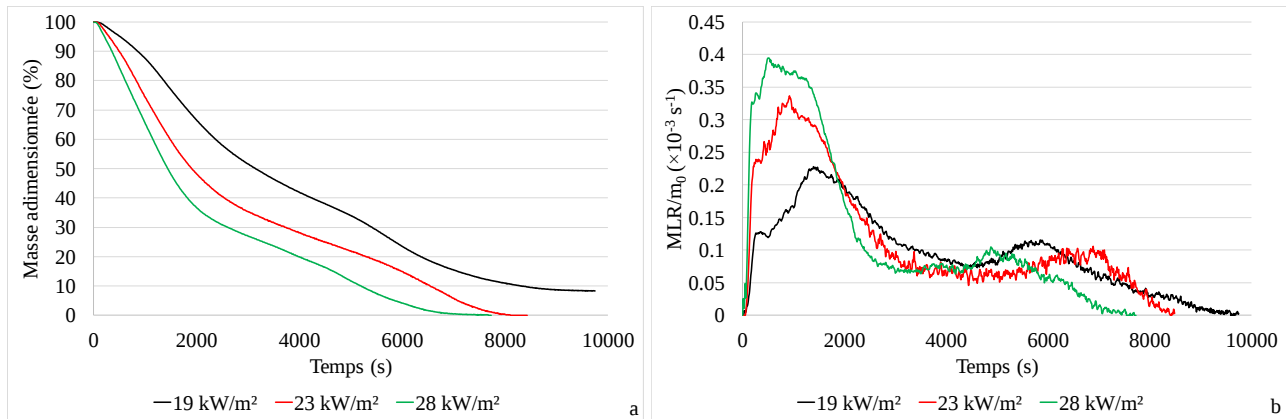


Figure 4.34 : Perte de masse et vitesse de perte adimensionnées des plaques de chêne soumises à différentes densités de flux radiatif : a) perte de masse adimensionnée b) la vitesse de perte de masse adimensionnée.

3. Conclusion partielle

Ce chapitre a permis de présenter les résultats expérimentaux associés à la dégradation thermique de plaque de bois à l'échelle matériau, réalisée à l'aide d'un cône calorimètre. Différentes épaisseurs de plaques de bois ont été étudiées : pour les plaques les plus fines, deux essences de bois ont été étudiées : le chêne et l'eucalyptus d'épaisseur respective 0,61 et 0,63 mm. Pour les plaques les plus épaisses, seul le chêne ayant une épaisseur de 20,87 mm a été considéré. Les plaques thermiquement fines de chêne et d'eucalyptus ont été soumises à des densités de flux variant entre 21 et 28,5 kW/m² et les plaques thermiquement épaisses à des densités de flux comprises entre 19 et 28 kW/m². Deux conditions aux limites ont été appliquées sur la face inférieure des plaques de bois. Une première condition de type adiabatique réalisée à l'aide d'une laine en céramique et la seconde de type convection libre obtenue en laissant la plaque au contact de l'air ambiant. La dégradation thermique des plaques thermiquement fines de chêne et d'eucalyptus a ensuite été analysée en étudiant l'évolution de la masse ainsi que celle de la température par deux méthodes. La méthode de mesure par caméra infrarouge s'est révélée plus efficace car elle permet d'observer la température de surface des plaques de bois et sa mise en œuvre n'est pas contraignante. En fonction de la condition limite imposée sous la face inférieure des plaques fines, l'évolution de la température suit plusieurs phases. Quelle que soit la densité de flux imposée lors de la

mise en œuvre d'une condition limite adiabatique, l'oxydation du résidu charbonneux se produit pour toutes les densités de flux considérées et la température suit trois phases distinctes : une première où l'augmentation est quasi-linéaire à laquelle suit immédiatement un ralentissement de son évolution avant d'atteindre l'asymptote finale. Lors de la mise en œuvre d'une condition limite de convection libre, deux comportements apparaissent : un premier où l'oxydation du résidu charbonneux n'apparaît pas et l'autre où cette réaction apparaît. Ces comportements sont dépendants de la densité de flux imposée. Lorsqu'elle est comprise entre 21 et 23 kW/m² pour le chêne et entre 21 et 25 kW/m² pour l'eucalyptus, il n'y a pas d'oxydation du résidu charbonneux. Ainsi l'apparition de cette réaction est dépendante de l'évolution de la température des deux bois. L'augmentation de la température a lieu en trois phases lorsqu'il n'y a pas d'oxydation du résidu charbonneux : une première phase de croissance quasi-linéaire, une phase de ralentissement et l'aboutissement à une asymptote. Elles sont similaires quelle que soit la condition limite imposée sous la face inférieure des plaques. Lorsque cette réaction se produit, l'évolution de la température change après la phase de ralentissement. Une étape supplémentaire apparaît correspondante à la réaction d'oxydation du résidu charbonneux. La température atteint ensuite une asymptote finale. Cette étude a mis en évidence que le chêne se dégrade plus rapidement que l'eucalyptus et que la vitesse de perte de masse des deux bois augmente fortement lorsque la densité de flux imposée augmente elle-aussi.

La dégradation thermique de plaques de chêne thermiquement épaisses de 20,87 mm d'épaisseur a également été étudiée en s'intéressant à l'évolution de la masse et de la température en surface et dans l'épaisseur des échantillons. La dégradation thermique de ce type de plaque met en évidence une première phase où le bois est gazéifié. Cette étape se traduit par un noircissement de la surface de la plaque de bois. Une fois que la température de la surface de la plaque a atteint des valeurs supérieures à 550°C, le bois se craquèle et des braises rougeoyantes correspondant à l'oxydation du résidu charbonneux apparaissent. A l'inverse de ce qu'il se produisait avec les plaques thermiquement fines, les processus de la dégradation thermique se propagent au sein de l'épaisseur de la plaque en formant des fronts. Tout d'abord, le front de gazéification, qui correspond à la limite entre la zone vierge et la zone noircie du bois, se propage au sein de l'épaisseur avant que le front d'oxydation du résidu charbonneux ne progresse de la même manière. L'évolution de ce dernier entraîne une réduction du volume de la plaque du fait de sa transformation en cendres. En étudiant la vitesse de propagation du front de gazéification, nous avons pu constater qu'il se propage plus rapidement au centre de la plaque que sur les bords et que sa vitesse augmente avec la densité de flux.

L'étude expérimentale de la dégradation thermique du bois à l'échelle matériau a mis en évidence plusieurs phénomènes qui vont, dans le prochain chapitre, faire l'objet d'une étude numérique.

Chapitre 5. Etude numérique de la dégradation thermique des plaques de bois à l'échelle matériau

L'objectif de ce chapitre est d'étudier numériquement la dégradation thermique des plaques de bois de différentes épaisseurs. Pour ce faire, le chapitre sera divisé en deux parties. La première concerne l'étude de la dégradation thermique des plaques thermiquement fines. Cette partie permettra de tester la validité des différents mécanismes réactionnels proposés à l'échelle matière et d'évaluer le code de calcul GPYRO pour la modélisation de la dégradation thermique des plaques de bois. Ensuite, les différents mécanismes seront testés sur les expériences de dégradation thermique des plaques thermiquement épaisses à l'aide du code de calcul GPYRO.

1. Etude de la dégradation thermique des plaques de bois thermiquement fines

1.1. Test des mécanismes réactionnels développés à l'échelle matière

Dans cette partie, nous allons tester la validité des quatre mécanismes réactionnels développés à l'échelle matière, à savoir le mécanisme par constituants, le mécanisme global, le mécanisme actif et le mécanisme simplifié, sur les résultats obtenus à l'échelle matériau pour les plaques thermiquement fines. Etant donné que les mécanismes réactionnels proposés à l'échelle matière se basent sur des lois d'Arrhenius, il est nécessaire de connaître l'évolution de la température au cours du temps. Deux possibilités se sont offertes à nous : calculer la température de la plaque ou utiliser les mesures expérimentales. La première solution implique de déterminer les paramètres thermiques de la plaque lors de la dégradation. En général, ces données sont obtenues par optimisation [15,42] et peuvent donc générer un biais lors de l'évaluation de la validité des mécanismes réactionnels. Par conséquent, nous nous sommes d'abord orientés vers la seconde solution à savoir l'utilisation des mesures de températures expérimentales obtenues avec la caméra infrarouge. Les plaques étant thermiquement fines, nous avons fait l'hypothèse qu'il n'y avait pas de gradient de température dans l'épaisseur de la plaque (Figure 2.15). Pour tenir compte de l'hétérogénéité de la température de la plaque, nous avons utilisé le champ de température expérimental mesuré en seize points à la surface des plaques de bois (Figure 2.11) comme intrant pour les lois de chaque mécanisme réactionnel.

1.1.1. Etude de la dégradation thermique des plaques de bois thermiquement fines en imposant une condition limite adiabatique à la face inférieure des plaques

Nous avons tout d'abord testé les différents mécanismes réactionnels sur les expériences réalisées à l'échelle matériau avec une condition aux limites adiabatique à la face inférieure des plaques de bois. La Figure 5.1 présente le résultat du test de l'approche active sur le chêne et l'eucalyptus pour des densités de flux de 18, 20, 25 et 27 kW/m². Le résultat des autres mécanismes réactionnels est présenté en Annexe G.

Dès le début de la dégradation thermique, on observe un retard de la courbe prédite par le mécanisme par rapport à la courbe expérimentale. Ce retard est présent pour le chêne à toutes les densités de flux. En effet, on observe un décalage de 15 à 30 s entre la simulation et l'expérience. Ce décalage diminue lorsque la densité de flux augmente. Pour l'eucalyptus, il est présent à 18 et 27 kW/m² avec un décalage de 30 s pour 18 kW/m² et de 12 s pour 27 kW/m². A 20 et 25 kW/m², les débuts de la perte de masse expérimentale et prédite par le mécanisme réactionnel coïncident. Ensuite, entre 50 et 150 s, quels que soient le bois et la densité de flux, le mécanisme ne prédit pas correctement la dynamique de dégradation des plaques. Cela provient de deux phénomènes. Le pic de vitesse de perte de masse a en effet une trop forte intensité pour les deux bois. Pour le mécanisme actif, le pic maximal de MLR prédit est en moyenne 3 fois plus élevé pour le chêne que celui expérimental et 4 fois plus élevé pour l'eucalyptus. Par ailleurs, le pic prédit par le mécanisme réactionnel dure moins longtemps que le pic expérimental. En moyenne, il dure en effet 75 s pour le chêne et 85 s pour l'eucalyptus alors que le pic expérimental s'étend sur environ 130 s pour le chêne et 145 s pour l'eucalyptus. Malgré le fait que le mécanisme prédise mal la dynamique de dégradation des plaques entre 50 et 150 s, la masse simulée à la fin de la dégradation est proche de celle obtenue expérimentalement. L'obtention de ce résultat a été possible grâce à la mesure de température par caméra infrarouge, qui a permis de détecter correctement l'oxydation du résidu carbonneux ce qui n'était pas possible avec les thermocouples [108].

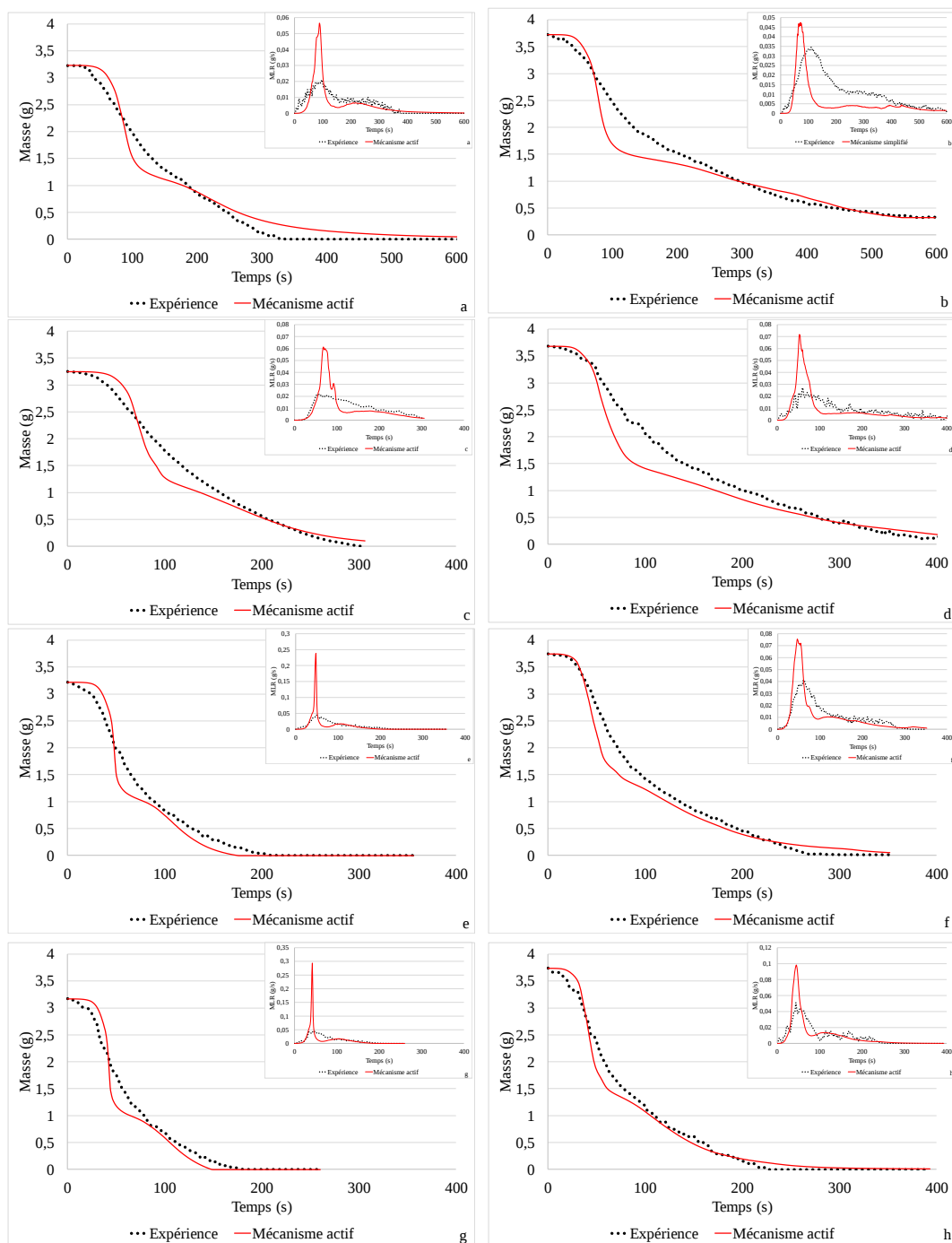


Figure 5.1 : Résultats du test de l'approche active sur les expériences à l'échelle matériau pour : a) le chêne à 18 kW/m² b) l'eucalyptus à 18 kW/m², c) le chêne à 20 kW/m² d) l'eucalyptus à 20 kW/m², e) le chêne à 25 kW/m² f) l'eucalyptus à 25 kW/m², g) le chêne à 27 kW/m² h) l'eucalyptus à 27 kW/m².

Afin d'identifier les raisons de cette mauvaise prédiction de la dynamique de dégradation, nous avons tracé dans la Figure 5.2 les débits massiques associés aux quatre réactions de l'approche active pour une densité de flux de 20 kW/m², représentative des autres conditions. Les deux premières réactions, qui concernent la dépolymérisation du bois sec en « bois actif » et la transformation de ce dernier en résidu charbonneux et goudrons, semblent correspondre aux données expérimentales. Pour les deux bois, ces

réactions ont lieu dans une gamme de temps cohérente avec les données expérimentales et leur intensité est correctement prédite. Le problème sur la dynamique de dégradation semble ainsi venir de la troisième réaction. Pour le mécanisme actif, il s'agit de la réaction de la gazéification des goudrons. Dans le cas d'une densité de flux de 20 kW/m^2 , l'intensité de cette réaction est 2,5 fois plus élevée que l'intensité maximale du MLR expérimental du chêne et de l'eucalyptus. De manière numérique, la gazéification des goudrons se fait donc beaucoup plus rapidement que dans le cas des expériences. En observant la laine en céramique utilisée pour créer une condition adiabatique en dessous de la plaque, nous nous sommes rendus compte que la laine noircissait durant les expériences (Figure 5.3) à cause de la présence de goudrons.

Pour tenter de savoir si les goudrons piégés dans la laine étaient responsables de la différence observée entre les valeurs expérimentales et numériques, nous avons enveloppé la laine en céramique d'un film d'aluminium et nous avons stoppé la dégradation à 70 s c'est-à-dire au moment où la vitesse de la troisième réaction est numériquement maximale (Figure 5.4). Sur la photographie, on voit clairement la présence de goudrons liquides sur le film aluminium. Une quantité importante de goudrons est donc émise par la face inférieure de la plaque. Une partie de ces goudrons se retrouve piégée dans la laine en céramique tandis qu'une autre partie se gazéifie progressivement lorsque la plaque de bois s'échauffe et se craquelle. Ce comportement dû à la laine et à la plaque de bois ne peut pas être représenté numériquement. Dans les simulations, une fois émis les goudrons se gazéifient rapidement ce qui se traduit par un MLR prédit avec une intensité élevée sur un temps court. La présence de la laine en céramique a donc tendance à induire un biais expérimental et cette configuration ne semble pas optimale pour tester la validité des mécanismes réactionnels. Dans la suite, nous allons donc nous concentrer sur les expériences avec la condition limite de convection libre sur la face inférieure des plaques de bois. Enfin, en ce qui concerne la réaction d'oxydation du résidu charbonneux, celle-ci est correctement prédite pour le chêne et l'eucalyptus.

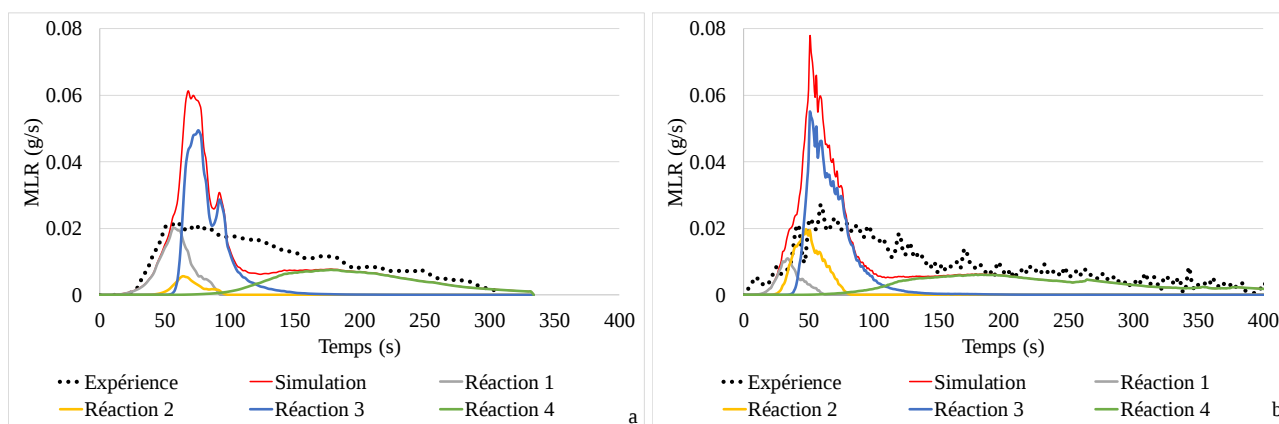


Figure 5.2 : Evolution des débits massiques associés aux différentes réactions pour le mécanisme actif en fonction du temps a) du chêne et b) de l'eucalyptus - pour une densité de flux de 20 kW/m^2 .

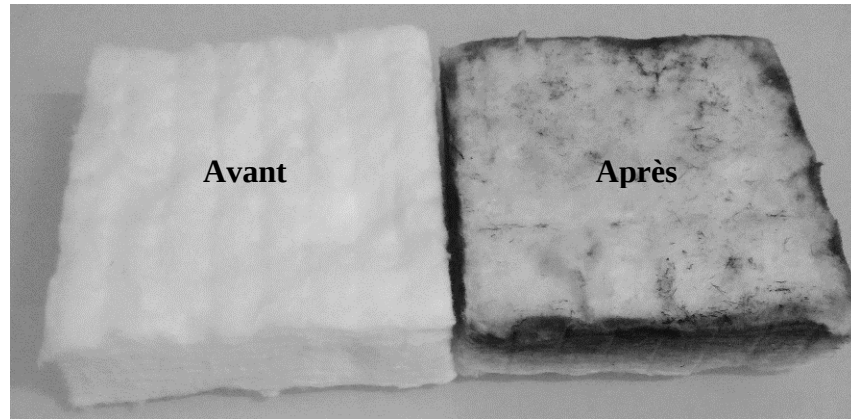


Figure 5.3 : Etat de la laine en céramique avant et après les expériences de dégradation thermique réalisées avec les plaques de chêne et d'eucalyptus.



Figure 5.4 : Goudrons piégés sous la plaque de bois sous forme liquide.

1.1.2. Etude de la dégradation des plaques de bois thermiquement fines en imposant une condition limite de convection libre à la face inférieure des plaques de bois

Nous allons à présent étudier la validité des mécanismes réactionnels sur les expériences à l'échelle matériau mettant en œuvre une condition limite de convection libre à la face inférieure des plaques de bois. En fonction des densités de flux imposées qui varient entre 21 et 28,5 kW/m², deux comportements expérimentaux sont apparus : un premier où les températures maximales atteintes sur les plaques de bois ne permettent pas d'oxyder le résidu charbonneux formé et le deuxième où l'oxydation se produit (Figure 4.14).

1.1.2.1. Expériences sans oxydation du résidu charbonneux

Les Figures 5.5 et 5.6 présentent les résultats du test des quatre mécanismes réactionnels développés à l'échelle matière sur les expériences du chêne et de l'eucalyptus pour une densité de flux de 23 kW/m². La représentation des pertes de masse expérimentales et calculées avec les autres densités de flux est donnée en Annexe H. Pour comparer les masses prédites et expérimentales, nous avons calculé pour chaque cas l'écart absolu moyen ainsi que l'écart absolu maximum. Les valeurs obtenues pour chaque bois et chaque densité de flux sont données en Annexe H. Le Tableau 5-1 présente l'écart absolu moyen et l'écart absolu maximum entre courbes expérimentales et prédites pour les densités de flux n'entraînant pas d'oxydation du résidu charbonneux. Pour l'ensemble des expériences sans oxydation, excepté à 19 kW/m², on remarque un retard de la perte de masse simulée compris entre 18 et 26 s en début de dégradation pour les deux bois. Ensuite, le comportement est correctement simulé avec les quatre mécanismes bien que ceux-ci aient tendance à légèrement sous-estimer la masse finale restante. L'écart maximal entre les courbes numériques et expérimentales apparaît pour tous les mécanismes entre 0 et 100 s. Le mécanisme actif et le mécanisme simplifié donnent les écarts maximums les plus importants pour les deux bois avec des valeurs moyennes comprises entre 0,179 et 0,326 g. Pour les deux autres mécanismes, cet écart varie en moyenne entre 0,141 et 0,289 g. Les quatre mécanismes ont des performances moyennes proches. La moyenne des écarts absolus moyens est en effet de 0,054, 0,060, 0,076 et 0,080 g pour le chêne et 0,083, 0,087, 0,102 et 0,095 g pour l'eucalyptus pour le mécanisme par constituants, le mécanisme global, le mécanisme actif et le mécanisme simplifié respectivement. En se basant sur l'écart moyen, les meilleures performances sont donc obtenues avec le mécanisme par constituants et les moins bonnes avec le mécanisme simplifié. Pour chaque mécanisme, de meilleurs résultats sont obtenus pour le chêne que pour l'eucalyptus. Cette différence provient principalement du pic de MLR qui est surestimé d'environ 0,07 g/s pour l'eucalyptus (contre 0,01 g/s pour le chêne).

Tableau 5-1 : Ecart absolu moyen entre les masses mesurées et prédites par chaque approche pour le chêne et l'eucalyptus pour les densités de flux n'entraînant pas l'oxydation du résidu charbonneux.

Bois		Chêne				Eucalyptus			
		Constituant	Global	Actif	Simplifié	Constituant	Global	Actif	Simplifié
Ecart absolu moyen (g)	21	0,045	0,050	0,038	0,058	0,077	0,084	0,094	0,098
	23	0,062	0,069	0,114	0,102	0,118	0,117	0,157	0,095
	25					0,054	0,060	0,056	0,092
	Moyenne	0,054	0,060	0,076	0,080	0,083	0,087	0,102	0,095
Ecart absolu maximum (g)	21	0,137	0,126	0,098	0,139	0,204	0,196	0,209	0,228
	23	0,150	0,155	0,350	0,218	0,237	0,252	0,306	0,344
	25					0,403	0,419	0,463	0,404
	Moyenne	0,144	0,141	0,224	0,179	0,281	0,289	0,326	0,325

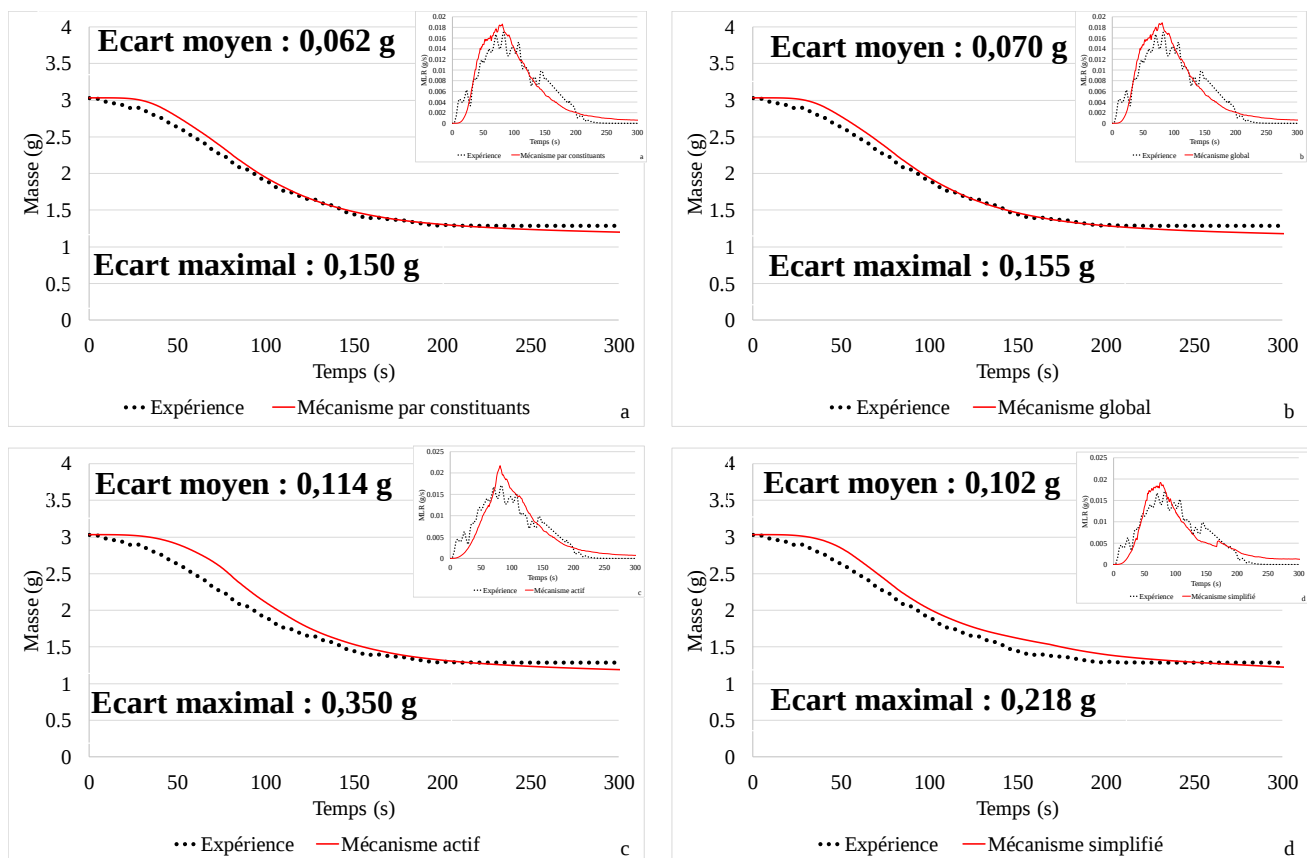


Figure 5.5 : Masse et débit massique prédits et mesurés au cours du temps pour une densité de flux de 23 kW/m² dans le cas du chêne pour : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif et d) le mécanisme simplifié.

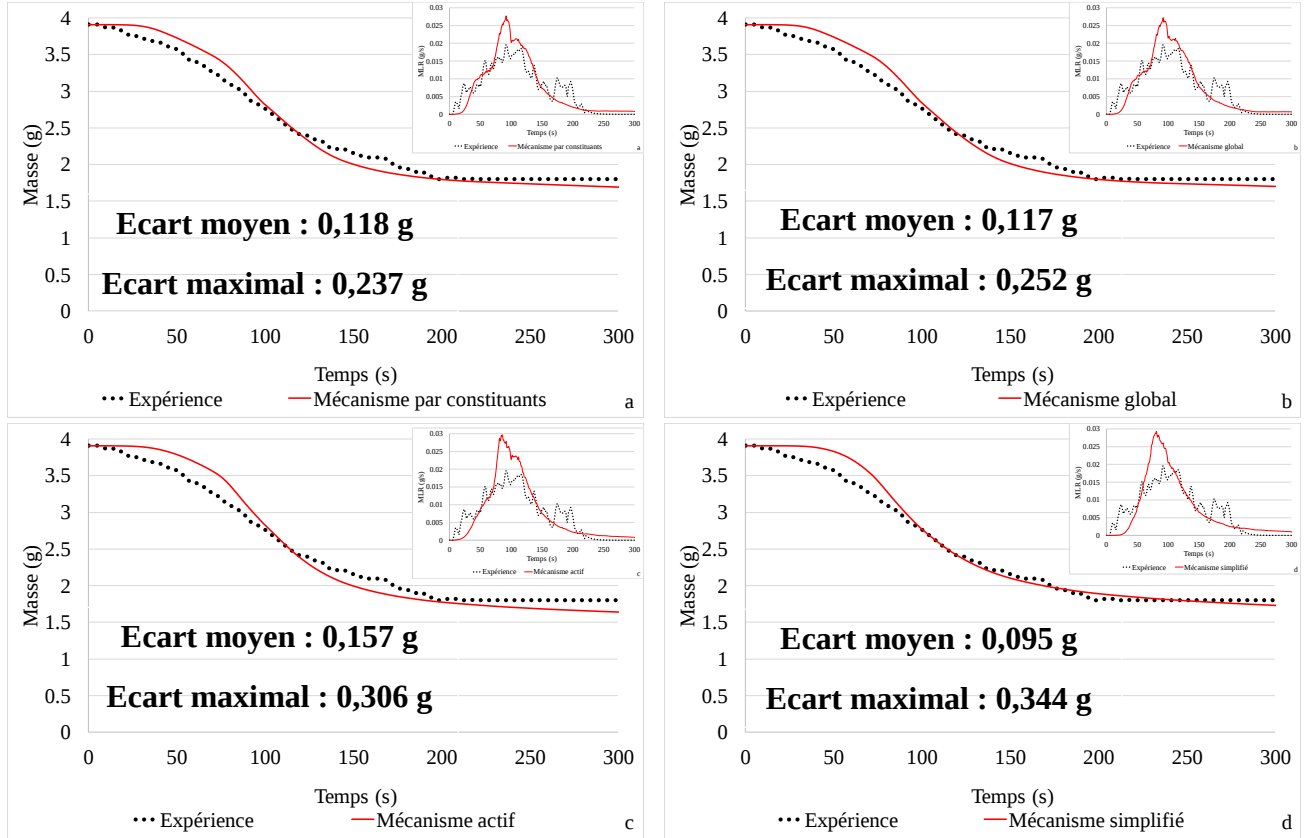


Figure 5.6 : Masse et débit massique prédits et mesurés au cours du temps pour une densité de flux de 23 kW/m² dans le cas de l'eucalyptus pour : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif et d) le mécanisme simplifié.

Afin d'étudier plus en détails les étapes des quatre mécanismes réactionnels, nous avons tracé dans les Figures 5.7 et 5.8 les pertes de masse de chaque état intermédiaire pour une densité de flux de 23 kW/m² et pour chaque espèce de bois. A titre d'exemple, pour le mécanisme par constituants, la masse d'hémicellulose, de cellulose et de lignine est déterminée grâce aux relations suivantes :

$$m_1(t) = m_0 p_1 (1 - \alpha_1) \quad (5.1)$$

$$m_2(t) = m_0 p_2 (1 - \alpha_2) \quad (5.2)$$

$$m_3(t) = m_0 p_3 (1 - \alpha_3) \quad (5.3)$$

Avec m_1 , m_2 et m_3 les masses respectives d'hémicellulose, de cellulose et de lignine variant au cours du temps t , m_0 la masse initiale de chêne ou d'eucalyptus, p_1 , p_2 et p_3 les proportions respectives d'hémicellulose, de cellulose et de lignine, α_1 , α_2 et α_3 les degrés d'avancement de l'hémicellulose, de la cellulose et de la lignine.

La masse de résidu charbonneux est donnée par :

$$m_4(t) = m_0 (p_1 v_1 \alpha_1 + p_2 v_2 \alpha_2 + p_3 v_3 \alpha_3) - \alpha_4 (m_0 (v_1 p_1 + v_2 p_2 + v_3 p_3)) \quad (5.4)$$

Où α_4 représente le degré d'avancement du résidu charbonneux au cours du temps, ν_1 , ν_2 et ν_3 les coefficients stœchiométriques respectifs de la dégradation de l'hémicellulose, de la cellulose et de la lignine.

Enfin, la masse de cendres est donnée par :

$$m_{cendres} = \nu_4 m_0 (\nu_1 p_1 + \nu_2 p_2 + \nu_3 p_3) \alpha_4 = m_{cendres, \infty} \alpha_4 \quad (5.5)$$

Où $m_{cendres, \infty}$ est la masse de cendres finale (correspondant respectivement à 0,2 et 0,1 % de la masse initiale du chêne et de l'eucalyptus).

Le mécanisme par constituants permet de suivre la dégradation des bio-polymères contenus dans le bois, à savoir l'hémicellulose, la cellulose et la lignine. Pour le chêne et l'eucalyptus, nous constatons que la dégradation de l'hémicellulose démarre au bout de 30 s et qu'elle a complètement disparu après 177 s pour l'eucalyptus. Dans le cas du chêne, il reste une faible masse d'hémicellulose à la fin de la dégradation thermique de l'ordre de 0,016 g. Cette différence est due à la masse initiale d'hémicellulose plus importante dans le cas du chêne. Dans les cas de la cellulose et de la lignine, leur dégradation ne suit pas le même comportement en fonction de l'espèce de bois. En effet, la dégradation de la cellulose démarre au bout de 50 s pour le chêne et de 55 s pour l'eucalyptus. La totalité de la masse initiale de la cellulose est consommée pour l'eucalyptus tandis que pour le chêne il reste une faible masse de l'ordre de 0,075 g. Les différences entre les deux bois sont encore plus importantes dans le cas de la dégradation de la lignine. Pour le chêne, ce constituant n'a perdu qu'une très faible quantité de sa masse initiale (de l'ordre de 10 %). Pour l'eucalyptus, la dégradation de la lignine démarre au bout de 100 s avec une perte de masse plus significative que celle du chêne. Toutefois, il reste plus de 50 % de la masse initiale de lignine à la fin des expériences. Les températures n'ont pas été suffisantes pour complètement dégrader ce constituant. Concernant le résidu charbonneux, on remarque là encore deux comportements suivant le bois. Dans le cas du chêne, étant donné que la lignine se dégrade peu, la production de résidu charbonneux est principalement due à la dégradation de l'hémicellulose. Une fois que celle-ci a complètement disparue, la masse de résidu charbonneux se stabilise autour de 0,23 g jusqu'à la fin des simulations. Dans le cas de l'eucalyptus, la production de résidu charbonneux continue après la dégradation totale de l'hémicellulose. Ce phénomène est dû à la dégradation de la lignine qui produit une proportion importante de résidu charbonneux. A la fin des simulations, la masse de résidu charbonneux atteint 0,45 g. Il est à noter que pour les deux bois, les températures étant trop faibles pour oxyder le résidu charbonneux, il n'y a pas de production de cendres et donc pas de décroissance de la courbe du résidu charbonneux. A cette densité de flux, la masse de plaque restante est donc constituée de 50,2 % de lignine et de 49,8 % de résidu charbonneux dans le cas de l'eucalyptus. Pour le chêne, il y a 1,4 % d'hémicellulose, 6,2 % de cellulose, 72,3 % de lignine, et 20,1 % de résidu charbonneux.

Dans le cas du mécanisme global, la première étape de dégradation suit la même tendance pour les deux bois. BS commence à se dégrader au bout de 15 s et est complètement transformé en BS₁ au bout de 92 s pour l'eucalyptus et de 162 s pour le chêne. Pour les deux bois, on observe une augmentation de la masse de BS₁ coïncidant avec la disparition de BS. Dans le cas du chêne, la masse de BS₁ est maximale vers 80 s avec une valeur de 1,8 g. Pour l'eucalyptus, la masse est maximale à 90 s avec une valeur de 3,0 g. Cette différence d'intensité vient notamment d'un coefficient stœchiométrique massique supérieur pour la première réaction dans le cas de l'eucalyptus. Pour les deux bois, la masse de BS₁ diminue ensuite car celui-ci se transforme en BS₂. Toutefois, BS₁ est entièrement consommé pour l'eucalyptus au bout de 207 s tandis que pour le chêne, il reste à la fin de la dégradation une masse de l'ordre de 0,06 g. Concernant l'évolution de BS₂, la production de cet état intermédiaire débute lorsque la masse de BS₁ est maximale

(80 s pour le chêne et 90 s pour l'eucalyptus). Pour les deux bois, la courbe est tout d'abord croissante puis diminue lorsque la production de résidu charbonneux commence. Il est à noter toutefois que la production de résidu charbonneux est très faible dans le cas du chêne alors qu'elle est plus visible pour l'eucalyptus. A l'issue de la simulation, la masse finale est composée de 72,2 % de BS₂ et de 27,8 % de résidu charbonneux pour l'eucalyptus. Pour le chêne, on a 11,5 % de BS₁, 80,3 % de BS₂ et de 8,2 % de résidu charbonneux.

Dans le cas du mécanisme actif, la dégradation thermique du bois sec débute au bout de 15 s pour les deux bois ce qui coïncide avec l'apparition du « bois actif ». Le bois sec initial est totalement transformé en « bois actif » au bout de 184 s pour le chêne et de 83 s pour l'eucalyptus. Concernant l'évolution du « bois actif », on observe tout d'abord une augmentation de sa masse jusqu'à un maximum : 2,40 g (à 68 s) pour l'eucalyptus et 0,87 g (à 63 s) pour le chêne. Ensuite la masse de bois actif diminue car il se dégrade pour former des gaz, des goudrons et du résidu charbonneux. Le « bois actif » est totalement consommé au bout de 285 s pour le chêne et de 145 s pour l'eucalyptus. La courbe du résidu charbonneux des deux bois continue à croître jusqu'à la fin des simulations car les températures ne sont pas suffisantes pour que son oxydation en cendres débute. En revanche, pour les goudrons, la courbe augmente jusqu'à atteindre un pic (0,54 g pour le chêne et 0,90 g pour l'eucalyptus). Ensuite la masse de goudrons diminue (à partir de 89 s et de 104 s pour le chêne et l'eucalyptus, respectivement) ce qui correspond à leur gazéification. Toutefois, la totalité des goudrons ne s'est pas volatilisée puisqu'il reste une masse finale de goudrons de 0,17 g et 0,16 g pour le chêne et l'eucalyptus, respectivement. La présence d'une condition limite de convection libre sous la face inférieure des plaques permet d'évacuer une quantité beaucoup plus importante de goudrons par cette face, ce qui se traduit par une meilleure estimation du MLR numérique pour les deux bois (Figure 5.5.c et Figure 5.6.c). A la fin des simulations, la masse finale est composée de 10,2 % de goudrons et de 89,8 % de résidu charbonneux pour l'eucalyptus. Pour le chêne, on a 0,7 % de « bois actif », 15,2 % de goudrons et de 84,1 % de résidu charbonneux. Le mécanisme actif prédit donc une quantité de résidu charbonneux formée plus importante que pour les deux autres mécanismes réactionnels. Cela vient du fait que le résidu charbonneux est formé dans la deuxième réaction en parallèle des goudrons et des gaz.

Pour le mécanisme simplifié, la dégradation du bois débute vers 30 s et se poursuit jusqu'à la fin de l'expérience pour le chêne et l'eucalyptus. La totalité des deux bois n'est pas consommée puisqu'il reste une masse finale respective de 0,31 et 0,36 g pour le chêne et l'eucalyptus. La décomposition du bois entraîne la formation du résidu charbonneux. Sa masse augmente à partir de 30 s pour les deux bois pour atteindre une masse finale respective de 0,86 et 1,28 g pour le chêne et l'eucalyptus. A l'issue des simulations, la masse finale est constituée de 26,5 % de bois et 73,5 % de résidu charbonneux pour le chêne. Pour l'eucalyptus, on a 22 % de bois et 78 % de résidu charbonneux.

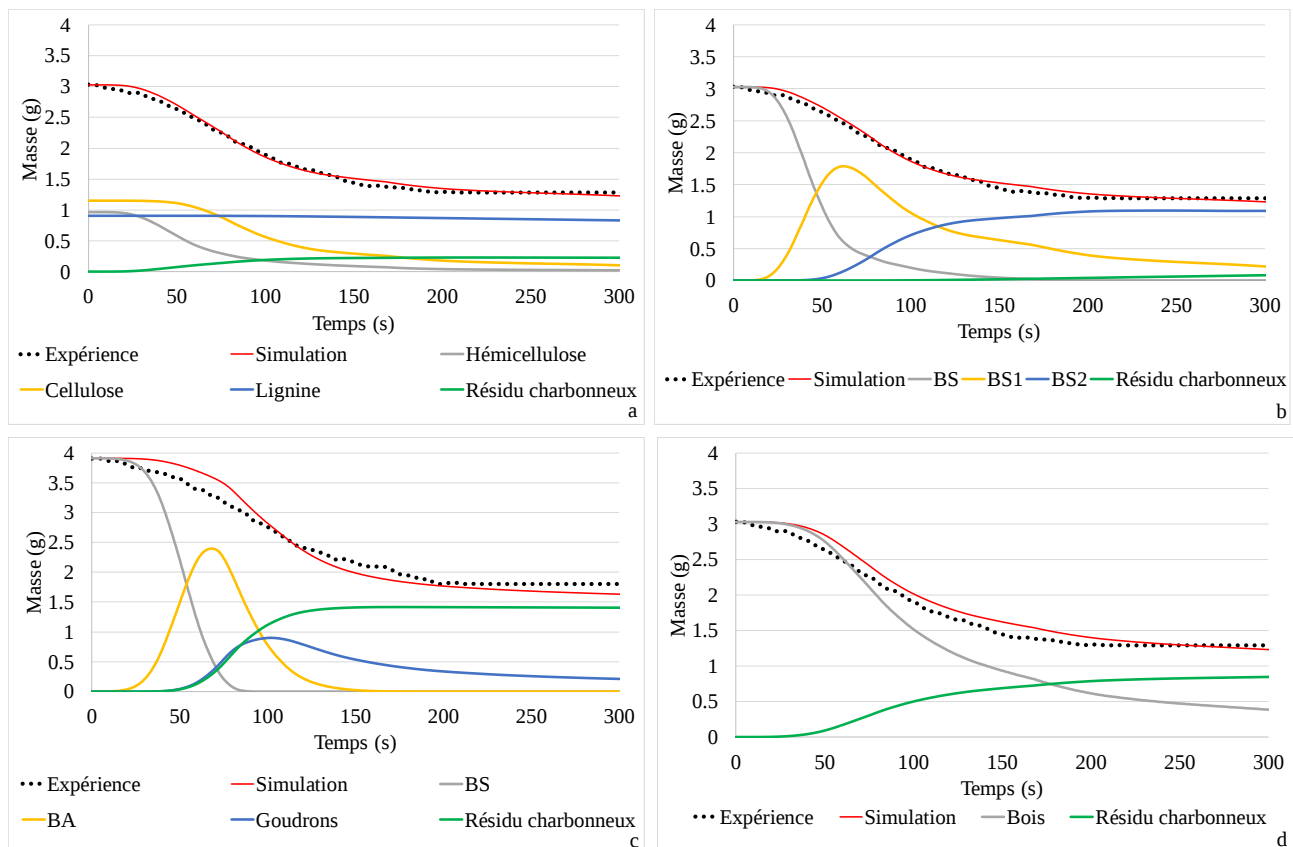


Figure 5.7 : Evolution des masses des différents états intermédiaires du chêne pour une densité de flux de 23 kW/m² calculées par : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.

