

THÈSE

En vue de l'obtention du Diplôme de Doctorat en Sciences

Présentée par :

SABI Fatima Zohra

Intitulé

*Etude de la transition de phase d'inflammation des combustibles poreux:
Application à la détermination du flux critique pour l'inflammation*

<i>Faculté</i>	<i>Physique</i>
<i>Département</i>	<i>Physique énergétique</i>
<i>Spécialité</i>	<i>Physique</i>
<i>Option</i>	<i>Propriétés électroniques des matériaux</i>

Devant le Jury Composé de :

<i>Membres de Jury</i>	<i>Grade</i>	<i>Qualité</i>	<i>Domiciliation</i>
<i>KAMECHE MOSTEFA</i>	<i>Professeur</i>	<i>Président</i>	<i>USTO-MB</i>
<i>ZEKRI NOUREDINE</i>	<i>Professeur</i>	<i>Encadreur</i>	<i>USTO-MB</i>
<i>OULD KADDOUR FOUZIA</i>	<i>Professeur</i>	<i>Examineur</i>	<i>Univ- Tlemcen A.B. Belkaid</i>
<i>GHAMNIA MOSTEFA</i>	<i>Professeur</i>	<i>Examineur</i>	<i>Univ- Oran 1 A. Ben Bella</i>
<i>SIB JAMALDINE</i>	<i>Professeur</i>	<i>Examineur</i>	<i>Univ- Oran 1 A. Ben Bella</i>

**Etude de la transition de phase d'inflammation
des combustibles poreux: Application à la
détermination du flux critique pour
l'inflammation**

*Thèse de Doctorat
en Sciences*

F.Z SABI
U.S.T.O

**Année universitaire
2020-2021**

Nulle pierre ne peut être polie sans friction,

Nul homme ne peut parfaire son expérience sans épreuves

Confuscius

A la mémoire de mon très cher défunt père

*"Que dieu t'accorde sa miséricorde et t'accueille
dans son vaste paradis"*

A ma très chère mère

"Que dieu te garde pour moi"

Remerciements

*Le travail présenté dans cette thèse a été réalisé au sein du L. E. P .M "Laboratoire d'Etudes Physiques des Matériaux" de l'Université des Sciences et de la Technologie d'Oran-Mohamed Boudiaf dirigé par le professeur **Nouredine Zekri**.*

*J'ai eu l'honneur et le privilège d'être encadrée et guidée par le professeur **Nouredine Zekri** le long de ces années de thèse et depuis le magister, il a toujours mis ses connaissances à ma disposition, il m'a appris les fondements même de la recherche scientifique au plus haut niveau. Tant de qualités humaines, intellectuelles et professionnelles envers tous ses thésards. On ne peut qu'apprendre auprès de lui. Je lui exprime dans ce lieu mon immense gratitude et ma grande et profonde reconnaissance.*

*Je tiens à remercier le professeur **Mostefa Kameche** pour m'avoir fait l'honneur d'évaluer ce travail de thèse et de présider mon jury.*

*M^{me} le professeur **Ould Kaddour Fouzia** est vivement remercié pour avoir accepté de se déplacer à Oran en ces circonstances d'épidémie, je lui exprime toute ma reconnaissance, je la remercie également pour avoir accepté de juger ce travail.*

*J'exprime également ma gratitude aux professeurs **Ghamnia Mostefa** et **Sib Jamaldine** pour avoir consacré un peu de leurs précieux temps à ma thèse et accepté de participer à mon jury.*

Je remercie l'ensemble des membres du Laboratoire L.E.P.M, en particulier les membres de l'équipe 'dynamique du feu' qui sans leur aide je n'aurais pu finir ce travail. Je les remercie également pour leur soutien, leur encouragement ainsi que toute personne qui m'a aidé, encouragé et soutenu en particulier mes ami(e)s et collègues chacun par son nom.

Enfin, je remercie profondément mes parents, mes sœurs et frères ainsi que tous les nouveaux membres de la famille pour m'avoir toujours supporté, encouragé, soutenu et poussé en avant, leur amour et leur compréhension sont toujours et sans cesse la source de mon bonheur.

F.Z Sabi

Résumé

Les concepts de la théorie des transitions de phase sont utilisés pour l'étude des propriétés d'inflammation de combustibles méditerranéens poreux, à savoir le pin d'Alep (*Pinus halepensis*), l'*Eucalyptus* et la paille de blé. Une nouvelle méthode est proposée pour l'estimation du flux critique pour l'inflammation. Nous avons utilisé pour cela un cône calorimètre conçu au niveau de notre laboratoire « L.E.P.M » et inspiré des normes internationales ASTM. Les données expérimentales sont comparées aux résultats analytiques et numériques d'un modèle qui utilise un bilan énergétique et comprend des critères d'inflammation d'énergie et de température. Le modèle confirme la tendance linéaire du temps d'inflammation pour de fortes intensités du flux thermique, mais ne parvient pas à reproduire le comportement des données près du seuil d'inflammation, car il n'inclut pas explicitement l'émission de volatiles lors de la pyrolyse. Les intensités du flux critique pour l'inflammation estimées par cette nouvelle méthode sont plus faibles que celles données par la littérature. Le désaccord est dû au comportement probabiliste de l'inflammation observé dans la région critique et ignoré par la littérature qui utilise des méthodes d'estimation déterministes. Nous avons discuté les conséquences de l'utilisation des flux estimés par de telles méthodes déterministes sur les risques incendie. L'aspect probabiliste observé dans ce travail est attribué à l'hétérogénéité de la composition et de l'arrangement des particules du combustible. La dynamique du chauffage des combustibles est aussi décrite, où un processus de relaxation exponentielle est observé. L'effet de la teneur en eau du combustible sur la dynamique de chauffage et sur la transition de phase est aussi examiné. Il apparaît que la teneur en eau ne fait que retarder l'inflammation, mais n'a aucune influence sur la transition de phase (le flux critique). Finalement, une discussion concernant l'ordre et le type de la transition de phase d'inflammation, révèle une transition de phase dynamique et continue.

Mots clés : Transitions de phase, flux critique pour l'inflammation, processus de relaxation, probabilité d'inflammation.

Abstract

The concepts of phase transition theory are used to study the ignition properties of porous Mediterranean fuels, namely *Pinus halepensis*, *Eucalyptus* and wheat straw. A new method is proposed for the estimation of the critical heat flux for ignition. To this end, we used a cone calorimeter designed at our laboratory "L.E.P.M" and inspired by international standards ASTM. Data is compared to the analytical and numerical results of a model that uses an energy balance and includes ignition energy and temperature criteria. The model provides the linear trend of the ignition time for large heat flux intensities, but fails to reproduce the behavior of data near the ignition threshold, because it does not include explicitly volatiles emission at pyrolysis. The critical flux for ignition thus estimated has been found small compared to literature data. The discrepancy is due to the probabilistic behavior of ignition observed in the critical region and ignored by the literature that uses deterministic methods for the estimation of the critical heat flux for ignition. We discussed the consequences of using such deterministic methods on fire risks. The probabilistic aspect is attributed to the heterogeneity of the composition and arrangement of fuel particles. The dynamics of fuel heating is also described, where a relaxation process is observed. The effect of the moisture content on the heating dynamics and on the phase transition is also examined. It appears that the moisture content only delays the ignition, but does not control the phase transition. Finally, a discussion is offered regarding the order of ignition phase transition as well as its type (dynamic or static). This discussion revealed a continuous dynamic phase transition.