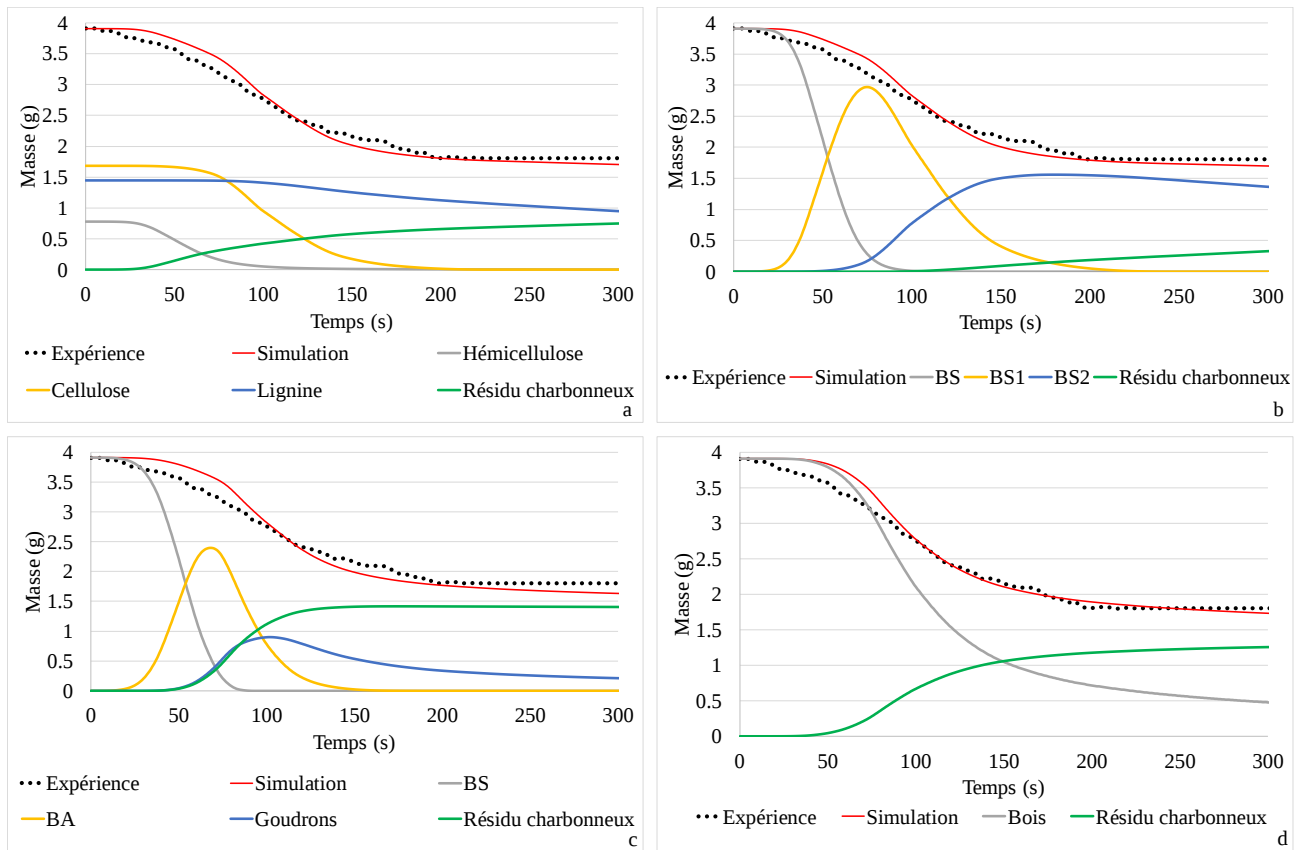


Figure 5.8 : Evolution des masses des différents états intermédiaires de l'eucalyptus pour une densité de flux de 23 kW/m² calculées par : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.

Au vu de ces résultats, il semble que les quatre mécanismes soient validés pour les expériences sans oxydation du résidu charbonneux. Il est difficile de déterminer le mécanisme qui représente le mieux la dégradation car leurs performances sont très proches. Un moyen de les départager serait de faire une étude chimique de la plaque finale afin de déterminer sa composition et de la comparer avec celle obtenue numériquement. On remarque en effet que la prédiction concernant la masse finale de résidu charbonneux est différente selon les mécanismes réactionnels. Le mécanisme par constituants et le mécanisme global prédisent une masse de résidu charbonneux inférieure à 1 g tandis que le mécanisme actif et le mécanisme simplifié prédisent une masse supérieure ou égale à 1,5 g. A partir du mécanisme par constituants, un moyen de vérifier expérimentalement la masse finale de résidu charbonneux serait de réaliser une extraction des constituants du composé final récupéré à la fin de l'expérience. Cela permettrait d'identifier les proportions d'hémicellulose, de cellulose et de lignine qui n'ont pas été dégradées et d'en déduire la masse de résidu charbonneux.

1.1.2.2. Expériences avec oxydation du résidu charbonneux

Les Figures 5.9 et 5.10 présentent les résultats du test des quatre mécanismes réactionnels développés à l'échelle matière pour les expériences du chêne et de l'eucalyptus avec une densité de flux de 28,5 kW/m². La représentation des pertes de masse expérimentales et calculées pour les autres densités de flux est

donnée en Annexe H. Pour comparer les masses prédites et expérimentales, nous avons calculé pour chaque cas l'écart absolu moyen ainsi que l'écart absolu maximum (Tableau 5-2). Les valeurs obtenues pour chaque bois et chaque densité de flux sont données en Annexe H. Les quatre mécanismes donnent des pertes de masse proches des résultats expérimentaux. Le début de la dégradation thermique est bien représenté par les quatre mécanismes. Pour l'eucalyptus, le mécanisme par constituants et le mécanisme global estiment précisément le début de la perte de masse tandis que le mécanisme actif et le mécanisme simplifié présentent un léger retard de 10 s par rapport aux données expérimentales. A partir de 50 s et jusqu'à 120 s, les courbes prédites par tous les mécanismes ont ensuite tendance à sous-estimer la masse des plaques. Le pic de MLR est en effet mal représenté par les mécanismes puisque les simulations donnent des pics plus intenses (en moyenne 2,18 fois plus importants pour le chêne et 1,86 fois plus importants pour l'eucalyptus) que les expériences avec une durée plus courte. L'oxydation du résidu carbonneux est correctement modélisée pour les quatre mécanismes. L'intensité du second pic de MLR prédit ainsi que sa durée sont en effet proches de celles obtenues expérimentalement. A la fin de la dégradation, les quatre mécanismes donnent une masse finale proche de celle obtenue lors des expériences.

Comme pour les expériences à l'échelle matière et pour celles sans oxydation, les quatre mécanismes réactionnels prédisent des pertes de masse très proches. La moyenne des écarts absolus moyens est en effet de 0,092, 0,090, 0,086 et 0,078 g pour le chêne et 0,111, 0,120, 0,126 et 0,114 g pour l'eucalyptus pour le mécanisme global, le mécanisme par constituants, le mécanisme actif et le mécanisme simplifié respectivement. Les performances des trois mécanismes à quatre étapes sont très proches pour le chêne (autour de 0,09 g). Pour l'eucalyptus, le mécanisme par constituants et le mécanisme global présentent des performances très proches (autour de 0,115 g). En revanche, le mécanisme actif donne une performance moins bonne que les deux autres mécanismes à quatre étapes. Il est donc difficile de déterminer à partir de ces résultats quel est le mécanisme réactionnel le plus performant. En revanche, contre toute attente, le modèle simplifié donne des résultats supérieurs aux mécanismes à quatre étapes que ce soit au niveau de l'écart moyen ou de l'écart maximum pour le chêne. Pour l'eucalyptus, la performance du mécanisme simplifiée est très légèrement inférieure au niveau de l'écart absolu moyen à celle du mécanisme global et du mécanisme par constituants. Au niveau de l'écart absolu maximum, la performance du mécanisme simplifié est supérieure.

Tableau 5-2 : Ecart absolu moyen entre les masses mesurées et prédites par chaque approche pour le chêne et l'eucalyptus pour les densités de flux entraînant l'oxydation du résidu carbonneux.

Bois		Chêne				Eucalyptus			
Mécanisme	Densité de flux (kW/m ²)	Constituant	Global	Actif	Simplifié	Constituant	Global	Actif	Simplifié
Ecart absolu moyen (g)	25	0,075	0,071	0,075	0,073				
	27	0,092	0,090	0,087	0,086	0,113	0,116	0,129	0,110
	28,5	0,109	0,108	0,095	0,075	0,109	0,099	0,123	0,118
	Moyenne	0,092	0,090	0,086	0,078	0,111	0,108	0,126	0,114
Ecart absolu maximum (g)	25	0,298	0,286	0,244	0,188				
	27	0,486	0,482	0,364	0,263	0,372	0,388	0,443	0,305
	28,5	0,557	0,552	0,473	0,311	0,392	0,405	0,453	0,314
	Moyenne	0,447	0,440	0,360	0,254	0,382	0,397	0,448	0,310

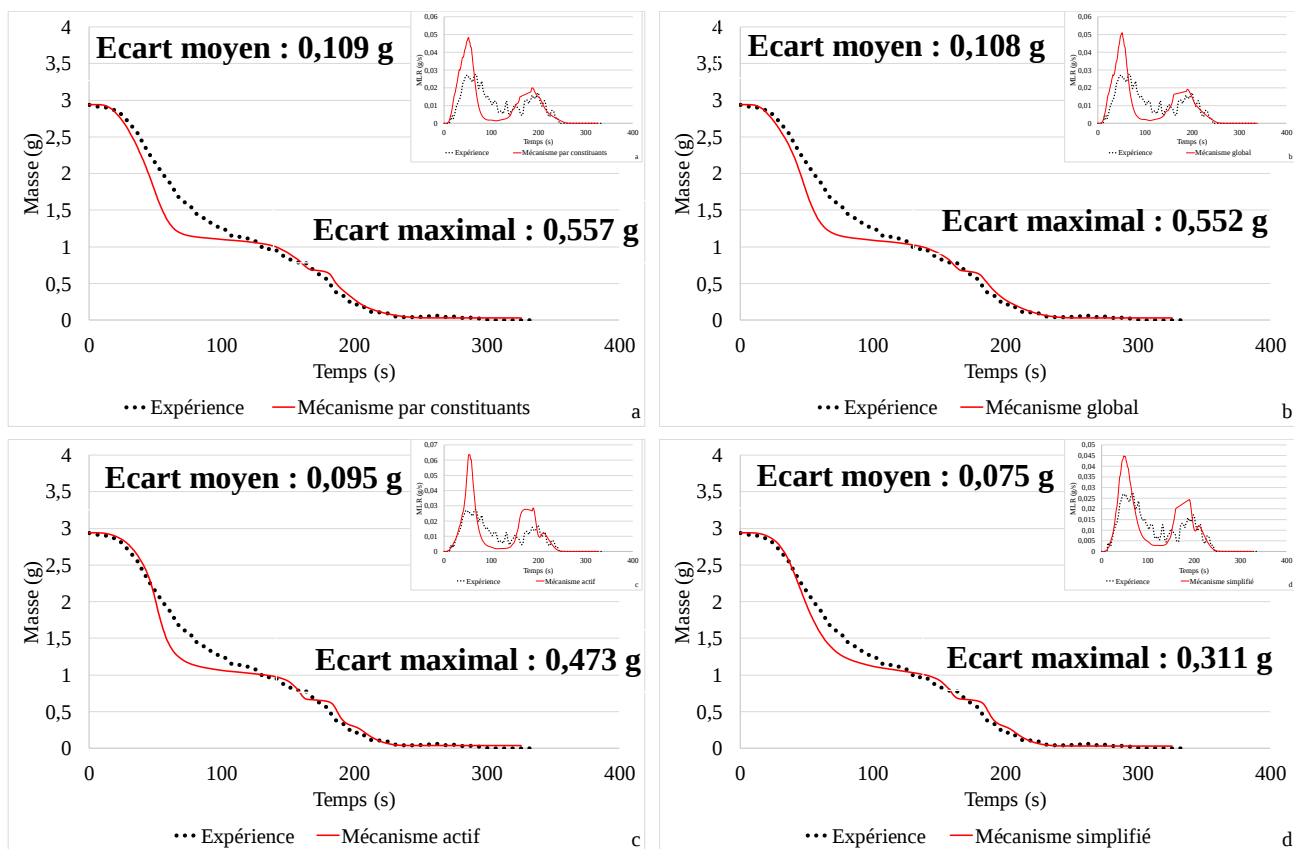


Figure 5.9 : Masse et débit massique prédits et mesurés au cours du temps pour une densité de flux de $28,5 \text{ kW/m}^2$ dans le cas du chêne pour : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.

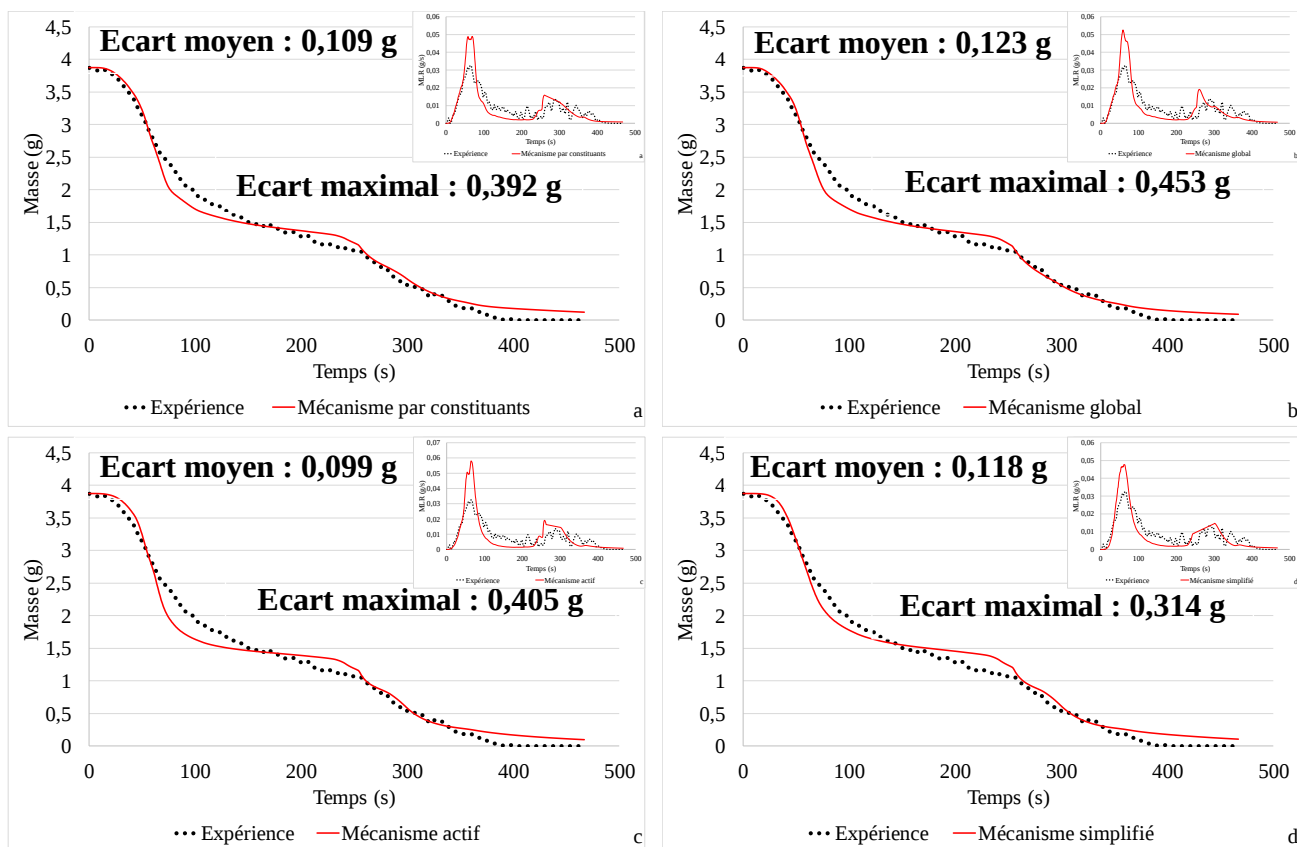


Figure 5.10 : Masse et débit massique prédits et mesurés au cours du temps pour une densité de flux de 28,5 kW/m² dans le cas de l'eucalyptus pour : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.

Afin d'examiner plus en détails les réactions prédites par les quatre mécanismes réactionnels, nous avons tracé dans les Figures 5.11 et 5.12, les évolutions des masses des composants du chêne et de l'eucalyptus présentes dans ces mécanismes pour une densité de flux de 28,5 kW/m².

Dans le mécanisme par constituants, la dégradation du bois commence par la décomposition de l'hémicellulose ce qui entraîne une première formation de résidu charbonneux. Le second polymère qui se dégrade est ensuite la cellulose (entre 30 et 100 s pour les deux bois). Comme le coefficient stœchiométrique de formation du résidu charbonneux est faible pour la cellulose (0,01 pour le chêne et 0,07 pour l'eucalyptus), il est difficile de voir la création de résidu charbonneux due à la décomposition de la cellulose. La lignine se décompose ensuite. Pour le chêne, la dégradation démarre lentement au bout de 60 s, pendant une durée de 140 s. Ensuite, la masse de la lignine décroît rapidement jusqu'à ce qu'elle ait été entièrement consommée au bout de 230 s. Pour l'eucalyptus, la décomposition de la lignine débute vers 80 s et sa masse décroît avec une vitesse quasi-constante jusqu'à 250 s. Ensuite, la dégradation ralentit jusqu'à ce que la masse de lignine soit complètement consommée (vers 400 s). Etant donné que 45 à 54 % de la masse de lignine est convertie en résidu charbonneux (Tableau 3-4 Chapitre 3), la décomposition de la lignine s'accompagne d'une augmentation de la masse de résidu charbonneux. L'oxydation du résidu charbonneux entraîne une décroissance de cette masse vers 236 s.

Dans le cas du mécanisme global, la dégradation du bois sec démarre après environ 15 s pour les deux bois ce qui coïncide avec l'apparition de l'intermédiaire BS_1 . Sa formation est maximale au bout de 40 s pour le chêne et de 50 s pour l'eucalyptus puis la masse de BS_1 décroît jusqu'à sa disparition qui intervient au bout de 87 s pour le chêne et de 100 s pour l'eucalyptus. La décroissance de la masse de BS_1 est concomitante de l'apparition de l'intermédiaire BS_2 . Toutefois, l'évolution de la masse de cet état intermédiaire varie en fonction du bois. Pour les deux bois, on observe une phase de croissance de la masse de BS_2 pendant la décomposition de BS_1 . Pour le chêne, la masse de BS_2 se stabilise autour de 1 g ce qui entraîne l'apparition d'un plateau au niveau de la courbe entre 80 et 120 s. A partir de 120 s, la masse de BS_2 décroît jusqu'à sa consommation finale autour de 200 s. Pour l'eucalyptus, il n'y a pas de phase de stabilisation de la masse. Une fois que la masse de BS_2 a atteint son maximum, celle-ci décroît jusqu'à ce que BS_2 soit complètement consommé (autour de 380 s). Dans le mécanisme global, le résidu charbonneux est uniquement produit par la décomposition de BS_2 . Par conséquent, les différences observées sur la dégradation de BS_2 entre les deux bois se retrouvent également au niveau des courbes du résidu charbonneux. Pour le chêne, il n'y a qu'une faible formation de résidu charbonneux durant le plateau et la masse de résidu charbonneux n'excède pas 0,18 g dans la phase de décroissance car celui-ci est rapidement transformé en cendres. Par contre, pour l'eucalyptus, la formation du résidu charbonneux débute dès 80 s. A cet instant la température étant trop faible pour initier son oxydation, la masse de résidu charbonneux augmente jusqu'à 380 s avant de diminuer lorsque l'oxydation débute.

Dans le cas du mécanisme actif, la consommation du bois sec démarre après environ 15 s pour les deux bois ce qui coïncide avec l'apparition du « bois actif ». Le bois sec est complètement transformé en « bois actif » au bout de 50 s pour les deux bois. La masse de « bois actif » augmente jusqu'à atteindre un pic (entre 40 et 50 s suivant le bois) puis décroît jusqu'à la disparition totale du bois actif autour de 100 s. La décroissance de la masse de bois actif coïncide avec l'apparition simultanée du résidu charbonneux et des goudrons. Le mécanisme actif considère en effet une formation en parallèle du résidu charbonneux et des goudrons. La masse de goudrons atteint un pic respectivement vers 50 et 60 s pour le chêne et l'eucalyptus puis décroît car la réaction de gazéification débute. Les goudrons sont entièrement volatilisés respectivement 180 et 280 s après le début des simulations du chêne et de l'eucalyptus. La masse de résidu charbonneux augmente quant à elle pendant environ respectivement 45 et 50 s pour le chêne et l'eucalyptus puis se stabilise pour former un plateau pendant 30 s pour le chêne et 40 s pour l'eucalyptus. Ensuite, la masse de résidu charbonneux diminue à partir de 180 s pour le chêne et 250 s pour l'eucalyptus, signe que l'oxydation du résidu charbonneux a débuté. Comme pour les mécanismes précédents, il est difficile de voir la formation des cendres à cause des faibles taux de conversion utilisés.

Pour le mécanisme simplifié, la dégradation du bois débute vers 30 s et se poursuit jusqu'à 200 s pour le chêne et de 300 s pour l'eucalyptus. La décomposition du bois entraîne la formation du résidu charbonneux. Sa masse augmente entre 20 et 100 s pour les deux bois puis se stabilise pendant environ 150 s avant de décroître lorsque l'oxydation du résidu charbonneux commence. Dans le cas du chêne, on peut voir l'apparition des cendres à partir de 150 s.

Grâce au tracé des différents intermédiaires de réaction, il est à présent possible de déterminer quelle étape induit l'écart observé entre les courbes expérimentales et numériques. Dans le cas du mécanisme par constituants, l'erreur semble provenir de la décomposition de la cellulose. Pour que les simulations se rapprochent des expériences, il aurait fallu que la cellulose se décompose sur une durée plus longue et

donc avec une vitesse de réaction plus faible. Concernant le mécanisme global, l'écart entre les courbes semble être dû à la décomposition de BS_1 qui se fait trop rapidement. Comme pour le mécanisme précédent, il aurait fallu que BS_1 se décompose sur une durée plus longue et donc avec une vitesse de réaction plus faible. Pour le mécanisme simplifié, l'erreur provient d'une décomposition trop rapide du bois sec. Enfin, pour l'approche active, l'écart observé entre les expériences et les simulations provient soit de la gazéification des goudrons qui se produit là encore trop rapidement soit d'une mauvaise estimation des taux de conversion entre les goudrons et le résidu charbonneux. Pour permettre une bonne représentation de la perte de masse pour ces densités de flux, il faut donc changer les paramètres cinétiques. Ce résultat semble indiquer qu'il y aurait un changement de cinétique entre les deux gammes de densité de flux. En augmentant la densité de flux, la vitesse de chauffe des plaques augmente également. D'après la littérature [199,200], cette augmentation favorise la production de résidu charbonneux et diminue celle de goudrons. Pour le mécanisme actif, il faudrait par conséquent augmenter le coefficient stœchiométrique ν_2 et diminuer le coefficient stœchiométrique ν_3 . Pour les autres mécanismes, étant donné que la production de goudrons n'est pas représentée, il faudrait modifier l'ensemble des paramètres cinétiques. Une des perspectives de complément pour cette thèse serait par conséquent l'analyse des gaz et particules émis lors de la dégradation du bois. Ce type d'études permettrait de quantifier la part de goudrons et de définir s'il y a bien un changement de cinétique de dégradation lorsque la densité de flux appliquée sur les plaques augmente.

L'oxydation du résidu charbonneux est bien réalisée par les quatre mécanismes réactionnels. Expérimentalement, nous avons identifié un début d'oxydation (correspondant à l'apparition de la première braise rougeoyante à la surface des plaques) au bout de 122 s pour le chêne et de 216 s pour l'eucalyptus. L'ensemble des mécanismes prédit un début de perte de masse du résidu charbonneux proche de ces instants.

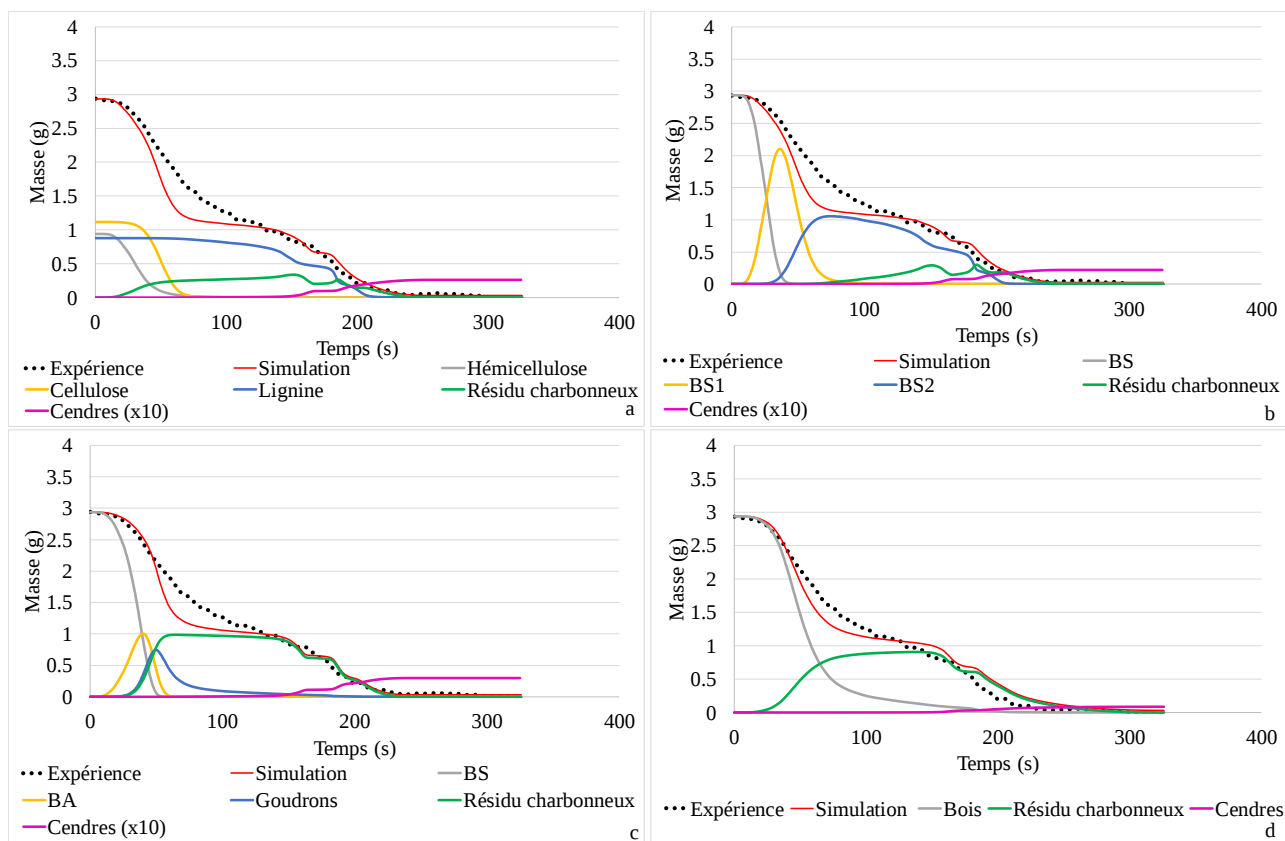


Figure 5.11 : Evolution des masses des différents états intermédiaires du chêne pour une densité de flux de 28,5 kW/m² calculées par : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.

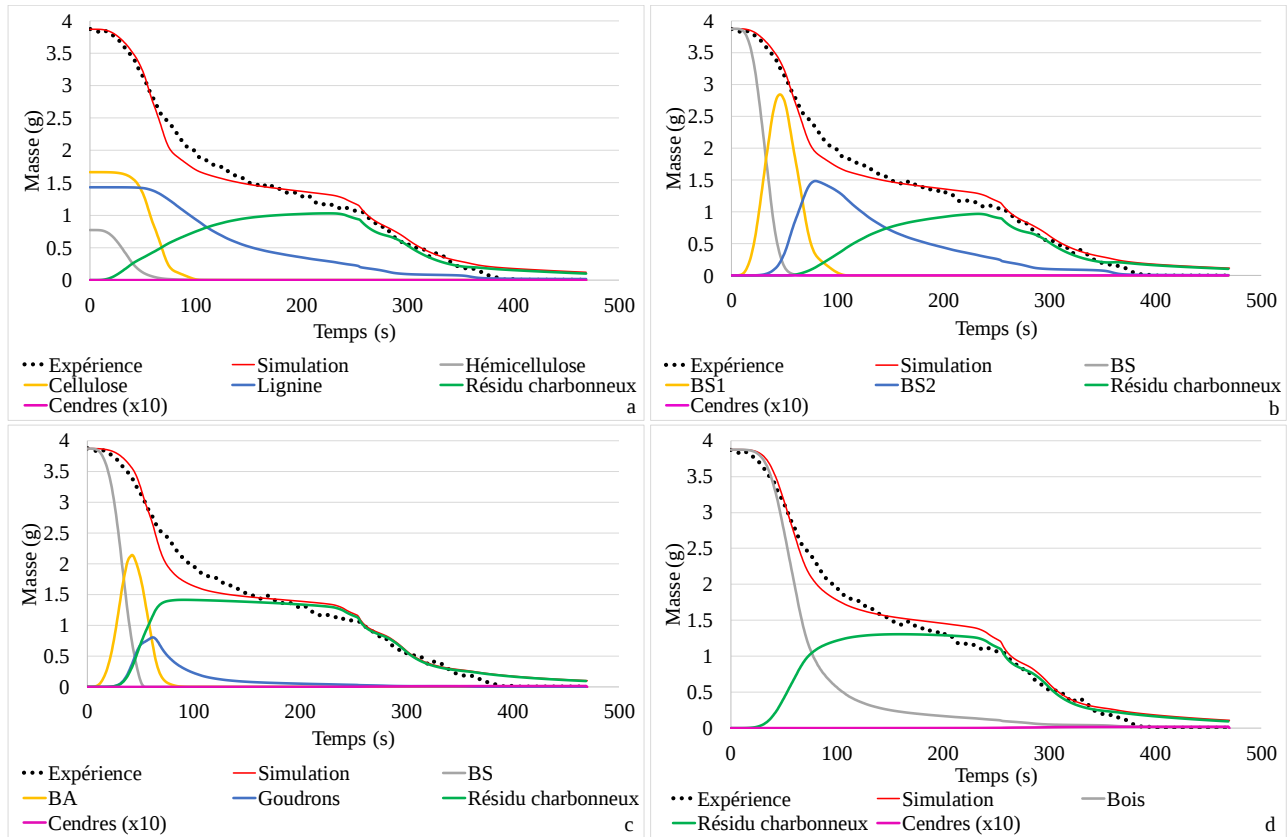


Figure 5.12 : Evolution des masses des différents états intermédiaires de l'eucalyptus pour une densité de flux de 28,5 kW/m² calculées par : a) le mécanisme par constituants b) le mécanisme global c) le mécanisme actif d) le mécanisme simplifié.

1.1.3. Synthèse sur la validation des mécanismes réactionnels à l'échelle matériau

Compte tenu des résultats ci-dessus, nous avons mis en évidence les points suivants :

- Le test des mécanismes cinétiques à l'échelle matériau n'est possible qu'en se basant sur les expériences réalisées avec une condition limite de convection libre sous la face inférieure des plaques. L'utilisation de la laine céramique pour créer une condition adiabatique fausse en effet la comparaison expérience/simulation car la laine a tendance à piéger les goudrons, ce qui perturbe la mesure de la perte de masse.
- Les quatre mécanismes développés à l'échelle matière à savoir le mécanisme par constituants, le mécanisme global, le mécanisme actif et le mécanisme simplifié ont permis de prédire correctement la perte de masse des plaques thermiquement fines pour des densités de flux n'entraînant pas l'oxydation du résidu charbonneux, c'est-à-dire pour des densités de flux inférieures à 23 kW/m² pour le chêne et 25 kW/m² pour l'eucalyptus. Nous pouvons donc considérer que ces mécanismes sont validés pour ces conditions expérimentales. La meilleure performance est attribuée au mécanisme par constituants et la moins bonne au mécanisme simplifié pour les deux bois. Quel que soit le mécanisme considéré, de meilleurs résultats sont obtenus pour le chêne.

- Pour les densités de flux où l'on n'observe pas l'oxydation du résidu charbonneux, les quatre mécanismes donnent des résultats satisfaisants. Toutefois, pour améliorer les prédictions, il semble nécessaire de modifier les paramètres cinétiques des réactions relatives à la gazéification des plaques. Le mécanisme simplifié donne les meilleurs résultats pour le chêne et possède des performances équivalentes à celles des mécanismes à quatre étapes pour l'eucalyptus.
- L'oxydation du résidu charbonneux est bien représentée pour l'ensemble des mécanismes testés.

1.2. Etude de la dégradation thermique des plaques de bois thermiquement fines avec GPYRO

Pour tester les mécanismes réactionnels, nous avons choisi d'utiliser la température mesurée sur les plaques afin de nous affranchir de la détermination des paramètres thermiques. Ceci était possible car les plaques considérées sont thermiquement fines. Toutefois, pour simuler la dégradation de plaques de bois thermiquement épaisses, il est nécessaire de recourir à un logiciel capable de calculer la température de la plaque et sa perte de masse. Pour réaliser les simulations, nous avons opté pour le code de calcul GPYRO. Les équations implantées dans ce code sont données dans le Chapitre 2. Avant de simuler la dégradation de plaques thermiquement épaisses, nous avons décidé de tester l'utilisation de ce code de calcul dans le cas la dégradation des plaques thermiquement fines de chêne et d'eucalyptus. Pour cette partie, nous n'avons considéré que trois mécanismes : le mécanisme par constituants, le mécanisme global et le mécanisme simplifié. Nous avons fait l'hypothèse que la dégradation se faisait de manière monodimensionnelle. Toutefois, nous avons identifié des phénomènes bidimensionnels lors de la gazéification des plaques et surtout lors de l'oxydation du résidu charbonneux (cf. Chapitre 4). Pour ces raisons, les résultats numériques obtenus par GPYRO ne peuvent pas être exploités directement et nécessitent une convolution avec les surfaces d'oxydation pour tenir compte du caractère bidimensionnel de la combustion du résidu charbonneux. Cette méthode est présentée dans le paragraphe 1.2.2.

Pour que l'oxydation du résidu charbonneux puisse avoir lieu dans le code de calcul GPYRO, il a été indispensable de tenir compte de la fraction locale d'oxygène à la surface et à l'intérieur de l'échantillon. D'après les équations 2.34 et 2.35, la prise en compte de l'oxygène modifie l'expression de la vitesse de réaction des espèces. Pour garder les valeurs des facteurs pré-exponentiels déterminés à l'échelle matière (A_k), nous avons utilisé les facteurs pré-exponentiels (A'_k) donnés dans le Tableau 5-3 calculés à partir de l'équation suivante :

$$A'_k = \frac{A_{ATG}}{(1 + Y_{O_2,ATG})^{n_{O_2,k} - 1}} \quad (5.6)$$

Nous avons considéré que la fraction massique d'oxygène de l'atmosphère employée lors des expériences sous ATG était égale à 0,23 ($Y_{O_2,ATG} = 0,23$). Les ordres de réaction relatifs à l'oxygène ($n_{O_2,k}$) ont été fixés à 1 pour les deux bois. Cette valeur se situe dans la gamme de valeurs rencontrées dans la littérature (entre 1,00 et 1,16) [15,42].

Tableau 5-4 : Facteurs pré-exponentiels corrigés du chêne et de l'eucalyptus pour chaque mécanisme réactionnel.

Mécanisme réactionnel	A'_k (s ⁻¹)	
	Chêne	Eucalyptus
Mécanisme par constituants	$1,17.10^6$	$4,68.10^5$
Mécanisme global	$1,03.10^6$	$4,73.10^5$
Mécanisme simplifié	$7,65.10^6$	$1,30.10^6$

1.2.1. Détermination des propriétés thermo-physiques du bois

Le calcul de la température dans GPYRO nécessite la détermination des propriétés thermo-physiques des composés intervenants dans les différents mécanismes. Pour obtenir ces valeurs, nous avons opéré comme suit :

- Les propriétés du bois sec correspondent à celles déterminées expérimentalement (Chapitre 2). La masse volumique a été fixée à 540 kg/m³ pour le chêne et à 652 kg/m³ pour l'eucalyptus. La conductivité thermique à 300 K a été prise égale à 0,128 W/m.K pour les deux bois. Cette valeur correspond à la conductivité thermique moyenne entre 120°C et 180°C déterminée pour le chêne d'une épaisseur de 20,87 mm. La variation entre 120°C et 180°C de la conductivité thermique étant faible, nous avons fixé le coefficient n_k à 0. Cette valeur est inférieure aux valeurs rencontrées dans la littérature [15,42] qui tiennent compte d'une augmentation de la conductivité thermique avec la température, comme cela est souvent le cas dans la littérature [39,54,58]. La capacité calorifique a été fixée à 1310 J/kg.°C pour le chêne et à 1320 J/kg.°C pour l'eucalyptus. Ces valeurs correspondent aux mesures. Dans le mécanisme par constituants, les masses volumiques de l'hémicellulose, de la cellulose et de la lignine ont été prises égales à celles du bois sec.
- Les masses volumiques des différents intermédiaires réactionnels intervenant dans les mécanismes ont été déterminées à partir des coefficients stœchiométriques massiques définis à l'échelle matière pour chaque approche en utilisant l'équation 2.31. Aucune variation avec la température n'a été considérée pour les masses volumiques afin de ne pas modifier la cinétique ($n_{p,i} = 0$ quel que soit i).
- Les émissivités du bois sec sont celles obtenues dans le Tableau 2-5 pour une température de la plaque de 30°C. Dans le mécanisme par constituants, les émissivités de l'hémicellulose, de la cellulose et de la lignine sont prises égales à celles du bois sec. Pour le résidu charbonneux, nous avons imposé une valeur de 0,95 issue de la littérature [54]. Pour les cendres, nous avons fixé la même valeur que pour le résidu charbonneux.
- Pour le résidu charbonneux, nous avons utilisé des valeurs issues de la littérature. La capacité calorifique du résidu charbonneux ainsi que sa conductivité thermique ont été fixées respectivement à 1100 J/kg.K et à 0,1 W/m.K [197]. Les coefficients $n_{c,i}$ et $n_{k,i}$ ont été fixés à 1. Les masses volumiques du résidu charbonneux sont obtenues avec la stœchiométrie déterminée pour chaque mécanisme réactionnel et chaque bois à l'aide de l'équation 2.33.
- Pour les cendres, les mêmes propriétés que celles du résidu charbonneux ont été utilisées, sauf pour les masses volumiques qui sont obtenues pour chaque mécanisme réactionnel et chaque bois, à l'aide de la stœchiométrie de la réaction d'oxydation du résidu charbonneux.

- La détermination des autres paramètres thermo-physiques (c'est-à-dire $c_{p_{0,i}}$, $k_{0,i}$, $n_{c,i}$, $n_{k,i}$ des autres espèces ainsi que les chaleurs latentes de transformation) a été effectuée à l'aide d'une optimisation par algorithme génétique. Pour chaque mécanisme réactionnel, les optimisations ont été réalisées en se basant sur les températures mesurées au centre de la plaque pour une densité de flux de 28,5 kW/m². Les propriétés thermo-physiques inconnues ont été initialisées avec les valeurs du bois sec. Chaque paramètre thermique a été encadré par des valeurs inférieures et supérieures pour borner l'algorithme génétique dans un espace de solutions physiquement acceptables. Ainsi, la conductivité thermique $k_{0,i}$ a été bornée entre 0,02 et 0,2 W/m.K. Pour la capacité calorifique $c_{p_{0,i}}$, nous avons optimisé dans un intervalle compris entre 1000 et 2800 J/kg.K. Enfin, les coefficients $n_{c,i}$ et $n_{k,i}$ ont été bornés respectivement entre 1,0 et 3,5 et entre 0 et 1,0. Concernant les paramètres de l'algorithme génétique, nous avons fixé le nombre de générations à 400 et le nombre d'individus à 500. Cinq simulations successives ont été réalisées. Les valeurs des différents paramètres correspondent à la moyenne des valeurs obtenues lors de ces cinq essais.

Les Tableau 5-5 à Tableau 5-7 présentent les propriétés thermo-physiques des différentes espèces présentes dans les trois mécanismes. Les valeurs en italiques sont les paramètres fixés dans les fichiers d'entrée du code GPYRO. Les autres données ont été obtenues par l'intermédiaire de l'optimisation. Pour ces paramètres, les écarts-types sont présentés entre parenthèses. Pour le mécanisme par constituants, l'optimisation de la conductivité thermique donne des valeurs respectives pour l'hémicellulose, la cellulose et la lignine de 0,113, 0,07 et 0,08 W/m.K pour le chêne et de 0,116, 0,07 et 0,08 W/m.K pour l'eucalyptus. Les valeurs obtenues pour la lignine sont en accord avec celles de la littérature qui sont comprises entre 0,05 et 0,10 W/m.K [201]. En revanche pour la cellulose, nos valeurs déterminées pour le chêne et l'eucalyptus sont légèrement supérieures aux valeurs de la littérature qui varient entre 0,04 et 0,05 W/m.K [202]. La conductivité thermique de l'hémicellulose est la plus importante parmi les trois bio-polymères. Elle vaut respectivement 0,113 et 0,116 W/m.K pour le chêne et l'eucalyptus et se rapproche de la conductivité thermique déterminée pour le bois sec. Concernant les valeurs de n_k , pour les trois bio-polymères, nous avons obtenu des valeurs comprises entre 0,01 et 0,02 pour le chêne et entre 0,68 et 0,84 pour l'eucalyptus. Les résultats obtenus pour l'eucalyptus sont en accord avec la littérature [15,42]. Concernant la capacité calorifique, les valeurs déterminées respectivement pour l'hémicellulose, la cellulose et la lignine sont de 1640, 1700 et 1030 J/kg.K pour le chêne et de 1520, 1800 et 1050 W/m.K pour l'eucalyptus. Les valeurs obtenues pour la cellulose sont supérieures aux valeurs de la littérature qui varient entre 1212 et 1500 J/kg.K [203,204]. En ce qui concerne la lignine, les valeurs obtenues sont en accord avec celles de Thybring à 300 K qui sont comprises entre 900 et 1100 J/kg.K [204]. Le coefficient n_c varie pour les deux bois entre 0,01 et 3,48. Ces valeurs indiquent que la capacité calorifique augmente avec la température. Ce résultat est en accord avec la littérature [205]. La capacité calorifique de la lignine semble toutefois augmenter avec la température moins rapidement que celles de la cellulose et de l'hémicellulose dans le cas de l'eucalyptus. Pour le chêne, elle varie très peu avec la température (coefficient n_c très proche de 0).

Pour le mécanisme global, la conductivité thermique des états intermédiaires BS_1 et BS_2 donne des valeurs de 0,07 W/m.K pour le chêne et l'eucalyptus. Les conductivités thermiques des états intermédiaires sont plus faibles que la valeur obtenue pour le bois sec, ce qui est en accord avec les résultats obtenus par Fateh et coll. pour le bois de contreplaqué [15] avec des valeurs qui varient entre 0,09 et 0,13 W/m.K. Il est difficile de comparer ces résultats avec des données expérimentales de la littérature car à notre connaissance, il n'existe pas d'étude de la conductivité thermique du bois pour des températures supérieures à 200°C. Concernant les valeurs de n_k de BS_1 et BS_2 , nous avons obtenu des valeurs proches

de 0 pour le chêne et des valeurs de 0,40 et 0,89 pour l'eucalyptus. Ces résultats sont en accord avec la littérature. En effet, Fateh et coll. ont obtenu des coefficients variant entre 0,20 et 0,79 pour du bois de contreplaqué [15]. La conductivité thermique augmente donc avec la température pour l'eucalyptus, ce qui est en accord avec les résultats de la littérature sur différentes espèces végétales et du bois [39,58,162]. La détermination de la capacité calorifique des états intermédiaires présents dans le mécanisme global a donné lieu à des valeurs comprises entre 1025 et 1600 J/kg.K pour le chêne et des valeurs comprises entre 1107 et 1800 J/kg.K pour l'eucalyptus. Les valeurs obtenues se situent dans la même plage de variation pour les deux bois et sont supérieures aux valeurs déterminées par Fateh et coll. pour du bois de contreplaqué (entre 1220 et 1450 J/kg.K) [15]. En ce qui concerne les coefficients $n_{c,i}$, les valeurs varient entre 0,01 et 3,00 pour le chêne et entre 0,99 et 2,44 pour l'eucalyptus. Les valeurs les plus élevées ont été obtenues pour le bois sec et le premier état intermédiaire. Concernant le bois sec, d'après la littérature, les valeurs de n_c varient entre 0,66 et 1,00 [15,42,205]. Pour les intermédiaires réactionnels, Fateh et coll. [15] indiquent des valeurs inférieures ou égales à 1 pour les composés intervenant dans la décomposition du contreplaqué. Nos valeurs sont donc supérieures aux données de la littérature.

L'optimisation des paramètres thermiques réalisée avec le mécanisme simplifié n'a concerné que le coefficient n_c du bois sec. Nous avons obtenu 2,85 pour le chêne et 2,64 pour l'eucalyptus. A titre comparatif Lautenberger et Fernandez-Pello [42] indiquent une valeur de n_c de 0,66 pour du Pin blanc. De manière expérimentale, Dupont et coll. [205] ont déterminé la variation de la capacité calorifique massique entre 40°C et 80°C pour plusieurs espèces de bois telles que le hêtre, le pin noir ou le peuplier. Nous avons pu en déduire un coefficient n_c qui varie entre 0,15 et 0,19, ce qui est inférieur aux valeurs obtenues par optimisation. Par ailleurs, comme discuté ci-dessus, la valeur déterminée par optimisation est supérieure à celles obtenues expérimentalement pour nos plaques, même si toutefois l'intervalle de température considéré est différent.

Afin de connaître l'influence des paramètres thermiques sur les simulations, deux analyses de sensibilité ont été réalisées. La première avec trois paramètres d'entrée : le coefficient $n_{c,bois}$ du bois sec, et les coefficients de convection $h_{c,haut}$ et $h_{c,bas}$ (Annexe I). L'influence de ces paramètres d'entrée a été étudiée sur différentes grandeurs de sortie relatives à la réaction de gazéification et à celle de l'oxydation du résidu charbonneux. Ces grandeurs de sortie sont : la valeur maximale du premier pic du débit massique surfacique ($MLRPUA_{max}$), le temps auquel il intervient (t_{max}), le temps d'apparition de la réaction de gazéification (t_1), le temps auquel elle se termine (t_2). Cette première analyse a permis de montrer que le coefficient $n_{c,bois}$ a la plus grande influence sur les paramètres de sortie présentés ci-dessus. Les coefficients de convection $h_{c,haut}$ et $h_{c,bas}$ ont une influence moindre sur ces mêmes paramètres. La deuxième analyse a été réalisée sur les propriétés thermiques du résidu charbonneux telles que la conductivité thermique, le coefficient $n_{k,char}$, la capacité calorifique massique et le coefficient $n_{c,char}$. Leur influence a été étudiée sur les grandeurs de sortie suivants : le temps d'apparition de la réaction d'oxydation du résidu charbonneux (t_3) et le temps auquel intervient sa disparition (t_4) pour les courbes non convoluées. Les résultats de cette analyse ont montré que les propriétés thermiques ont une influence sur les grandeurs de sortie t_3 et t_4 mais qu'elle est beaucoup moins importante que celle du coefficient $n_{c,bois}$ sur ces mêmes grandeurs. Ainsi, nous avons montré que la conductivité thermique et le coefficient $n_{k,char}$ du résidu charbonneux ont l'effet le plus important sur t_3 et t_4 .

Tableau 5-5 : Propriétés thermo-physiques des espèces présentes dans le mécanisme par constituants obtenues par optimisation.

Bois	Paramètre thermique	Hémicellulose	Cellulose	Lignine	Résidu carbonneux	Cendres
Chêne	ρ (kg/m ³)	540	540	540	120	4,8
	λ (W/m.K)	0,113 ($\pm 0,01$)	0,070 ($\pm 0,01$)	0,080 ($\pm 0,00$)	0,100	0,100
	n_k (-)	0,00 ($\pm 0,00$)	0,02 ($\pm 0,00$)	0,01 ($\pm 0,00$)	1,00	1,00
	C_p (J/kg.K)	1640 (± 248)	1700 (± 43)	1030 (± 90)	1100	1100
	n_c (-)	3,48 ($\pm 0,05$)	3,32 ($\pm 0,03$)	0,00 ($\pm 0,00$)	1,00	1,00
Eucalyptus	ρ (kg/m ³)	652	652	652	213	0,21
	λ (W/m.K)	0,128 ($\pm 0,03$)	0,070 ($\pm 0,01$)	0,080 ($\pm 0,00$)	0,100	0,100
	n_k (-)	0,74 ($\pm 0,09$)	0,84 ($\pm 0,10$)	0,68 ($\pm 0,10$)	1,00	1,00
	C_p (J/kg.K)	1520 (± 214)	1800 (± 214)	1050 (± 53)	1100	1100
	n_c (-)	2,72 ($\pm 0,11$)	2,68 ($\pm 0,09$)	0,86 ($\pm 0,08$)	1,00	1,00

Tableau 5-6 : Propriétés thermo-physiques des espèces présentes dans le mécanisme global obtenues par optimisation.

Bois	Paramètre thermique	BS	BS_1	BS_2	Résidu carbonneux	Cendres
Chêne	ρ (kg/m ³)	540	459	207	136	4
	λ (W/m.K)	0,128	0,070 ($\pm 0,00$)	0,070 ($\pm 0,00$)	0,100	0,100
	n_k (-)	0,00	0,02 ($\pm 0,01$)	0,03 ($\pm 0,00$)	1,00	1,00
	C_p (J/kg.K)	1310	1600 (± 24)	1025 (± 90)	1100	1100
	n_c (-)	3,00 ($\pm 0,00$)	2,81 ($\pm 0,01$)	0,01 ($\pm 0,00$)	1,00	1,00
Eucalyptus	ρ (kg/m ³)	652	593	309	213	0,21
	λ (W/m.K)	0,128	0,070 ($\pm 0,01$)	0,070 ($\pm 0,00$)	0,100	0,100
	n_k (-)	0,00	0,89 ($\pm 0,13$)	0,40 ($\pm 0,01$)	1,00	1,00
	C_p (J/kg.K)	1320	1800 (± 149)	1107 (± 88)	1100	1100
	n_c (-)	2,33 ($\pm 0,34$)	2,44 ($\pm 0,24$)	0,99 ($\pm 0,01$)	1,00	1,00

Tableau 5-7 : Propriétés thermo-physiques des espèces présentes dans le mécanisme simplifié obtenues par optimisation.

Bois	Paramètre thermique	Bois sec	Résidu charbonneux	Cendres
Chêne	ρ (kg/m ³)	540	178,2	5,35
	λ (W/m.K)	0,128	0,100	0,100
	n_k (-)	0,00	1,00	1,00
	C_p (J/kg.K)	1310	1100	1100
	n_c (-)	2,90 ($\pm$ 0,32)	1,00	1,00
Eucalyptus	ρ (kg/m ³)	652	241,2	0,24
	λ (W/m.K)	0,128	0,100	0,100
	n_k (-)	0,00	1,00	1,00
	C_p (J/kg.K)	1320	1100	1100
	n_c (-)	2,64 ($\pm$ 0,12)	1,00	1,00

Le Tableau 5-8 présente les enthalpies de changement d'état des différentes réactions (gazéification des espèces présentes en phase solide) et enthalpie de réaction du résidu charbonneux pour les mécanismes réactionnels par constituants, global et simplifié. L'enthalpie de réaction associée aux résidus charbonneux vaut respectivement -22 et -24 MJ/kg pour le chêne et l'eucalyptus. Dans la littérature, on note des valeurs variant entre -12 et -37,7 MJ/kg [9,42,172]. Nos valeurs sont donc dans la plage de variation observée dans les travaux de la littérature. La chaleur latente de transformation en gaz des espèces présentes en phase solide varie suivant le mécanisme réactionnel et le bois. Avec le mécanisme simplifié, la valeur obtenue est de 2,3 MJ/kg pour le chêne et de 2,1 MJ/kg pour l'eucalyptus. Ces valeurs sont en accord avec celles de Tinney déterminées pour des chevilles en bois (entre 0,8 et 2,3 MJ/kg) [206]. Avec le mécanisme global, la chaleur latente des trois premières réactions du chêne et de l'eucalyptus varie entre 0,4 et 2,3 MJ/kg pour le chêne. Avec le mécanisme par constituants, les valeurs varient entre 0,4 et 2,8 MJ/kg pour le chêne et entre 0,4 et 2,1 MJ/kg pour l'eucalyptus. La plage de variation de la chaleur latente de gazéification de l'eucalyptus varie peu entre le mécanisme global et le mécanisme par constituants. Pour le chêne, les valeurs correspondant à la transformation de l'hémicellulose et de la cellulose en résidu charbonneux sont plus élevées que les valeurs des deux premières réactions du mécanisme global. L'ensemble de ces valeurs reste en accord avec les valeurs déterminées par Tinney [206] excepté pour la valeur de la cellulose du chêne qui est supérieure de 22 % à la valeur maximale de la littérature valant 2,3 MJ/kg.

Tableau 5-8 : Enthalpies de changement d'état des différentes réactions (gazéification des espèces présentes en phase solide) et enthalpie de réaction des résidu charbonneux pour les mécanismes réactionnels par constituants, global et simplifié.

Bois		Chaleurs latentes (MJ/kg)		
		Approche simplifiée	Approche globale	Approche par constituants
Chêne	Réaction 1	2,3	2,1	2,3
	Réaction 2	-22	2,3	2,8
	Réaction 3	-	0,4	0,4
	Réaction 4	-	-22	-22
Eucalyptus	Réaction 1	2,1	2,1	2,1
	Réaction 2	-24	2,3	2,1
	Réaction 3	-	0,4	0,4
	Réaction 4	-	-24	-24

Afin de s'assurer que les propriétés thermo-physiques permettent bien de représenter l'évolution de la température de la plaque, nous avons comparé la température mesurée au centre de la plaque avec celle obtenue numériquement. La Figure 5.13 présente les résultats obtenus pour une densité de flux où il n'y a pas d'oxydation du résidu charbonneux, c'est-à-dire à 23 kW/m². L'évolution des températures calculées par les trois mécanismes est proche de celle obtenue expérimentalement. Pour la plaque de chêne, la montée en température de la plaque est bien représentée. Pour la plaque d'eucalyptus, la dynamique de montée en température est légèrement surestimée jusqu'à 70 s. Les trois mécanismes ont tendance à légèrement surestimer la température finale de la plaque de chêne (entre 26 et 42°C). En revanche, pour l'eucalyptus les températures finales sont correctement estimées.

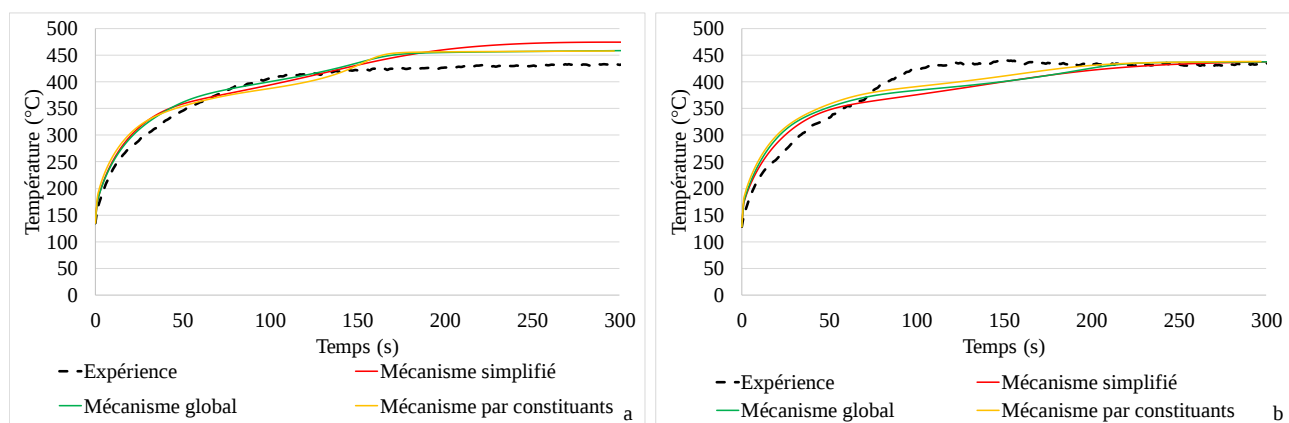


Figure 5.13 : Evolution des températures expérimentales et calculées par GPYRO avec les différents mécanismes réactionnels pour une densité de flux de 23 kW/m² pour : a) le chêne b) l'eucalyptus.

Nous avons également comparé dans la Figure 5.14 pour une densité de flux de 28,5 kW/m², l'évolution de la température prédite par les trois mécanismes avec la température expérimentale au centre de la plaque

et la température correspondant au point sur la plaque où l'oxydation du résidu charbonneux se déclenche. Lorsque cette réaction se produit, l'évolution de la température pendant la dégradation de la plaque est également bien représentée. On observe bien sur les simulations l'augmentation de température caractéristique de l'oxydation. La durée de l'oxydation prédite numériquement varie entre 21 et 34 s pour le chêne et entre 35 et 42 s pour l'eucalyptus. Expérimentalement, les durées sont du même ordre de grandeur : autour de 34 s pour l'eucalyptus et de 20 s pour le chêne. L'instant où l'oxydation du résidu charbonneux apparaît est bien représenté avec le mécanisme simplifié pour le chêne car la montée de température coïncide avec celle de la position où débute l'oxydation du résidu charbonneux (point situé dans un rayon de 3 cm du centre des plaques). Pour les deux autres mécanismes, l'oxydation apparaît environ 40 s après celle observée expérimentalement. Pour l'eucalyptus, l'oxydation prédite par tous les mécanismes débute entre 40 et 70 s avant l'instant obtenu expérimentalement. En ce qui concerne les températures d'oxydation, les valeurs numériques et expérimentales sont très proches pour l'eucalyptus avec une température prédite entre 829°C et 850°C par les mécanismes réactionnels et une température expérimentale de 811°C. Pour le chêne, les valeurs numériques varient entre 797°C et 814°C tandis que la température expérimentale est de 718°C.

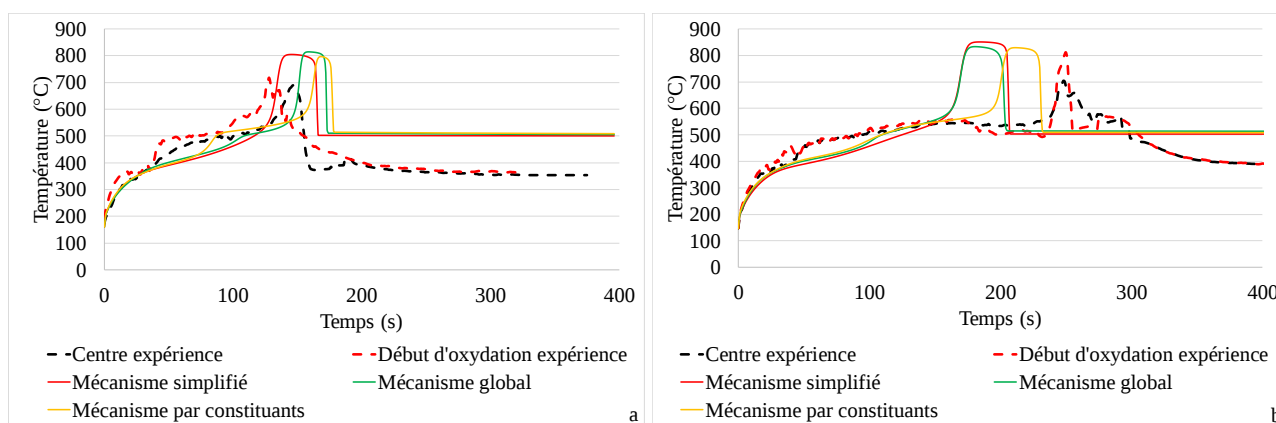


Figure 5.14 : Evolution de la température expérimentale et calculées par GPYRO avec les différents mécanismes réactionnels pour une densité de flux de 28,5 kW/m² pour : a) le chêne b) l'eucalyptus.

1.2.2. Etude de la perte de masse du chêne et de l'eucalyptus après optimisation des propriétés thermiques

Afin de prendre en considération l'aspect bidimensionnel de la dégradation observé expérimentalement, nous avons décidé de convoluer nos simulations avec les surfaces de gazéification et d'oxydation du résidu charbonneux obtenues expérimentalement. Cet aspect bidimensionnel concerne notamment la propagation de l'oxydation du résidu charbonneux à la surface des plaques de chêne et d'eucalyptus. La gazéification du chêne et de l'eucalyptus est homogène à la surface des plaques pour des densités de flux supérieures à 21 kW/m². La Figure 5.15 présente le principe de notre démarche permettant de réaliser la convolution des résultats numériques.

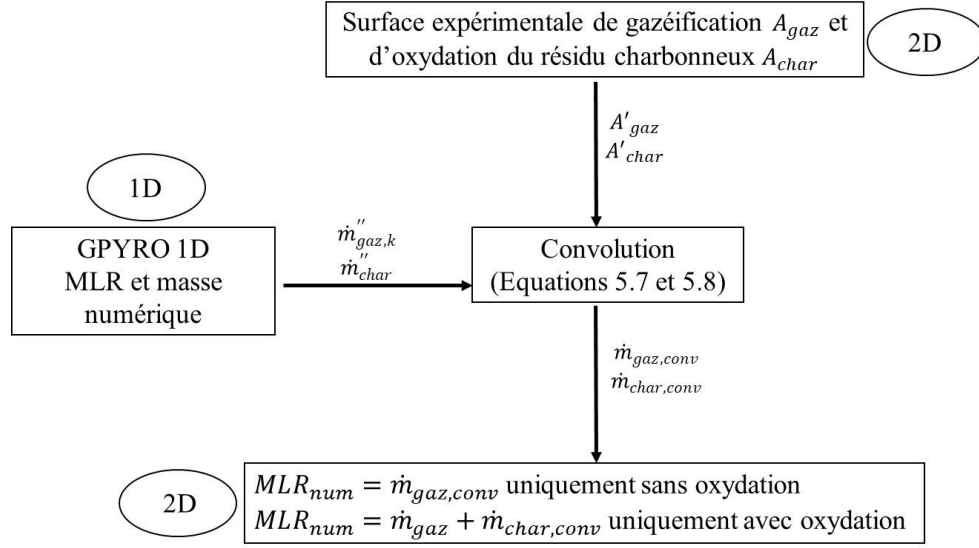


Figure 5.15 : Schéma adopté pour l'étude de la dégradation thermique des plaques fines de chêne et d'eucalyptus.

A partir des taux de réaction donnés par GPYRO, nous avons calculé les débits massiques surfaciques dus à la gazéification, $\dot{m}_{gaz,k}''$. Pour cela, les trois premières réactions sont prises en compte pour les mécanismes réactionnels à 4 étapes alors que seule la première étape est considérée pour le mécanisme simplifié. Les surfaces de gazéification ont été calculées à partir des températures mesurées expérimentalement comme présentées au Chapitre 4. Pour chaque réaction, une température minimale a été déterminée pour le calcul des surfaces réellement mises en jeu. Ainsi, pour les modèles à quatre étapes, nous avons utilisé 300°C pour la première réaction, 350°C pour la seconde réaction et 380°C pour la troisième réaction. Pour le modèle simplifié, nous avons pris une température de 350°C pour la réaction de gazéification. Ces températures ont été choisies afin qu'au moins 95 % de la réaction se produise au-dessus de cette valeur (Figure 5.16). Pour les expériences se déroulant sans oxydation du résidu carbonneux, ces débits massiques surfaciques sont convolués aux surfaces d'avancement de la gazéification à l'aide de l'expression suivante (

Figure 5.17.a) :

$$\dot{m}_{gaz,conv}(t) = \sum_{k=1}^3 \int_0^t A'_{gaz}(\tau) \dot{m}_{gaz,k}''(t - \tau) d\tau \quad (5.7)$$

Où A'_{gaz} représente la vitesse surfacique du front de gazéification et k le nombre de réactions.

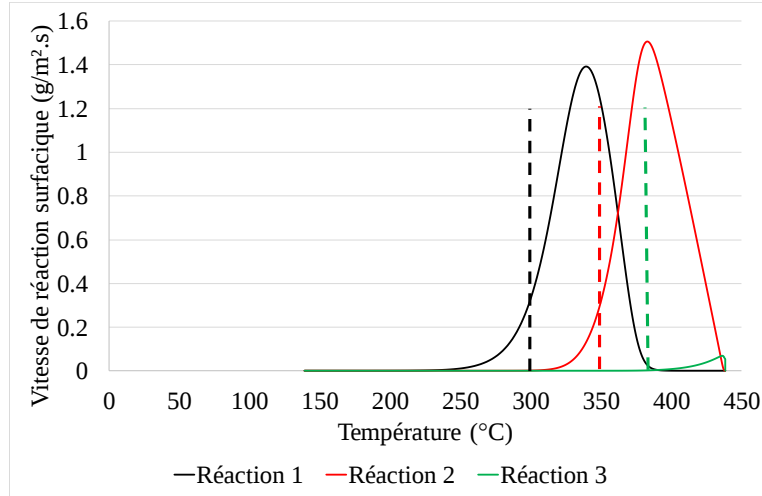


Figure 5.16 : Vitesses de réaction surfaciques pour les réactions du mécanisme global pour 21 kW/m².

Pour les densités de flux pour lesquelles l'oxydation du résidu charbonneux a lieu, il n'a pas été nécessaire de convoluer les débits massiques surfaciques de gazéification car l'ensemble de la plaque atteint rapidement des températures entraînant la décomposition du bois (Figure 4.20). Par contre, pour rendre compte de la propagation du front d'oxydation du résidu charbonneux, nous avons convolué le débit massique surfacique $\dot{m}''_{char}$ à la vitesse d'avancement de la surface d'oxydation A'_{char} . Suivant le même principe que précédemment, le débit massique dû à l'oxydation est donné par (Figure 5.17.b) :

$$\dot{m}_{char,conv}(t) = \int_0^t A'_{char}(\tau) \dot{m}''_{char}(t - \tau) d\tau \quad (5.8)$$

Les grandeurs $\dot{m}_{gaz,conv}$ et $\dot{m}_{char,conv}$ ont été ramenées par unité de surface sur la Figure 5.17. Le débit massique surfacique (MLRPUA) total des plaques de bois a ensuite été obtenu en sommant le MLRPUA relatif aux réactions de gazéification et le MLRPUA correspondant à l'oxydation du résidu charbonneux.

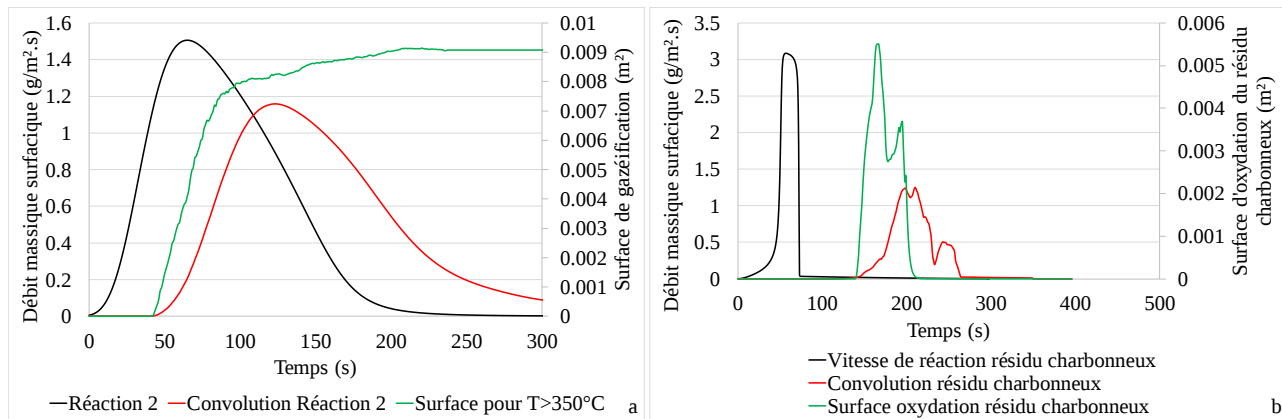


Figure 5.17 : Exemple d'un produit de convolution réalisé pour le chêne avec l'approche simplifiée à une densité de flux de : a) 21 kW/m² b) 28,5 kW/m².

1.2.3. Simulation numérique de la dégradation thermique des plaques de bois thermiquement fines avec GPYRO

Dans cette partie, nous allons présenter les résultats de la simulation numérique de la dégradation thermique des plaques fines de chêne et d'eucalyptus avec GPYRO, réalisée après optimisation des propriétés thermo-physiques et convolution des débits massiques surfaciques prédits. Nous distinguons deux cas : les expériences sans oxydation du résidu charbonneux et les expériences avec oxydation du résidu charbonneux.

1.2.3.1. Expériences sans oxydation du résidu charbonneux

La Figure 5.18 présente les résultats de la simulation de la dégradation thermique du chêne et de l'eucalyptus pour une densité de flux de 23 kW/m² après convolution. La représentation des pertes de masse expérimentales et calculées aux autres densités de flux n'entraînant pas d'oxydation du résidu charbonneux est donnée en Annexe J. Pour comparer les masses prédites et expérimentales, nous avons calculé pour chaque cas l'écart absolu moyen (Annexe J). Le Tableau 5-9 présente la moyenne de l'écart absolu moyen pour les densités de flux n'entraînant pas d'oxydation du résidu charbonneux (jusqu'à 23 kW/m² pour le chêne et jusqu'à 25 kW/m² pour l'eucalyptus). Pour les trois mécanismes, les prédictions sont proches des données expérimentales. En moyenne, l'écart absolu moyen entre les expériences et les simulations vaut 0,206 g, 0,208 g et 0,167 g pour le chêne et 0,180 g, 0,140 g et 0,161 g pour l'eucalyptus avec respectivement les mécanismes par constituants, global et simplifié. Pour les deux bois, le mécanisme qui rend le mieux compte de la dégradation est le mécanisme simplifié. Si l'on regarde en détail les simulations, on se rend compte que le mécanisme par constituants et le mécanisme simplifié font débiter la dégradation des plaques avec un retard d'environ 20 s pour l'eucalyptus et compris entre 10 et 30 s pour le chêne. Le mécanisme global donne un début de dégradation qui coïncide avec celui des expériences excepté pour l'eucalyptus à 21 kW/m² où un retard de 22 s est observé. Par la suite, les trois mécanismes prédisent correctement la dynamique de dégradation jusqu'à 100 s pour le chêne et jusqu'à 140 s pour l'eucalyptus. Dans ces intervalles de temps, la masse simulée est très proche des données expérimentales. Pour l'ensemble des mécanismes, la masse finale est sous-estimée. Cette sous-estimation peut aller jusqu'à 0,434 g avec le mécanisme par constituants, jusqu'à 0,385 g pour le mécanisme global et 0,473 g pour le mécanisme simplifié. Ce résultat provient vraisemblablement de la convolution. Il faudrait raffiner la définition des surfaces de gazéification pour améliorer les performances des simulations en fin de la dégradation.

Tableau 5-9 : Moyenne des écarts absolus moyens entre les données simulées et expérimentales pour des plaques de chêne et d'eucalyptus pour les densités de flux n'entraînant pas d'oxydation du résidu charbonneux (jusqu'à 23 kW/m² pour le chêne et jusqu'à 25 kW/m² pour l'eucalyptus).

Bois	Chêne			Eucalyptus		
Mécanisme	Constituant	Global	Simplifié	Constituant	Global	Simplifié
Ecart absolu moyen (g)	0,206	0,208	0,167	0,180	0,140	0,161

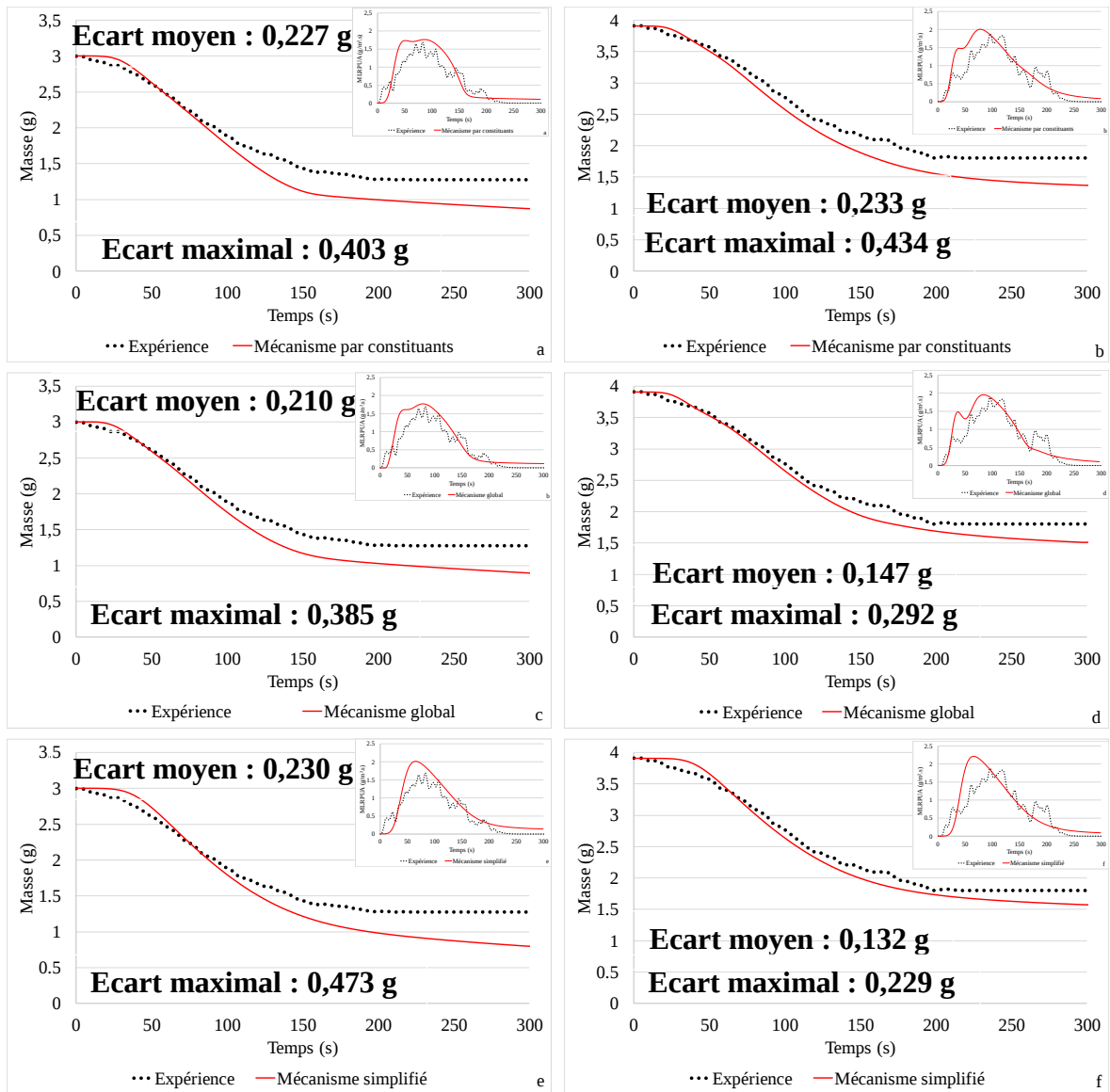


Figure 5.18 : Perte de masse et vitesse de perte de masse expérimentales et prédites des plaques de chêne (a, c, e) et d'eucalyptus (b, d, f) pour une densité de flux de 23 kW/m^2 avec : a et b) le mécanisme par constituants c et d) le mécanisme global e et f) le mécanisme simplifié.

1.2.3.2. Expériences avec oxydation du résidu charbonneux

La Figure 5.19 présente les résultats de la simulation numérique de la dégradation thermique du chêne et de l'eucalyptus pour une densité de flux de $28,5 \text{ kW/m}^2$. La représentation des pertes de masse expérimentales et calculées aux autres densités de flux est donnée en Annexe J. Les pertes de masse et vitesses de perte de masse présentées dans la Figure 5.19 correspondent aux données obtenues après convolution de la vitesse de perte de masse du résidu charbonneux. Pour comparer les masses prédites et expérimentales, nous avons calculé pour chaque cas l'écart absolu moyen (Annexe J). Le Tableau 5-10 présente la moyenne de l'écart absolu moyen pour les densités de flux entrainant l'oxydation du résidu charbonneux (à partir de 25 kW/m^2 pour le chêne et de 27 kW/m^2 pour l'eucalyptus). Pour le mécanisme

simplifié, les courbes prédites sont proches de celles des expériences quelle que soit la densité de flux considérée. L'écart absolu moyen est en moyenne de 0,143 et 0,147 g pour le chêne et l'eucalyptus respectivement. Les différences les plus significatives apparaissent dans la phase d'oxydation du résidu charbonneux. Pour le chêne, la masse finale est surestimée de 0,28 et 0,23 g à 25 et 27 kW/m² respectivement. Pour l'eucalyptus, la masse finale est bien estimée mais la dynamique de perte de masse durant l'oxydation du résidu charbonneux est mal représentée. Numériquement, le MLR a en effet un pic trop intense sur une durée trop courte. Pour les mécanismes en quatre étapes, les moyennes des écarts absolus moyens sont supérieures à celle du mécanisme simplifié excepté dans le cas de l'eucalyptus pour le mécanisme global. Pour le mécanisme par constituants, on obtient en effet 0,206 g et 0,196 g pour le chêne et l'eucalyptus, respectivement. Pour le mécanisme global, les valeurs sont de 0,147 g et 0,135 g pour le chêne et l'eucalyptus, respectivement. Ces valeurs plus importantes sont essentiellement dues aux mauvaises prédictions aux premières densités de flux où l'oxydation apparaît (25 kW/m² pour le chêne et 27 kW/m² pour l'eucalyptus). En effet, pour ces densités de flux, les mécanismes ne prédisent pas d'oxydation du résidu charbonneux. Comme le montre la Figure 5.20, à l'issue de la phase de gazéification, la température prédite pour la plaque est d'environ 500°C au centre de la plaque. Or, cette température n'est pas suffisante pour initier l'oxydation du résidu charbonneux pour le mécanisme global et par constituants. Ces différences observées peuvent provenir de deux origines. Tout d'abord l'optimisation des propriétés thermiques n'a été réalisée que sur une seule donnée de densité de flux. Pour le mécanisme simplifié, un seul paramètre a été optimisé tandis que pour les mécanismes à quatre étapes, neuf à douze paramètres ont été optimisés. Le nombre d'inconnues pour les mécanismes à quatre étapes est donc plus élevé ce qui peut expliquer le manque de précisions ne permettant pas de faire apparaître l'oxydation du résidu charbonneux pour certaines densités de flux. Ensuite, nous constatons une différence importante du coefficient $n_{c,bois}$ entre les mécanismes réactionnels. Les valeurs sont respectivement de 3,48, 3,00 et 2,90 pour le mécanisme par constituants, le mécanisme global et le mécanisme simplifié dans le cas du chêne. Ce coefficient joue un rôle prépondérant dans la dégradation thermique du chêne et de l'eucalyptus comme le montre l'analyse de sensibilité (Annexe I). Il est donc possible que les valeurs déterminées avec le mécanisme par constituants et le mécanisme global soient à l'origine de l'absence de l'oxydation du résidu charbonneux pour des densités de flux de 25 et 27 kW/m² pour le mécanisme par constituants et pour une densité de flux de 25 kW/m² avec le mécanisme global.

Tableau 5-10 : Moyenne des écarts absolus moyens entre les données simulées et expérimentales pour les plaques de chêne et d'eucalyptus pour des densités de flux entraînant l'oxydation du résidu charbonneux (à partir de 25 kW/m² pour le chêne et de 27 kW/m² pour l'eucalyptus).

Bois	Chêne			Eucalyptus		
Mécanisme	Constituant	Global	Simplifié	Constituant	Global	Simplifié
Ecart absolu moyen (g)	0,206	0,147	0,143	0,196	0,135	0,147

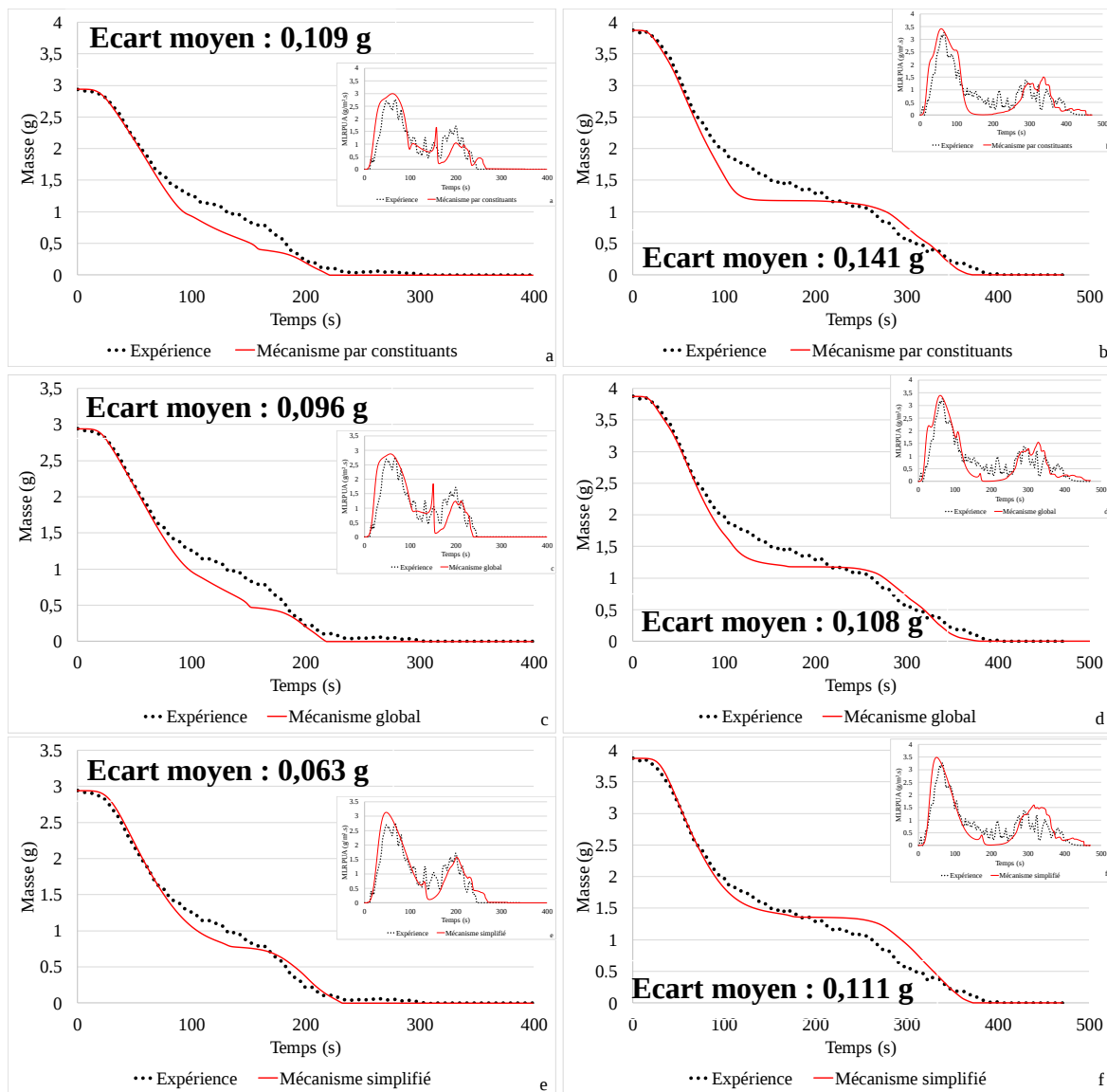


Figure 5.19 : Perte de masse et vitesse de perte de masse expérimentales et prédites des plaques de chêne (a, c, e) et d'eucalyptus (b, d, f) pour une densité de flux de $28,5 \text{ kW/m}^2$ avec : a et b) le mécanisme par constituants c et d) le mécanisme global e et f) le mécanisme simplifié.

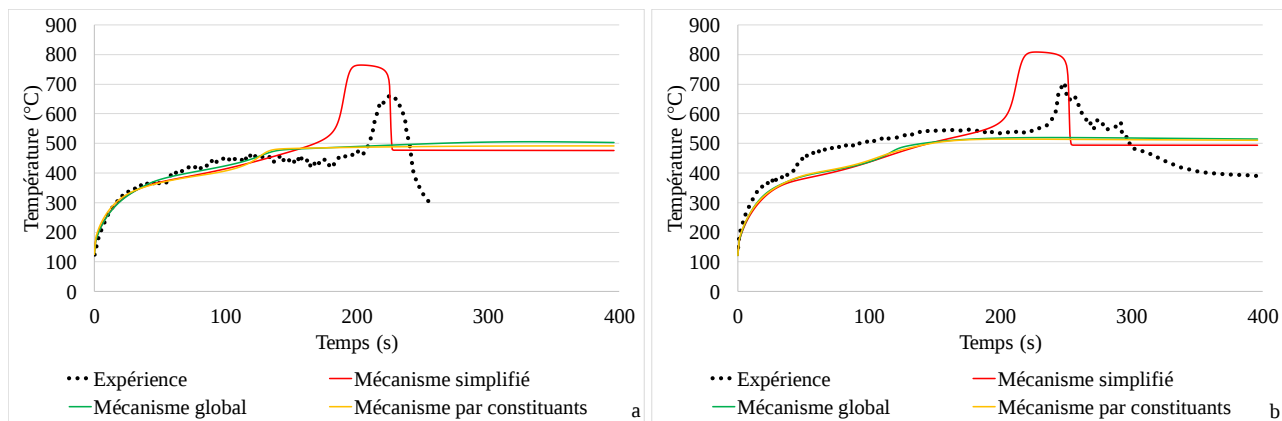


Figure 5.20 : Comparaison entre la température simulée et expérimentale à a) 25 kW/m² pour le chêne b) 27 kW/m² pour l'eucalyptus.