Key words: phase transitions, critical heat flux for ignition, relaxation process, ignition probability.

ملخص

تم استخدام مفاهيم نظرية انتقالات الطور لدراسة خصائص الاشتعال لأنواع وقود مسامية موجودة في منطقة البحر الأبيض المتوسط ، وهي الصنوبر الحلبي، الكاليتوس وقش القمح. تم اقتراح طريقة جديدة لتقدير التدفق الحرج للاشتعال. تحقيقاً لهذه الغاية ، استخدمنا مقياس المسعر المخروطي المصمم في مختبرنا "مخبر الدراسة الفيزيائية للمواد" والمستوحى من المعايير الدولية ASTM. البيانات التجريبية قورنت بالنتائج التحليلية والرقمية لنموذج يستخدم توازن الطاقة ويتضمن معايير الاشتعال من طاقة و درجة الحرارة. يؤكد النموذج الاتجاه الخطي لزمن الاشتعال من أجل شدات عالية لتدفق الحرارة ، لكنه فشل في إعادة إنتاج سلوك البيانات التجريبية بالقرب من عتبة الاشتعال، حيث لا يتضمن صراحة انبعاث الغازات المتطايرة أثناء الانحلال الحراري. وجد أن التدفق الحرج للاشتعال مقدر بهذه الطريقة الجديدة منخفض مقارنة بالبيانات الواردة في الأدبيات. يرجع الانحراف إلى السلوك الاحتمالي للاشتعال الذي لوحظ في المنطقة الحرجة وتجاهل الأدبيات له لأنها تستخدم طرقاً حتمية لتقدير التدفق الحرج للاشتعال. ناقشنا عواقب استخدام مثل هذه الأساليب الحتمية على مخاطر الحريق. يُعزى الجانب الاحتمالي إلى عدم تجانس تكوين وترتيب جزيئات الوقود. تم أيضاً وصف ديناميكيات تسخين الوقود، حيث تمت ملاحظة عملية استرخاء أسية. تم أيضاً فحص تأثير محتوى الماء في الوقود على ديناميكيات التسخين وعلى انتقال الطور. يبدو أن محتوى الماء يؤخر الاشتعال فقط ، لكنه لا يتحكم في انتقال الطور. أخيراً ، تم تقديم مناقشة بشأن تصنيف انتقال طور الاشتعال بالإضافة إلى نوعه (ديناميكي أو ثابت). ظهر من خلال هذه المناقشة أن انتقال الطور هذا ديناميكي و مستمر .

الكلمات المفتاحية: انتقالات الطور، التدفق الحرج للاشتعال، عملية الاسترخاء، احتمال الاشتعال.

Sommaire

Résumé	v
Liste des figures.....	xi
Liste des tableaux	xiv
Nomenclature.....	xv
Introduction générale.....	1
<i>Chapitre 1</i>	<i>Etat de l'art sur les feux et l'inflammation</i>
1.1 Introduction.....	5
1.2 Les composés organiques volatiles	6
1.2.1 Définition et classification des COV	7
1.2.1.1 Définition des COV.....	7
1.2.1.2 Classification et composition des COV.....	8
1.2.2 Synthèse des COV dans les végétaux	10
1.2.3 Processus d'émission des COV au niveau de la plante	11
1.3 Les échanges thermiques	17
1.4 La pyrolyse et la combustion.....	20
1.4.1 La pyrolyse	20
1.4.2 La combustion.....	21
1.5 Les types d'inflammation.....	23
1.6 Les limites d'inflammabilité	27
1.7 Le point éclair et le point d'inflammation.....	30
1.8 Les approximations de la théorie d'inflammation.....	32
1.8.1 Le temps d'inflammation.....	32
1.8.2 L'approximation du combustible fin (mince).....	34
1.8.3 L'approximation du combustible épais	34

1.8.4 Les critères d'inflammation.....	35
1.9 Appareillage de mesure de l'inflammabilité et de la combustibilité : le cône calorimètre...	36
Conclusion	41
Références bibliographiques du chapitre 1.....	42
<i>Chapitre 2</i>	<i>Transitions de phase</i>
2.1 Introduction.....	47
2.2 Quelques exemples de transitions de phase.....	49
2.2.1 Les transitions de phase solide /liquide/gaz.....	49
2.2.2 La transition de phase ferromagnétique.....	50
2.3 Classification des transitions de phase.....	51
2.3.1 Classification d'Ehrenfest.....	52
2.3.1 Classification actuelle des transitions de phase.....	53
2.4 Le paramètre d'ordre.....	53
2.5 Les phénomènes critiques.....	55
2.5.1 Le comportement critique.....	55
2.5.2 Les exposants critiques.....	56
2.6 La notion d'universalité.....	58
2.7 Transition de phase statique et transition de phase dynamique.....	60
2.7.1 Transition de phase statique.....	60
2.7.2 Transition de phase dynamique.....	62
Conclusion.....	66
Références bibliographiques du chapitre 2.....	68
<i>Chapitre 3</i>	<i>Etude de la transition de phase d'inflammation et estimation du flux critique</i>
3.1 Introduction.....	70

3.2 Procédé expérimental.....	72
3.3 Description du modèle.....	75
3.4 Résultats et discussion.....	79
3.4.1 Résolution analytique du modèle	79
<i>a) Cas de perte de chaleur par convection.....</i>	<i>79</i>
<i>b) Cas de perte de chaleur par rayonnement.....</i>	<i>83</i>
<i>c) Vérification expérimentale de l'influence de la teneur en eau.....</i>	<i>89</i>
<i>c.1/ Dépendance linéaire du temps d'inflammation en teneur en eau.....</i>	<i>89</i>
<i>c.2/ Indépendance du flux critique à la teneur en eau.....</i>	<i>91</i>
3.4.2 Dynamique de chauffage du combustible.....	93
3.4.3 Comparaison résultats modèle-données expérimentales.....	97
3.4.4 L'effet probabiliste de la transition de phase d'inflammation.....	102
3.5 Analyse perspective de la transition de phase de propagation.....	106
3.6 Caractérisation de la transition de phase d'inflammation.....	107
Conclusions.....	109
Références bibliographiques du chapitre 3.....	111
<i>Conclusion générale et Perspectives.....</i>	<i>118</i>
<i>Production scientifique.....</i>	<i>122</i>