Les différents résultats observés dans cette partie ont permis de montrer que GPYRO pouvait être utilisé pour modéliser de manière efficace la dégradation de nos plaques. Ce résultat a été obtenu en convoluant le débit massique surfacique prédit et les surfaces expérimentales afin de prendre en compte l'aspect bidimensionnel de la dégradation de nos plaques thermiquement fines. Le mécanisme simplifié donne, pour chaque bois, les meilleures représentations de la perte de masse et du MLRPUA aux différentes densités de flux. Ce type de mécanisme a en effet moins de paramètres thermo-physiques inconnus que des mécanismes plus élaborés. De ce fait, l'optimisation des propriétés thermiques sur une seule densité de flux engendre moins de biais. Par ailleurs, à l'échelle matériau, les réactions chimiques ne sont pas aussi distinguées qu'à l'échelle matière à cause des vitesses de chauffe plus élevées. La conjonction de ces deux points permet d'avoir des performances équivalentes voire supérieures à celles de mécanismes avec un nombre plus important de réactions.

2. Etude de la dégradation thermique des plaques thermiquement épaisses

Cette partie présente les résultats de la simulation numérique réalisée avec GPYRO de la dégradation thermique des plaques thermiquement épaisses de chêne. Après avoir développé des mécanismes réactionnels à l'échelle matière, puis validé leur utilisation à l'échelle matériau en utilisant des plaques de bois thermiquement fines, nous allons à présent tester leur performance pour représenter la dégradation thermique obtenues lors des expériences avec les plaques de chêne de 20,87 mm d'épaisseur à 19, 23 et 28 kW/m².

L'utilisation des propriétés thermo-physiques définies pour les plaques thermiquement fines ne nous a pas permis d'obtenir des prédictions satisfaisantes pour la dégradation thermique des plaques de chêne de 20,87 mm d'épaisseur. La capacité calorifique et la conductivité thermique ayant été déterminées à partir des données expérimentales, nous avons choisi de ne faire varier que les coefficients n_c et n_k . Les chaleurs latentes de gazéification ont également été modifiées et fixées à 0,4 MJ/kg, correspondant à la valeur minimale rencontrée dans la littérature [206]. Les autres paramètres demeurent inchangés par rapport à ceux définis pour les plaques thermiquement fines. Pour les mécanismes global et par constituants, nous

avons utilisé les coefficients n_c et n_k obtenus par Fateh et coll. pour la dégradation thermique du bois de contreplaqué d'une épaisseur de 1,8 cm [15]. Pour le mécanisme simplifié, les coefficients n_c et n_k correspondent à ceux définis par Lautenberger et Fernandez-Pello pour la dégradation thermique de Pin blanc d'une épaisseur de 1,5 cm [42]. Le Tableau 5-11 donne les valeurs de n_c et n_k utilisées pour les simulations de la dégradation thermique des plaques de chêne de 20,87 mm d'épaisseur.

Tableau 5-11 : Coefficients n_c et n_k utilisés pour la modélisation de la dégradation thermique des plaques épaisses

	Mécanisme global				
	BS	BS_1	BS_2	Résidu charbonneux	Cendres
n_c (-)	0,79	0,80	1,00	0,89	0,62
n_k (-)	0,79	0,20	0,67	1,10	1,38
	Mécanisme par constituants				
	Hémicellulose	Cellulose	Lignine	Résidu charbonneux	Cendres
n_c (-)	0,79	0,80	1,00	0,89	0,62
n_k (-)	0,79	0,20	0,67	1,10	1,38
	Mécanisme simplifié				
	Bois sec	Résidu charbonneux	Cendres		
n_c (-)	0,66	0,28	0,31		
n_k (-)	0,59	0,43	0,35		

La Figure 5.21 présente l'évolution de la température à la surface de la plaque et à 3, 10 et 17 mm de profondeur ainsi que les pertes de masse correspondantes pour les trois mécanismes testés pour une densité de flux de 28 kW/m². Les résultats obtenus concernant les pertes de masse pour les autres densités de flux sont donnés en Annexe K. Pour le mécanisme global, la température prédite à la surface est très éloignée des données expérimentales durant 1000 s. Le mécanisme global surestime la dynamique de montée en température. Nous observons également un écart des températures maximales avec une valeur de 623°C prédite numériquement contre une valeur expérimentale de 566°C. A 3 mm, la température prédite coïncide avec les mesures expérimentales pendant environ 750 s. Ensuite, les simulations ont tendance à sous-estimer la température jusqu'à la fin de la dégradation. A 10 et 17 mm, la montée en température de la plaque est bien représentée pendant environ 1500 s. Ensuite, les simulations ont tendance à surestimer la température pendant la phase d'oxydation du résidu charbonneux. L'évolution de température étant bien représentée jusqu'à 2000 s, la perte de masse prédite est très proche de celle mesurée expérimentalement sur ces périodes. Le mécanisme par constituants surestime également la dynamique de montée en température de surface. Toutefois, la valeur maximale est très proche des données expérimentales avec une valeur de 570°C. A 3 mm, la température prédite coïncide avec les mesures expérimentales pendant environ 360 s. Ensuite, le mécanisme sous-estime la dynamique de montée en

température. La valeur maximale est atteinte au bout de 2000 s et vaut 695°C, ce qui représente une surestimation de 95°C de l'asymptote. A 10 et 17 mm respectivement, le mécanisme prédit correctement la montée en température durant une durée de 1000 et 1400 s. Ensuite, la dynamique de montée en température est beaucoup plus forte et les asymptotes atteintes sont de 858°C et 812°C à 10 et 17 mm respectivement. Ces valeurs représentent une surestimation de plus de 200°C par rapport aux données expérimentales. Le mécanisme simplifié surestime également, tout comme les mécanismes à quatre étapes, la dynamique de montée en température de surface. La valeur de l'asymptote prédite par le mécanisme est légèrement plus élevée (581°C contre 566°C). A 3 mm, la dynamique de montée en température est correctement prédite jusqu'à 300 s. Ensuite, elle est sous-estimée pendant environ 500 s, avant d'atteindre une asymptote plus élevée que celle donnée expérimentalement. En effet, les valeurs maximales respectives sont de 679°C et 603°C pour le mécanisme et l'expérience. La température est correctement prédite par le mécanisme jusqu'à respectivement 1600 et 2400 s à 10 et 17 mm. Ensuite, le mécanisme simplifié surestime très fortement la température jusqu'à la fin de la dégradation thermique où des valeurs maximales respectives de 841°C et 612°C sont atteintes à 10 et 17 mm. Toutefois, à 17 mm, même si la valeur maximale est atteinte en avance par le mécanisme, nous n'observons qu'une surestimation de 45°C par rapport aux données expérimentales.

La perte de masse est bien représentée par le mécanisme global du début de la dégradation thermique jusqu'à 2000 s tandis que les autres mécanismes sous-estiment cet indicateur dans cet intervalle. Cette modélisation correcte de la dynamique de perte de masse est due à une modélisation correcte de la température à 3, 10 et 17 mm jusqu'à respectivement 800, 1000 et 1500 s. Dans cet intervalle de temps, les écarts absolus moyens sont en effet de 10,0, 4,56 et 10,36 g pour le mécanisme par constituants, le mécanisme global et le mécanisme simplifié respectivement sur cet intervalle de temps. Par la suite, la perte de masse est fortement ralentie et n'évolue plus à partir d'environ 4000 s avec les mécanismes à quatre étapes et à partir d'environ 6000 s pour le mécanisme simplifié. Par conséquent, la masse finale restante est respectivement surestimée de 32 et 38 g avec les mécanismes à quatre étapes et le mécanisme simplifié. Ce résultat vient de l'oxydation du résidu charbonneux qui est brutalement arrêtée à ces instants. Ainsi, même en modifiant les coefficients n_c et n_k , l'ensemble des mécanismes réactionnels ne permet pas de représenter la totalité de la perte de masse de la plaque de chêne de 20,87 mm épaisseur. Ces mécanismes, ayant été développés pour des plaques de bois thermiquement fines, peuvent ne pas être adaptés pour l'étude d'une plaque plus épaisse de bois à cause de phénomènes physiques différents. Dans la littérature, la représentation de la perte de masse des plaques de bois d'une épaisseur supérieur à 1,5 cm a été étudiée avec des mécanismes faisant intervenir au moins cinq réactions successives [15] ou des mécanismes plus détaillés comme celui développé par Shafizadeh et Chin [64,197]. Vu les résultats obtenus, il semblerait également qu'une réaction supplémentaire soit nécessaire pour terminer l'oxydation du résidu charbonneux.

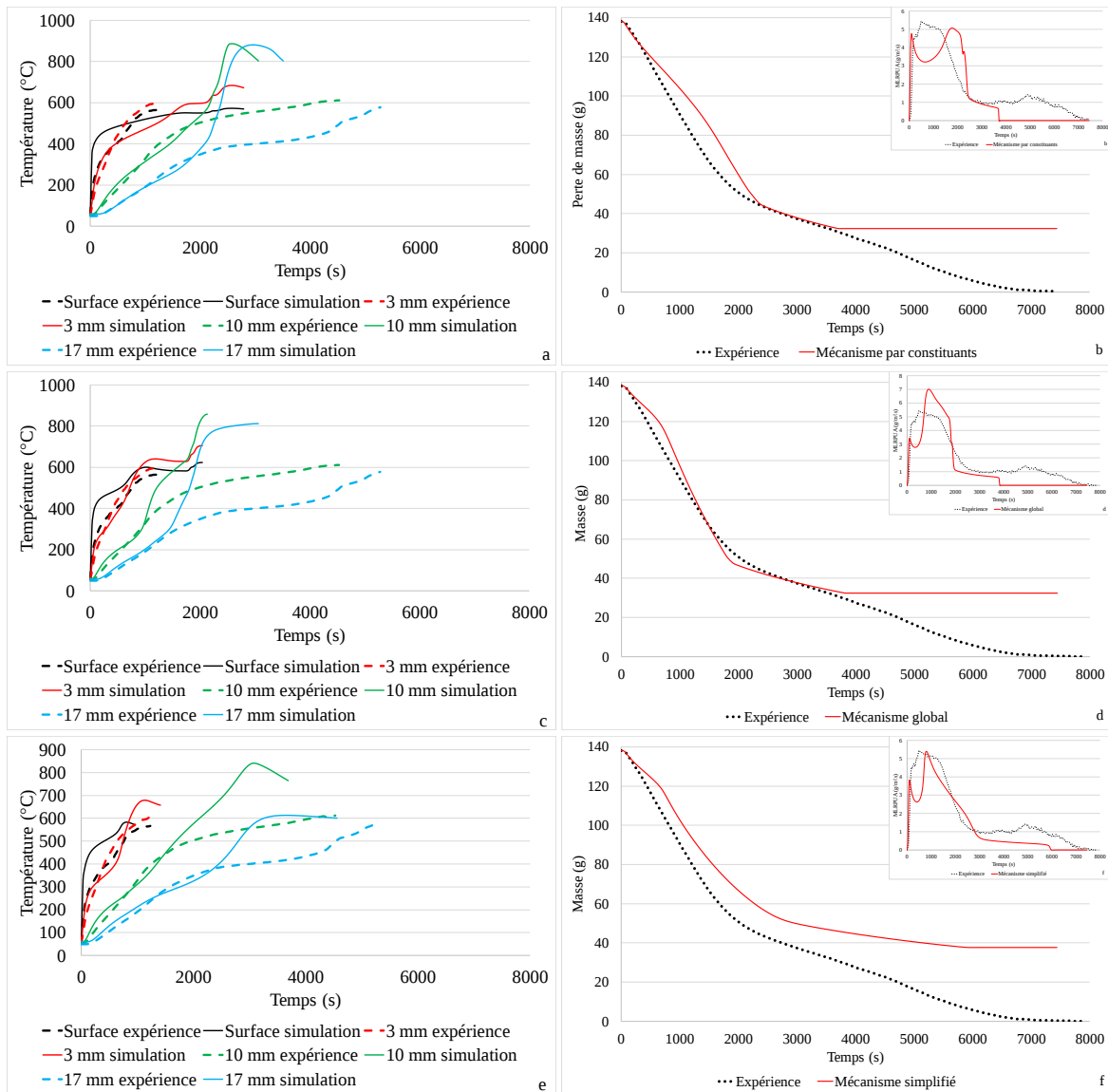


Figure 5.21 : Comparaison des températures, pertes de masse et vitesses de perte de masse expérimentales et prédites avec a et b) le mécanisme par constituants c et d) le mécanisme global et e et f) le mécanisme simplifié - pour une densité de flux de 28 kW/m^2 .

La Figure 5.22 compare l'évolution de la position du front de gazéification obtenue par les différents mécanismes et celle obtenue expérimentalement. Pour les données expérimentales, nous avons réalisé une moyenne entre celles obtenues avec les thermocouples et celles obtenues par traitement d'images. Dans le cas des simulations, nous avons considéré que la tête du front de gazéification correspondait à une température de 300°C . Pour une densité de flux de 28 kW/m^2 (Figure 5.22.b) le départ prédit du front à la surface de la plaque par l'ensemble des mécanismes présente une avance de 20 s par rapport aux données expérimentales. La température expérimentale de la surface des plaques a été déterminée par caméra infrarouge. Jusqu'à 3 mm de profondeur, les mécanismes à quatre étapes donnent des temps très proches du front de gazéification expérimental. A partir de 10 mm, le passage du front de gazéification prédit par les mécanismes, a lieu plus tôt que celui observé expérimentalement. Les écarts relevés à cette profondeur,

avec le front de gazéification expérimental, sont respectivement de 90, 80 et 60 s pour les mécanismes par constituant, global et simplifié. A 17 mm, les retards observés par les mécanismes par constituants et simplifié s'accroissent avec un retard respectif de 310 et 350 s. Toutefois, le mécanisme global donne une meilleure prédiction que les autres mécanismes avec uniquement un retard de 20 s par rapport au front de gazéification expérimental à cette profondeur. Ce résultat coïncide avec la bonne représentation de la perte de masse jusqu'à 1500 s avec ce mécanisme. Pour une densité de flux de 23 kW/m² (Figure 5.22.a) une température de 300°C, correspondant au début de propagation du front de gazéification, est atteinte à la surface de la plaque au bout de respectivement 25, 45 et 40 s avec les mécanismes par constituants, global et simplifié. Le départ du front est donc prédit avec une avance minimale de 70 s, ce qui est plus important que pour une densité de flux de 28 kW/m². A une profondeur de 3 mm, la position du front de gazéification est prédite avec un retard de 70 s avec le mécanisme global et une avance respective de 110 et 50 s avec le mécanisme par constituants et le mécanisme simplifié. Par la suite, l'ensemble des mécanismes présente un retard significatif par rapport à la position expérimentale du front, avec des valeurs supérieures à 450 s.

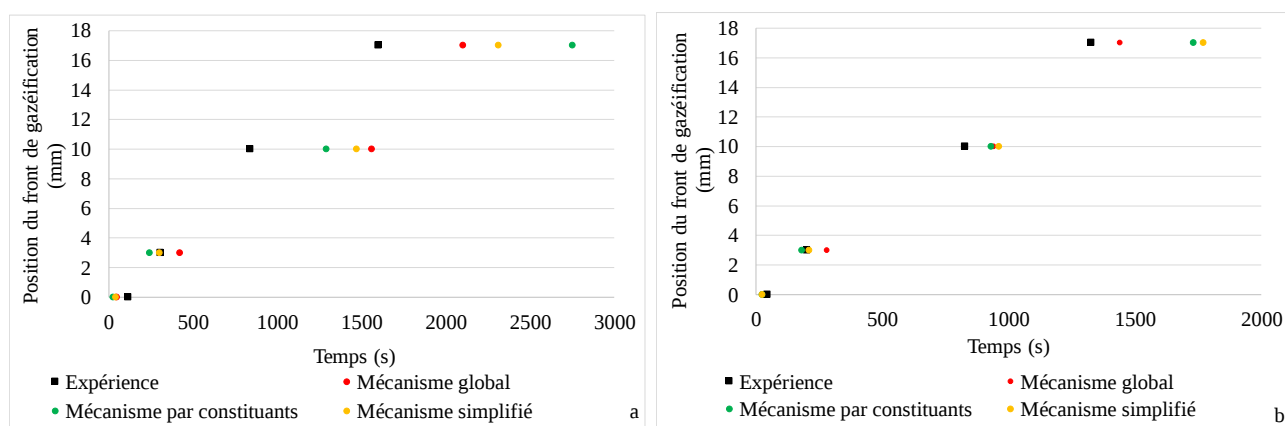


Figure 5.22 : Evolution expérimentale et numérique du front de gazéification au sein de l'épaisseur du bois à a) 23 kW/m² b) 28 kW/m²

Pour comparer les performances des différents mécanismes, nous avons calculé les écarts absolus moyens et maximum entre les courbes prédites et expérimentales de perte de masse et de position du front de gazéification (Tableau 5-12). Ces résultats mettent en évidence que plus la densité de flux diminue, plus les écarts moyens et maximum de la perte de masse augmentent. Toutefois, pour le mécanisme simplifié l'écart absolu moyen diminue lorsque la densité de flux diminue. Le mécanisme global et le mécanisme par constituants permettent d'obtenir les résultats les plus proches des données expérimentales à 23 et 28 kW/m². Pour une densité de flux de 19 kW/m², les résultats obtenus avec ces mécanismes sont très éloignés des résultats expérimentaux car les températures atteintes ne permettent pas d'amorcer l'oxydation du résidu carbonneux. A l'inverse, le mécanisme simplifié permet d'initier cette réaction quelle que soit la densité de flux imposée mais la dynamique de perte de masse est sous-estimée ce qui explique des écarts moyens plus élevés que les mécanismes à quatre étapes pour des densités de flux supérieures ou égales à 23 kW/m². Toutefois les écarts observés restent importants et peuvent être dus au fait que les paramètres cinétiques obtenus ne soient pas adaptés pour représenter la dégradation thermique d'une plaque épaisse de bois ou qu'une réaction supplémentaire soit nécessaire pour terminer la phase d'oxydation du résidu

charbonneux. De plus, les simulations ont été réalisées en 1D et par conséquent les effets 3D, comme les effets de bord n'ont pas été pris en compte.

Comme la perte de masse n'est pas bien estimée par l'ensemble des mécanismes réactionnels, la position du front de gazéification est elle aussi sous-évaluée. Quels que soient la densité de flux et le mécanisme mis en jeu, la position du front de gazéification est prédite avec un retard important par rapport aux données expérimentales.

Tableau 5-12 : Evaluation de la performance des mécanismes réactionnels sur la dégradation de la plaque de chêne de 20,87 mm d'épaisseur.

	Densité de flux (kW/m ²)	Perte de masse (g)			Position du front de gazéification (s)		
		Constituant	Global	Simplifié	Constituant	Global	Simplifié
Ecart absolu moyen	19	36,45	34,47	18,99	630,46	2327,50	1657,50
	23	15,13	12,70	18,45	438,75	1031,25	1030,00
	28	13,45	11,89	20,10	137,02	81,36	151,35
	Moyenne	21,68	19,69	19,18	402,08	1146,70	946,12
Ecart absolu maximum	19	64,07	65,04	43,72		6660,00	3180,00
	23	33,74	33,75	40,00	1151,00	2100,00	2310,00
	28	32,24	32,19	37,44	403,67	113,67	443,67
	Moyenne	43,35	43,66	40,39	777,33	2957,89	1977,89

3. Synthèse sur l'utilisation de GPYRO pour la dégradation de plaques de bois à l'échelle matériau

Le code de calcul GPYRO a permis de modéliser efficacement la dégradation des plaques thermiquement fines à l'échelle matériau. Ce résultat a été obtenu après avoir :

- Déterminé les paramètres thermo-physiques des différents états intermédiaires des mécanismes étudiés par optimisation.
- Convolué les résultats numériques obtenus en 1D afin de prendre en compte l'aspect bidimensionnel de la dégradation.

Pour les plaques thermiquement épaisses, le code de calcul GPYRO a permis de donner une bonne tendance de la représentation de la perte de masse durant la phase de gazéification. Toutefois, il n'a pas été possible de représenter la totalité de la dégradation thermique pour ces plaques. Ces résultats soulèvent plusieurs points de réflexion et pistes d'amélioration. Nous avons dû modifier les valeurs des coefficients n_c et n_k par rapport aux valeurs déterminées pour les plaques thermiquement fines. Il est donc possible que la dégradation thermique ne suive pas le même comportement physique pour des plaques épaisses et que par conséquent, les mécanismes réactionnels déterminés à l'échelle matière et testés pour les plaques fines ne soient pas adaptés pour décrire la dégradation des plaques thermiquement épaisses. La modélisation monodimensionnelle peut également être remise en question pour les plaques épaisses. Avec cette approche, il n'est pas possible de prendre en compte les effets de la ventilation naturelle et les effets de bord, qui se traduisent expérimentalement par une progression plus rapide du front de gazéification sur

la face avant des plaques. Il conviendrait donc d'utiliser une modélisation tridimensionnelle pour prendre en compte ces phénomènes.

Il convient également de mentionner qu'en raffinant les mécanismes réactionnels avec des états intermédiaires, nous introduisons des propriétés thermiques inconnues pouvant créer des phénomènes compensatoires lors de leur optimisation avec GPYRO. Ainsi, les prédictions pourraient être précises grâce à une optimisation mathématique avec des propriétés thermiques éloignées de la réalité physique [100]. Ce risque a été limité dans notre étude en prenant des mécanismes d'au plus 4 étapes pour lesquels les paramètres utilisés (notamment n_c et n_k) sont en accord avec les valeurs relevées dans la littérature.

Conclusion

Dans ces travaux de thèse, nous nous sommes focalisés sur le couplage entre les transferts de masse et d'énergie intervenant dans la dégradation thermique du bois. Pour ce faire, nous avons adopté une approche multi-échelle afin de développer des mécanismes réactionnels capables de représenter la décomposition thermique de plaques de bois à l'échelle matière et matériau. Nous avons étudié la dégradation thermique de plaques de bois de différentes épaisseurs en chêne blanc (*Quercus alba*) et en eucalyptus commun (*Eucalyptus globulus*).

La première étape de ces travaux de thèse a consisté à étudier le comportement thermique des différentes plaques de bois. Nous avons alors considéré des plaques de chêne de 0,61, 1,51 et 20,87 mm d'épaisseur ainsi que des plaques d'eucalyptus de 0,63 mm d'épaisseur. Nous avons pour cela étudié les temps d'inflammation de ces plaques à l'aide d'un dispositif expérimental à l'échelle matériau appelé cône calorimètre. Ce dispositif nous a permis d'imposer des densités de flux à la surface des échantillons variant entre 10 et 35 kW/m². Les tests ont été réalisés conformément à la norme ISO 5660 avec un allumage piloté. Ils ont permis de déterminer les flux critiques d'inflammation, correspondant à la plus petite densité de flux pour laquelle une flamme s'établit à la surface des différentes plaques de bois. Ainsi, nous avons obtenu un flux critique d'inflammation de 10 kW/m² pour les plaques de chêne ayant une épaisseur de 0,61 et 1,51 mm et pour la plaque d'eucalyptus de 0,63 mm. Pour les plaques de chêne de 20,87 mm d'épaisseur, le flux critique d'inflammation est de 12 kW/m². La représentation de l'inverse du temps d'inflammation et de l'inverse de la racine carrée du temps d'inflammation en fonction de la densité de flux imposée a permis de dissocier les plaques thermiquement épaisses (plaques de chêne de 20,87 mm d'épaisseur) des plaques thermiquement fines (plaques de chêne de 0,61 et 1,51 mm d'épaisseur et plaques d'eucalyptus de 0,63 mm d'épaisseur) .

La deuxième étape a consisté à étudier la dégradation thermique des plaques de chêne et d'eucalyptus les plus fines à l'échelle matière. Pour ce faire, nous avons utilisé un analyseur thermogravimétrique (ATG) comme dispositif expérimental. Les échantillons ont été coupés en disques de 4 mm de diamètre correspondant, après séchage durant 24 h dans une étuve chauffée à 60°C, à une masse sèche respective de 4,6 et 6,2 mg pour le chêne et l'eucalyptus. Ces échantillons ont ensuite été disposés dans un creuset en platine puis placés dans le four de l'ATG où cinq vitesses de chauffe ont été imposées : 2, 5, 10, 20 et 30°C/min sous atmosphère inerte et oxydante. Afin de ne considérer que la dégradation thermique du bois sec, la perte de masse a été enregistrée entre 150°C et 650°C pour le chêne et entre 150°C et 750°C pour l'eucalyptus. Les résultats expérimentaux obtenus sous atmosphère inerte nous ont permis d'identifier trois processus distincts intervenant dans la dégradation des deux bois. Sous atmosphère oxydante, ces mêmes processus interviennent également avec l'apparition d'une réaction supplémentaire correspondant à l'oxydation du résidu charbonneux. Afin d'étudier cette réaction supplémentaire, nous avons utilisé un nouveau protocole permettant d'isoler l'oxydation du résidu charbonneux. Le bois sec a tout d'abord été pyrolysé sous atmosphère inerte afin d'obtenir le résidu charbonneux. Ce résidu charbonneux a ensuite été oxydé sous air. Cette technique a permis de montrer que l'oxydation du résidu charbonneux se déroulait en une seule étape. Par conséquent, nous avons considéré que la dégradation thermique des deux bois se déroulait en quatre étapes sous atmosphère oxydante.

Par la suite, nous avons développé quatre mécanismes réactionnels. Trois d'entre eux reposent sur l'identification expérimentale des quatre étapes intervenant dans la dégradation thermique des deux bois.

Le premier mécanisme, appelé mécanisme par constituants, est basé sur la dégradation en parallèle des trois principaux bio-polymères du bois, à savoir l'hémicellulose, la cellulose et la lignine. La dernière étape concerne l'oxydation du résidu charbonneux en cendres. Le deuxième mécanisme, appelé mécanisme global, considère quatre étapes successives où le bois sec est finalement transformé en résidu charbonneux puis oxydé en cendres. Le troisième mécanisme, appelé mécanisme actif, considère dans une première étape que le bois sec est transformé en « bois actif ». Cet état intermédiaire correspond à une réduction du degré de polymérisation du constituant de départ. Ensuite, le « bois actif » est transformé en gaz, goudrons et résidu charbonneux dans une deuxième étape. Les goudrons sont ensuite volatilisés en gaz et le résidu charbonneux est oxydé en cendres. Le dernier mécanisme, appelé mécanisme simplifié, ne fait intervenir que deux étapes. Son utilisation est couramment employée dans les modèles détaillés d'incendie de forêt et son développement a été mené afin de comparer sa performance avec ceux impliquant quatre étapes. On considère alors dans une première étape que le bois sec est directement transformé en résidu charbonneux. Ce dernier est oxydé en cendres dans une deuxième étape. Les paramètres cinétiques relatifs aux différents mécanismes réactionnels ont été déterminés pour les deux bois en utilisant une optimisation par algorithme du gradient descendant sur les expériences réalisées avec les cinq vitesses de chauffe. Les résultats ont permis de représenter la perte de masse du chêne et de l'eucalyptus de manière fiable pour les cinq vitesses de chauffe. Le mécanisme global possède toutefois la meilleure performance à cette échelle et le mécanisme simplifié la moins bonne.

La troisième étape de la thèse a été dédiée à l'étude expérimentale de la dégradation des plaques de bois à l'échelle matériau. A cette échelle, nous avons étudié la dégradation des plaques de 0,61 et 20,87 mm d'épaisseur de chêne et des plaques de 0,63 mm d'épaisseur d'eucalyptus. Nous avons utilisé un cône calorimètre pour imposer à la surface des plaques de bois des densités de flux variant entre 18 et 28,5 kW/m². Dans un premier temps, trois méthodes de mesure de la température ont été testées sur les plaques thermiquement fines. Pour ces plaques, nous avons fait l'hypothèse qu'il n'y avait pas de gradient thermique dans l'épaisseur. Deux méthodes sont intrusives et utilisent deux et seize thermocouples positionnés sous la face inférieure des plaques de bois. Ces méthodes présentent l'inconvénient d'empêcher la mesure simultanée de la perte de masse et de la température. La troisième méthode est non intrusive et utilise une caméra infra-rouge pour mesurer la température de la face supérieure des plaques de bois. La comparaison des trois méthodes a montré que pour mesurer correctement le champ de température des plaques, il fallait utiliser soit 16 thermocouples soit la caméra infrarouge. Compte tenu des difficultés techniques engendrées par l'utilisation des thermocouples, nous avons mesuré la température des plaques thermiquement fines à l'aide de la caméra infra-rouge.

L'étude de la dégradation thermique des plaques thermiquement fines a été réalisée avec deux conditions aux limites imposées à la face inférieure des plaques de bois : une condition adiabatique réalisée par la présence d'une laine en céramique isolante et une condition de convection libre où la face inférieure des plaques de bois est laissée au contact de l'air ambiant. Les expériences utilisant une condition limite adiabatique sous la face inférieure des plaques de bois ont montré plusieurs tendances :

- Plus la densité de flux est élevée, plus la dynamique de montée en température est rapide et plus les températures maximales sont élevées. Par conséquent, la perte de masse est plus rapide lorsque la densité de flux augmente.

- Pour le chêne, l'ensemble des expériences implique une consommation totale des plaques de bois. Les températures maximales à la surface des plaques varient en effet entre 607°C et 625°C ce qui est suffisant pour oxyder la totalité du résidu charbonneux formé.
- Pour l'eucalyptus des différences sont apparues entre les densités de flux. Pour 18 et 20 kW/m², 8,8 et 2,1 % de la masse initiale (respectivement) n'a pas été consommée à la fin de la dégradation thermique. Pour ces densités de flux, les températures atteintes (entre 497°C et 525°C) n'étaient pas assez élevées pour oxyder complètement le résidu charbonneux.

Les expériences utilisant une condition limite de convection libre ont montré deux comportements pour les deux bois : pour des densités de flux inférieures à 25 kW/m² pour le chêne et à 27 kW/m² pour l'eucalyptus, l'oxydation du résidu charbonneux n'avait pas lieu car les températures maximales atteintes par les plaques n'étaient pas assez élevées (371°C et 422°C pour le chêne et l'eucalyptus respectivement). Au-delà de ces densités de flux, l'oxydation du résidu charbonneux se produisait. Les températures maximales des plaques de chêne et d'eucalyptus dépassent en effet respectivement 550°C et 600°C. Nous avons également mis en évidence, pour les deux bois, que plus la densité de flux augmente plus la perte de masse est rapide.

Nous avons ensuite étudié à cette échelle la dégradation thermique des plaques thermiquement épaisses de chêne. La température de la surface a été enregistrée par caméra infra-rouge et la température à 3, 10 et 17 mm de profondeur a été mesurée à l'aide de thermocouples. Pour ce type de plaques, les mêmes processus que ceux rencontrés lors de la dégradation des plaques les plus fines interviennent à savoir la gazéification et l'oxydation du résidu charbonneux. Toutefois, ces processus évoluent au sein de l'épaisseur en formant des fronts. Nous avons par conséquent étudié la position du front de gazéification au sein de l'épaisseur et le long d'une face externe au cours du temps par deux méthodes : la première utilisant les données de température mesurées aux différentes profondeurs et la deuxième se base sur le traitement numérique d'images vidéo d'une face externe prises durant les expériences. Avec les mesures de températures, nous avons obtenu des vitesses de propagation du front de gazéification de 8,0, 11,0 et 13,0 µm/s pour des densités de flux respectives de 19, 23 et 28 kW/m². La vitesse de propagation mesurée par traitement numérique d'images a conduit à des vitesses de propagation en moyenne 1,36 fois inférieures à celles déterminées avec les températures. Ces différences sont dues à une propagation plus rapide du front de gazéification au centre de la plaque que sur les bords. En ce qui concerne la perte de masse, elle est totale pour des densités de flux de 23 et 28 kW/m² où il ne reste que des cendres en fin de dégradation. A 19 kW/m², 8 % de la masse initiale n'a pas été consommé. Ce résultat s'explique par le fait que la densité de flux diminue lorsque l'oxydation se produit car elle entraîne une régression de la surface de plaque. Ainsi, la densité de flux n'est pas suffisante pour permettre d'atteindre des températures permettant de terminer la phase d'oxydation du résidu charbonneux. Nous avons également mis en évidence que plus la densité de flux imposée est forte, plus la perte de masse est rapide.

La dernière étape de la thèse a concerné l'étude numérique la dégradation thermique des plaques fines et épaisses de bois. Dans un premier temps, la validité des mécanismes réactionnels a été testée avec les plaques thermiquement fines en utilisant un programme dédié développé sur MATLAB. Pour cela, nous avons utilisé le champ de température expérimental relevé par caméra-infrarouge afin d'éviter la détermination des paramètres thermiques. Les expériences avec une condition limite adiabatique n'ont pas permis de valider les mécanismes réactionnels. Lors de ces expériences, les goudrons sont en effet

piégés dans la laine en céramique et sous la plaque de bois ce qui ralentit la perte de masse. Ce phénomène n'ayant pas été modélisé, nous avons choisi de tester la validité des mécanismes réactionnels pour les expériences comportant une condition de convection libre imposée à la face inférieure. Pour ces expériences, lorsque l'oxydation du résidu charbonneux ne se produit pas, l'ensemble des mécanismes permet une représentation pertinente de la perte de masse des deux bois. Lorsque l'oxydation du résidu charbonneux se produit, l'évolution de la masse est également bien représentée. Les mécanismes ont toutefois tendance à surestimer la perte de masse durant la phase de gazéification entraînant des différences entre masses simulée et expérimentale entre 50 et 150 s. La performance des quatre mécanismes réactionnels est très proche et montre qu'à cette échelle, un mécanisme à deux étapes peut tout aussi bien représenter la perte de masse qu'un mécanisme à quatre étapes. Ce résultat vient du fait que le processus de dégradation thermique est plus rapide qu'à l'échelle matière et que les trois étapes réactionnelles révélées par l'échelle matière ne sont pas dissociées.

Pour étudier numériquement la dégradation thermique des plaques thermiquement épaisses, il est indispensable d'utiliser un code de calcul pour prendre en compte les transferts de masse et d'énergie. Nous avons choisi d'utiliser le code GPYRO. Ce code a tout d'abord été testé sur les plaques thermiquement fines en procédant de la manière suivante :

- Nous avons au préalable optimisé par algorithme génétique les propriétés thermiques qui n'avaient pas pu être déterminées de manière expérimentale comme par exemple celles des états intermédiaires intervenant dans les mécanismes réactionnels.
- Comme la modélisation réalisée sur GPYRO est monodimensionnelle, nous avons dû convoluer nos résultats numériques afin de tenir compte de la nature bidimensionnelle de la dégradation de nos plaques.

Les résultats ont permis de valider l'utilisation de GPYRO même si les simulations avec les mécanismes à quatre étapes n'ont pas permis de modéliser la réaction d'oxydation du résidu charbonneux pour le chêne à 25 et 27 kW/m² et pour l'eucalyptus à 27 kW/m². Ces problèmes peuvent avoir plusieurs origines. Tout d'abord, l'optimisation des propriétés thermiques n'a été réalisée qu'à partir d'une seule donnée de densité de flux. Ensuite, plus un mécanisme réactionnel est détaillé, plus il y a de propriétés thermiques inconnues. L'optimisation peut alors engendrer une bonne représentation de la perte de masse mais grâce à des phénomènes compensatoires.

Pour étudier la dégradation thermique des plaques thermiquement épaisses, nous avons dû changer au préalable les propriétés thermiques relatives aux coefficients n_c et n_k ainsi que les chaleurs latentes de gazéification. Cette modification nous a permis d'obtenir une bonne représentation de la perte de masse dans la phase de gazéification avec les mécanismes à quatre étapes pour des densités de flux de 23 et 28 kW/m². L'oxydation du résidu charbonneux est quant à elle sous-estimée avec une durée insuffisante pour permettre une consommation totale de la plaque. Le mécanisme simplifié sous-estime la perte de masse durant la totalité de la dégradation thermique. Ces résultats sont dus au fait que les mécanismes ont été développés sur des plaques de bois thermiquement fines. Pour les plaques épaisses, il semblerait indispensable que la gazéification soit décrite par au moins trois réactions et l'oxydation du résidu charbonneux par deux réactions. La modélisation 1D peut également être à l'origine des différences observées.

Ces travaux de thèse ont permis de contribuer à la compréhension du phénomène de dégradation thermique du bois. Son originalité réside dans le choix du matériau avec l'utilisation de plaques de bois thermiquement fines, qui ont notamment permis à l'échelle matériau, d'utiliser le champ de température expérimental pour tester les mécanismes réactionnels. L'étude numérique avec GPRYO n'a été possible qu'après avoir réalisé une convolution des résultats numériques pour tenir compte de l'aspect bidimensionnel de la dégradation thermique. Ce point soulève une première perspective de suite en adoptant une modélisation 3D sur GPYRO. Cette modélisation aurait pour but d'améliorer les prédictions sur la perte de masse notamment en tenant compte directement de l'aspect bidimensionnel de l'oxydation du résidu charbonneux. Cette modélisation sera également utilisée pour étudier la dégradation thermique des plaques épaisses afin de voir si les différences observées entre les expériences et les simulations en 1D sont dues au choix du modèle ou au manque de robustesse des mécanismes réactionnels. Dans un deuxième temps, nous souhaiterions coupler GPYRO avec Fire Dynamic Simulator (FDS) pour étudier le couplage de la dégradation thermique avec flamme. Enfin, nous souhaiterions réaliser des expériences à plus grande échelle, avec des planches de bois de longueur de l'ordre du mètre pour voir si les mécanismes de dégradation sont toujours valides à l'échelle produit.

Références

- [1] A.L. Sullivan, Wildland surface fire spread modelling, 1990–2007. 3: Simulation and mathematical analogue models, *Int. J. Wildland Fire*. 18 (2009) 387–403.
- [2] N. Burrows, B. Ward, A. Robinson, Fire behaviour in spinifex fuels on the Gibson Desert Nature Reserve, Western Australia, *J. Arid Environ.* 20 (1991) 189–204.
- [3] H.K. Preisler, A.L. Westerling, Statistical Model for Forecasting Monthly Large Wildfire Events in Western United States, *J. Appl. Meteorol. Climatol.* 46 (2007) 1020–1030.
- [4] R.C. Rothermel, A mathematical model for predicting fire spread in wildland fuels, *Res Pap INT-115 Ogden UT US Dep. Agric. Intermt. For. Range Exp. Stn.* 40 P. 115 (1972).
- [5] M.A. Finney, FARSITE: Fire Area Simulator-model development and evaluation, *Res Pap RMRS-RP-4 Revis. 2004 Ogden UT US Dep. Agric. For. Serv. Rocky Mt. Res. Stn.* 47 P. 4 (1998).
- [6] J.H. Balbi, P.A. Santoni, J.L. Dupuy, Dynamic modelling of fire spread across a fuel bed, *Int. J. Wildland Fire*. 9 (1999) 275–284.
- [7] D. Morvan, J.L. Dupuy, Modeling of fire spread through a forest fuel bed using a multiphase formulation, *Combust. Flame*. 127 (2001) 1981–1994.
- [8] W. Mell, A. Maranghides, R. McDermott, S.L. Manzello, Numerical simulation and experiments of burning douglas fir trees, *Combust. Flame*. 156 (2009) 2023–2041.
- [9] Y. Perez-Ramirez, W.E. Mell, P.A. Santoni, J.B. Tramoni, F. Bosseur, Examination of WFDS in Modeling Spreading Fires in a Furniture Calorimeter, *Fire Technol.* 53 (2017) 1795–1832.
- [10] T. Rogaume, Thermal decomposition and pyrolysis of solid fuels: Objectives, challenges and modelling, *Fire Saf. J.* 106 (2019) 177–188.
- [11] J. Torero, Flaming Ignition of Solid Fuels, in: M.J. Hurley, D. Gottuk, J.R. Hall, K. Harada, E. Kuligowski, M. Puchovsky, J. Torero, J.M. Watts, C. Wieczorek (Eds.), *SFPE Handb. Fire Prot. Eng.*, Springer New York, New York, NY, 2016: pp. 633–661.
- [12] V. Leroy, D. Cancellieri, E. Leoni, Thermal degradation of ligno-cellulosic fuels: DSC and TGA studies, *Thermochim. Acta*. 451 (2006) 131–138.
- [13] M. Poletto, A.J. Zattera, R.M.C. Santana, Thermal decomposition of wood: Kinetics and degradation mechanisms, *Bioresour. Technol.* 126 (2012) 7–12.
- [14] V. Babrauskas, W.H. Twilley, M. Janssens, S. Yusa, A cone calorimeter for controlled-atmosphere studies, *Fire Mater.* 16 (1992) 37–43.
- [15] T. Fateh, T. Rogaume, F. Richard, Multi-scale modeling of the thermal decomposition of fire retardant plywood, *Fire Saf. J.* 64 (2014) 36–47. <https://doi.org/10.1016/j.firesaf.2014.01.007>.
- [16] F. Richter, A. Atreya, P. Kotsovinos, G. Rein, The effect of chemical composition on the charring of wood across scales, *Proc. Combust. Inst.* 37 (2019) 4053–4061.
- [17] V. Tihay-Felicelli, P.-A. Santoni, T. Barboni, L. Leonelli, Autoignition of Dead Shrub Twigs: Influence of Diameter on Ignition, *Fire Technol.* 52 (2016) 897–929.
- [18] T. Barboni, L. Leonelli, P.-A. Santoni, V. Tihay-Felicelli, Influence of particle size on the heat release rate and smoke opacity during the burning of dead *Cistus* leaves and twigs, *J. Fire Sci.* 35 (2017) 259–283.
- [19] M.G. Grønli, A theoretical and experimental study of the thermal degradation of biomass, 1996.
- [20] P. Rousset, Choix et Validation expérimentale d'un modèle de pyrolyse pour le bois traité par haute température : de la micro-particule au bois massif, phdthesis, ENGREF (AgroParisTech), 2004.
- [21] D.A. Tillman, Biomass cofiring: the technology, the experience, the combustion consequences, *Biomass Bioenergy*. 19 (2000) 365–384.

- [22] T. Fateh, T. Rogaume, J. Luche, F. Richard, F. Jabouille, Characterization of the thermal decomposition of two kinds of plywood with a cone calorimeter – FTIR apparatus, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 107 (2014) 87–100.
- [23] P. McKendry, Energy production from biomass (part 1): overview of biomass, *Bioresour. Technol.* 83 (2002) 37–46.
- [24] Z. Chen, M. Hu, X. Zhu, D. Guo, S. Liu, Z. Hu, B. Xiao, J. Wang, M. Laghari, Characteristics and kinetic study on pyrolysis of five lignocellulosic biomass via thermogravimetric analysis, *Bioresour. Technol.* 192 (2015) 441–450.
- [25] Z. Chen, Q. Zhu, X. Wang, B. Xiao, S. Liu, Pyrolysis behaviors and kinetic studies on Eucalyptus residues using thermogravimetric analysis, *Energy Convers. Manag.* 105 (2015) 251–259.
- [26] Handbook For Pulp and Paper Technologists (The SMOOK Book), Fourth Edition - Handbook For Pulp & Paper Technologists Fourth Edition, (n.d.).
- [27] V. Leroy, Contribution à la modélisation des feux de forêt: Cinétique de dégradation thermique et Cinétique de combustion des végétaux, phdthesis, Université Pascal Paoli, 2007.
- [28] E. Sjöström, Preface to the second edition, in: E. Sjöström (Ed.), *Wood Chem. Second Ed.*, Academic Press, San Diego, 1993: pp. xi–xii.
- [29] T. Barboni, M. Cannac, E. Leoni, N. Chiaramonti, Emission of biogenic volatile organic compounds involved in eruptive fire: implications for the safety of firefighters, *Int. J. Wildland Fire*. 20 (2011) 152–161.
- [30] C. Di Blasi, C. Branca, A. Santoro, R.A. Perez Bermudez, Weight loss dynamics of wood chips under fast radiative heating, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 57 (2001) 77–90.
- [31] C. Branca, C. Di Blasi, Kinetics of the isothermal degradation of wood in the temperature range 528–708 K, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 67 (2003) 207–219.
- [32] M.R. da Silva, G. de O. Machado, J. Deiner, C. Calil Junior, Permeability measurements of Brazilian Eucalyptus, *Mater. Res.* 13 (2010) 281–286.
- [33] R. Alén, E. Kuoppala, P. Oesch, Formation of the main degradation compound groups from wood and its components during pyrolysis, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 36 (1996) 137–148.
- [34] H. Yang, R. Yan, H. Chen, D.H. Lee, C. Zheng, Characteristics of hemicellulose, cellulose and lignin pyrolysis, *Fuel*. 86 (2007) 1781–1788.
- [35] C. Branca, A. Albano, C. Di Blasi, Critical evaluation of global mechanisms of wood devolatilization, *Thermochim. Acta*. 429 (2005) 133–141.
- [36] C. Di Blasi, Comparison of semi-global mechanisms for primary pyrolysis of lignocellulosic fuels, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 47 (1998) 43–64.
- [37] C. Di Blasi, C. Branca, A. Santoro, E. Gonzalez Hernandez, Pyrolytic behavior and products of some wood varieties, *Combust. Flame*. 124 (2001) 165–177.
- [38] J.A. Caballero, R. Font, A. Marcilla, A.N. García, Flash pyrolysis of Klason lignin in a Pyroprobe 1000, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 27 (1993) 221–244.
- [39] B.M. Suleiman, J. Larfeldt, B. Leckner, M. Gustavsson, Thermal conductivity and diffusivity of wood, *Wood Sci. Technol.* 33 (1999) 465–473.
- [40] R.J. Ross, F.P.L.U.F. Service, Wood handbook: wood as an engineering material, USDA For. Serv. For. Prod. Lab. Gen. Tech. Rep. FPL- GTR-190 2010 509 P 1 V. 190 (2010).
- [41] M.E. Houssami, J.C. Thomas, A. Lamorlette, D. Morvan, M. Chaos, R. Hadden, A. Simeoni, Experimental and numerical studies characterizing the burning dynamics of wildland fuels, *Combust. Flame*. 168 (2016) 113–126.
- [42] C. Lautenberger, C. Fernandez-Pello, A model for the oxidative pyrolysis of wood, *Combust. Flame*. 156 (2009) 1503–1513.

- [43] I. Vermesi, M.J. DiDomizio, F. Richter, E.J. Weckman, G. Rein, Pyrolysis and spontaneous ignition of wood under transient irradiation: Experiments and a-priori predictions, *Fire Saf. J.* 91 (2017) 218–225.
- [44] A. Muneri, C.A. Raymond, Nondestructive sampling of *Eucalyptus globulus* and *E. nitens* for wood properties; II. Fibre length and coarseness, *Wood Sci. Technol.* 35 (2001) 41–56.
- [45] E. Moura Pinto, Thermal degradation of *eucalyptus grandis*, *pinus* spp. and *goupia glaba* timber, *Proc. 51st Int. Conv. Soc. Wood Sci. Technol.* (2008).
- [46] H.C. Tran, R.H. White, Burning rate of solid wood measured in a heat release rate calorimeter, *Fire Mater.* Vol 16 1992 P 197-206 Ill. (1992).
- [47] A. Galgano, C. Di Blasi, Modeling the propagation of drying and decomposition fronts in wood, *Combust. Flame.* 139 (2004) 16–27.
- [48] W.J. Parker, Prediction Of The Heat Release Rate Of Douglas Fir, *Fire Saf. Sci.* 2 (1989) 337–346.
- [49] A. TenWolde, J.D. McNatt, L. Krahn, Thermal properties of wood and wood panel products for use in buildings, Oak Ridge National Lab., TN (USA); Forest Service, Madison, WI (USA). Forest Products Lab., 1988.
- [50] F. Dunlap, The specific heat of wood, Washington, D.C. : U.S. Dept. of Agriculture, Forest Service, 1912.
- [51] P. Koch, Specific heat of oven-dry spruce pine wood and bark, *Wood Sci.* Vol14 203-214. (1968).
- [52] M. Försth, A. Roos, Absorptivity and its dependence on heat source temperature and degree of thermal breakdown, *Fire Mater.* 35 (2011) 285–301.
- [53] A. Dupleix, D. De Sousa Meneses, M. Hughes, R. Marchal, Mid-infrared absorption properties of green wood, *Wood Sci. Technol.* 47 (2013) 1231–1241.
- [54] M. Gupta, J. Yang, C. Roy, Specific heat and thermal conductivity of softwood bark and softwood char particles, *Fuel.* 82 (2003) 919–927
- [55] M. Chaos, Spectral Aspects of Bench-Scale Flammability Testing: Application to Hardwood Pyrolysis, *Fire Saf. Sci.* 11 (2014) 165–178.
- [56] E.M. Suuberg, I. Aarna, I. Milosavljevic, The Char Residues from Pyrolysis of Biomass — Some Physical Properties of Importance, in: *Prog. Thermochem. Biomass Convers.*, John Wiley & Sons, Ltd, 2008: pp. 1246–1258.
- [57] M.G. Grønli, M.C. Melaaen, Mathematical Model for Wood Pyrolysis Comparison of Experimental Measurements with Model Predictions, *Energy Fuels.* 14 (2000) 791–800.
- [58] V. Tihay, Contribution expérimentale et théorique pour la modélisation de la combustion dans les feux de forêt, thesis, Corte, 2007.
- [59] B. Günther, K. Gebauer, R. Barkowski, M. Rosenthal, C.-T. Bues, Calorific value of selected wood species and wood products, *Eur. J. Wood Wood Prod.* 70 (2012) 755–757.
- [60] K.A. Murty, P.L. Blackshear, Pyrolysis effects in the transfer of heat and mass in thermally decomposing organic solids, *Symp. Int. Combust.* 11 (1967) 517–523.
- [61] C. Di Blasi, Modeling and simulation of combustion processes of charring and non-charring solid fuels, *Prog. Energy Combust. Sci.* 19 (1993) 71–104.
- [62] D. Cancellieri, E. Innocenti, V. Leroy-Cancellieri, WinGPYRO: A software platform for kinetic study of forest fuels, *Fire Saf. J.* 58 (2013) 103–111.
- [63] R. Font, A. Marcilla, J. Devesa, E. Verdú, Kinetic study of the flash pyrolysis of almond shells in a fluidized bed reactor at high temperatures, *J. Anal. Appl. Pyrolysis.* 27 (1993) 245–273.
- [64] F. Shafizadeh, P.P.S. Chin, Thermal Deterioration of Wood, in: *Wood Technol. Chem. Asp.*, American Chemical Society, 1977: pp. 57–81.

- [65] R. Font, A. Marcilla, J. Devesa, E. Verdú, Gas production by almond shell pyrolysis at high temperature, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 28 (1994) 13–27.
- [66] F. Thurner, U. Mann, Kinetic investigation of wood pyrolysis, *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.* 20 (1981) 482–488.
- [67] C.A. Koufopoulos, A. Lucchesi, G. Maschio, Kinetic modelling of the pyrolysis of biomass and biomass components, *Can. J. Chem. Eng.* 67 (n.d.) 75–84.
- [68] R. Font, A. Marcilla, E. Verdú, J. Devesa, Thermogravimetric kinetic study of the pyrolysis of almond shells and almond shells impregnated with CoCl_2 , *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 21 (1991) 249–264.
- [69] T.R. Nunn, J.B. Howard, J.P. Longwell, W.A. Peters, Product compositions and kinetics in the rapid pyrolysis of sweet gum hardwood, *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.* 24 (1985) 836–844.
- [70] M.L. Boroson, J.B. Howard, J.P. Longwell, W.A. Peters, Product yields and kinetics from the vapor phase cracking of wood pyrolysis tars, *AIChE J.* 35 (1989) 120–128.
- [71] C.A. Koufopoulos, N. Papayannakos, G. Maschio, A. Lucchesi, Modelling of the pyrolysis of biomass particles. Studies on kinetics, thermal and heat transfer effects, *Can. J. Chem. Eng.* 69 (1991) 907–915.
- [72] H. Kosstrin, Direct formation of pyrolysis oil from biomass, *Spec Work Fast Pyrolysis Biomass Cooper Mt. Colo.* (1980) 105–121.
- [73] J.P. Diebold, The cracking kinetics of depolymerized biomass vapors in a continuous, tubular reactor, Thesis, Colorado School of Mines. Arthur Lakes Library, 2016.
- [74] A.G. Liden, F. Berruti, D.S. Scott, A Kinetic Model for the Production of Liquids from the Flash Pyrolysis of Biomass, *Chem. Eng. Commun.* 65 (1988) 207–221.
- [75] J.J.M. Orfão, F.J.A. Antunes, J.L. Figueiredo, Pyrolysis kinetics of lignocellulosic materials—three independent reactions model, *Fuel*. 78 (1999) 349–358.
- [76] R. Bilbao, A. Millera, J. Arauzo, Kinetics of weight loss by thermal decomposition of xylan and lignin. Influence of experimental conditions, *Thermochim. Acta*. 143 (1989) 137–148.
- [77] T. Fateh, T. Rogaume, J. Luche, F. Richard, F. Jabouille, 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 Saf. J.* 58 (2013) 25–37.
- [78] S. Benkorichi, T. Fateh, F. Richard, J.-L. Consalvi, A. Nadjai, Investigation of thermal degradation of pine needles using multi-step reaction mechanisms, *Fire Saf. J.* 91 (2017) 811–819.
- [79] C. Di Blasi, Modeling chemical and physical processes of wood and biomass pyrolysis, *Prog. Energy Combust. Sci.* 34 (2008) 47–90. <https://doi.org/10.1016/j.pecs.2006.12.001>.
- [80] C. Branca, C. Di Blasi, Global intrinsic kinetics of wood oxidation, *Fuel*. 83 (2004) 81–87.
- [81] B. Batiot, Etude expérimentale et numérique de la décomposition thermique du bois résineux, phdthesis, ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d’Aérotechnique - Poitiers, 2014.
- [82] R.S. Miller, J. Bellan, A Generalized Biomass Pyrolysis Model Based on Superimposed Cellulose, Hemicellulose and Lignin Kinetics, *Combust. Sci. Technol.* 126 (1997) 97–137.
- [83] S.S. Alves, J.L. Figueiredo, Pyrolysis kinetics of lignocellulosic materials by multistage isothermal thermogravimetry, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 13 (1988) 123–134.
- [84] S.M. Ward, J. Braslaw, Experimental weight loss kinetics of wood pyrolysis under vacuum, *Combust. Flame*. 61 (1985) 261–269.
- [85] R.K. Agrawal, Kinetics of reactions involved in pyrolysis of cellulose I. The three reaction model, *Can. J. Chem. Eng.* 66 (1988) 403–412.

- [86] A.E. Lipska, W.J. Parker, Kinetics of the pyrolysis of cellulose in the temperature range 250–300°C., *J. Appl. Polym. Sci.* 10 (1966) 1439–1453.
- [87] C. Vovelle, H. Mellottée, R. Delbourgo, Kinetics of the thermal degradation of cellulose and wood in inert and oxidative atmospheres, *Symp. Int. Combust.* 19 (1982) 797–805.
- [88] A.G.W. Bradbury, Y. Sakai, F. Shafizadeh, A kinetic model for pyrolysis of cellulose, *J. Appl. Polym. Sci.* 23 (2003) 3271–3280.
- [89] F.J. Kilzer, A. Broido, Speculations on the nature of cellulose pyrolysis, *Pyrodynamics* 2 151–163. 2 (1965) 151–163.
- [90] D.F. Arseneau, Competitive Reactions in the Thermal Decomposition of Cellulose, *Can. J. Chem.* 49 (1971) 632–638.
- [91] R.K. Agrawal, Kinetics of reactions involved in pyrolysis of cellulose II. The modified kilzer-broid model, *Can. J. Chem. Eng.* 66 (1988) 413–418.
- [92] E. Ranzi, A. Cuoci, T. Faravelli, A. Frassoldati, G. Migliavacca, S. Pierucci, S. Sommariva, Chemical Kinetics of Biomass Pyrolysis, *Energy Fuels.* 22 (2008) 4292–4300.
- [93] M. Corbetta, A. Frassoldati, H. Bennadji, K. Smith, M.J. Serapiglia, G. Gauthier, T. Melkior, E. Ranzi, E.M. Fisher, Pyrolysis of Centimeter-Scale Woody Biomass Particles: Kinetic Modeling and Experimental Validation, *Energy Fuels.* 28 (2014) 3884–3898.
- [94] C. Di Blasi, M. Lanzetta, Intrinsic kinetics of isothermal xylan degradation in inert atmosphere, *J. Anal. Appl. Pyrolysis.* 40–41 (1997) 287–303.
- [95] V. Cozzani, C. Nicoletta, M. Rovatti, L. Tognotti, Influence of Gas-Phase Reactions on the Product Yields Obtained in the Pyrolysis of Polyethylene, *Ind. Eng. Chem. Res.* 36 (1997) 342–348.
- [96] F. Shafizadeh, G.D. McGinnis, C.W. Philpot, Thermal degradation of xylan and related model compounds, *Carbohydr. Res.* 25 (1972) 23–33.
- [97] J.J.M. Órfão, J.L. Figueiredo, A simplified method for determination of lignocellulosic materials pyrolysis kinetics from isothermal thermogravimetric experiments, (2001).
- [98] M.J. Antal, Effects of reactor severity on the gas-phase pyrolysis of cellulose- and kraft lignin-derived volatile matter, *Ind. Eng. Chem. Prod. Res. Dev.* 22 (1983) 366–375.
- [99] T. Fateh, F. Richard, J. Zaida, T. Rogaume, P. Joseph, Multi-scale experimental investigations of the thermal degradation of pine needles, *Fire Mater.* 41 (2017) 654–674.
- [100] T. Fateh, Etude expérimentale et numérique de la cinétique de décomposition thermique de contreplaqués en bois, phdthesis, ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique - Poitiers, 2011.
- [101] R.H. Hurt, J.M. Calo, Semi-global intrinsic kinetics for char combustion modeling, *Combust. Flame.* 125 (2001) 1138–1149.
- [102] J. Flynn, The isoconversional method for determination of energy of activation at constant heating rates, *J. Therm. Anal. Calorim.* 27 (1983) 95–102.
- [103] C.D. Doyle, Estimating isothermal life from thermogravimetric data, *J. Appl. Polym. Sci.* 6 (1962) 639–642.
- [104] T. Ozawa, A New Method of Analyzing Thermogravimetric Data, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* 38 (1965) 1881–1886.
- [105] J.H. Flynn, L.A. Wall, A quick, direct method for the determination of activation energy from thermogravimetric data, *J. Polym. Sci. Polym. Lett. Ed.* 4 (1966) 323–328.
- [106] H.E. Kissinger, Reaction Kinetics in Differential Thermal Analysis, (2002).
- [107] H.L. Friedman, Kinetics of thermal degradation of char-forming plastics from thermogravimetry. Application to a phenolic plastic, *J. Polym. Sci. Part C Polym. Symp.* 6 (1964) 183–195.

- [108] G. Gerandi, V. Tihay-Felicelli, P.-A. Santoni, V. Leroy-Cancellieri, D. Cancellieri, Multi-scale modeling of the degradation of thermally thin wood plates, *Fire Saf. J.* 108 (2019) 102823.
- [109] F. Morandini, P.A. Santoni, J.B. Tramoni, W.E. Mell, Experimental investigation of flammability and numerical study of combustion of shrub of rockrose under severe drought conditions, *Fire Saf. J.* 108 (2019) 102836.
- [110] C. Lautenberger, A Generalized Pyrolysis Model for Combustible Solids, (2007).
- [111] S.I. Stoliarov, S. Crowley, R.N. Walters, R.E. Lyon, Prediction of the burning rates of charring polymers, *Combust. Flame.* 157 (2010) 2024–2034.
- [112] FDS-SMV, (n.d.). <https://pages.nist.gov/fds-smv/> (accessed September 28, 2019).
- [113] OpenFOAM: User Guide: fireFoam, (n.d.).
- [114] R. Font, J.A. Conesa, J. Moltó, M. Muñoz, Kinetics of pyrolysis and combustion of pine needles and cones, *J. Anal. Appl. Pyrolysis.* 85 (2009) 276–286.
- [115] K. Słopiecka, P. Bartocci, F. Fantozzi, Thermogravimetric analysis and kinetic study of poplar wood pyrolysis, *Appl. Energy.* 97 (2012) 491–497.
- [116] J.P. Diebold, A unified, global model for the pyrolysis of cellulose, *Biomass Bioenergy.* 7 (1994) 75–85.
- [117] J.A. Knight, C.W. Gorton, R.J. Kovac, Oil production by entrained flow pyrolysis of biomass, *Biomass.* 6 (1984) 69–76.
- [118] C.W. Gorton, R.J. Kovac, J.A. Knight, T.I. Nygaard, Modeling pyrolysis oil production in an entrained-flow reactor, *Biomass.* 21 (1990) 1–10.
- [119] C. Vincent, Fire behavior characterization of household materials: influence of scale effect., Theses, Université de Montpellier, 2016.
- [120] M. Gao, S. Li, C. Sun, Thermal Degradation of Wood in Air and Nitrogen Treated with Basic Nitrogen Compounds and Phosphoric Acid, *Combust. Sci. Technol.* 176 (2004) 2057–2070.
- [121] V. Tihay, C. Boulnois, P. Gillard, Influence of oxygen concentration on the kinetics of cellulose wadding degradation, *Thermochim. Acta.* 525 (2011) 16–24.
- [122] V. Leroy, D. Cancellieri, E. Leoni, J.-L. Rossi, Kinetic study of forest fuels by TGA: Model-free kinetic approach for the prediction of phenomena, *Thermochim. Acta.* 497 (2010) 1–6.
- [123] L.B. Valencia, Experimental and numerical investigation of the thermal decomposition of materials at three scales: application to polyether polyurethane foam used in upholstered furniture, phdthesis, ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d’Aérotechnique - Poitiers, 2009.
- [124] T.J. Zaida, Etude expérimentale et numérique de la dégradation thermique des lits de combustibles végétaux, (2012).
- [125] B.M. Wagenaar, W. Prins, W.P.M. van Swaaij, Flash pyrolysis kinetics of pine wood, *Fuel Process. Technol.* 36 (1993) 291–298.
- [126] W.-C.R. Chan, M. Kelbon, B.B. Krieger, Modelling and experimental verification of physical and chemical processes during pyrolysis of a large biomass particle, *Fuel.* 64 (1985) 1505–1513.
- [127] M.G. Grønli, G. Várhegyi, C.D. Blasi, Thermogravimetric analysis and devolatilization kinetics of wood, *Ind. Eng. Chem. Res.* 41 (2002) 4201–4208.
- [128] O. Senneca, R. Chirone, P. Salatino, Oxidative pyrolysis of solid fuels, *J. Anal. Appl. Pyrolysis.* 71 (2004) 959–970.
- [129] R. Bilbao, J.F. Mastral, M.E. Aldea, J. Ceamanos, The influence of the percentage of oxygen in the atmosphere on the thermal decomposition of lignocellulosic materials, *J. Anal. Appl. Pyrolysis.* 42 (1997) 189–202.
- [130] M. Morin, S. Pécate, E. Masi, M. Hémati, Kinetic study and modelling of char combustion in TGA in isothermal conditions, *Fuel.* 203 (2017) 522–536.

- [131] N.M. Laurendeau, Heterogeneous kinetics of coal char gasification and combustion, *Prog. Energy Combust. Sci.* 4 (1978) 221–270.
- [132] C. Branca, C. Di Blasi, Global Kinetics of Wood Char Devolatilization and Combustion, *Energy Fuels*. 17 (2003) 1609–1615.
- [133] G. Várhegyi, E. Mészáros, M.J. Antal, J. Bourke, E. Jakab, Combustion kinetics of corncob charcoal and partially demineralized corncob charcoal in the kinetic regime, *Ind. Eng. Chem. Res.* 45 (2006) 4962–4970.
- [134] C. Di Blasi, F. Buonanno, C. Branca, Reactivities of some biomass chars in air, *Carbon*. 37 (1999) 1227–1238.
- [135] J. Adánez, L.F. de Diego, F. García-Labiano, A. Abad, J.C. Abanades, Determination of Biomass Char Combustion Reactivities for FBC Applications by a Combined Method, *Ind. Eng. Chem. Res.* 40 (2001) 4317–4323.
- [136] A.M.C. Janse, H.G. de Jonge, W. Prins, W.P.M. van Swaaij, Combustion Kinetics of Char Obtained by Flash Pyrolysis of Pine Wood, *Ind. Eng. Chem. Res.* 37 (1998) 3909–3918.
- [137] C. Lautenberger, Gpyro3D: A Three Dimensional Generalized Pyrolysis Model, *Fire Saf. Sci.* 11 (2014) 193–207.
- [138] S. Stoliarov, R. Lyon, Thermo-Kinetic Model of Burning for Pyrolyzing Materials, *Fire Saf. Sci.* 9 (2008) 1141–1152.
- [139] W.H. Press, B.P. Flannery, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, *Numerical Recipes in C: The Art of Scientific Computing*, Cambridge University Press, New York, NY, USA, 1988.
- [140] S.I. Stoliarov, S. Crowley, R.E. Lyon, G.T. Linteris, Prediction of the burning rates of non-charring polymers, *Combust. Flame*. 156 (2009) 1068–1083.
- [141] S.I. Stoliarov, I.T. Leventon, R.E. Lyon, Two-dimensional model of burning for pyrolyzable solids, *Fire Mater.* 38 (2014) 391–408.
- [142] E. Guillaume, A. Camillo, T. Rogaume, Application and Limitations of a Method Based on Pyrolysis Models to Simulate Railway Rolling Stock Fire Scenarios, *Fire Technol.* 50 (2014) 317–348.
- [143] D. Marquis, *Caractérisation et modélisation multi-échelle du comportement au feu d'un composite pour son utilisation en construction navale*, Nantes, 2010.
- [144] A. Ephraïm, *Valorization of wood and plastic waste by pyro-gasification and syngas cleaning*, (2016).
- [145] C. Lautenberger, C. Fernandez-Pello, Generalized pyrolysis model for combustible solids, *Fire Saf. J.* 44 (2009) 819–839.
- [146] D. Morvan, J.L. Dupuy, Modeling the propagation of a wildfire through a Mediterranean shrub using a multiphase formulation, *Combust. Flame*. 138 (2004) 199–210.
- [147] B. Porterie, J.-C. Loraud, L.O. Bellemare, J.-L. Consalvi, A physically based model of the onset of crowning, *Combust. Sci. Technol.* 175 (2003) 1109–1141.
- [148] T. Kashiwagi, H. Nambu, Global kinetic constants for thermal oxidative degradation of a cellulosic paper, *Combust. Flame*. 88 (1992) 345–368.
- [149] B. Porterie, J.L. Consalvi, A. Kaiss, J.C. Loraud, Predicting Wildland Fire Behavior and Emissions Using a Fine-Scale Physical Model, *Numer. Heat Transf. Part - Appl.* 47 (2005) 571–591.
- [150] A.M. Grishin, *Mathematical Modeling of Forest Fires and New Methods of Fighting Them*, publisher not identified, 1992.
- [151] A.M. Grishin, V.A. Perminov, Mathematical modeling of the ignition of tree crowns, *Combust. Explos. Shock Waves*. 34 (1998) 378–386.

- [152] J.L. Consalvi, F. Nmira, A. Fuentes, P. Mindykowski, B. Porterie, Numerical study of piloted ignition of forest fuel layer, *Proc. Combust. Inst.* 33 (2011) 2641–2648.
- [153] B. Benkoussas, J.-L. Consalvi, B. Porterie, N. Sardoy, J.-C. Loraud, Modelling thermal degradation of woody fuel particles, *Int. J. Therm. Sci.* 46 (2007) 319–327.
- [154] M.F.R. Mulcahy, I.W. Smith, Kinetics of combustion of pulverized fuel: a review of theory and experiment, (1969).
- [155] B.L.C. Pereira, A.D.C.O. Carneiro, A.M.M.L. Carvalho, J.L. Colodette, A.C. Oliveira, M.P.F. Fontes, Influence of Chemical Composition of Eucalyptus Wood on Gravimetric Yield and Charcoal Properties, *BioResources*. 8 (n.d.).
- [156] R.C. PETTERSEN, The Chemical Composition of Wood, in: *Chem. Solid Wood*, American Chemical Society, 1984: pp. 57–126. <https://doi.org/10.1021/ba-1984-0207.ch002>.
- [157] E.M. Pinto, G.O. Machado, R.P.F. Felipetto, A.L. Christoforo, F. a. R. Lahr, C. Calil Jr., Thermal Degradation and Charring Rate of *Corymbia Citriodora* and *Eucalyptus Grandis* Wood Species, *Open Constr. Build. Technol. J.* 10 (2016).
- [158] M.J. O'Neill, Measurement of Specific Heat Functions by Differential Scanning Calorimetry., *Anal. Chem.* 38 (1966) 1331–1336.
- [159] 14:00-17:00, ISO 11357-4:2014, ISO. (n.d.).
- [160] M.J. Assael, K.D. Antoniadis, W.A. Wakeham, Historical Evolution of the Transient Hot-Wire Technique, *Int. J. Thermophys.* 31 (2010) 1051–1072.
- [161] J.J. Healy, J.J. de Groot, J. Kestin, The theory of the transient hot-wire method for measuring thermal conductivity, *Phys. BC.* 82 (1976) 392–408.
- [162] V. Hankalin, T. Ahonen, R. Raiko, On thermal properties of a pyrolysing wood particle, (2009).
- [163] Wiley: Fundamentals of Heat and Mass Transfer, 7th Edition - Theodore L. Bergman, Adrienne S.
- [164] P. Boulet, G. Parent, Z. Acem, T. Rogaume, T. Fateh, J. Zaida, F. Richard, Characterization of the radiative exchanges when using a cone calorimeter for the study of the plywood pyrolysis, *Fire Saf. J.* 51 (2012) 53–60.
- [165] P. Boulet, G. Parent, Z. Acem, A. Collin, M. Försth, N. Bal, G. Rein, J. Torero, Radiation emission from a heating coil or a halogen lamp on a semitransparent sample, *Int. J. Therm. Sci.* 77 (2014) 223–232.
- [166] V. Babrauskas, The Cone Calorimeter, in: M.J. Hurley, D. Gottuk, J.R. Hall, K. Harada, E. Kuligowski, M. Puchovsky, J. Torero, J.M. Watts, C. Wieczorek (Eds.), *SFPE Handb. Fire Prot. Eng.*, Springer, New York, NY, 2016: pp. 952–980.
- [167] M.T. Wilson, B.Z. Dlugogorski, E.M. Kennedy, Uniformity Of Radiant Heat Fluxes In Cone Calorimeter, *Fire Saf. Sci.* 7 (2003) 815–826.
- [168] M.J. Hurley, D.T. Gottuk, J.R.H. Jr, K. Harada, E.D. Kuligowski, M. Puchovsky, J.L. Torero, J.M.W. Jr, C.J. Wieczorek, eds., *SFPE Handbook of Fire Protection Engineering*, 5th ed., Springer-Verlag, New York, 2016.
- [169] M.J. Spearpoint, J.G. Quintiere, Predicting the burning of wood using an integral model, *Combust. Flame.* 123 (2000) 308–325.
- [170] Fundamentals of Fire Phenomena by James G. Quintiere
- [171] R. Chen, S. Lu, C. Li, Y. Ding, B. Zhang, S. Lo, Correlation analysis of heat flux and cone calorimeter test data of commercial flame-retardant ethylene-propylene-diene monomer (EPDM) rubber, *J. Therm. Anal. Calorim.* 123 (2016) 545–556.
- [172] B. Benkoussas, J.-L. Consalvi, B. Porterie, N. Sardoy, J.-C. Loraud, Modelling thermal degradation of woody fuel particles, *Int. J. Therm. Sci.* 46 (2007) 319–327.
- [173] S.V. Patankar, Numerical Heat Transfer and Fluid Flow, Hemisphere Publishing Corporation, 1980.

- [174] M. Janssens, Fundamental thermophysical characteristics of wood and their role in enclosure fire growth, dissertation, Ghent University, 1991.
- [175] X. Hu, H. Guo, M. Gholizadeh, B. Sattari, Q. Liu, Pyrolysis of different wood species: Impacts of C/H ratio in feedstock on distribution of pyrolysis products, *Biomass Bioenergy*. 120 (2019) 28–39.
- [176] M.X. Fang, D.K. Shen, Y.X. Li, C.J. Yu, Z.Y. Luo, K.F. Cen, Kinetic study on pyrolysis and combustion of wood under different oxygen concentrations by using TG-FTIR analysis, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 77 (2006) 22–27.
- [177] T.J. Ohlemiller, T. Kashiwagi, K. Werner, Wood gasification at fire level heat fluxes, *Combust. Flame*. 69 (1987) 155–170.
- [178] S. Vyazovkin, A unified approach to kinetic processing of nonisothermal data, *Int. J. Chem. Kinet*. 28 (1996) 95–101.
- [179] S. Vyazovkin, An approach to the solution of the inverse kinetic problem in the case of complex processes: Part 4. Chemical reaction complicated by diffusion, *Thermochim. Acta*. 223 (1993) 201–206.
- [180] Métaheuristiques pour l’optimisation difficile, (n.d.).
- [181] D.M. Marquis, B. Batiot, E. Guillaume, T. Rogaume, Influence of reaction mechanism accuracy on the chemical reactivity prediction of complex charring material in fire condition, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 118 (2016) 231–248.
- [182] G. Rein, C. Lautenberger, A.C. Fernandez-Pello, J.L. Torero, D.L. Urban, Application of genetic algorithms and thermogravimetry to determine the kinetics of polyurethane foam in smoldering combustion, *Combust. Flame*. 146 (2006) 95–108.
- [183] C. Lautenberger, G. Rein, C. Fernandez-Pello, The application of a genetic algorithm to estimate material properties for fire modeling from bench-scale fire test data, *Fire Saf. J.* 41 (2006) 204–214.
- [184] J. Dréo, A. Pérowski, P. Siarry, E. Taillard, *Metaheuristics for Hard Optimization: Methods and Case Studies*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2006.
- [185] N. Durand, Algorithmes Génétiques et autres méthodes d’optimisation appliqués à la gestion de trafic aérien, thesis, 2004. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01293722> (accessed June 1, 2019).
- [186] K. Levenberg, A Method For The Solution Of Certain Non-Linear Problems In Least Squares, *Q. Appl. Math.* 2 (1944) 164–168.
- [187] D. Marquardt, An Algorithm for Least-Squares Estimation of Nonlinear Parameters, *J. Soc. Ind. Appl. Math.* 11 (1963) 431–441.
- [188] C. Boulnois, Caractérisation et modélisation du comportement lors de l’allumage de poudres propulsives à vulnérabilité réduite en balistique intérieure, Thèse de doctorat, Université d’Orléans, 2012.
- [189] F. Richter, G. Rein, Heterogeneous kinetics of timber charring at the microscale, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 138 (2019) 1–9.
- [190] F. Richter, G. Rein, Pyrolysis kinetics and multi-objective inverse modelling of cellulose at the microscale, *Fire Saf. J.* 91 (2017) 191–199.
- [191] J. Rath, G. Steiner, M.G. Wolfinger, G. Staudinger, Tar cracking from fast pyrolysis of large beech wood particles, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*. 62 (2002) 83–92.
- [192] A. Matala, S. Hostikka, J. Mangs, Estimation of pyrolysis model parameters for solid materials using thermogravimetric data, *Fire Saf. Sci.* 9 (2008) 1213–1223.
- [193] X. Huang, G. Rein, Smouldering combustion of peat in wildfires: Inverse modelling of the drying and the thermal and oxidative decomposition kinetics, *Combust. Flame*. 161 (2014) 1633–1644.
- [194] M. S, F. M, Convection Ignition of Live Forest Fuels, *Fire Saf. Sci.* 11 (2014) 1312–1325.

- [195] P. Reszka, In-Depth Temperature Profiles in Pyrolyzing Wood, (2008).
- [196] R.H. White, Analytical Methods for Determining Fire Resistance of Timber Members, in: M.J. Hurley, D. Gottuk, J.R. Hall, K. Harada, E. Kuligowski, M. Puchovsky, J. Torero, J.M. Watts, C. Wieczorek (Eds.), SFPE Handb. Fire Prot. Eng., Springer, New York, NY, 2016: pp. 1979–2011.
- [197] K.M. Bryden, K.W. Ragland, C.J. Rutland, Modeling thermally thick pyrolysis of wood, Biomass Bioenergy. 22 (2002) 41–53.
- [198] A. Galgano, C.D. Blasi, S. Ritondale, A. Todisco, Numerical simulation of the glowing combustion of moist wood by means of a front-based model, Fire Mater. 38 (2014) 639–658.
- [199] M.R. Hajaligol, J.B. Howard, J.P. Longwell, W.A. Peters, Product compositions and kinetics for rapid pyrolysis of cellulose, Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev. 21 (1982) 457–465.
- [200] P.T. Williams, S. Besler, The influence of temperature and heating rate on the slow pyrolysis of biomass, Renew. Energy. 7 (1996) 233–250.
- [201] Z. Wang, X. Yang, Y. Zhou, C. Liu, Mechanical and Thermal Properties of Polyurethane Films from Peroxy-acid Wheat Straw Lignin, BioResources. 8 (2013) 3833–3843.
- [202] B. Petter Jelle, 8 - Nano-based thermal insulation for energy-efficient buildings, in: F. Pacheco-Torgal, E. Rasmussen, C.-G. Granqvist, V. Ivanov, A. Kaklauskas, S. Makonin (Eds.), Start- Creat., Woodhead Publishing, 2016: pp. 129–181.
- [203] T. Hatakeyama, K. Nakamura, H. Hatakeyama, Studies on heat capacity of cellulose and lignin by differential scanning calorimetry, Polymer. 23 (1982) 1801–1804.
- [204] E.E. Thybring, Explaining the heat capacity of wood constituents by molecular vibrations, J. Mater. Sci. 49 (2014) 1317–1327.
- [205] C. Dupont, R. Chiriac, G. Gauthier, F. Toche, Heat capacity measurements of various biomass types and pyrolysis residues, Fuel. 115 (2014) 644–651.
- [206] E.R. Tinney, The combustion of wooden dowels in heated air, Symp. Int. Combust. 10 (1965) 925–930.
- [207] M.S. Ray, Thermal Radiation Heat Transfer, 3rd edn, by R. Siegel and J.R. Howell, Hemisphere Publishing Corporation, USA (1992). 1072 pages. ISBN 0-89116-271-2., Dev. Chem. Eng. Miner. Process. 2 (1994) 190–190.
- [208] Ignition of Solids, in: Fundam. Fire Phenom., John Wiley & Sons, Ltd, 2006: pp. 159–190.

Annexe A. Mesures de la transmittivité et de la réflectivité des plaques fines de chêne et d'eucalyptus

Cette annexe présente les autres mesures réalisées par l'entreprise INFLUTHERM, à savoir la transmittivité et la réflectivité des plaques fines de chêne et d'eucalyptus. Ces mesures ont été réalisées pour une bande spectrale de 0,2 à 20 μm à température ambiante. Pour couvrir cette bande spectrale, deux appareils ont été employés : un spectromètre CARY 5000 (Agilent Technologies) pour la plage 0,2 à 2,5 μm et un CARY 670 FTIR (Agilent Technologies) pour la plage 2,5 à 20 μm . Pour chaque plaque, une première série de mesures a été effectuée puis les plaques ont été tournées à 90° afin de faire une deuxième série de mesures. Les résultats obtenus correspondent aux moyennes des valeurs obtenues.

1. Mesure de la transmittivité

La Figure A.1 présente le résultat de la mesure de la transmittivité des plaques fines de chêne et d'eucalyptus. La courbe suit la même allure pour les deux bois. Nous pouvons constater que les principales variations de la transmittivité ont lieu pour une longueur d'onde comprise entre 0 et 2,5 μm . Le maximum est légèrement supérieur à 16 % pour les deux bois pour une longueur d'onde de 1,1 μm . Dans les autres bandes spectrales, la transmittivité des deux bois est nulle excepté entre 3 et 6 μm où elle varie entre 0,7 et 1,3 %. Les plaques fines de chêne et d'eucalyptus présentent donc une très faible transmittivité sur l'ensemble de la bande spectrale.

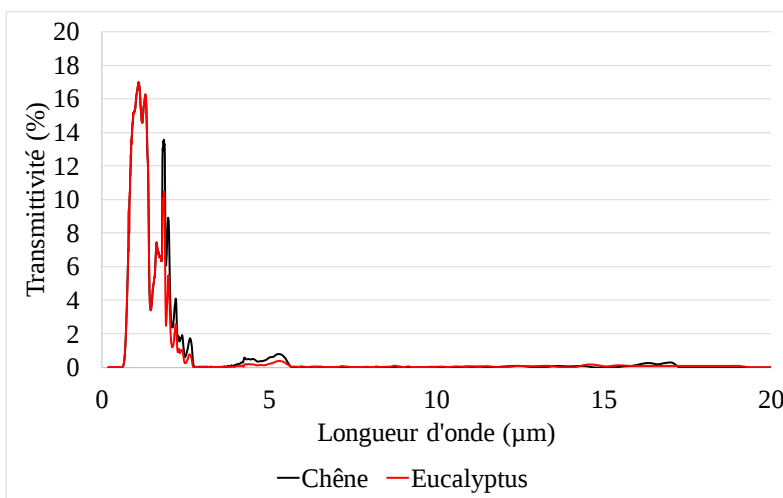


Figure A.1 : Variations de la transmittivité des plaques fines de chêne et d'eucalyptus en fonction de la longueur d'onde.

2. Mesure de la réflectivité

La Figure A.2 présente le résultat de la mesure de la réflectivité des plaques fines de chêne et d'eucalyptus. Les variations de la réflectivité suivent la même tendance pour les deux bois. Les principales variations ont lieu entre 0 et 6 μm . Dans cette gamme spectrale, la réflectivité atteint son maximum, qui est de 62 % pour le chêne et 60 % pour l'eucalyptus, pour une longueur d'onde de 1,8 μm . Entre 6 et 9 μm , la réflectivité diminue et devient constante à 3 % pour les deux bois. Entre 9 et 11 μm , la réflectivité subit une nouvelle augmentation jusqu'à 11 % pour les deux bois. Au-delà de 11 μm , la réflectivité des deux bois varient entre 5 % et 11 %.

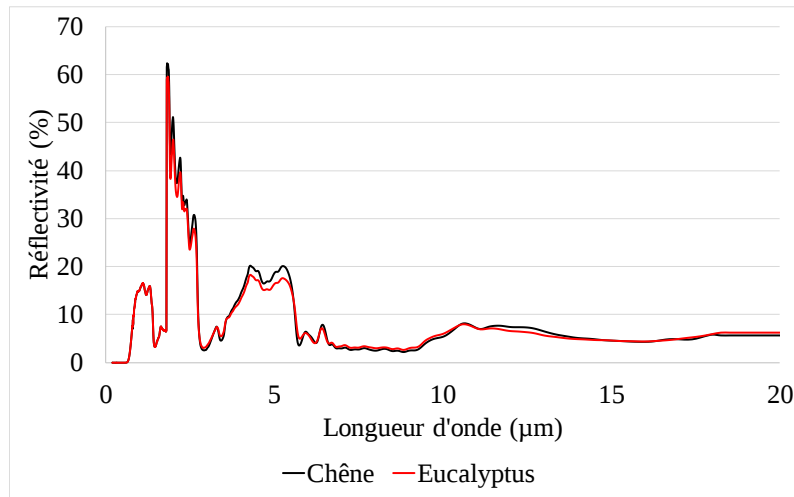


Figure A.2 : Variations de la réflectivité des plaques fines de chêne et d'eucalyptus en fonction de la longueur d'onde.

Annexe B. Tests réalisés sur les dispositifs de mesure de température

Cette annexe présente les différents tests réalisés pour la mise en place des dispositifs expérimentaux de mesure de la température des plaques. Ces tests concernent :

- La comparaison de la mesure de température à l'intérieur d'une plaque de bois entre des thermocouples K avec des gaines de 250 et 500 μm .
- L'étude de l'influence du positionnement et des paramètres de configuration sur les mesures de températures de surface avec une caméra infrarouge.

1. Comparaison des mesures réalisées avec des thermocouples K possédant des gaines de 250 et 500 μm

Afin de s'assurer de la fiabilité des mesures de température à l'intérieur d'une plaque de bois de 20 cm d'épaisseur, pour les thermocouples gainés et à jonction non exposée de 500 μm de diamètre, nous avons comparé les températures mesurées par ce type de thermocouple avec celles obtenues avec un thermocouple moins épais possédant une gaine de 250 μm de diamètre. Pour cela, les deux thermocouples ont été placés côté à côté, dans deux trous différents, à 3 mm en-dessous de la surface d'une plaque de bois et à 4 cm du bord. La plaque de bois a été soumise à une densité de flux moyenne de 25 kW/m². La Figure B.1 présente les résultats obtenus. Les deux courbes suivent la même tendance. Le temps de réponse des thermocouples de 500 μm semble donc être suffisant pour suivre l'évolution de température des plaques. Jusqu'à 180 s soit environ 300°C, l'écart entre les deux thermocouples est inférieur à 3,3°C soit 1,6 %. On observe ensuite un léger écart entre les deux mesures. Le thermocouple avec la gaine la plus épaisse donne en effet une température supérieure d'environ 4,7°C en moyenne. Cette variation vient probablement des trous d'1 mm de diamètre utilisés pour placer les thermocouples. Les thermocouples les plus fins vont avoir tendance à être plus refroidi par l'air ambiant pénétrant dans les trous que les thermocouples plus épais. Compte tenu de ces résultats, l'utilisation des thermocouples K à jonction gainée ayant un diamètre de 500 μm semble donc adéquate pour suivre l'évolution de la température à l'intérieur des plaques de 20 mm.

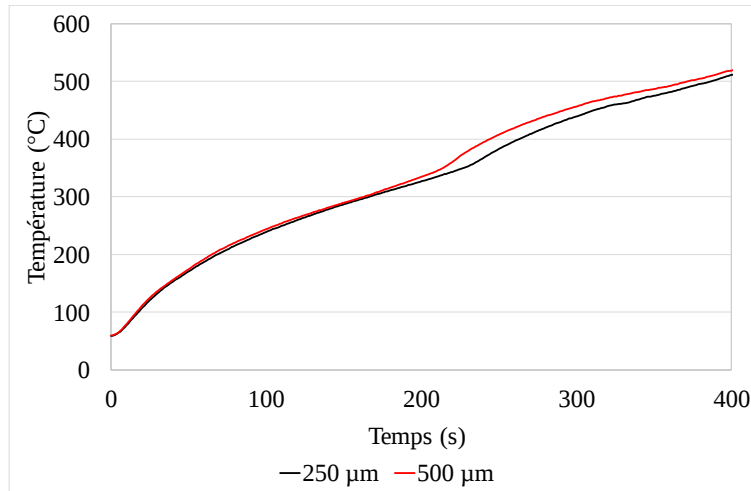


Figure B.1 : Comparaison entre les mesures de température de deux thermocouples avec des gaines de 250 et de 500 μm de diamètre.

2. Mesure de la température de surface des plaques de bois par caméra infra-rouge

2.1. Définition de l'angle d'inclinaison de la caméra infra-rouge

Compte tenu du positionnement des plaques de bois vis-à-vis du cône chauffant, il n'est pas possible de réaliser des mesures de température avec un échantillon placé perpendiculairement à la caméra. Compte tenu de la distance d'1 m choisie pour faire les expériences ainsi que de la résolution de la caméra et de l'espacement maximal possible entre les plaques et le bas du cône (50 mm), la caméra doit avoir une inclinaison de 35° afin de pouvoir enregistrer la température sur toute la surface de la plaque. Il est à noter que l'inclinaison maximale recommandée par le constructeur de la caméra est de 45° . Afin de s'assurer que cet angle n'induit pas un biais dans la mesure de la température, nous avons réalisé deux expériences distinctes. Pour la première :

- 1) Une plaque de chêne de 0,61 mm a été placée à l'étuve à 60°C pendant 24 h. Une pastille d'une émissivité de 0,95 a été collée au centre de la plaque afin de réaliser la mesure de température sur un échantillon d'émissivité connue.
- 2) La plaque a ensuite été posée sur une plaque chauffante à 130°C pendant 5 min.
- 3) A l'issue de ce temps, la plaque a été positionnée face à la caméra pour enregistrer l'évolution de la température au niveau de la pastille pendant son refroidissement.