Liste des figures

Figure 1.1 <i>Le monde en feu (firms, 2019).....</i>	6
Figure 1.2 <i>Coupe d'une feuille.....</i>	11
Figure 1.3 <i>Influence de la température (feuilles de chêne blanc ,à gauche) et de la lumière (Liquidambar styraciflua, à droite) sur les flux d'isoprène (Harley et al., 1996 ; Fuentes et al., 2000). Les flux sont exprimés par m² de surface foliaire. La ligne continue indique la tendance.....</i>	14
Figure 1.4 <i>Émissions d'isoprène par des feuilles de liquidambar (Liquidambar styraciflua) situées au sommet de la canopée (22 m) exposées au soleil (carrés), et par des feuilles situées dans l'ombre à l'intérieur de la canopée (cercles) (Harley et al., 1996, Fuentes et al., 2000).....</i>	15
Figure 1.5 <i>Représentation d'une plaque infinie, transfert de chaleur de la surface de température T₁ à l'autre extrémité de température T₂ (Drysdale, 2011).....</i>	17
Figure 1.6 <i>Convection naturelle sur une paroi verticale.....</i>	18
Figure 1.7 <i>Feu couvent (Rein, 2009)</i>	22
Figure 1.8 <i>Feu vif (avec flammes)</i>	23
Figure 1.9 <i>Scénario d'une combustion amorcée (Drysdale, 2011).....</i>	26
Figure 1.10 <i>Caractérisation des substances en fonction du point éclair.....</i>	30
Figure 1.11 <i>La température de surface du combustible vs. Temps d'exposition (Quintiere, 2006)</i>	32
Figure 1.12 <i>Evolution du temps d'inflammation en fonction du flux thermique incident pour le PMMA (selon différentes études voir la réf. Bal et Rein, 2011)</i>	33
Figure 1.13 <i>Flux incident constant (à gauche), fluxde varaiation parabolique (à droite) (Vermesi et al., 2016)</i>	36
Figure 1.14 <i>Cône calorimètre de marque FTT.....</i>	37
Figure 1.15 <i>Le cône calorimètre conçu au niveau du laboratoire LEPM.....</i>	38
Figure 2.1 <i>La fonte ambiante fraîche décrit une transition de phase solide-liquide.....</i>	48
Figure 2.2 <i>Diagramme de phase (pression, température) montrant les domaines d'existence de trois phases (solide, liquide, gaz)</i>	49

Figure 2.3 <i>Différence d'orientation de spins entre un matériau ferromagnétique et un autre paramagnétique.</i>	50
Figure 2.4 <i>Diagramme de phase (champ magnétique , température) d'un simple ferromagnétique (Yeomans, 1992).....</i>	50
Figure 2.5 <i>Courbe de l'aimantation $M(H)$ pour un ferromagnétique à différentes températures. L'aimantation ne présente une discontinuité que pour $T < T_c$ lorsque le champ change de signe (Yeomans, 1992).....</i>	51
Figure 2.6 <i>Potentiel chimiques de deux phases en contact lorsque $\mu_1 = \mu_2$ les deux phases coexistent. (a) Transition de phase du 1^{er} ordre (discontinuité du potentiel chimique), (b) Transition de phase continue (les deux phases se rencontrent au point critique CP).....</i>	52
Figure 2.7 <i>Classification des transitions de phase au sens de Landau</i>	55
Figure 2.8 <i>Fluctuations au voisinage du point critique, ξ longueur de corrélation.....</i>	56
Figure 2.9 <i>Lignes de coexistence de huit différents fluides, tracées en variables réduites (d'après Guggenheim, 1945)</i>	59
Figure 2.10 <i>Représentation du réseau carré de sites</i>	60
Figure 2.11 <i>Représentation du réseau carré de liens.....</i>	61
Figure 2.12 <i>Au seuil de percolation un chemin continu à grande échelle apparaît.....</i>	62
Figure 2.13 <i>Evolution d'un réseau de percolation dirigée (Odor, 2008).....</i>	63
Figure 2.14 <i>Lois probabilistes du processus réaction-diffusion dans la percolation dirigé (Odor, 2008).....</i>	65
Figure 2.15 <i>Evolution temporelle du nombre des cellules infectées pour différentes valeurs de probabilité de connexion (Henkel et al., 2008)</i>	65
Figure 3.1 <i>Exemples d'échantillons a) paille de blé, b) aiguilles du Pinus halepensis, c) feuilles d'Eucalyptus</i>	73
Figure 3.2 <i>a) Image du dispositif expérimental, b) représentation schématique de la calibration du flux incident</i>	74
Figure 3.3 <i>L'énergie critique d'inflammation en fonction du flux incident pour la paille sèche. Deux modes de transfert de chaleur sont considérés.</i>	78
Figure 3.4a <i>Temps d'inflammation en fonction de la teneur en eau (base frais) pour un échantillon de 1 mm d'épaisseur (échelle linéaire) et de 1.5 cm d'épaisseur (échelle semi-logarithmique)</i>	89
Figure 3.4b <i>Temps d'inflammation en fonction de la teneur en eau (base sec) pour un échantillon de 1 mm d'épaisseur (échelle linéaire) et de 1.5 cm d'épaisseur (échelle semi-</i>	

<i>logarithmique)</i>	90
Figure 3.5 <i>Evolution de la température de surface du lit combustible poreux en fonction du temps d'exposition pour des combustibles secs et frais.</i>	91
Figure 3.6 <i>Evolution de la température de surface du combustible étalé sur une seule couche en fonction du temps d'exposition pour des combustibles dans différents états de la teneur en eau.</i>	92
Figure 3.7 <i>L'évolution temporelle de la température de surface d'un combustible sec pour différents modes de pertes de chaleur avec un flux incident de 5 kW/m².....</i>	95
Figure 3.8 <i>La fonction Φ (3.52) en fonction de τ/τ pour différentes intensités du flux incident avec pertes radiatives et convectives données par (3.14). Les courbes sont en échelle semi-logarithmique</i>	96
Figure 3.9 <i>L'inverse du temps d'inflammation vs. flux thermique incident. Comparaison des données expérimentales avec les résultats du modèle.</i>	97
Figure 3.10 <i>Temps d'inflammation vs. $q''_{inc} - q''_c$ a) résultats du modèle (courbes) et données expérimentales (symboles) en échelle logarithmique, b) résultats du modèle en échelle semi-logarithmique.....</i>	100
Figure 3.11 <i>a) Probabilité d'inflammation pour Ph (avec erreurs statistiques) vs. flux incident. Les flèches montrent la largeur de la région de transition $\delta q''$. b) Probabilité de percolation $\Pi(p)$ pour différentes tailles L du système (d'après Stauffer et Aharony 1992 p.72).</i>	104
Figure 3.12 <i>a) Représentation schématique des énergies d'inflammation et de combustion vs. flux incident. Les seuils d'inflammation et de propagation sont clairement indiqués. b) Représentation schématique 1D de la propagation du feu pour des combustibles régulièrement disposés.....</i>	107