Nous avons réitéré les deux premières étapes avec une autre plaque mais cette fois la mesure de température a été effectuée en positionnant la caméra avec une inclinaison de 35° (Figure B.2). La Figure B.3 présente les résultats obtenus pour les deux configurations. Les deux courbes de température sont quasiment superposées. L'écart entre les deux mesures reste inférieur à $0,5^\circ\text{C}$, soit 0,4 %.

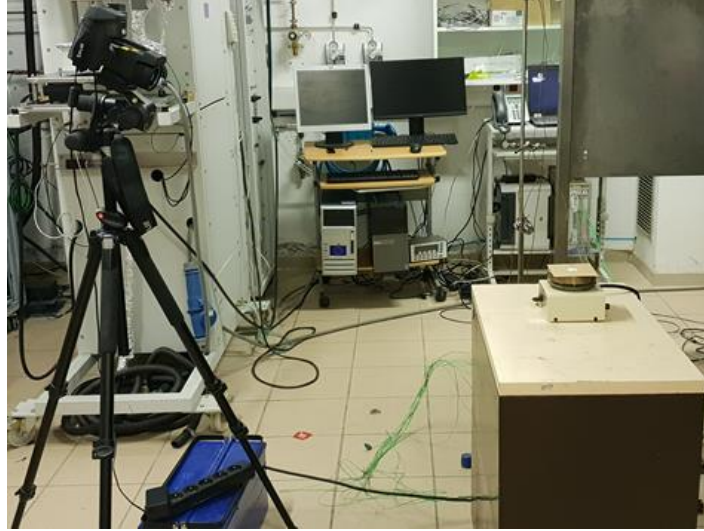


Figure B.2: Dispositif expérimental de mesure avec la caméra inclinée.

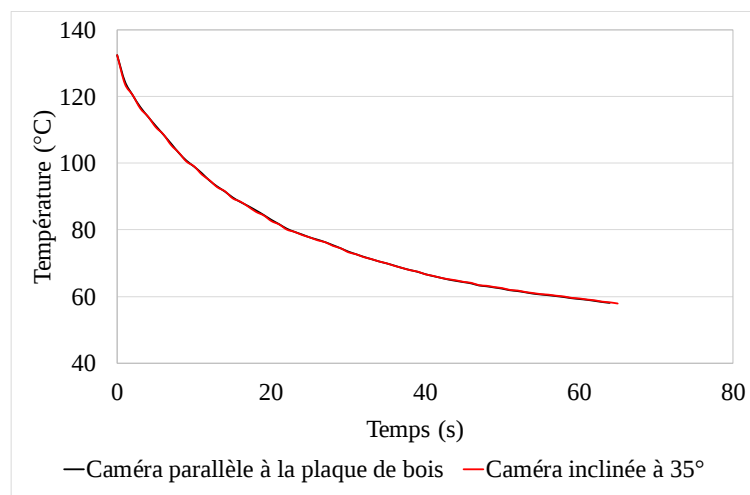


Figure B.3 : Mesure de la température de surface d'une plaque de bois avec un thermocouple et différentes positions de la caméra.

La deuxième expérience a consisté à comparer les températures mesurées par un thermocouple K ayant une gaine de 250 μm avec celles obtenues par la caméra infrarouge avec une inclinaison de 35° . Pour cela, une plaque de chêne de 0,61 mm d'épaisseur a été disposée horizontalement sur une plaque chauffante. Un thermocouple K ayant une gaine de 250 μm a été fixé au centre de la plaque et une pastille d'émissivité fixée à 0,95 a été positionnée sur le thermocouple. La caméra thermique a été placée à une distance de 1 m du centre de la plaque avec une inclinaison de 35° . Deux températures de consigne pour la plaque chauffante ont été utilisées : 130°C et 200°C . Pour chaque consigne, les expériences se sont déroulées de la façon suivante : la plaque chauffante a été allumée et l'enregistrement des deux mesures de températures a été déclenché. Une fois la température de consigne atteinte par la plaque chauffante, nous avons attendu 4 min avant de l'éteindre. Les mesures de température ont ensuite été poursuivies jusqu'à ce que la

température des plaques se stabilise autour de 50°C. Les résultats de ces tests sont présentés sur la Figure B.4.

Les mesures par caméra infrarouge et par thermocouple sont très proches tout au long de l'expérience quelle que soit la température de consigne imposée. Nous observons un écart moyen sur l'ensemble de l'expérience entre les deux méthodes de mesure de 0,8°C, soit 1,8 % (avec un écart maximal de 6,5°C correspondant à 12,9 %) lorsque la température de consigne est de 130°C et de 3,5 % (avec un écart maximal de 15,9°C correspondant à 8,6 %) lorsque la température de consigne est de 200°C. Pour une température de consigne de 130°C, l'écart moyen entre les deux mesures varie peu au cours de l'expérience : 1,7°C dans la phase de chauffage, 0,8°C dans la phase stationnaire et 1,2°C dans la phase de refroidissement. Par contre, on observe des variations pour une consigne de 200°C. Dans la phase de chauffage, l'écart moyen est de 6,2°C. Durant la phase stationnaire, l'écart devient plus important avec un écart moyen de 7,2°C. Durant cette phase, la température mesurée par le thermocouple est supérieure à celle mesurée par la caméra. Cet écart est dû au fait que la mesure de température par caméra infrarouge a été réalisée sur la gamme de température entre -40°C et 150°C. Lors du refroidissement, l'écart moyen diminue pour atteindre 2,8°C. La température mesurée par le thermocouple reste supérieure à celle mesurée par caméra infrarouge vraisemblablement à cause de son inertie thermique.

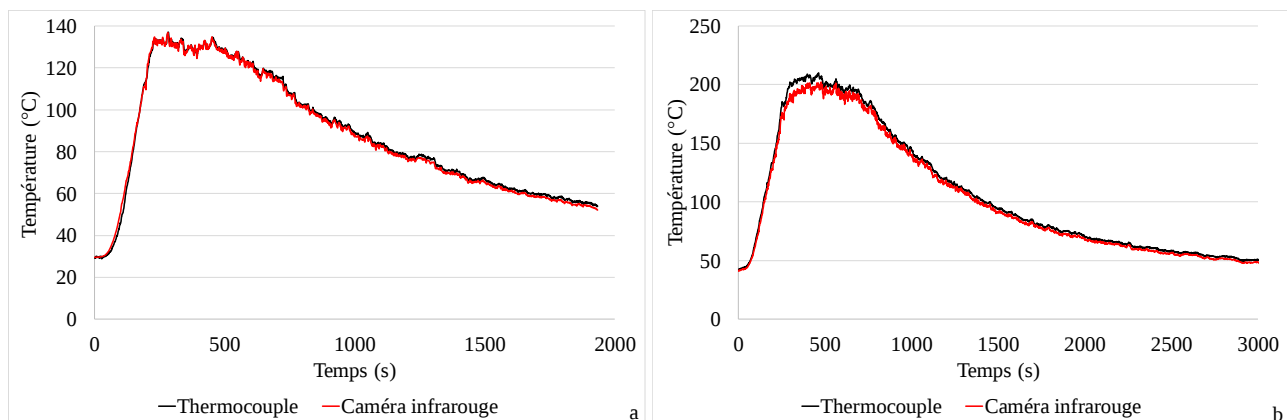


Figure B.4 : Mesure de la température de surface d'une plaque de chêne par thermocouple et par caméra infrarouge pour : a) une température de consigne de 130°C b) une température de consigne de 200°C.

Compte tenu de ces deux expériences, il semble qu'adopter une inclinaison de 35° pour la caméra infrarouge permette de mesure de manière fiable la température des plaques de bois.

2.2. Définition des paramètres de la caméra infra-rouge

Pour effectuer une mesure de température par imagerie thermique, la caméra infrarouge nécessite un certains nombres de paramètres tels que la gamme de température, la fréquence d'acquisition, l'émissivité de l'échantillon ou encore la température apparente réfléchiée. Les deux premiers paramètres doivent être renseignés lors de la mesure et ne peuvent plus être changés lors du traitement. L'émissivité a été fixé dans la caméra à 0,95, ce qui correspond à une moyenne entre les valeurs déterminées expérimentalement pour le bois vierge (Tableau 2-5) et pour le résidu charbonneux relevé dans la littérature [54].

En ce qui concerne la température apparente réfléchie, elle représente la température des objets rayonnants situés dans l'avant-plan de la caméra qui se réfléchissent sur la zone de mesure dans la direction de la caméra. Pour une mesure de température d'une plaque de chêne soumise à une densité de flux de 25 kW/m², nous avons fait varier la température réfléchie de 20 à 200°C en prenant cinq valeurs : 20°C, 30°C, 40°C, 100°C et 200°C. La Figure B.5 présente les résultats obtenus. Pour une température réfléchie variant entre 20 et 40°C, on observe une faible influence de ce paramètre sur la mesure de température. On observe en effet un écart maximal de 3,3°C. Ce faible écart est dû à une émissivité élevée des plaques de bois qui engendrent une faible influence de la température apparente réfléchie. En revanche, pour des valeurs de température réfléchie de 100 et 200°C, la variation sur la mesure de température est beaucoup plus importante, notamment sur la température maximale atteinte par la plaque de chêne. On observe en effet une variation de 36°C sur la température maximale entre des températures apparentes réfléchies de 20°C et 100°C. Toutefois, il est peu probable que la température réfléchie soit supérieure à 50°C, nous avons donc décidé de fixer sa valeur à 20°C, température correspondante aux recommandations données par le constructeur.

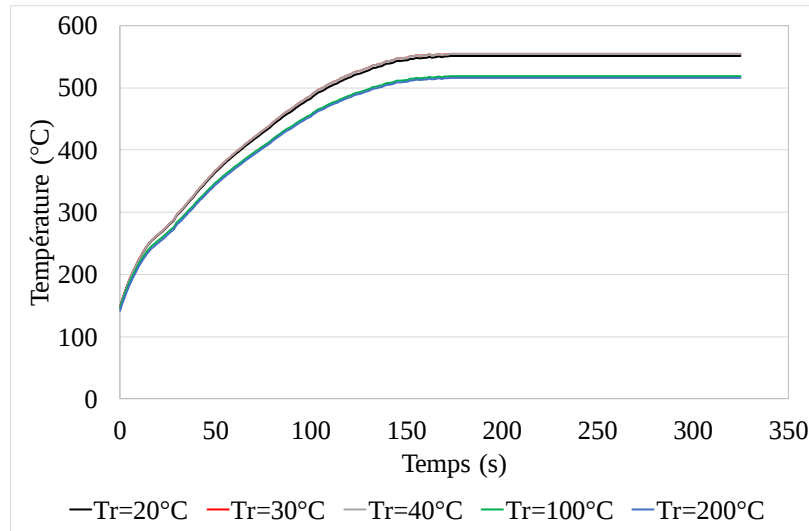


Figure B.5 : Influence de la température apparente réfléchie par l'échantillon sur la mesure de température par caméra infrarouge.

Annexe C. Modélisation de la densité de flux issue du cône chauffant et reçue à la surface d'un échantillon

Cette annexe a pour objectif de déterminer la densité de flux moyenne reçue par la surface des plaques de bois lors des expériences sous le cône calorimètre. La littérature ayant mis en évidence l'inhomogénéité de la densité de flux produite par les cônes calorimètres, nous avons étudié cette variabilité pour notre dispositif expérimental. Cette annexe présente ainsi les densités de flux mesurées à différentes hauteurs sous le cône chauffant ainsi que le modèle utilisé pour calculer la densité de flux moyenne reçue à la surface des plaques lors des expériences sous le cône calorimètre.

1. Densité de flux reçue à différentes hauteurs sous le cône calorimètre

Les Figure C.1 et Figure C.2 présentent la densité de flux mesurées à 25 et 40 mm sous le cône chauffant tous les centimètres le long du diamètre du cône entre -5 et 5 cm autour du centre. La densité de flux varie peu sur un diamètre de 2 cm autour du centre (variation moyenne entre les densités de flux et les espacements de 0,9 %). Par contre, au-delà de 3 cm, on observe une décroissance du flux quasi linéaire. Pour ces densités de flux, la décroissance varie respectivement entre 3,6 et 3,9 % et entre 10,9 et 11,7 %, à 25 et 40 mm ce qui correspond à un ratio entre la densité de flux mesurée au centre de la plaque et la densité de flux moyenne calculée sur l'ensemble de la plaque de 1,01 à 2 et 23 kW/m² respectivement pour 25 mm et 1,08 pour 40 mm d'espacement et des densités de flux moyennes de 2 et 23 kW/m².

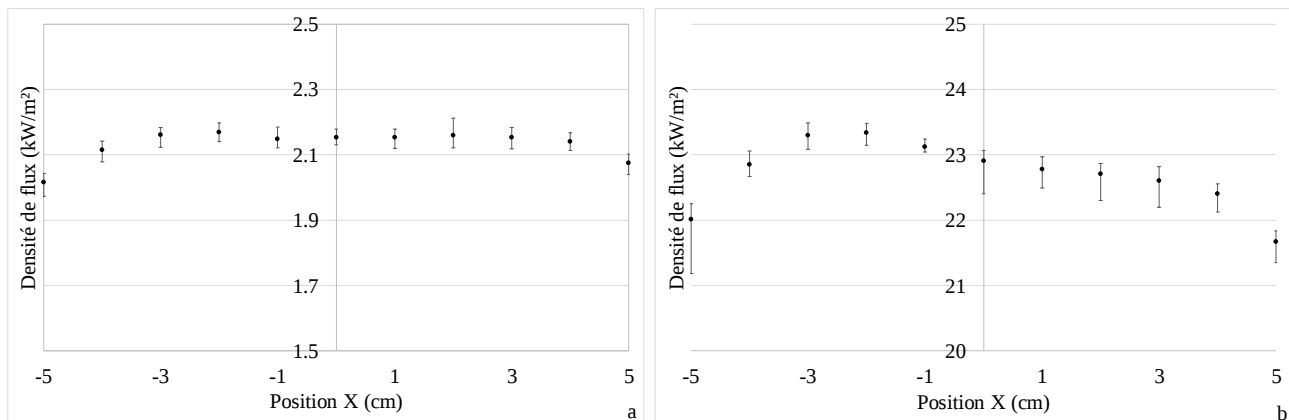


Figure C.1 : Densité de flux reçue à la surface d'une plaque de bois située à 25 mm sous le cône pour une densité de flux au centre de : a) 2,15 kW/m² (température du cône fixée à 197°C) et b) 22,5 kW/m² (température du cône fixée à 571°C).

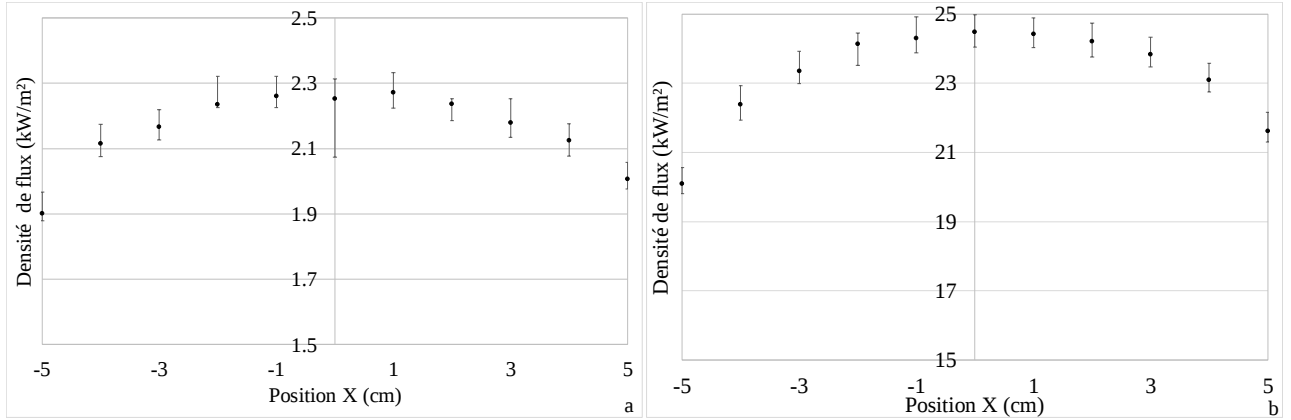


Figure C.2 : Densité de flux reçue à la surface d'une plaque de bois située à 40 mm sous le cône chauffant pour une densité de flux au centre de : a) 2,3 kW/m² (température du cône fixée à 207°C) et b) 24 kW/m² (température du cône fixée à 585°C).

2. Présentation du modèle de transfert radiatif

Pour modéliser la densité de flux reçue à la surface d'un échantillon, nous avons représenté la géométrie de l'échange entre la surface interne d'un élément chauffant conique et une zone élémentaire dA_1 située à la surface des plaques de bois [167] (Figure C.3). On note a la distance entre l'élément dA_1 et l'axe du cône chauffant, r_1 et r_2 les rayons supérieur et inférieur du cône chauffant ($r_1 = 40$ mm et $r_2 = 80$ mm), h_a la hauteur du cône chauffant ($h_a = 80$ mm), et z la distance verticale entre la base inférieure du cône chauffant et la surface de l'échantillon.

Le facteur de vue entre l'élément différentiel dA_1 et la surface S_2 noté $F_{dA_1-S_2}$ s'exprime de la façon suivante [207] :

$$\text{Pour } a \neq 0, F_{dA_1-S_2} = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{1+H_2^2-R_2^2}{\sqrt{Z_2^2-4R_2^2}} \right) \quad (C.1)$$

$$\text{Pour } a = 0, F_{dA_1-S_2} = \frac{r_2^2}{z^2+r_2^2} \quad (C.2)$$

$$\text{Avec } H_2 = \frac{z}{a}, R_2 = \frac{r_2}{a} \text{ et } Z_2 = 1 + H_2^2 + R_2^2$$

De même, le facteur de vue entre l'élément dA_1 et la surface S_1 noté $F_{dA_1-S_1}$ est donné par :

$$\text{Pour } a \neq 0, F_{dA_1-S_1} = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{1+H_1^2-R_1^2}{\sqrt{Z_1^2-4R_1^2}} \right) \quad (C.3)$$

$$\text{Pour } a = 0, F_{dA_1-S_1} = \frac{r_1^2}{(z+h_a)^2+r_1^2} \quad (C.4)$$

$$\text{Avec } H_1 = \frac{h_a+z}{a}, R_1 = \frac{r_1}{a} \text{ et } Z_1 = 1 + H_1^2 + R_1^2$$

Le facteur de vue entre l'élément dA_1 et la surface S_3 est obtenu à partir des autres facteurs de vue par :

$$\text{Pour } a \neq 0, F_{dA_1-S_3} = F_{dA_1-S_2} - F_{dA_1-S_1} = \frac{1}{2} \left[\left(1 - \frac{1+H_2^2-R_2^2}{\sqrt{Z_2^2-4R_2^2}} \right) - \left(1 - \frac{1+H_1^2-R_1^2}{\sqrt{Z_1^2-4R_1^2}} \right) \right] \quad (C.5)$$

$$\text{Pour } a = 0, F_{dA_1-S_3} = F_{dA_1-S_2} - F_{dA_1-S_1} = \frac{r_2^2}{z^2+r_2^2} - \frac{r_1^2}{(z+h_a)^2+r_1^2} \quad (C.6)$$

Finalement, la densité de flux de chaleur à la surface des plaques de bois peut être reliée à la température du cône T_c par :

$$\dot{q}_e'' = \epsilon_{cone} \sigma T_c^4 F_{dA_1-S_3} \quad (C.7)$$

Avec ϵ_{cone} l'émissivité du cône prise égale à 0,99 d'après [167].

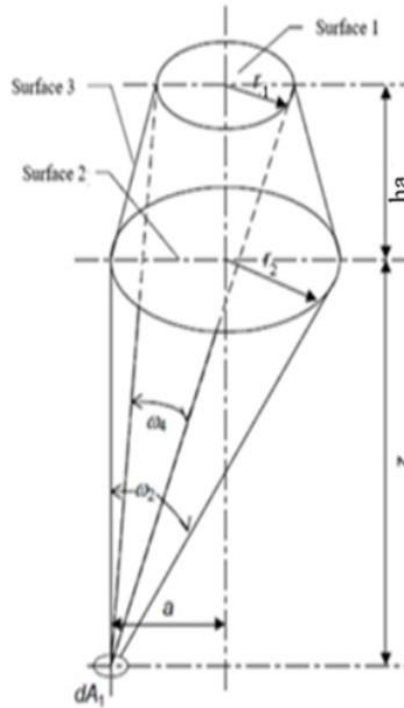


Figure C.3 : Géométrie de l'échange radiatif entre la surface interne du cône chauffant (surface 3) et une surface élémentaire dA_1 , située en regard.

3. Calcul de la densité de flux moyenne reçue à la surface d'un échantillon

Afin de s'assurer de la validité du modèle présenté ci-dessus, nous avons comparé les résultats obtenus numériquement et expérimentalement. Pour cela, nous avons utilisé deux expériences :

- les mesures obtenues à $z = 25$ mm avec une température imposée de $T_c = 197^\circ\text{C}$ pour le cône chauffant.
- Les mesures obtenues à $z = 50$ mm avec une température imposée de $T_c = 635^\circ\text{C}$ pour le cône chauffant.

La Figure C.4 présente une comparaison des valeurs obtenues numériquement et expérimentalement pour ces deux cas. De manière numérique, pour les deux cas simulés, la densité de flux reste constante sur environ 3 cm de part et d'autre du centre du cône chauffant puis décroît ensuite de façon monotone. Pour le premier cas, la densité de flux au centre de l'échantillon est de $2,17 \text{ kW/m}^2$ tandis que celle à 5 cm est de $2,01 \text{ kW/m}^2$ ce qui correspond à une décroissance de 7,5%. Pour le second cas, la densité de flux au centre de l'échantillon est de $24,38 \text{ kW/m}^2$ tandis que celle à 5 cm est de $19,96 \text{ kW/m}^2$ ce qui correspond à une décroissance de 18,1 %.

Expérimentalement, nous obtenons un comportement comparable à celui simulé. La densité de flux est en effet constante sur environ 3 cm de part et d'autre du centre puis décroît ensuite. Pour le premier cas, au niveau du centre, la densité de flux relevée expérimentalement est de $2,15 \pm 0,10 \text{ kW/m}^2$ tandis que celle à 5 cm vaut $2,07 \pm 0,10 \text{ kW/m}^2$. Pour le second cas, au niveau du centre, la densité de flux mesurée expérimentalement est de $24,35 \text{ kW/m}^2$ tandis que celle à 5 cm vaut $20,69 \text{ kW/m}^2$.

Le modèle a donc tendance à sous-estimer les densités de flux reçue par les plaques d'environ 1,6 % pour le premier cas et 0,3 % pour le second cas. Cette variation est vraisemblablement due à l'incertitude concernant la température du cône chauffant. En effet, les spires constituant le cône chauffant n'ont pas toutes la même température [165] et l'écart peut atteindre 20 % entre les températures de la spire la plus chaude et la plus froide pour les températures les plus élevées. Néanmoins, malgré cette incertitude, il semble que le modèle permette d'obtenir de manière satisfaisante la densité de flux à la surface de la plaque et nous l'utiliserons donc par la suite.

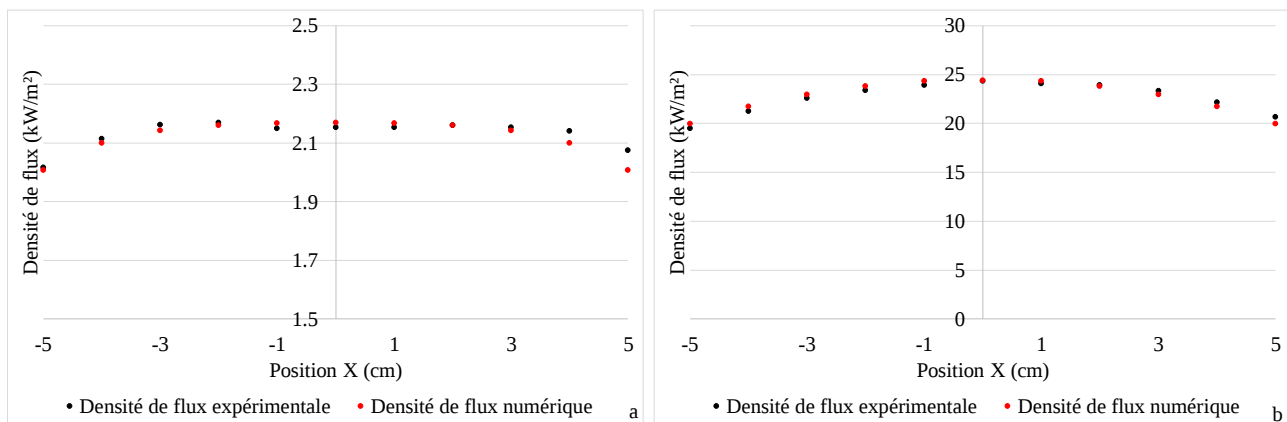


Figure C.4 : Comparaison des densités de flux simulées et expérimentales obtenus à une distance de a) 25 mm pour $T_c = 197^\circ\text{C}$ b) 50 mm pour $T_c = 635^\circ\text{C}$.

4. Calcul de la densité de flux moyenne reçue à la surface d'un échantillon

Pour obtenir une valeur moyenne de la densité de flux impactant la surface des plaques de bois, nous avons calculé le facteur de forme $F_{dA_1-S_3}$ (équation B.6) en prenant un espacement de 5 mm sur l'axe des abscisses et en considérant une symétrie sur l'autre axe, c'est-à-dire que la variation de la densité de flux sur l'axe des ordonnées varie de la même manière que sur l'axe des abscisses. La valeur moyenne de la densité de flux à la surface des plaques a ensuite été obtenue en appliquant la formule suivante :

$$\dot{q}_e'' = \frac{1}{N+1} \sum_{k=0}^N \dot{q}_e''(5k) \quad (C.8)$$

Où $r = 5k$ est la distance en mm du centre vers l'extrémité de la plaque et N le nombre de points où la densité de flux est calculée.

A titre d'exemple, pour une température de cône de 190°C, la densité de flux moyenne calculée est de $\dot{q}_e'' = 2,12 \text{ kW/m}^2$ alors que la valeur au centre de la plaque est de $\dot{q}_e''(0,0) = 2,17 \text{ kW/m}^2$. De même, pour une température de cône de 615°C, la densité de flux moyenne calculée est de $\dot{q}_e'' = 22,93 \text{ kW/m}^2$ alors qu'au centre de la plaque, la valeur est de $\dot{q}_e''(0,0) = 24,38 \text{ kW/m}^2$. La décroissance du flux entre le centre et les bords du cône augmente lorsque la densité de flux augmente.

Annexe D. Temps d'allumage des plaques de bois

Cette annexe présente le raisonnement permettant de déterminer la température d'allumage pour deux types de matériau différents : les matériaux thermiquement fins et thermiquement épais.

1. Matériaux thermiquement fins

Un matériau est considéré comme thermiquement fin lorsqu'il est possible de faire l'approximation qu'à l'intérieur de ce matériau, il n'y a pas de gradient de température. De manière générale, des matériaux ayant une épaisseur inférieure à 1 mm peuvent être traités comme thermiquement fins [208]. Toutefois, cette condition nécessite d'être reliée à la densité de flux de chaleur incident car au-delà d'un certain seuil, cette hypothèse n'est plus valable [172]. Cette approximation est une conséquence de l'absence de gradient thermique à l'intérieur du matériau, la température ne dépend donc que du temps :

$$T(z, t) \sim T(t) \quad (D.1)$$

En appliquant la conservation de l'énergie à un volume de contrôle V du matériau thermiquement fin, on obtient :

$$\frac{d(\rho h)}{dt} V = [\alpha \dot{q}_e'' - h_c(T - T_\infty) - \epsilon \sigma(T^4 - T_\infty^4)] S \quad (D.2)$$

où ρ est la masse volumique du matériau, S la surface exposée à $\dot{q}_e''$ et h l'enthalpie sensible. En supposant que la plaque est sèche et que le niveau de sollicitation thermique est suffisamment faible pour ne pas entraîner de dégradation (ρ constant), on peut écrire :

$$\frac{d(\rho h)}{dt} = \rho \frac{d}{dt} \left[\int_{T_0}^T c_p \cdot dT \right] \quad (D.3)$$

Avec c_p la capacité calorifique du matériau.

L'équation devient :

$$\rho \frac{d}{dt} \left[\int_{T_0}^T c_p \cdot dT \right] e = [\alpha \dot{q}_e'' - h_c(T - T_\infty) - \epsilon \sigma(T^4 - T_\infty^4)] \quad (D.4)$$

Avec e l'épaisseur de l'échantillon, ce qui conduit pour c_p constant à :

$$\rho e c_p \frac{dT}{dt} = \alpha \dot{q}_e'' - h_c(T - T_\infty) - \epsilon \sigma(T^4 - T_\infty^4) \quad (D.5)$$

Cette équation différentielle non-linéaire ne peut pas donner lieu à une solution analytique. Pour éviter cette difficulté, le terme radiatif peut être approximé par une relation linéarisée en utilisant un coefficient effectif h_r :

$$h_r \equiv \frac{\epsilon \sigma (T^4 - T_\infty^4)}{T - T_\infty} \approx 4 \epsilon \sigma T_\infty^3 \quad (D.6)$$

Avec $T - T_\infty$ petit.

En notant h_t le coefficient total de convection défini par $h_t = h_r + h_c$, nous avons :

$$\rho c_p \frac{dT}{dt} = \alpha \dot{q}_e'' - h_t(T - T_\infty) \quad (D.7)$$

L'équation peut être résolue analytiquement et donne :

$$T - T_\infty = \alpha \frac{\dot{q}_e''}{h_t} \left[1 - \exp\left(-\frac{h_t t}{\rho c_p e}\right) \right] \quad (D.8)$$

Pour des matériaux thermiquement fins, de faibles temps d'allumage sont observés. Un développement limité à l'ordre 1 permet d'écrire que : $1 - \exp(-t) \approx t$ pour des petites valeurs de t . Grâce à cette approximation, le temps d'allumage peut alors être déduit de l'équation précédente pour les matériaux thermiquement fins :

$$t_{ig} = \frac{\rho c_p e (T_{ig} - T_\infty)}{\dot{q}_e''} \quad (D.9)$$

2. Matériaux thermiquement épais

Le cas d'un matériau thermiquement épais intervient pour des tailles caractéristiques supérieures à 1 mm. Tout comme pour les matériaux thermiquement fins, cette hypothèse est conditionnée à la densité de flux incidente à laquelle est soumise le matériau [172]. Le gradient de température à l'intérieur du matériau ne peut plus être négligé et la condition aux limites sur la face inférieure a un effet négligeable sur l'allumage [208]. L'équation différentielle régissant l'évolution de la température dépend du temps mais aussi de l'épaisseur du matériau [208] :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha_D \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad (D.10)$$

Où α_D est la diffusivité thermique du matériau.

Avec les conditions aux limites suivantes :

$$\left(-k \frac{\partial T}{\partial x}\right)_{x=0} = \dot{q}_e'' - h_t(T_s - T_\infty) \quad (D.11)$$

$$x = e, T = T_\infty \quad (D.12)$$

Et la condition initiale suivante :

$$t = 0, T = T_\infty \quad (D.13)$$

L'expression suivante de la température est utilisée pour résoudre l'équation D.10 :

$$\frac{T - T_\infty}{T_s - T_\infty} = \theta(\eta) \quad (D.14)$$

$$\text{Où } \eta = \frac{x}{2\sqrt{\alpha_D t}}$$

Grâce à cette relation, on a alors :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = (T_s - T_\infty) \frac{\partial \theta}{\partial \eta} \left(-\frac{\eta}{2t} \right) \quad (D.15)$$

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = (T_s - T_\infty) \frac{\partial^2 \theta}{\partial \eta^2} \left(\frac{1}{2\sqrt{\alpha t}} \right)^2 \quad (D.16)$$

L'équation D.10 devient alors :

$$\frac{d^2 \theta}{d\eta^2} + 2\eta \frac{d\theta}{d\eta} = 0 \quad (D.17)$$

Avec :

$$\eta = 0, \theta = 1 \quad (D.18)$$

$$\eta \rightarrow \infty, \theta = 0 \quad (D.19)$$

La température peut alors s'écrire :

$$T_s - T_\infty = \frac{\dot{q}_e''}{h_t} [1 - \exp(\gamma^2) \operatorname{erfc}(\gamma)] \quad (D.20)$$

$$\text{Où } \gamma = h_t \sqrt{\frac{t}{\lambda \rho c_p}}$$

En utilisant un développement limité à l'ordre 1, on peut faire l'approximation pour γ petit que, $\operatorname{erf}(\gamma) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \gamma$ et $\exp(\gamma^2) = 1 + \gamma^2$.

Le temps d'allumage pour les matériaux thermiquement épais peut alors s'écrire :

$$t_{ig} = \frac{\pi}{4} \lambda \rho c_p \left(\frac{T_{ig} - T_\infty}{\dot{q}_e''} \right)^2 \quad (D.21)$$

Où t_{ig} est le temps d'allumage du matériau et T_{ig} la température d'allumage.

Annexe E. Comparaison de la dégradation thermique de l'eucalyptus sous forme de disque et sous forme de poudre

Cette annexe présente une comparaison de la dégradation thermique de l'eucalyptus sous forme de poudre et sous forme de disque afin de tester l'influence du conditionnement. Les expériences ont été effectuées par le laboratoire des Multimatériaux et interfaces de l'Université de Lyon UMR 5615. Les expériences ont été réalisées à l'aide d'une thermobalance Mettler Toledo avec une vitesse de chauffage de 10°C/min sous atmosphère inerte (azote) et oxydante (l'air de qualité Alphagaz 1 d'Air liquide) pour des valeurs de température comprises entre 150 et 750°C. Pour les échantillons sous forme de poudre ou de disque, une masse initiale de $14,50 \pm 0,50$ mg a été utilisée. Pour chaque type d'expérience, deux répétitions ont été réalisées afin de s'assurer de la bonne reproductibilité des résultats. La Figure E.1 présente les résultats moyens obtenus. Pour les deux conditionnements (poudre et disque) du bois, la dégradation thermique suit la même tendance. On retrouve en effet les quatre étapes de la dégradation. Cependant, les réactions sont légèrement décalées vers les basses températures lorsque la poudre est utilisée. Ce phénomène est en particulier visible pour les réactions correspondant à la dégradation de la cellulose et à l'oxydation du résidu charbonneux. Ce décalage est de l'ordre de 20°C sous air et de 15°C sous azote. Ce décalage est dû au fait que, d'un point de vue thermique, la poudre offre une plus grande surface d'échange et par conséquent, des pertes thermiques plus importantes. La poudre est donc moins vite chauffée dans son ensemble que le disque pour une même vitesse de chauffe. Concernant le pic maximal de vitesse de perte de masse, on observe une valeur supérieure pour les expériences effectuées sous atmosphère inerte que ce soit pour les disques ou pour la poudre (Figure 3.4). Dans la littérature [77,176], c'est le phénomène inverse qui est généralement observé, où le pic maximal de vitesse de perte de masse est plus intense sous air que sous azote. Ce résultat permet de confirmer que le phénomène observé est dû aux espèces de bois et non pas au conditionnement des échantillons.

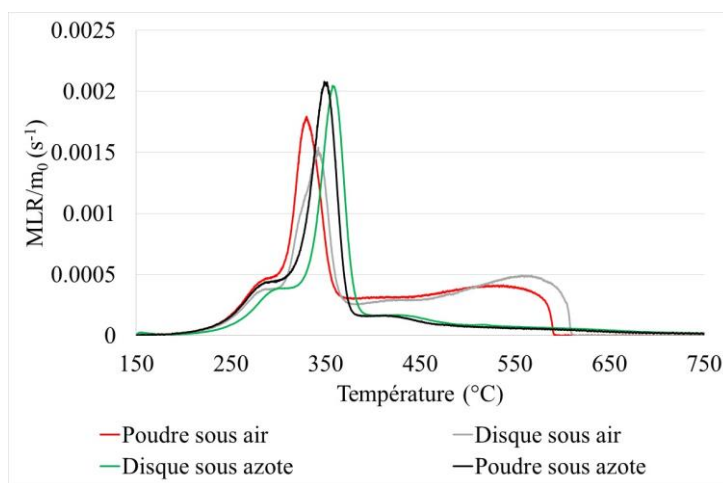


Figure E.1 : Comparaison de la dégradation thermique de l'eucalyptus sous forme de poudre et de disque sous atmosphère inerte et oxydante pour une vitesse de chauffe de 10°C/min.

Annexe F. Courbes de pertes de masse expérimentales et calculées par les différents modèles cinétiques

L'annexe F présente le résultat des simulations sur la perte de masse et la vitesse de conversion des quatre mécanismes réactionnels, pour quatre vitesses de chauffe : 2, 5, 20 et 30°C/min.

1. Mécanisme par constituants

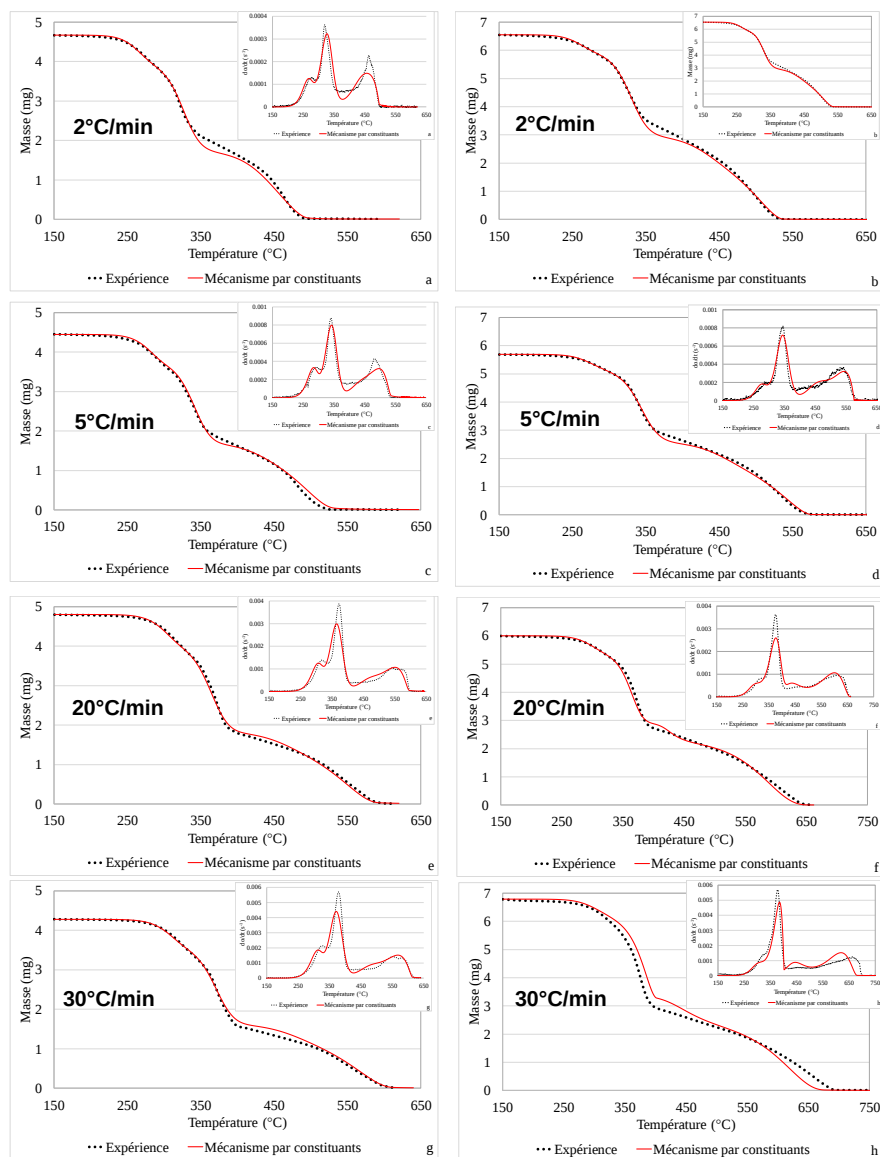


Figure F.1 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme par constituants pour : a et b) chêne et eucalyptus à 2°C/min, c et d) chêne et eucalyptus à 5°C/min, e et f) chêne et eucalyptus à 20°C/min, g et h) chêne et eucalyptus à 30°C/min.

2. Mécanisme global

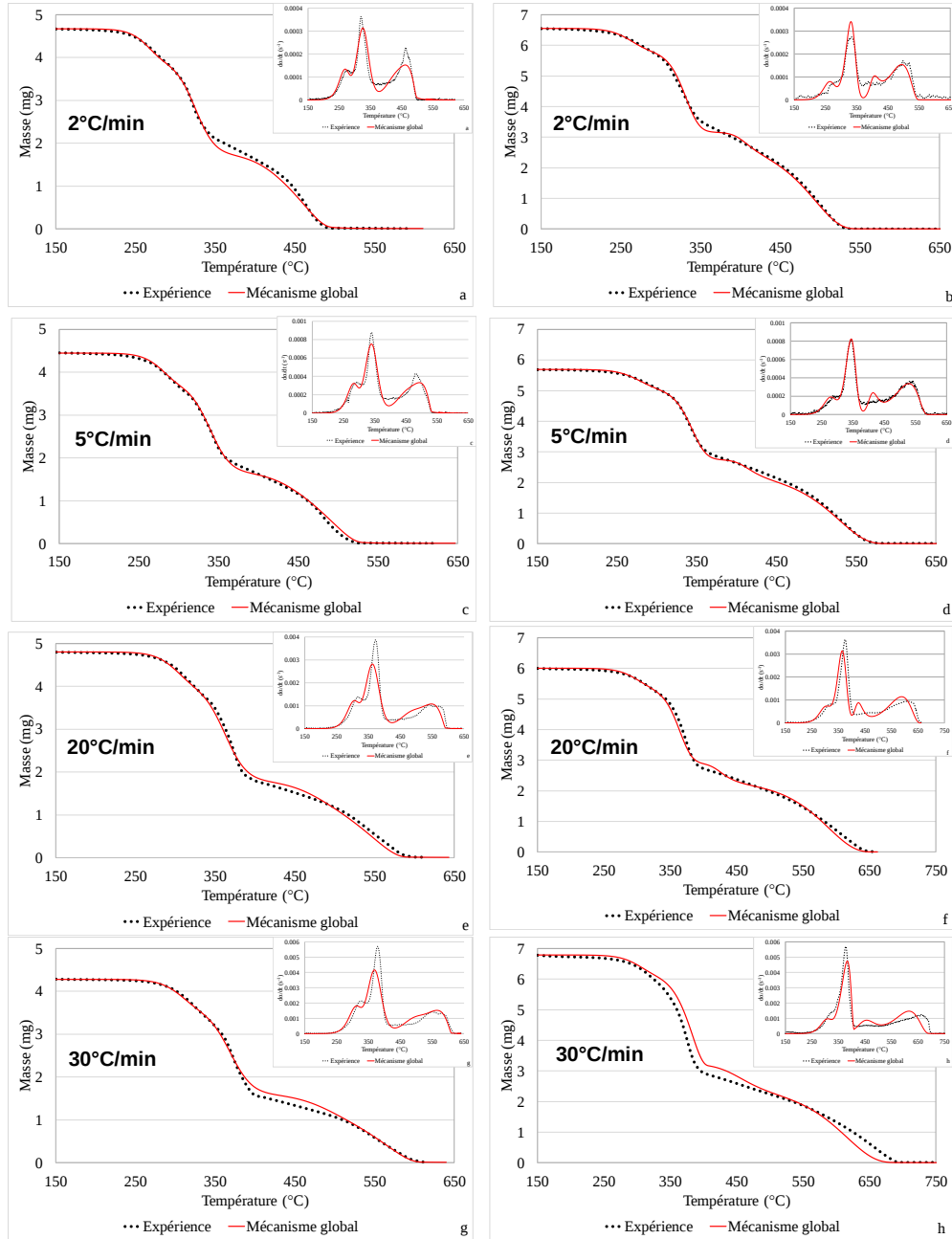


Figure F.2 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme global pour : a et b) chêne et eucalyptus à 2°C/min, c et d) chêne et eucalyptus à 5°C/min, e et f) chêne et eucalyptus à 20°C/min, g et h) chêne et eucalyptus à 30°C/min.

3. Mécanisme actif

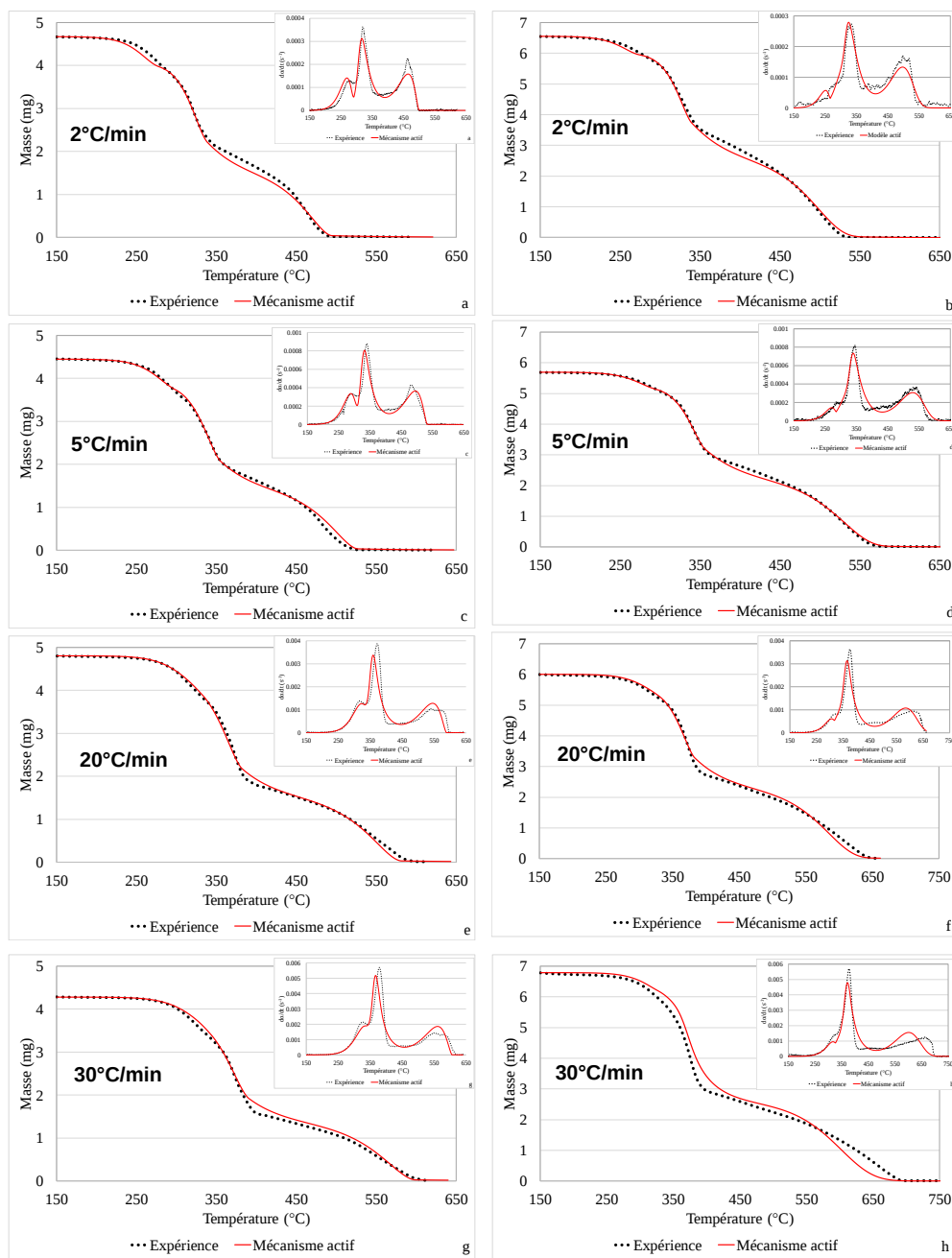


Figure F.3 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme actif pour : a et b) chêne et eucalyptus à 2°C/min, c et d) chêne et eucalyptus à 5°C/min, e et f) chêne et eucalyptus à 20°C/min, g et h) chêne et eucalyptus à 30°C/min.

4. Mécanisme simplifié

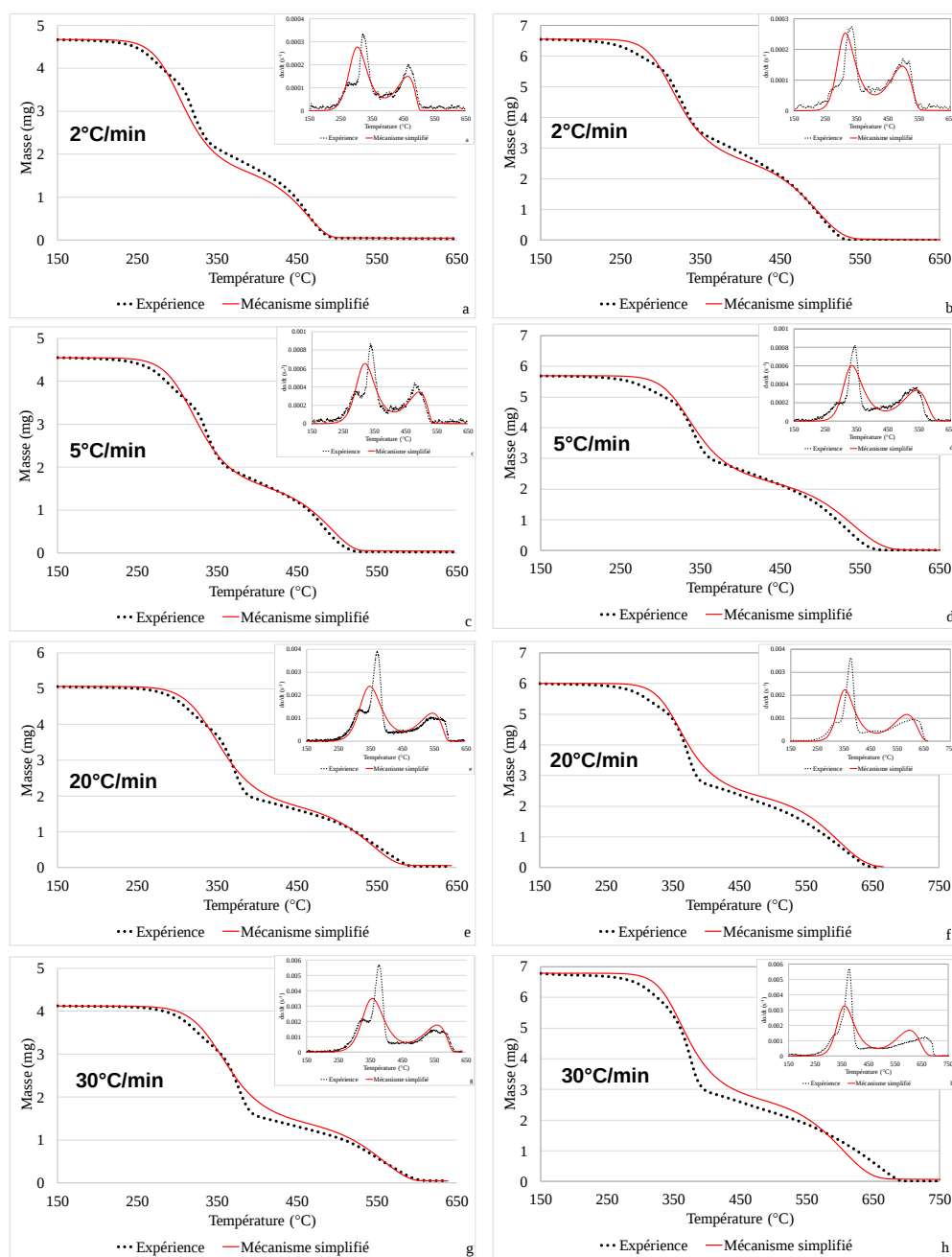


Figure F.4 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme simplifié pour : a et b) chêne et eucalyptus à 2°C/min, c et d) chêne et eucalyptus à 5°C/min, e et f) chêne et eucalyptus à 20°C/min, g et h) chêne et eucalyptus à 30°C/min.

Annexe G. Test des mécanismes cinétiques à l'échelle matériau sur les expériences avec condition adiabatique à la face inférieure des plaques de bois

Cette annexe présente le test des quatre mécanismes réactionnels développés à l'échelle matière sur les expériences réalisées sous le cône calorimètre avec l'utilisation d'une condition adiabatique à la face inférieure des plaques de bois, pour différentes densités de flux imposées : 18, 20, 25 et 27 kW/m².

1. Mécanisme par constituants

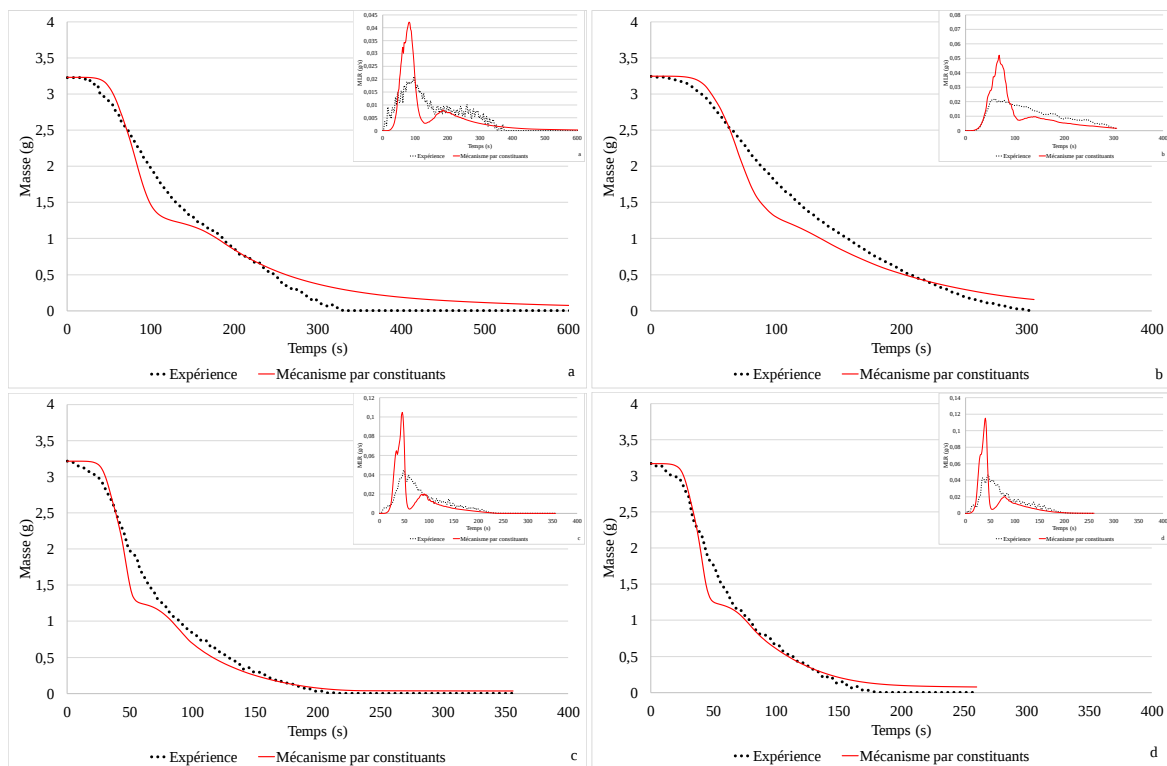


Figure G.1 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme par constituants pour le chêne à : a) 18 kW/m² b) 20 kW/m², c) 25 kW/m² d) 27 kW/m².

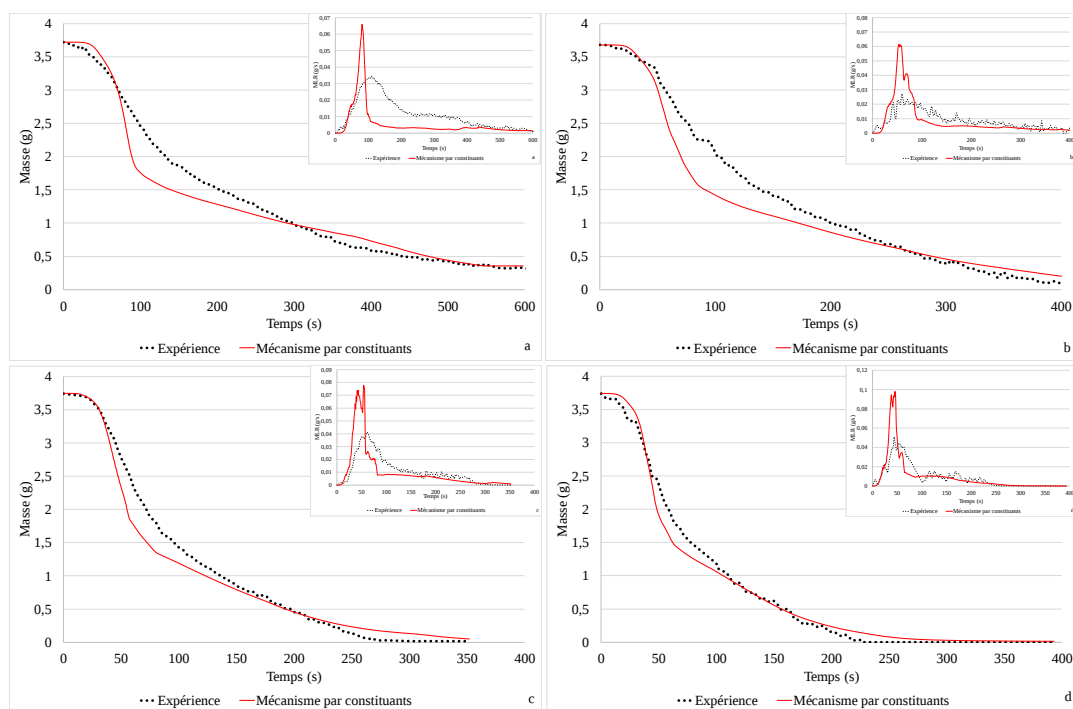


Figure G.2 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme par constituants pour l'eucalyptus à : a) 18 kW/m² b) 20 kW/m², c) 25 kW/m² d) 27 kW/m².

2. Mécanisme global

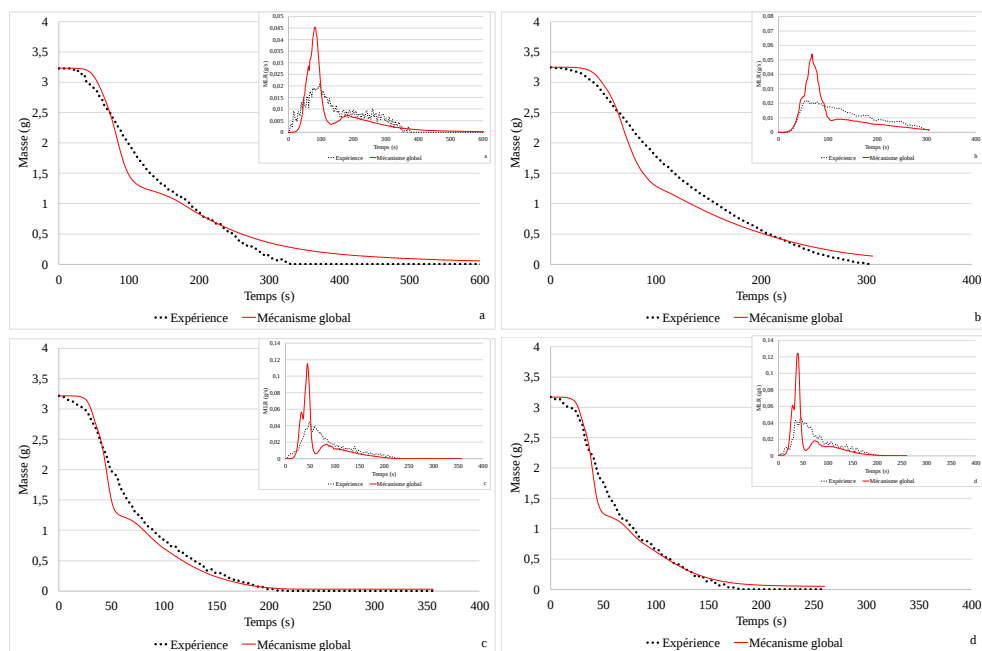


Figure G.3 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme global pour le chêne à : a) 18 kW/m² b) 20 kW/m², c) 25 kW/m² d) 27 kW/m².

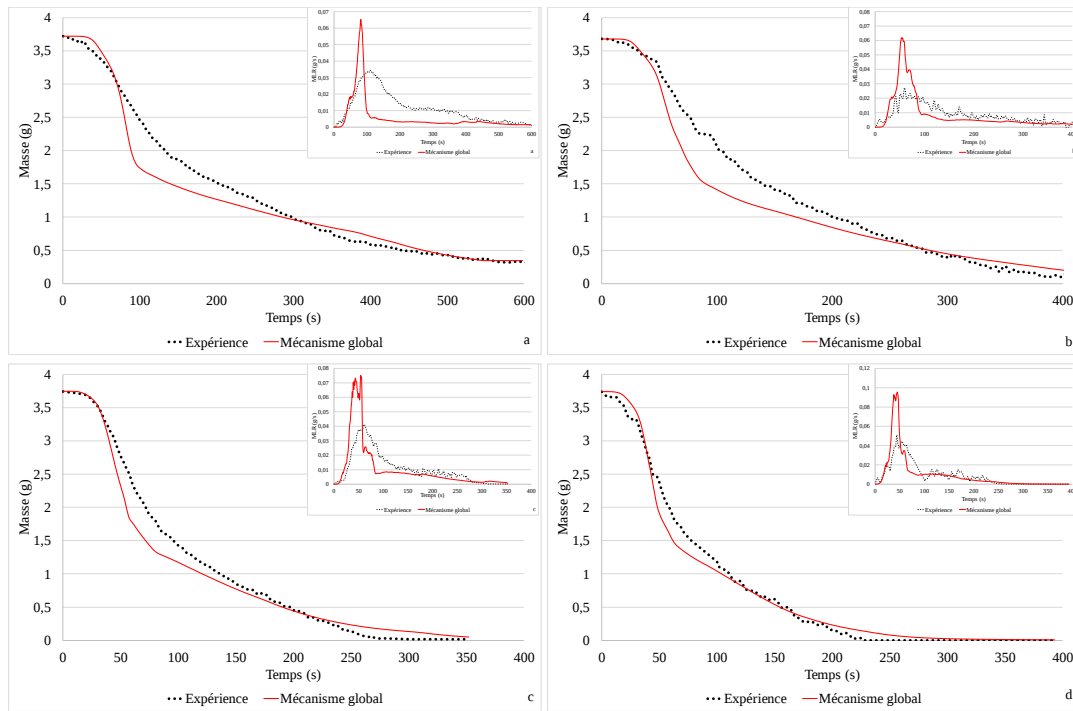


Figure G.4 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme global pour l'eucalyptus à : a) 18 kW/m² b) 20 kW/m², c) 25 kW/m² d) 27 kW/m².

3. Mécanisme simplifié

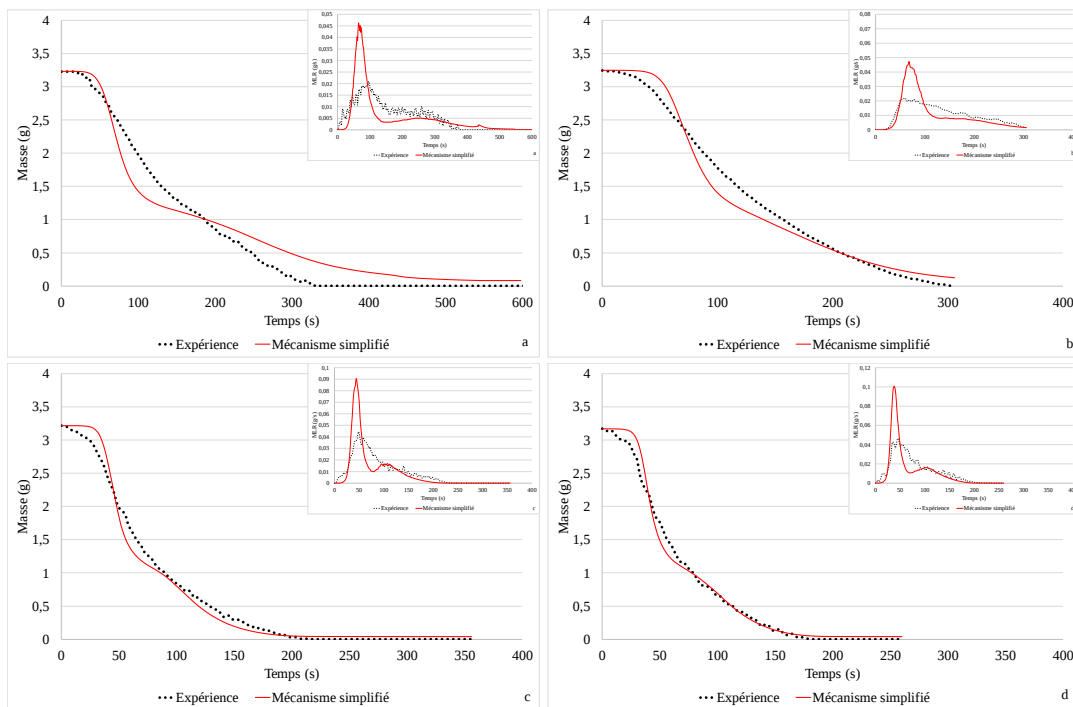


Figure G.5 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme simplifié pour le chêne à : a) 18 kW/m² b) 20 kW/m², c) 25 kW/m² d) 27 kW/m².

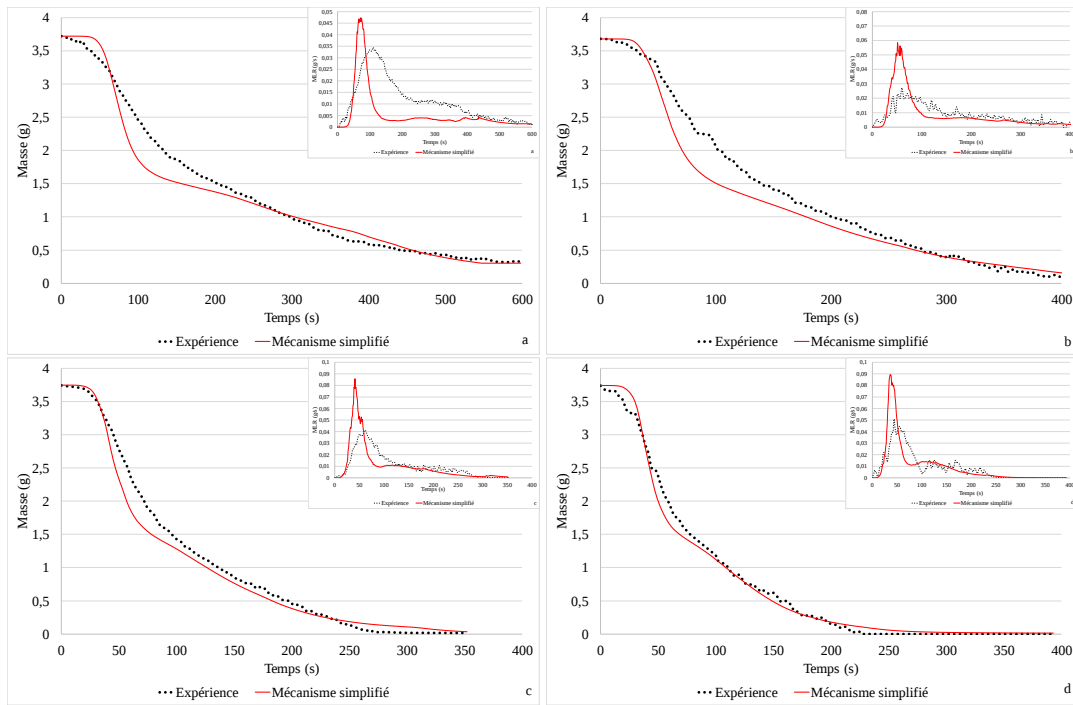


Figure G.6 : Pertes de masse expérimentales et calculées avec le mécanisme simplifié pour l'eucalyptus à : a) 18 kW/m² b) 20 kW/m², c) 25 kW/m² d) 27 kW/m².

Annexe H. Test des mécanismes réactionnels à l'échelle matériau en imposant une condition limite de convection libre à la face inférieure des plaques de bois

Cette annexe présente le test des quatre mécanismes réactionnels développés à l'échelle matière sur les expériences réalisées sous le cône calorimètre avec l'utilisation d'une condition avec pertes convectives à la face inférieure des plaques de bois, pour différentes densités de flux imposées : 21, 23, 25, 27 et 28,5 kW/m². Elle présente également les tableaux donnant les écarts moyens et maximums entre les courbes simulées et expérimentales.

En considérant tous les mécanismes réactionnels, l'écart absolu moyen se situe entre 0,038 et 0,114 g pour le chêne et entre 0,054 et 0,157 g pour l'eucalyptus. Les écarts absolus moyens les plus importants pour les deux bois sont obtenus pour l'approche active à 23 kW/m². En ce qui concerne les écarts maximums, ils sont de manière générale plus importants pour des densités de flux entraînant l'oxydation du résidu charbonneux (à partir de 25 et 27 kW/m² pour le chêne et l'eucalyptus respectivement). Dans ce cas, les écarts absolus maximums varient entre 0,188 et 0,557 g pour le chêne et entre 0,305 et 0,453 g pour l'eucalyptus. Ces écarts se traduisent essentiellement par une surestimation de la perte de masse entre 50 et 100 s où l'ensemble des mécanismes prédit une perte de masse trop rapide par rapport aux données expérimentales. Dans le cas où il n'y a pas d'oxydation du résidu charbonneux, les écarts maximums sont généralement plus faibles et varient entre 0,098 et 0,350 g pour le chêne et entre 0,196 et 0,344 g pour l'eucalyptus. Ils sont généralement plus importants pour l'eucalyptus que pour le chêne. Ces écarts se traduisent par un retard des masses simulées dès le début de la dégradation thermique de l'eucalyptus et une sous-estimation de la perte de masse jusqu'à 100 s. Pour le chêne, ses écarts se retrouvent à la fin de la dégradation où la masse simulée est légèrement sous-estimée.

Comme résumé dans le corps du texte au chapitre 5, en se basant sur l'écart absolu moyen, les meilleures performances sont obtenues avec l'approche par constituants et les moins bonnes avec l'approche simplifiée. Pour chaque mécanisme, de meilleurs résultats sont obtenus pour le chêne que pour l'eucalyptus. Lorsque l'oxydation du résidu charbonneux se produit, les meilleures performances sont obtenues avec l'approche simplifiée et les moins bonnes avec l'approche globale. Quel que soit le mécanisme considéré, de meilleurs résultats sont toujours obtenus pour le chêne que pour l'eucalyptus.

1. Mécanisme par constituants

Tableau H-1 : Ecart absolu moyen et maximum entre les valeurs calculées pour l'approche par constituants et les valeurs expérimentales.

Espèce	Densité de flux (kW/m ²)	Ecart absolu moyen (g)	Ecart absolu maximum (g)
Chêne	21	0,045	0,137
	23	0,062	0,150
	25	0,075	0,298
	27	0,092	0,486
	28,5	0,109	0,557
Eucalyptus	21	0,077	0,204
	23	0,118	0,237
	25	0,054	0,403
	27	0,113	0,372
	28,5	0,109	0,392

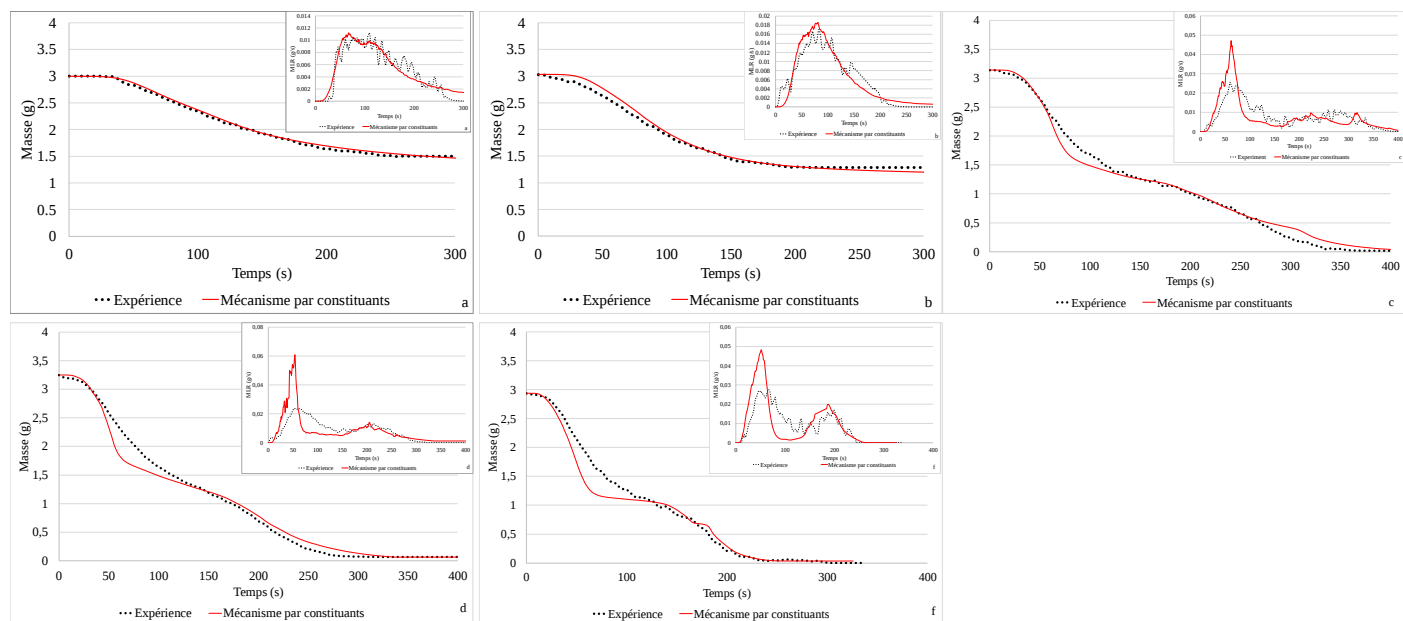


Figure H.1 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme par constituants pour le chêne à : a) 21 kW/m² b) 23 kW/m² c) 25 kW/m² d) 27 kW/m² e) 28,5 kW/m².

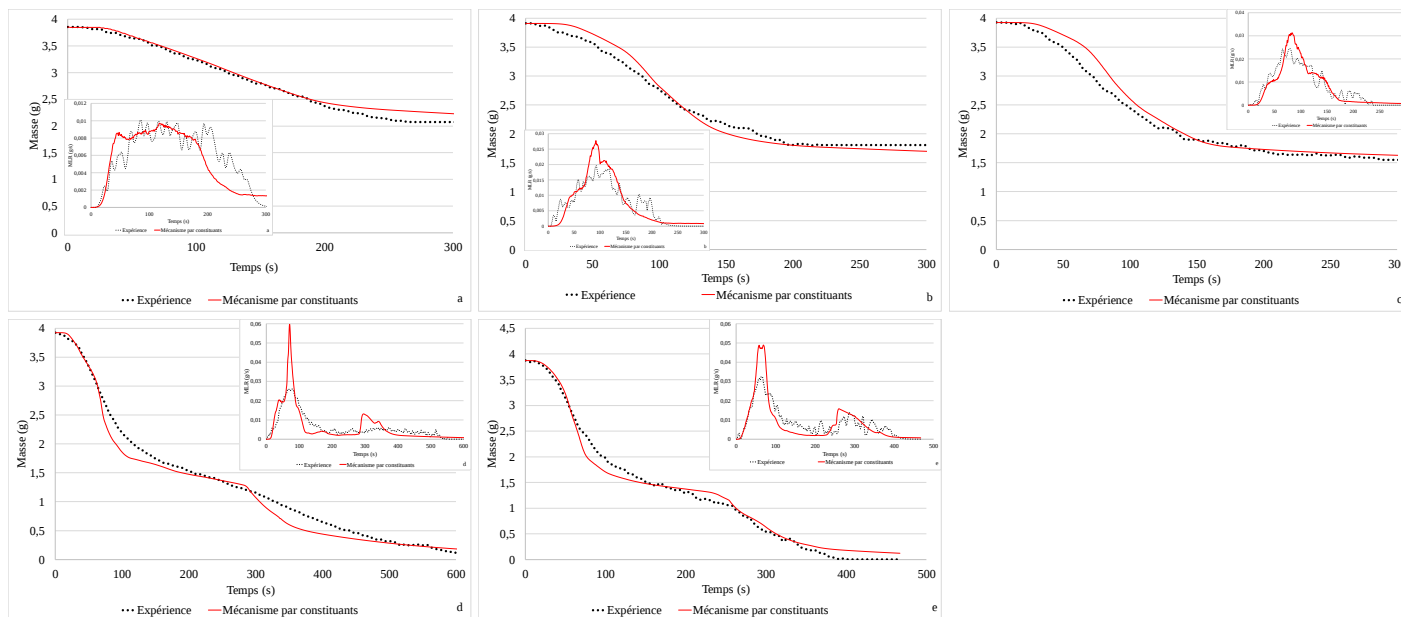


Figure H.2 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme par constituants pour l'eucalyptus à : a) 21 kW/m² b) 23 kW/m² c) 25 kW/m² d) 27 kW/m² e) 28,5 kW/m².

2. Mécanisme global

Tableau H-2 : Ecart absolu moyen et maximum entre les valeurs calculées par l'approche globale et les valeurs expérimentales.

Espèce	Densité de flux (kW/m ²)	Ecart absolu moyen (g)	Ecart absolu maximum (g)
Chêne	21	0,050	0,126
	23	0,069	0,155
	25	0,071	0,286
	27	0,090	0,482
	28,5	0,108	0,552
Eucalyptus	21	0,084	0,196
	23	0,117	0,252
	25	0,060	0,419
	27	0,116	0,388
	28,5	0,099	0,405

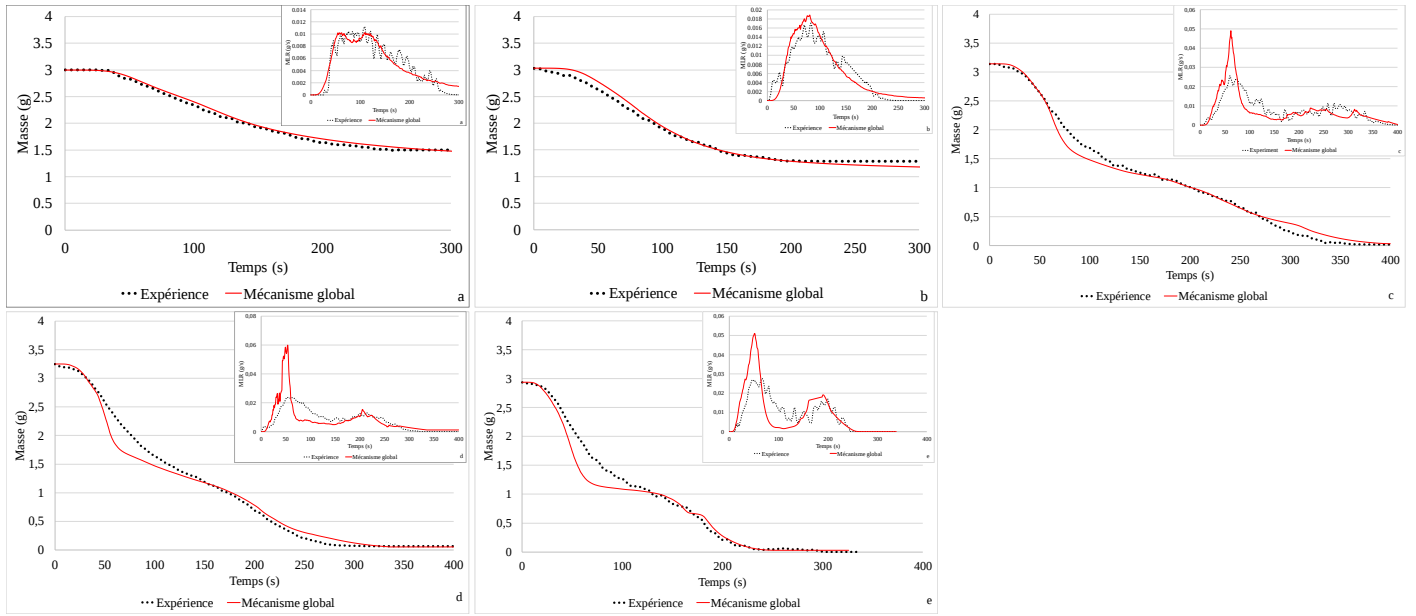


Figure H.3 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme global pour le chêne à : a) 21 kW/m² b) 23 kW/m² c) 25 kW/m² d) 27 kW/m² e) 28,5 kW/m².

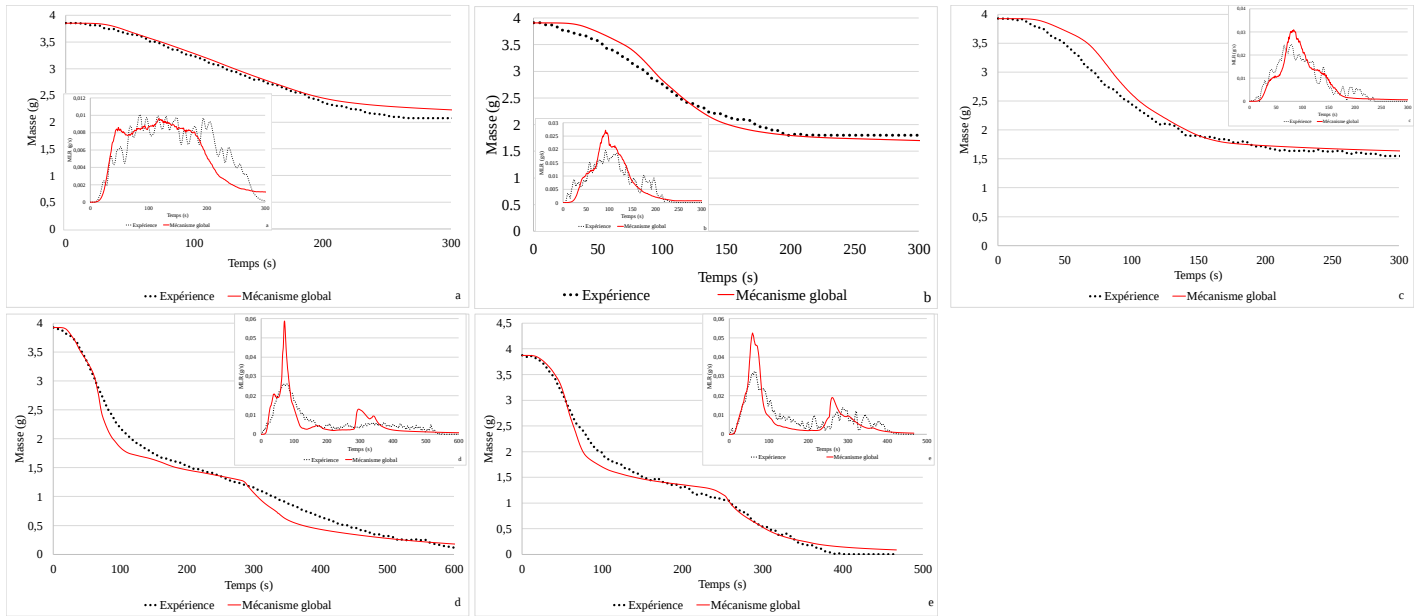


Figure H.4 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme global pour l'eucalyptus à : a) 21 kW/m² b) 23 kW/m² c) 25 kW/m² d) 27 kW/m² e) 28,5 kW/m².

3. Mécanisme actif

Tableau H-3 : Ecart absolu moyen et maximum entre les valeurs calculées par l'approche active et les valeurs expérimentales.

Espèce	Densité de flux (kW/m ²)	Ecart absolu moyen (g)	Ecart absolu maximum (g)
Chêne	21	0,038	0,098
	23	0,114	0,350
	25	0,075	0,244
	27	0,087	0,364
	28,5	0,095	0,473
Eucalyptus	21	0,094	0,209
	23	0,157	0,306
	25	0,056	0,463
	27	0,129	0,443
	28,5	0,123	0,453

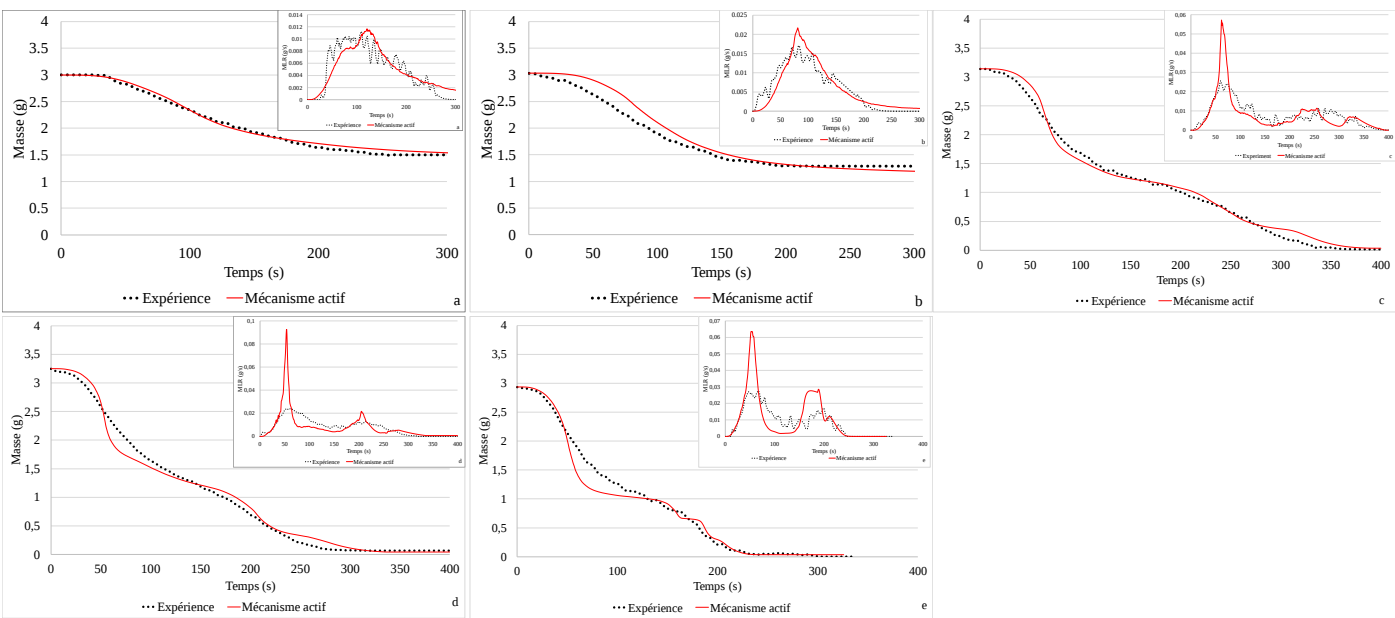


Figure H.5 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme actif pour le chêne à : a) 21 kW/m² b) 23 kW/m² c) 25 kW/m² d) 27 kW/m² e) 28,5 kW/m².