Liste des tableaux

Tableau 1.1 <i>Exemples de terpenoides</i>	10
Tableau 1.2 <i>COV majoritaires de cinq espèces végétales méditerranéennes (Courty, 2014)</i>	17
Tableau 1.3 <i>Ordre de grandeur du coefficient de convection (Kreith et al., 2011)</i>	19
Tableau 1.4 <i>Tableau comparatif de quelques caractéristiques des combustions couvante et vive (Hadden et al., 2014, Rein, 2016).....</i>	22
Tableau 1.5 <i>La limite inférieure et la limite supérieure de quelques gaz.....</i>	29
Tableau 1.6 <i>Points d'éclair et d'inflammation de combustibles liquides et solides.....</i>	31
Tableau 2.1 <i>Quelques exemples de paramètres d'ordre et leurs variables conjuguées.....</i>	54
Tableau 3.1 <i>Les paramètres physiques des combustibles utilisés dans le modèle et leurs contenances en eau.....</i>	77

Nomenclature

COV	Composés Organiques Volatiles
$c_p^{i=c,e}$	Chaleur spécifique (kJ/kg.K)
e	Epaisseur (m)
E_{comb}	Energie de combustion (kJ/m ²)
E_{inf}	Energie critique d'inflammation (kJ/m ²)
E_0	Energie caractéristique du combustible (kJ/K.m ²)
Eu	Eucalyptus
HRR	Taux de dégagement de chaleur (kW/m ²)
h_t	Coefficient de convection (kW/m ² .K)
h_e	Teneur en eau à base sec
h''_e	Teneur en eau à base frais
k	Conductivité thermique (kW/m.K)
L_e	Chaleur latente de l'eau à 373 K (2250 kJ/kg)
LII	Limite inférieur d'inflammabilité
LSI	Limite supérieure d'inflammabilité
$m_{i=sec,e}$	Masse (kg)
$N_{i=inf,test}$	Nombre
p	Probabilité asymptotique
Ph	<i>Pinus halepensis</i>
P_{inf}	Probabilité d'inflammation
q	Puissance dégagée par la flamme (kW)
$q''_{i=c,eff,inc}$	Flux thermique (kW/m ²)
ppb, ppt	partie par milliard, partie par trillion
Q''_c	Flux critique d'évaporation (kW/m ²)
S	Surface de la base du porte échantillon (m ²)
$t_{i=chem,comb,inf,mel,pyr,corr}$	Temps (s)
$T_{i=0,max,pyr}$	Température (K)

Indices et exposants

c (indice)	Critique
c (exposant)	Combustible
$comb$	Combustion
$corr$	corrélation
$chem$	Réaction chimique (combustion)
e	Eau
eff	Effective
inc	Incident
inf	Inflammation/Test enflammé
max	Maximale
mel	Mélange
$perdu$	Perdu
pyr	Pyrolyse
sec	Combustible sec
$Test$	Test
z	Exposant de diffusion
Z	Exposant dynamique

0

Ambiante

Lettres grecques

Δ	Déviation standard
$\delta q''$	Largeur de la région critique (kW/m ²)
ε	Émissivité du combustible (0.9)
γ	Exposant critique du temps d'inflammation (chap.3)
ρ	Densité (kg/m ³)
σ	Constante de Stefan-Boltzmann (5.8×10^{-11} kW/m ² .K ⁴)
τ	Temps de relaxation pour le combustible sec (s)
θ	Variable réduite de la température ($\frac{T}{T_{max}}$)
Φ	Fonction de relaxation
ϕ	Rapport de compacité
ξ	Longueur de corrélation (m)

Les références bibliographiques utilisées dans ce manuscrit sont adaptées selon la méthode HARVARD (Auteur, Date), où elles sont classées par ordre alphabétique des noms des premiers auteurs.

Introduction générale

Le feu est un phénomène imprévisible dont le comportement continue à surprendre aussi bien les opérationnels que les scientifiques. Malgré tous les développements technologiques (retardants, canadiens etc.), le feu reste incontrôlable lorsqu'il se déclenche. Il continue à jouer de mauvais tours même aux pays les plus développés. C'est ainsi que les incendies de forêt par exemple dévastent chaque année des milliers d'hectares dans chaque pays avec toutes les conséquences économiques, environnementales et sur la santé (FAO, 2001).

Les combustibles des forêts par exemple sont des matériaux composites complexes. Lors de leur chauffage ils évaporent l'eau, émettent des gaz combustibles et aussi changent leurs propriétés physiques (chaleur spécifique etc.). Les gaz combustibles émis se mélangent à l'air et peuvent s'enflammer si les conditions de température et de composition sont réunies, ou bien ils restent dans leur état gazeux sans s'enflammer. D'après Drysdale (2011), la flamme est un état de la phase gazeuse. Dans le cas de la forêt, le déclenchement du feu a lieu lorsque des conditions similaires d'inflammabilité sont réunies. Ceci nous mène à penser qu'il existe une transition d'inflammation basée sur la transition état gazeux/état flamme. L'état flamme

apparaît si les conditions stœchiométriques sont réunies et correspondent à un mélange air/gaz avec une proportion minimale du gaz (Limite inférieure d'inflammabilité). L'autre condition est le seuil de température (température d'inflammation). D'autre part, la théorie des transitions de phase décrit avec des comportements universels les changements de phase dans différents domaines de la nature comme les transitions : liquide/gaz (Blundell et Blundell, 2006), paramagnétique/féromagnétique (Pokrovskii, 1999), isolant/conducteur (Stauffer et Aharony, 1992), endémie/épidémie (Zekri et Clerc, 2001), etc. Dans tous ces domaines, les grandeurs physiques présentent une singularité près de la région critique. Ce qui est surprenant, c'est l'universalité du comportement des grandeurs physiques malgré la différence des domaines.

L'idée proposée ici est d'appliquer ce concept de transitions de phase à l'inflammabilité et de l'utiliser pour proposer une nouvelle méthode d'estimation du flux critique pour l'inflammation. En effet, la détermination du flux critique pour l'inflammation a fait l'objet de plusieurs travaux scientifiques sur plusieurs décades (Mikkola et Wichman, 1989 ; Delichatsios et Chen, 1993 ; Dietsberger, 1996 ; Khan et al., 2009 ; Mindykowski et al., 2011). En outre il existe maintenant des méthodes standard comme ASTM 1354 (2017) pour déterminer le flux critique. Or ces méthodes ne tiennent pas compte l'hétérogénéité des combustibles et l'aspect probabiliste de l'inflammation pourtant observé dans certaines études (Hadden et al., 2011 ; Colwell et Reza, 2005).

Le flux critique pour l'inflammation a été étudié précédemment en utilisant un cône calorimètre en extrapolant le comportement linéaire de l'inverse du temps d'inflammation à hauts flux incidents vers les bas flux (Mindykowsky et al., 2011 ; Khan et al., 2009). Or justement au niveau des bas flux ce comportement devient non-linéaire. D'un autre côté, la teneur en eau peut être un paramètre de contrôle de la transition de phase d'inflammation. En effet, pendant l'hiver où l'humidité atteint des niveaux très élevés, le feu se déclare très rarement. Par contre, pendant l'été où l'humidité atteint un niveau bas et les végétations sont séchées, le feu se déclenche fréquemment. Nous sommes ici aussi en présence d'une transition de phase non-inflammation/inflammation à cause de la teneur en eau. Dans un travail récent, il a été montré qu'il n'existe pas de teneur en eau critique pour l'inflammabilité (Terrah et al., 2020).

Ces phénomènes et concepts sont au cœur de ce travail, où nous étudions la transition de phase non-inflammation/inflammation des matériaux poreux aussi bien expérimentalement

grâce à un cône calorimètre qu'analytiquement et numériquement en utilisant un modèle simple basé sur la conservation de l'énergie. Dans les chapitres 1 et 2, nous présentons respectivement la théorie d'inflammation et la théorie des transitions de phases. Nous appliquons dans le chapitre 3 les concepts de la théorie des transitions de phase décrits dans le chapitre 2 pour la détermination du flux critique pour l'inflammation et examinons les propriétés de l'inflammation de végétations méditerranéennes mortes et vivantes. L'aspect probabiliste est démontré expérimentalement et relié au comportement en puissance du temps d'inflammation.

Références bibliographiques

- ASTM (2017), International, Designation E 1354-17, *Standard Test Method for Heat and Visible Smoke Release Rates for Materials and Products Using an Oxygen Consumption Calorimeter*.
- Blundell, S.J. et Blundell, K.M. (2006), *Concepts in Thermal Physics*, Oxford: Oxford University Press.
- Colwell, J.D. et Reza, A. (2005), Hot Surface Ignition of Automotive and Aviation Fluids, *J. Fire Technology*, 41,105–123
- Delichatsios, M. et Chen, Y. (1993), Asymptotic, Approximate, and Numerical Solutions for the Heatup and Pyrolysis of Materials Including Reradiation Losses, *Combustion and Flame*, 92, 292-307.
- Dietenberger, M. (1996), Ignitability Analysis using the Cone Calorimeter and LIFT Apparatus, *Proceedings of the International Conference on Fire Safety*, Columbus,OH, 22, 189-197.
- Drysdale, D. (2011), *An Introduction to Fire Dynamics*, Chichester: John Wiley & Sons, 3^{ème} ed.
- FAO (2001). *Evaluation des ressources forestières mondiales 2000*. Etude Forêts n° 140. Rome.
- Hadden, R.M., Scott, S., Fernandez-Pello, C. (2011), Ignition of combustible fuel beds by hot particles: an experimental and theoretical study, *J. Fire Technology* ,47, 341–355, <https://doi.org/10.1007/s10694-010-0181-x>.

- Khan, M.M., De Ris, J.L., Ogden S.D. (2008), Effect of Moisture on Ignition Time of Cellulosic Materials, *Fire Safety Science-proceedings of the Ninth International Symposium*, 167- 178.
- Mikkola, E. et Wichman, I. (1989), On the Thermal Ignition of Combustible Materials, *Fire and Materials*, 14, 87-96.
- Mindykowski, P., Fuentes P, Consalvi J.L, Porterie, B. (2011), Piloted Ignition of Wildland Fuels, *Fire Saf. J.* 46 (1-2), 34-40.
- Pokrovskii, V.L., (1999), Two-dimensional magnetic phase transitions, *J.Magnet.Magnet. Mat*, 200, 515-531.
- Quintiere, J.G. (2006), *Fundamentals of fire phenomena*, West Sussex: J.Wiley & Sons.
- Terrah, S.M., Sabi, F.Z., Mosbah, O., Dilem, A., Hamamousse, N., Sahila, A., Harrouz, O., Boutchiche, H., Chaib, F., Zekri, N., Kaiss, A., Clerc, J.P., Giroud, F., Viegas, D.X. (2020), Nonexistence of critical fuel moisture content for flammability, *Fire Saf. J.* 111, 102928, doi :10.1016/j.firesaf.2019.102928.
- Zekri, N., Clerc, J.P (2001), *Phys. Rev. E* , 64, 056115

Chapitre 1

Etat de l'art sur les feux et l'inflammation

1.1 Introduction

Chaque année, les feux causent beaucoup de drames (FAO, 2001). C'est une menace annuelle pour les personnes et les biens dans de nombreux pays du monde. En fait tout le globe est concerné (Fig.1.1). Les incendies sont le résultat de nombreux processus physiques et chimiques couplés et non-linéaires. Ils sont souvent associés aux phénomènes de turbulence, à des réactions chimiques complexes, au transfert de chaleur et à la dégradation de milieux hétérogènes (Morvan, 2009). La lutte contre les incendies nécessite une bonne connaissance du phénomène, c'est le rôle du scientifique d'apporter des solutions de plus en plus efficaces pour cette lutte.

Dans ce chapitre, les premiers responsables de l'inflammation sont définis, les gaz volatiles ou Composés Organiques Volatiles (COV), nous exposons leur classification, leur synthèse dans la végétation ainsi que le processus de leur émission au niveau de la plante.