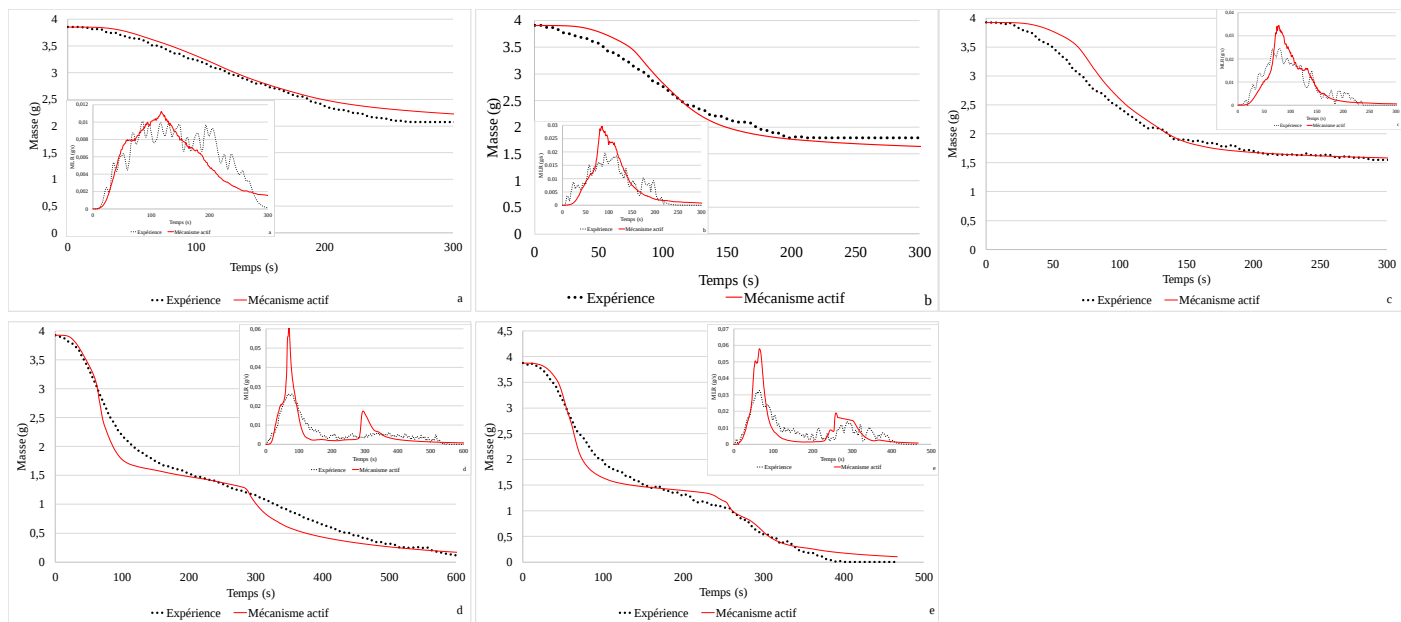


Figure H.6 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme actif pour l'eucalyptus à : a) 21 kW/m² b) 23 kW/m² c) 25 kW/m² d) 27 kW/m² e) 28,5 kW/m².

4. Mécanisme simplifié

Tableau H-4 : Ecart absolu moyen et maximum entre les valeurs calculées par l'approche simplifiée et les valeurs expérimentales.

Espèce	Densité de flux (kW/m ²)	Ecart absolu moyen (g)	Ecart absolu maximum (g)
Chêne	21	0,058	0,139
	23	0,102	0,218
	25	0,073	0,188
	27	0,086	0,263
	28,5	0,075	0,311
Eucalyptus	21	0,098	0,228
	23	0,095	0,344
	25	0,092	0,404
	27	0,110	0,305
	28,5	0,118	0,314

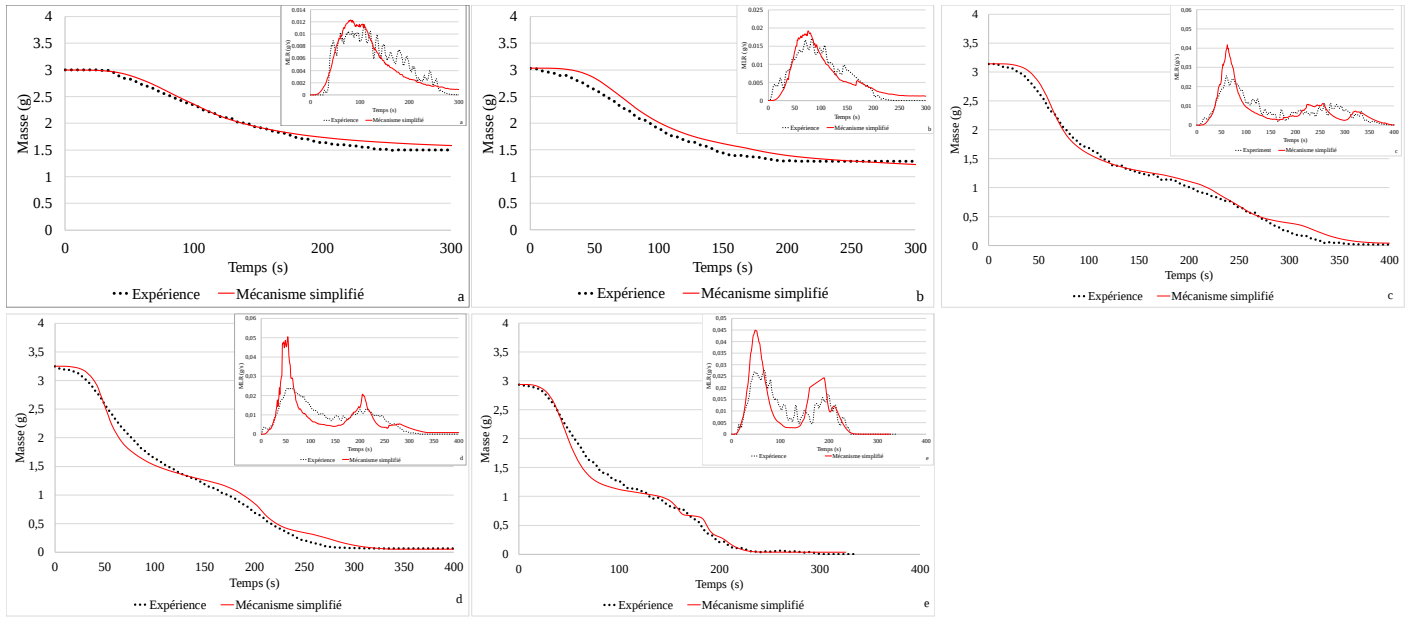


Figure H.7 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme simplifié pour le chêne à : a) 21 kW/m² b) 23 kW/m² c) 25 kW/m² d) 27 kW/m² e) 28,5 kW/m².

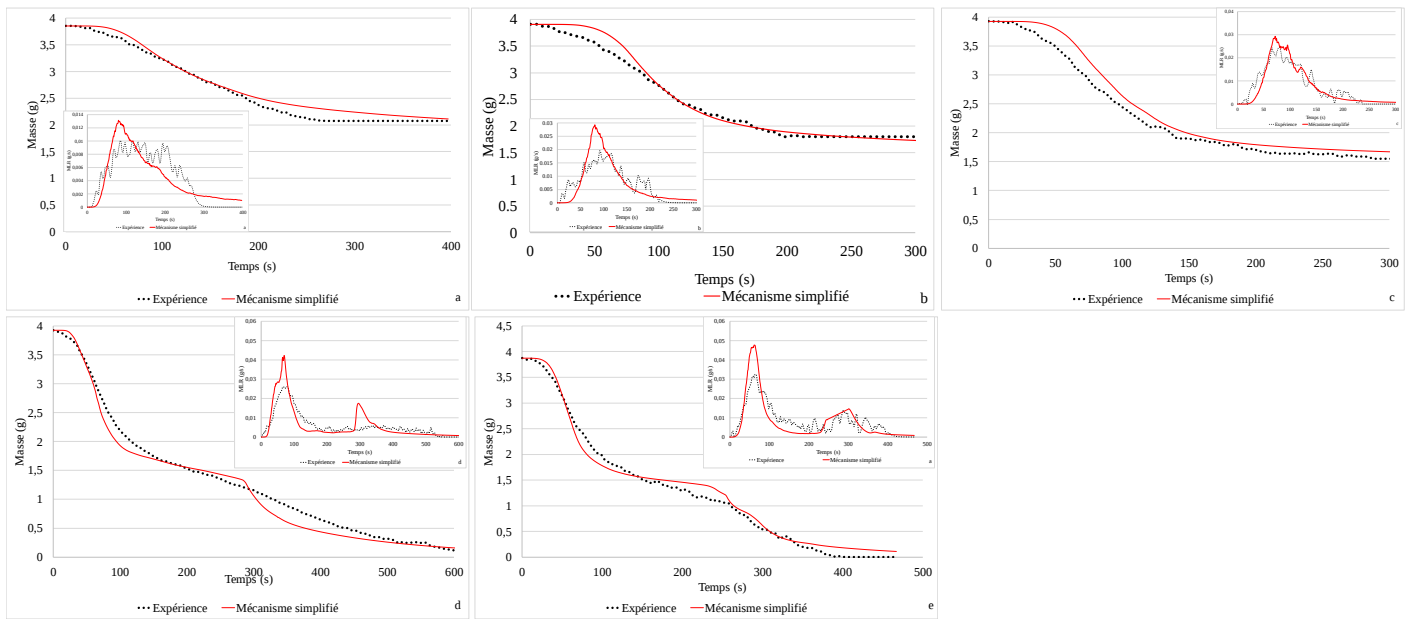


Figure H.8 : Masse et débit massique mesurés et prédits avec le mécanisme simplifié pour l'eucalyptus à : a) 21 kW/m² b) 23 kW/m² c) 25 kW/m² d) 27 kW/m² e) 28,5 kW/m².

Annexe I. Analyse de sensibilité du code GPYRO en 1D aux propriétés thermo-physiques du bois et du résidu charbonneux

Cette annexe présente une analyse de sensibilité du code GPYRO en 1D aux propriétés thermiques du bois et du résidu charbonneux, afin de comprendre leur influence sur la simulation de la dégradation thermique. Nous avons réalisé deux analyses de sensibilité distinctes : la première en utilisant les propriétés thermiques du bois sec comme paramètres d'entrée et la seconde en utilisant les propriétés thermiques du résidu charbonneux. L'étude de sensibilité a été menée en se basant sur les simulations obtenues avec l'approche simplifiée pour la dégradation du chêne à 28,5 kW/m². Différentes grandeurs de sorties ont été observées pour les deux études de sensibilité. Le logiciel MINITAB 19 a été utilisé pour construire le plan d'expérience et pour tracer les diagrammes de Pareto normalisés et les graphes des effets principaux.

1. Analyse de sensibilité aux propriétés thermo-physiques du bois sec

Pour cette étude, nous avons sélectionné trois paramètres d'entrée : le coefficient $n_{c,bois}$ du bois sec, et les coefficients de convection $h_{c,haut}$ et $h_{c,bas}$. Nous n'avons pas étudié l'effet de la capacité calorifique, de la conductivité thermique et du coefficient n_k du bois sec car ces paramètres ont été déterminés de manière expérimentale. En se basant sur la théorie des plans d'expériences, un plan factoriel complet à deux niveaux a été mis en œuvre, ce qui correspond à huit combinaisons. Le Tableau I.1 présente les valeurs utilisées pour chaque paramètre d'entrée. Nous avons considéré une variation de $\pm 20\%$ pour l'ensemble des paramètres testés ($n_{c,bois}$, $h_{c,haut}$ et $h_{c,bas}$). Les interactions entre les paramètres d'entrée n'ont pas été considérées. Six variables de sortie ont été choisies pour étudier l'influence des paramètres sur les simulations : la valeur du premier pic du MLRPUA ($MLRPUA_{max}$), le temps auquel il intervient (t_{max}), le temps d'apparition de la réaction de gazéification (t_1), le temps auquel elle se termine (t_2),

Tableau I-1 : Valeurs basses et hautes des paramètres d'entrée.

Paramètres	Valeur de base	Valeurs basses	Valeurs hautes
$n_{c,bois}$ (-)	2,90	2,32	3,48
$h_{c,haut}$ (W/m ² .K)	12,0	9,6	14,4
$h_{c,bas}$ (W/m ² .K)	6,0	4,8	7,2

Tableau I-2 : Plan d'expériences et valeurs des variables de sortie

Cas	n_c (-)	$h_{c,haut}$ (W/m ² .K)	$h_{c,bas}$ (W/m ² .K)	t_{max} (s)	MLRPUA _{max} (g/m ² .s)	t_1 (s)	t_2 (s)
1	2,32	9,6	4,8	34	3,76	10	106
2	2,32	9,6	7,2	35	3,56	10	114
3	2,32	14,4	4,8	36	3,40	10	123
4	2,32	14,4	7,2	37	3,21	10	136
5	3,48	9,6	4,8	61	2,76	17	152
6	3,48	9,6	7,2	63	2,63	18	163
7	3,48	14,4	4,8	64	2,52	18	173
8	3,48	14,4	7,2	66	2,39	19	189

Les Figures I.1 et I.2 présentent respectivement les diagrammes de Pareto normalisés et les graphes des effets principaux pour MLRPUA_{max}, t_{max} , t_1 , t_2 . Le coefficient $n_{c,bois}$ est le paramètre qui a la plus grande influence sur la gazéification du chêne. Le diagramme de Pareto donne en effet des valeurs respectives de 28 et 80 % pour le MLRPUA_{max}, et t_{max} et des valeurs respectives de 23 et 28 % pour t_1 et t_2 . D'après la Figure I.2, une augmentation du coefficient $n_{c,bois}$ entraîne une augmentation de t_{max} , t_1 et t_2 et une diminution de la valeur maximale du MLRPUA. En effet, sa variation de 2,32 à 3,48 entraîne une augmentation respective de plus de 9 et 50 s de t_1 et t_2 . Le second paramètre qui influence le plus la dégradation thermique est le coefficient de convection de la face supérieure exposée au flux. Son effet est respectivement de 10, 8, 12 et 10 % sur le MLRPUA_{max}, t_{max} , t_1 , t_2 . D'après la Figure I.2, une augmentation du coefficient de convection $h_{c,haut}$ va également entraîner une augmentation de t_{max} et une diminution de la valeur maximale du MLRPUA_{max}. Toutefois, ces variations sont moins significatives que celles engendrées par le coefficient $n_{c,bois}$. En effet, sa variation de 9,6 à 14,4 W/m².K n'entraîne qu'une augmentation respective de 1 et 20 s de t_1 et t_2 , ce qui est respectivement deux et quatre fois moins important qu'une variation du coefficient $n_{c,bois}$ entre ses valeurs limites. Le coefficient de convection de la face inférieure de la plaque de bois est le paramètre qui influence le moins les simulations. Le diagramme de Pareto donne en effet une valeur respective de 5, 5, 8 et 7 % pour le MLRPUA_{max}, t_{max} , t_1 , t_2 . Ce paramètre a peu d'influence sur la position du MLRPUA_{max} mais son augmentation a tendance à faire légèrement diminuer l'intensité du pic de perte de masse. La Figure I.3 présente les courbes de MLRPUA obtenus pour les différents tests. La simulation du cas avec les valeurs de base correspond aux valeurs renseignées dans le Tableau I-1. Pour les cas où un effet de ± 20 % est testé sur une grandeur, les valeurs des autres grandeurs sont égales aux valeurs de base. En plus des effets sur la gazéification, la variation des différents paramètres modifie également l'instant où apparaît l'oxydation du résidu charbonneux. Une augmentation du coefficient de convection de la face inférieure et supérieure de la plaque de bois a tendance à retarder l'apparition de l'oxydation du résidu charbonneux.

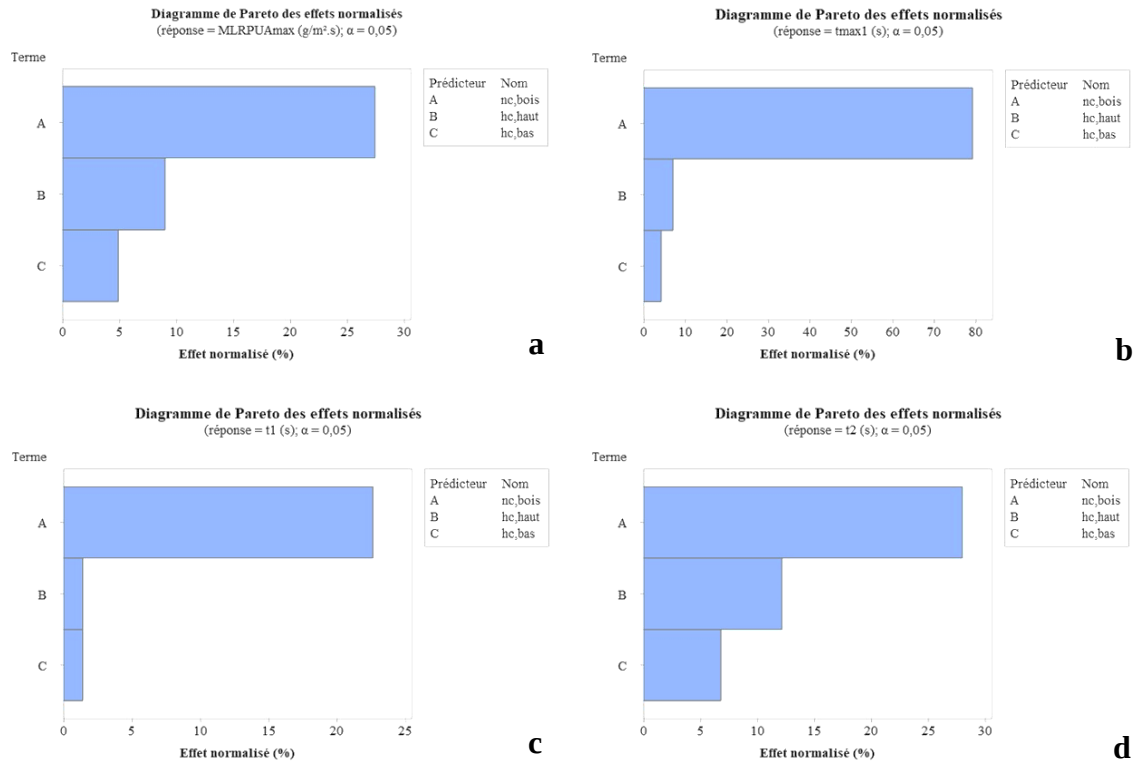


Figure I.1 : Diagrammes de Pareto normalisés associés à : a) MLRPUA_{max}, b) t_{max}, c) t₁, d) t₂.

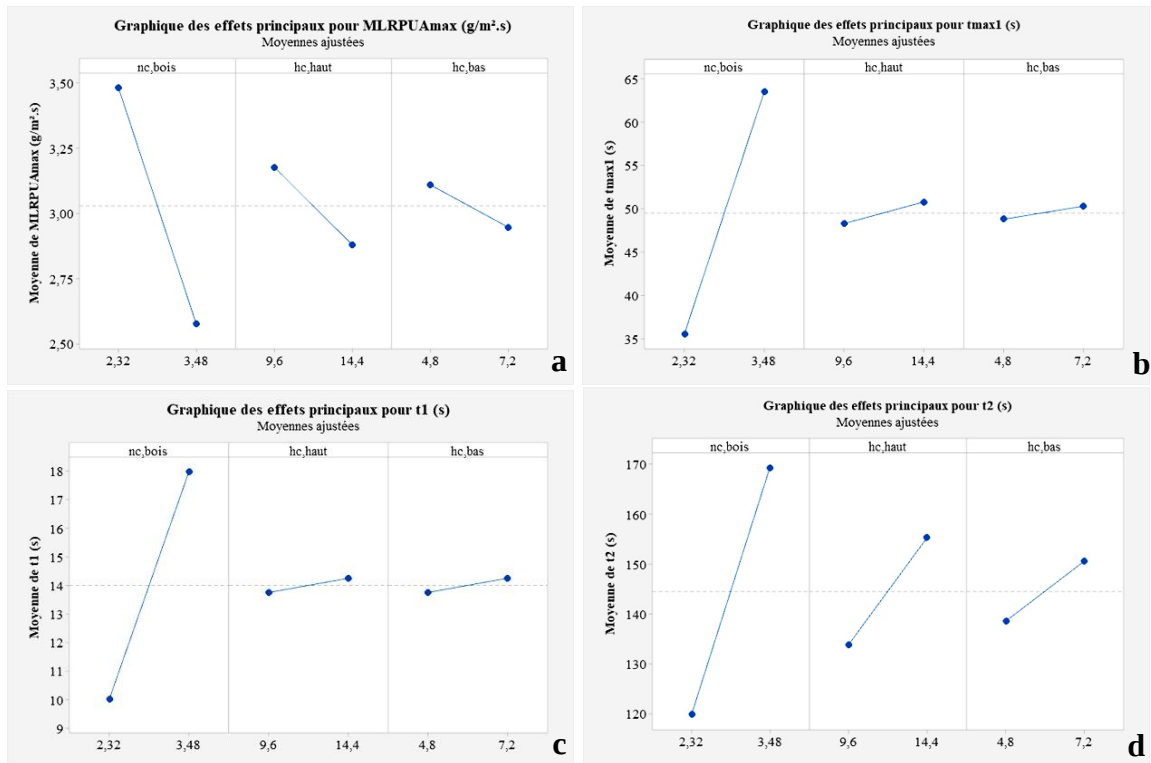


Figure I.2 : Graphes des effets principaux associés à : a) MLRPUA_{max}, b) t_{max}, c) t₁, d) t₂.

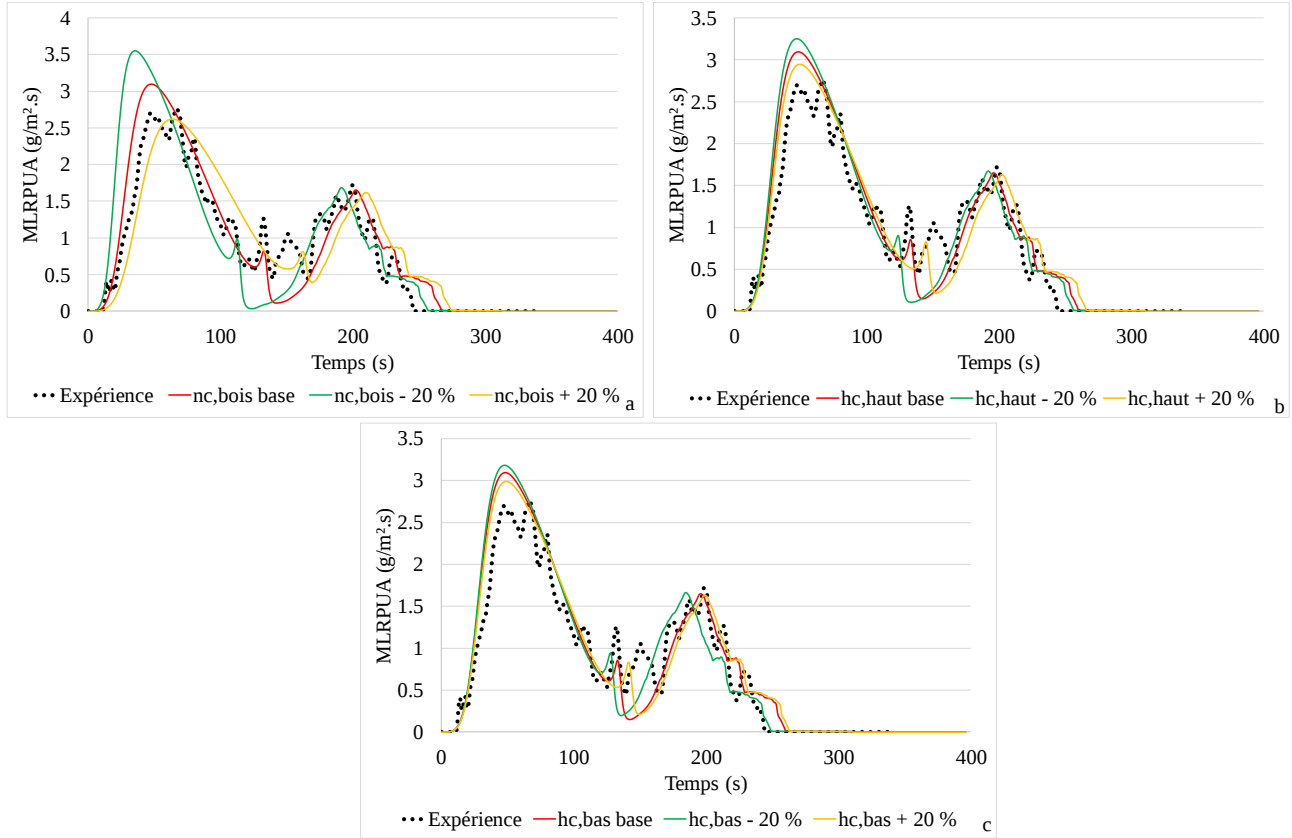


Figure I.3 : Influence d'une variation de $\pm 20\%$ de a) $n_{c,bois}$, b) $h_{c,haut}$, et c) $h_{c,bas}$ sur la dégradation thermique du chêne soumis à une densité de flux de $28,5 \text{ kW/m}^2$.

2. Analyse de sensibilité aux propriétés thermiques du résidu charbonneux

Pour cette étude, nous avons sélectionné quatre paramètres d'entrée associées aux propriétés thermiques du résidu charbonneux : la conductivité thermique k_{char} , le coefficient $n_{k,char}$, la capacité calorifique $c_{p,char}$ et le coefficient $n_{c,char}$. Ces propriétés ont été fixées dans les simulations à partir des valeurs rencontrées dans la littérature [54]. Pour cette analyse, un plan factoriel complet à deux niveaux de seize combinaisons a été mis en œuvre. Le Tableau I-3 présente les valeurs utilisées pour chaque paramètre d'entrée. Nous avons considéré une variation de $\pm 20\%$ de la conductivité thermique k_{char} , du coefficient $n_{k,char}$, de la capacité calorifique $c_{p,char}$ et du coefficient $n_{c,char}$. Les interactions entre les paramètres d'entrée n'ont pas été considérées. Deux variables de sortie ont été choisies pour étudier l'influence des paramètres sur les simulations : le temps d'apparition de la réaction d'oxydation du résidu charbonneux t_3 et le temps auquel intervient sa disparition t_4 pour les courbes non convoluées. Le plan d'expérience de cette analyse est présenté dans le Tableau I-4.

Tableau I-3 : Valeurs basses et hautes des paramètres d'entrée.

Paramètres	Valeurs de base	Valeurs basses	Valeurs hautes
k_{char} (W/m.K)	0,10	0,08	0,12
$n_{k,char}$ (-)	1,00	0,8	1,2
$c_{p,char}$ (J/kg.K)	1100	880	1320
$n_{c,char}$ (-)	1,00	0,8	1,2

Tableau I-4 : Plan d'expérience et valeurs des variables de sortie

Cas	k_{char} (W/m.K)	$n_{k,char}$ (-)	$c_{p,char}$ (J/kg.K)	$n_{c,char}$ (-)	t_3 (s)	t_4 (s)
1	0,08	0,8	880	0,8	94	165
2	0,08	0,8	880	1,2	94	165
3	0,08	0,8	1320	0,8	94	165
4	0,08	0,8	1320	1,2	95	169
5	0,08	1,2	880	0,8	93	161
6	0,08	1,2	880	1,2	93	163
7	0,08	1,2	1320	0,8	93	163
8	0,08	1,2	1320	1,2	94	167
9	0,12	0,8	880	0,8	92	161
10	0,12	0,8	880	1,2	93	163
11	0,12	0,8	1320	0,8	93	163
12	0,12	0,8	1320	1,2	93	167
13	0,12	1,2	880	0,8	91	159
14	0,12	1,2	880	1,2	92	162
15	0,12	1,2	1320	0,8	92	162
16	0,12	1,2	1320	1,2	92	165

Les Figures I.4 et I.5 présentent respectivement les diagrammes de Pareto normalisés et les graphes des effets principaux pour t_3 et t_4 . En analysant les effets des propriétés du résidu charbonneux sur son oxydation, à l'inverse de ce qu'il se produisait pour la première étude, il n'y a pas de paramètres prédominants influençant l'ensemble des variables de sorties observées. Toutefois, la conductivité thermique est le facteur qui influence le plus l'apparition de l'oxydation du résidu charbonneux avec un effet de 10 % sur le diagramme de Pareto. On trouve ensuite le coefficient $n_{k,char}$ avec un effet de 6 %. La capacité calorifique du résidu charbonneux et le coefficient $n_{c,char}$ viennent enfin avec des valeurs de 3,7 %. Par contre, la capacité calorifique du résidu charbonneux et le coefficient $n_{c,char}$ sont tous les deux les paramètres influençant le plus la fin de l'oxydation du résidu charbonneux avec une valeur de 6 % sur le diagramme de Pareto. Les paramètres relatifs à la conductivité thermique (de k_{char} et $n_{k,char}$) viennent ensuite avec une valeur de 4,7 %. D'après la Figure I.5, une augmentation de k_{char} et $n_{k,char}$ entraîne une diminution de t_3 et t_4 tandis qu'une augmentation de $c_{p,char}$ et $n_{c,char}$ entraîne une augmentation de t_3 et t_4 . Toutefois, comme le montre la Figure I.6, l'ensemble des propriétés thermiques du résidu charbonneux a une faible influence sur son oxydation. Par exemple, une variation de la conductivité thermique de 0,08

à 0,12 W/m.K entraîne seulement une diminution respective de 1,5 et 2,5 s de t_1 et t_2 ce qui est très faible. Ainsi, dans la plage de variation analysée, les propriétés thermiques du résidu carbonneux ont un effet très faible sur son oxydation.

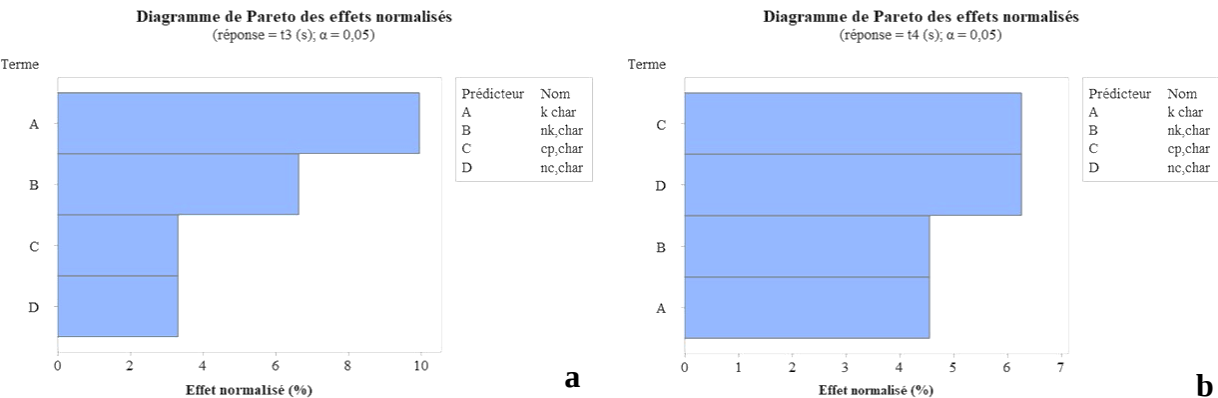


Figure I.4 : Diagrammes de Pareto normalisés associés à : a) t_3 et b) t_4

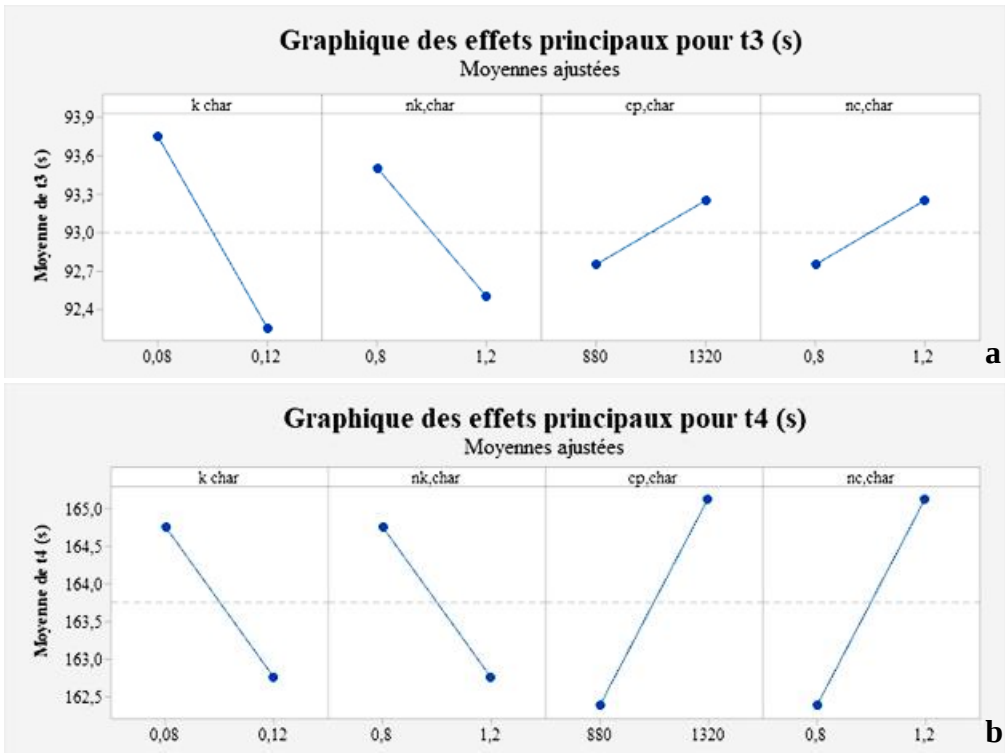


Figure I.5 : Graphes des effets principaux associés à : a) t_3 et b) t_4 .

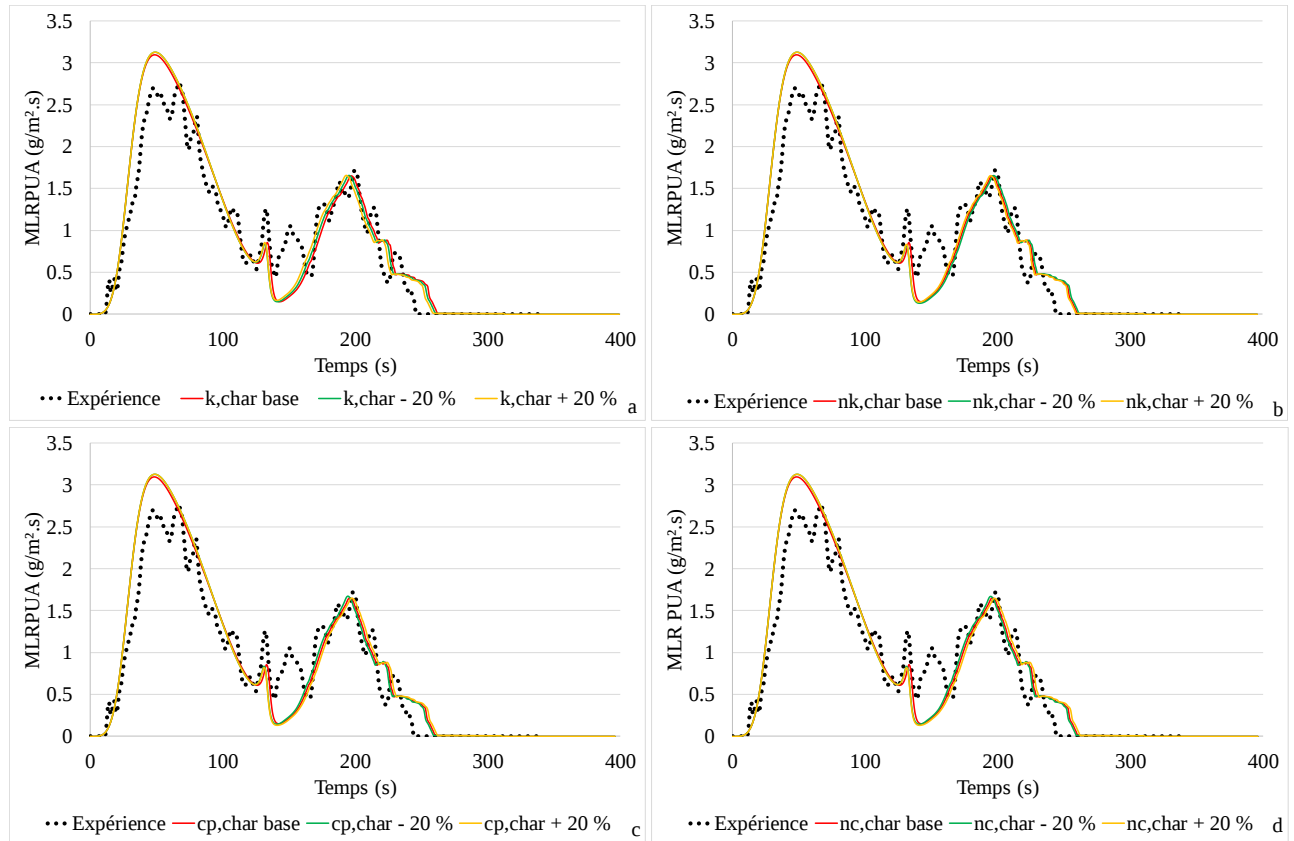


Figure I.6 : Influence d'une variation de $\pm 20\%$ a) de la conductivité thermique k_{char} b) du coefficient $n_{k, char}$ c) de la capacité calorifique massique $c_{p, char}$ et d) du coefficient $n_{c, char}$ - sur la dégradation thermique du chêne soumis à une densité de flux de $28,5 \text{ kW/m}^2$.

Summary

This Ph-D work was done in order to better understand the thermal degradation mechanisms of fuels for fires. The aim was to study the thermal degradation of wood plates by using a multi-scale approach.

The thermal degradation of two kinds of wood: white oak (*Quercus alba*) and common eucalyptus (*Eucalyptus globulus*) was first investigated at matter scale where samples with weak weight were heated with a thermogravimetric analyzer. Results showed that the thermal degradation of these two kinds of wood could be represented by four steps. From these experimental observations, four kinetic mechanisms were developed: the constituent mechanism, the lumped mechanism, the active mechanism and the simplified mechanism. The kinetic parameters were determined by optimization using the gradient descent algorithm method. The simulations showed that all mechanisms were capable to represent the mass loss of oak and eucalyptus at the different heating rates investigated. The best performance was obtained by the lumped mechanism and the least one by the simplified mechanism.

The thermal degradation of these two kinds of wood was also investigated at material scale using a cone calorimeter and thermally thin and thick wood plates. Heat flux densities varying between 18 and 28.5 kW/m² were imposed at the top of the fuel sample in order to avoid the auto-ignition of wood. Two boundary conditions were imposed at the back face of the wood plates. The wood temperature was recorded by thermocouples and an infrared camera. These experimental measurements showed that the higher the heat flux, the faster the mass loss and increase of temperature. Moreover, the char oxidation revealed a two-dimensional front that spread at the surface of the wood plates over time.

The thermal degradation of the wood was finally studied numerically. By using the thermally thin wood plates and the experimental temperature field, in order to avoid the evaluation of the thermal properties, the mechanisms developed at matter scale were validated. At this scale, the performance of the different mechanisms is very close. A numerical study was performed with GPYRO in order to predict the temperature and the mass loss for the fine plates. The results were satisfying, thanks to an optimization of the thermal properties of wood and a convolution to represent the two-dimensional phenomenon. For the thermally thick wood plates, the four step kinetic mechanisms allowed to represent the mass loss during the gasification stage but did not enable to predict the whole char oxidation stage.

Keywords: Thermal degradation, degradation mechanism, matter scale, thermogravimetric analyzer, material scale, cone calorimeter, GPYRO.

Riassuntu

Sti travagli di tesi anu par ughjettivu di studià i mecanisimi di sgradazione di u legnu pà migliurà a capiscitura di i modeli ditagliati di a sparghjera di l'incendiu. Sti travagli sò stati realizati annantu à duie spezie di legnu : a leccia è u calitu. Parechje spissezze di legnu sò, anch'edde, state cunsidarate. Stu studiu hè statu compiu ottendu pà una dimarchja à scale parechje. Prima, à a scala di a materia, u legnu hè statu tagliatu in dischi di diametru minore à 5 mm è d'una massa d'un milligrammu. Avemu identificatu una sgradazione termica di a leccia è di u calitu in quattru tappe : trè di edde cuncernanu a trasformazione prugressiva di u legnu in risiduu di carbonu è l'emissione di gasu. In l'ultima tappa, u risiduu di carbonu hè ussidatu in cennare. Stu studiu quì hà ancu fattu ditarminà e legge matematiche chì parmettenu di raprisintà l'evoluzione di a massa di legnu mentre u tempu.

U sicondu studiu s'hè passatu à a scala di u materiale induva u legnu si trova sottu a trinca di placche quadrate incù masse di l'ordine di una pochi di grammi. Dopu, isse plache sò scaldate par via di un flussu di calore impostu à a parte esterna di u pezzu di legnu. L'ughjettivu à sta scala, hè di verificà a validità di e legge matematiche sviluppate à a scala di a materia. Un codice di calculu parmittendu d'assucià i trasferimenti di massa è d'energia hè statu adupratu è hà avutu bisognu di a determinazione di e prupietà termiche di i dui legni. A so utilizzazione hà palisatu una raprisentazione curretta di a sgradazione termica di e placche e più fine, ma ancu a necessità di valutà torna una volta 'sse legge, o di mudificale pà u studiu di e placche di legnu più spesse.

Résumé scientifique

Ces travaux de thèse s'inscrivent dans l'amélioration de la compréhension des mécanismes de dégradation des combustibles pour l'incendie. Ils ont pour objectif d'étudier à travers une approche multi-échelle la dégradation thermique de plaques de bois.

La dégradation thermique de deux types de bois : le chêne blanc (*Quercus alba*) et l'eucalyptus commun (*Eucalyptus globulus*), a tout d'abord été étudiée à l'échelle matière, où des échantillons de faibles masses ont été chauffés dans un analyseur thermogravimétrique. Les résultats ont montré que la dégradation thermique de ces deux bois pouvait se représenter en quatre étapes. A partir de ces résultats expérimentaux, quatre mécanismes réactionnels ont été développés : le mécanisme par constituants, le mécanisme global, le mécanisme actif et le mécanisme simplifié avec seulement deux étapes. Les paramètres cinétiques associés ont été déterminés par optimisation avec un algorithme du gradient descendant. La simulation a révélé que l'ensemble des mécanismes représente de manière efficace la perte de masse des deux bois aux différentes vitesses de chauffe étudiées. La meilleure performance est obtenue par le mécanisme global et la moins bonne par le mécanisme simplifié.

La dégradation thermique des deux bois a également été étudiée à l'échelle matériau à l'aide d'un cône calorimètre. Différentes densités de flux variant entre 18 et 28,5 kW/m² ont été appliquées afin d'éviter l'auto-inflammation du bois. Deux conditions limites ont été imposées à la face inférieure des plaques de bois. La température des plaques de bois a été mesurée par thermocouples et par caméra infra-rouge. Les résultats expérimentaux ont révélé que plus la densité de flux augmente, plus la perte de masse est rapide et la température augmente rapidement. L'oxydation du résidu charbonneux prend dans ce cas l'allure d'un front bidimensionnel qui se propage au cours du temps.

L'étude numérique menée sur les expériences réalisées à l'échelle matériau a permis de valider les mécanismes réactionnels développés à l'échelle matière, en utilisant le champ de température expérimental des plaques de bois fines. A cette échelle, la performance des mécanismes réactionnels est très proche. Une étude unidimensionnelle a été réalisée avec le code GPYRO afin de prédire la température et la perte de masse des plaques thermiquement fines. Les résultats obtenus sont très satisfaisants, grâce à une optimisation des propriétés thermiques du bois et une convolution pour représenter les phénomènes bidimensionnels. Pour les plaques thermiquement épaisses, les mécanismes à quatre étapes permettent de représenter la perte de masse durant la phase de gazéification mais ne permettent pas cependant de prédire la totalité de la phase d'oxydation du résidu charbonneux.

Mots clés : dégradation thermique, mécanisme réactionnel, échelle matière, analyseur thermogravimétrique, échelle matériau, cône calorimètre, GPYRO.