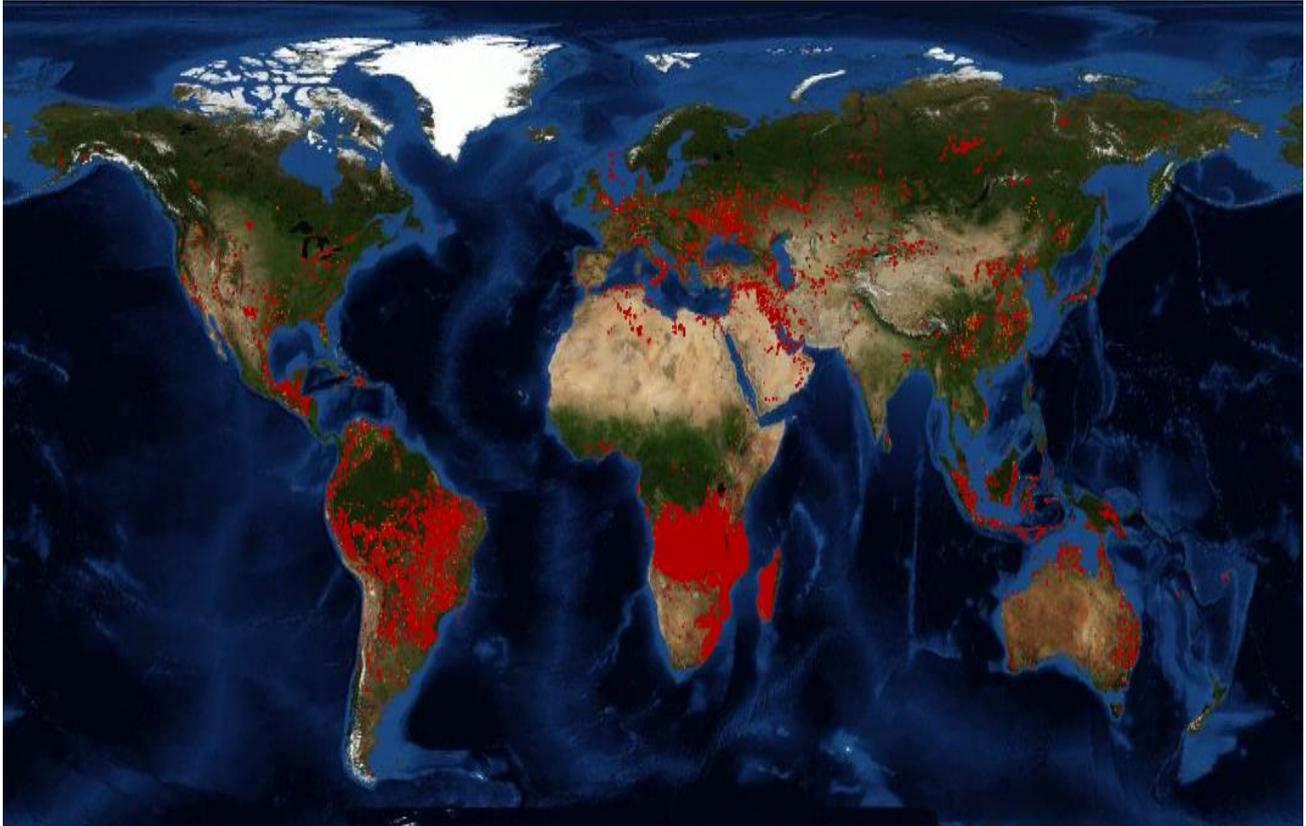


Figure 1.1 Le monde en feu (firms, 2019)

Les différents modes de transfert de chaleur et les différentes étapes rencontrées lors de l'inflammation sont rappelés impliquant les processus de pyrolyse et de combustion en passant par les deux types de combustion. Quelques caractéristiques de l'inflammation sont exposées ainsi que les approximations de la théorie d'inflammation comme l'approximation du combustible fin et celle du combustible épais et les critères d'inflammation. Enfin l'appareillage de mesure d'inflammabilité et de combustibilité « le cône calorimètre est présenté.

1.2 Les composés organiques volatiles

La composition de la végétation joue un rôle primordial lors de l'inflammation. En fonction de l'espèce, les propriétés chimiques et physiques ne sont pas les mêmes. Elles peuvent influencer l'inflammation.

Un grand nombre de travaux a été consacré aux Composés Organiques Volatiles (COV) depuis plusieurs décennies, avec des applications aussi bien pour l'environnement

(couche d'Ozone, pollution etc.) que pour la santé. Il existe deux types de COV: Biogéniques (émis par la végétation) et anthropiques (industrie, transport, solvants hydrocarbures etc.). Seulement les COV biogéniques sont considérés ici puisqu'on étudie l'inflammation de la végétation. Il semble que l'allumage d'un nuage de COV libéré par une végétation chauffée par un incendie explique l'apparition d'un incendie forestier accéléré. En effet, comme la densité des COV est supérieure à la densité de l'air, lors de la dégradation thermique de la végétation à cause du feu qui s'approche ceux-ci peuvent s'accumuler près du sol et en dessous de la couche végétale ou s'écouler vers le bas d'un canyon et créer une atmosphère inflammable. Cette approche thermochimique est soutenue par la connaissance empirique des pompiers dans le terrain qui associent généralement la forte odeur de ces COV à haut risque, en particulier dans des géométries relativement confinées.

Il est donc indispensable de connaître la composition et les propriétés d'inflammabilité des COV biogéniques afin de maîtriser non seulement les feux extrêmes mais l'initiation d'un feu avant tout.

1.2.1 Définition et classification des COV

Nous nous restreignons ici à l'émission des COV par les végétaux lors de leur dégradation thermique avant l'inflammation. La plupart des végétaux méditerranéens produisent par métabolisme secondaire des COV biogéniques. Les principaux éléments végétales en forêt méditerranéenne sont: le *Thymus vulgaris*, *Lavanda stoechas*, *Rosmarinus officinalis*, *Cistus albidus*, *Pinus pinea*, *Pinus halepensis* et l'*Eucalyptus*.

1.2.1.1 Définition des COV:

Il n'existe pas de définition spécifique au terme COV. D'une manière générale, les COV sont des substances organiques passant facilement à l'état gazeux et contenant au moins un atome de carbone. Un composé chimique est qualifié d'organique lorsqu'il possède un atome de carbone lié à un ou plusieurs atomes d'hydrogène et d'oxygène ou d'autres éléments (N, F, Cl, Br, I, S, P, etc...) qui font partie de la constitution des êtres vivants. La plupart des définitions caractérisant les COV reposent sur leurs propriétés physiques et chimiques : le point d'ébullition, l'équilibre gaz / liquide ou la tension de vapeur. Les COV biogéniques sont définis comme des composés carbonés émis naturellement par la biosphère (Kesselmeier et Staudt, 1999). Ils existent dans l'atmosphère à l'état de traces (avec une concentration allant du ppt à la dizaine de ppb). Sont exclus de ces composés le méthane, le monoxyde et le

dioxyde de carbone étant donné leur abondance dans l'atmosphère. Les applications des COV concernent surtout l'environnement (couche d'Ozone, pollution etc.) et leur impact sur la santé. Mais récemment, des observations montrent leur implication dans les feux accélérés (Viegas et Simeoni, 2011).

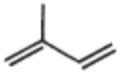
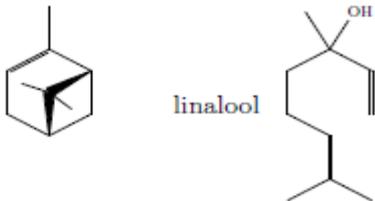
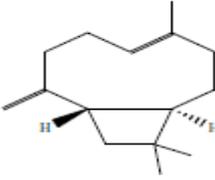
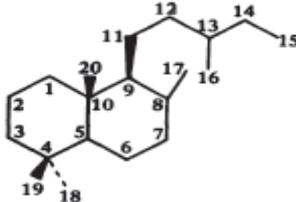
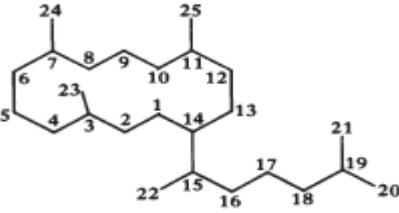
1.2.1.2 Classification et composition des COV

Comme décrit dans la section précédente, les COV sont répartis en deux familles: biogéniques (émis par la biosphère) et anthropiques (causés par l'industrie, le transport, les solvants des hydrocarbures etc.). Les COV biogéniques peuvent être à l'origine de feux accélérés si les conditions météorologiques et géométriques du terrain sont favorables.

Les plantes produisent des centaines de milliers de composés organiques, une petite fraction parmi ces composés, les plus volatils, sont libérés dans l'air. Les composés émis forment un ensemble très hétérogène comprenant de nombreux groupes chimiques (alcanes, acylènes, aldéhydes, cétones, alcools...) avec des structures linéaires ou bien cycliques. Les composés hors méthane que l'on retrouve le plus communément dans les émissions des plantes sont les terpènes ou terpénoïdes et les acides carboxyliques. Le terme terpénoïde regroupe les terpènes oxygénés et non-oxygénés. Les composés de cette famille sont appelés hémiterpène (C₅), monoterpène (C₁₀), ou sesquiterpène (C₁₅) selon leur nombre d'atomes de carbone. Au-delà de 15 atomes de carbone les terpènes ne sont généralement plus considérés comme volatils. Le Tableau 1.1 présente quelques exemples de chaque groupe, détaillés dans (Connolly et Hill, 1991). L'hémiterpène isoprène (2-méthyl-1,3-butadiène) est le composé le plus répandu et représente à lui seul plus de la moitié des émissions de COV biogéniques à l'échelle du globe (Guenther 1995). Parmi les monoterpènes les plus communs, on trouve les composés tels que α -pinène, β -pinène, camphène, limonène, myrcène, 3-carène. A ces éléments s'ajoutent quelques monoterpènes oxygénés comme par exemple le linalool ou encore l' α -terpinéol. Outre la grande famille des terpènes, on rencontre aussi fréquemment l'acétaldéhyde, le 2-méthyl-3-buten-2-ol (MBO) et d'autres composés dérivés de l'hexanal ; puis des composés moins réactifs comme le méthanol, l'éthanol, l'acide formique, l'acide acétique, et l'acétone.

Les facteurs d'émission dépendent de l'espèce considérée et des conditions climatiques (température, rayonnement lumineux, saison). Les conifères, et plus généralement les espèces à bois émettent plus de terpènes que les autres familles (type herbacées)

(Kesselmeier et Staudt, 1999). Ceux-ci représentent 10% des émissions globales issues de la végétation avec 1150 Tonnes/an (Connolly et Hill, 1991), et réagissent rapidement avec les radicaux HO du fait de leur non saturation. Une fois dans l'atmosphère, ils servent de précurseurs à la formation de radicaux par photo-oxydation.

Dénomination	Nombre de Carbones	Abréviation	Structure squelette d'un membre de famille
Catégorie I			
Hemiterpenoïdes	C5	Hm	 Isoprene
Monoterpenoïdes	C10	Mo	 α -pinène linalool
Sesquiterpenoïdes	C15	Sq	 Caryophyllène
Catégorie II			
Diterpenoïdes	C20	Di	 Labdane
Sesterterpenoïdes	C25	St	 Cericerane

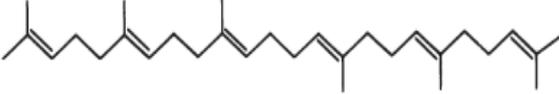
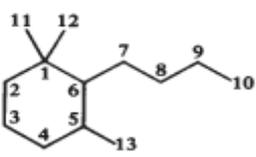
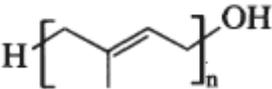
Triterpenoides	C30	Tr	 <p>Squalene</p>
Tetraterpenoides	C40	Te	 <p>Megastigmane</p>
Polyterpenoides	C5n (n>8)	Py	 <p>betulaprenol</p>

Tableau 1.1 Exemples de terpénoïdes

1.2.2 Synthèse des COV dans les végétaux

L'isoprène et les monoterpènes résultent d'un même précurseur, le diméthylallyl-diphosphate (*DMAPP*) et son isomère l'isopenthyl diphosphate (*IPP*). Il est à noter que le *DMAPP* et l'*IPP* sont aussi les précurseurs de composés tels que les caroténoïdes qui sont essentiels pour le développement de la plante (Sharkey, 1991). C'est par le cycle de l'acide mévalonique (*MVA*) que vont être formés ces précurseurs dans le cytoplasme et par le cycle du méthylerythritol (*MEP*) dans les plastes. La synthèse de l'isoprène fait intervenir une enzyme appelée isoprène-synthase. Située dans le chloroplaste, cette enzyme catalyse l'élimination du pyrophosphate du *DMAPP* et son activation est dépendante de la lumière (Silver et Fall, 1991). Bien que le mécanisme de formation du 2-méthyl-3-buten-2-ol (*MBO*) reste inconnu, sa formation est supposée avoir lieu aussi dans le chloroplaste à cause de la dépendance de ses émissions à la lumière.

La combinaison par condensation du *DMAPP* et de l'*IPP* forme le mono-terpène geranyl-pyrophosphate (*GPP*) qui est le précurseur d'autres mono-terpènes mais aussi des sesquiterpènes s'il se combine avec une autre molécule d'*IPP*. La plupart des mono-terpènes possède une structure cyclique et on appelle mono-terpènes *cyclases* les enzymes qui catalysent leur formation à partir du *GPP* (McGarvey et Croteau, 1995). Ces enzymes ont la capacité de produire différents mono-terpènes. Par exemple, l'action de l'enzyme limonène *synthase* sur le *GPP* peut donner du limonène, de l' α -pinène, du β -pinène, ou du *myrcène* (Rajaonarivony et al., 1992). À noter que les mono-terpènes ainsi formés peuvent subir une oxygénation pour donner des mono-terpènes oxygénés (Croteau et Gershenzon, 1994). La

formation des mono-terpènes a généralement lieu dans les plastes non photosynthétiques (donc autres que les chloroplastes) tandis que les sesquiterpènes sont produits dans les cytoplasmes (Carde et al., 1980; Gleizes et al., 1983; Kleinig, 1989; Soler et al., 1992; McCaskill et Croteau, 1995). Une fois produits, les mono-terpènes peuvent être stockés dans des réservoirs spécialisés tels que les poils glandulaires dans la menthe, les canaux de résine dans les aiguilles de pins, les vésicules résinifères chez les sapins ou encore les glandes à huile dans les feuilles d'*Eucalyptus* (Lerdau et al., 1997). Cependant certaines espèces de chênes (*Quercus*, lignée *Sclerophyllodris*) en région méditerranéenne, sont dépourvues d'isoprène et émettent des mono-terpènes en fonction de la lumière ce qui laisse à penser que leur formation a lieu directement dans les chloroplastes et qu'il n'y a pas de stockage (Loreto et al., 1996).

1.2.3 Processus d'émission des COV au niveau de la plante

Les COV sont produits à l'intérieur des cellules des végétaux. Il existe quatre voies de transition de la plante vers l'atmosphère (Lerdau et al., 1997; Monson et al., 1995).

- La diffusion à travers la cuticule, la cuticule étant l'enveloppe qui recouvre la partie aérienne des végétaux.
- La libération à travers les stomates qui va dépendre de la conductance stomatique vers l'atmosphère.
- La libération de la production de COV consécutive à une blessure.

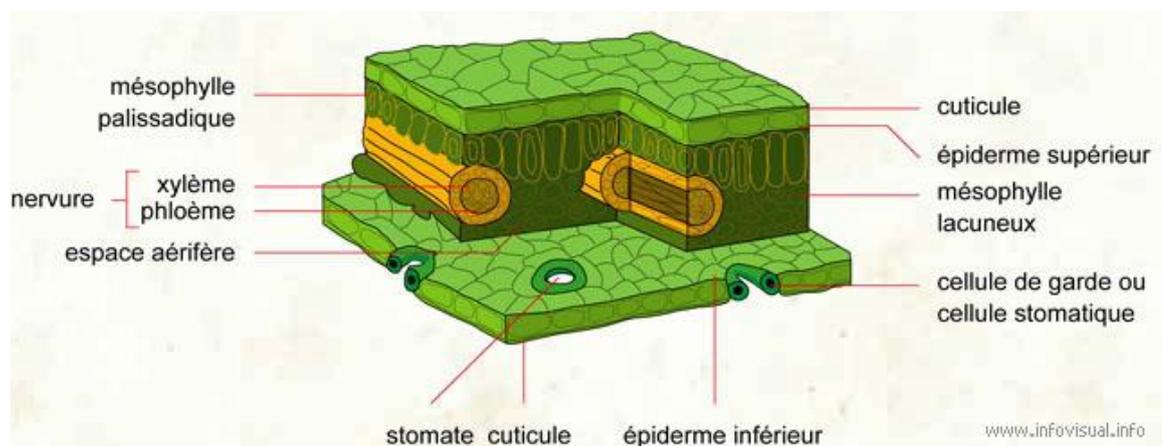


Figure 1.2 Coupe d'une feuille

Le principal processus qui gouverne les émissions de COV est la diffusion. Celle-ci se déroule selon un gradient de pression partielle des composés depuis l'intérieur des cellules (où les concentrations sont relativement élevées) vers l'air qui entoure la feuille (à faibles concentrations et basse pression partielle). D'après la loi de Fick, le flux de COV est lié au facteur de diffusion du composé (x), à sa différence de pression de vapeur (P_v) entre l'intérieur et l'extérieur de la feuille et à un terme de résistance. L'équation suivante traduit cette relation:

$$q''_{\text{emission}_x} = c \frac{P_v(x;\text{feuille}) - P_v(x;\text{atmosphère})}{\text{résistance}} \quad (1.1)$$

Cette relation peut être simplifiée en négligeant la pression de vapeur du composé dans l'air autour de la feuille. Ici les termes de résistance et de coefficient de diffusion sont complexes et peu connus. Le coefficient de diffusion c dépend de la taille et la forme du composé, du milieu à travers lequel il diffuse ainsi que de la température. Pour la plupart des COV, les coefficients de diffusion à travers les cellules, les membranes, les parois des cellules sont inconnues. Le taux de diffusion est aussi contrôlé par la distance à parcourir par le composé. Celui-ci est difficile à évaluer étant donné la complexité de l'architecture d'une feuille. Le terme résistance dans l'équation 1.1 est en fait la somme de plusieurs résistances. Par exemple, en supposant que l'isoprène est produit dans les chloroplastes, son transit vers l'extérieur de la feuille dépend de la résistance des membranes intérieures et extérieures du chloroplaste puis de la résistance du cytoplasme, de la membrane plasmique, de la paroi cellulaire, des espaces intercellulaires puis des stomates. Plusieurs études ont montré que l'isoprène est émis surtout à travers les stomates. Il ne semblerait pas que ces émissions soient influencées par la conductance stomatique. Dans le cas des plantes émettrices de mono-terpènes, trois cas sont différenciés. Pour les pins, les mono-terpènes sont stockés dans des réservoirs internes tels que des conduits de sève. Le terme de résistance comprend principalement la résistance des cellules épithéliales parenchymateuses qui entourent les conduits de résine, des espaces intercellulaires et puis les stomates. Pour les plantes qui stockent les mono-terpènes dans les trichomes qui sont des excroissances extérieures (souvent des poils glandulaires, exemple la menthe) la résistance principale est celle de la cuticule. Enfin, pour les plantes dont les émissions de mono-terpènes sont dépendantes de la lumière, il est probable que la résistance soit identique à celle décrite auparavant pour l'isoprène. Lorsqu'une plante subit des dommages, les réservoirs de mono-terpènes et de terpènes non volatils sont alors exposés à l'air libre et les émissions de mono-terpènes sont immédiatement

multipliées. Cet effet peut durer assez longtemps puisque le contenu des réservoirs exposés peut s'écouler et laisser libre l'évaporation des COV. À cet effet s'ajoute la libération de COV dont la production est la conséquence d'une blessure.

Discutons maintenant les facteurs de régulation des émissions de COV. La température est le principal facteur contrôlant les émissions de COV par les végétaux. La température augmente la pression de vapeur des composés et favorise donc leur diffusion à travers les membranes. Pour les composés stockés dans des conduits ou autres réservoirs de la plante, la température est le facteur de contrôle dominant des émissions. Pour les composés qui ne sont pas stockés dans la plante comme l'isoprène, les émissions sont directement en lien avec la production. En plus de la température, la lumière va donc aussi être un facteur de contrôle important puisqu'elle est nécessaire à la production de l'isoprène. La figure 1.3 montre l'influence de ces deux facteurs pour des feuilles de chêne blanc et de liquidambar. Les émissions de mono-terpènes sont généralement contrôlées par la température mais indépendantes de la lumière, à l'exception de certaines espèces dont les émissions sont partiellement dépendantes de la lumière, comme c'est le cas pour certains chênes et épicéas. Les jeunes aiguilles chez certains conifères peuvent également avoir des émissions de mono-terpènes contrôlées par la lumière et la température. Cette observation a aussi été faite pour les émissions de sesquiterpènes qui semblent dépendre de manière générale de la température et très peu de la lumière.

L'effet de la température sur les émissions correspond bien à ce qui pourrait être prédit par la relation température et courbes de pression de vapeur. La pression de vapeur d'un composé dépend de sa volatilité et de la concentration dans la plante. Outre la température et l'ensoleillement qui sont des facteurs de contrôle des émissions à court terme, d'autres paramètres ont été étudiés comme l'humidité de l'air, la concentration en CO₂ ou encore la disponibilité en azote ou en eau dans la plante. Par ailleurs, un effet stimulant de l'ozone a été observé sur les émissions d'isoprène par les feuilles de peuplier (*Populus alba*) (Seufert, 1995). L'humidité de l'air ne semble pas modifier les émissions d'isoprène et de mono-terpènes pour les pins, épicéa et eucalyptus.

Cependant dans certains cas on observe un effet positif sur les émissions de mono-terpènes chez la sauge, la menthe et le chêne. Ceci peut s'expliquer par la modification de la perméabilité de la cuticule des feuilles lorsqu'elle est hydratée. Pour le CO₂ aucune tendance claire n'a été observée à part pour des concentrations très fortes ou très faibles où un effet négatif est observé sur les émissions.

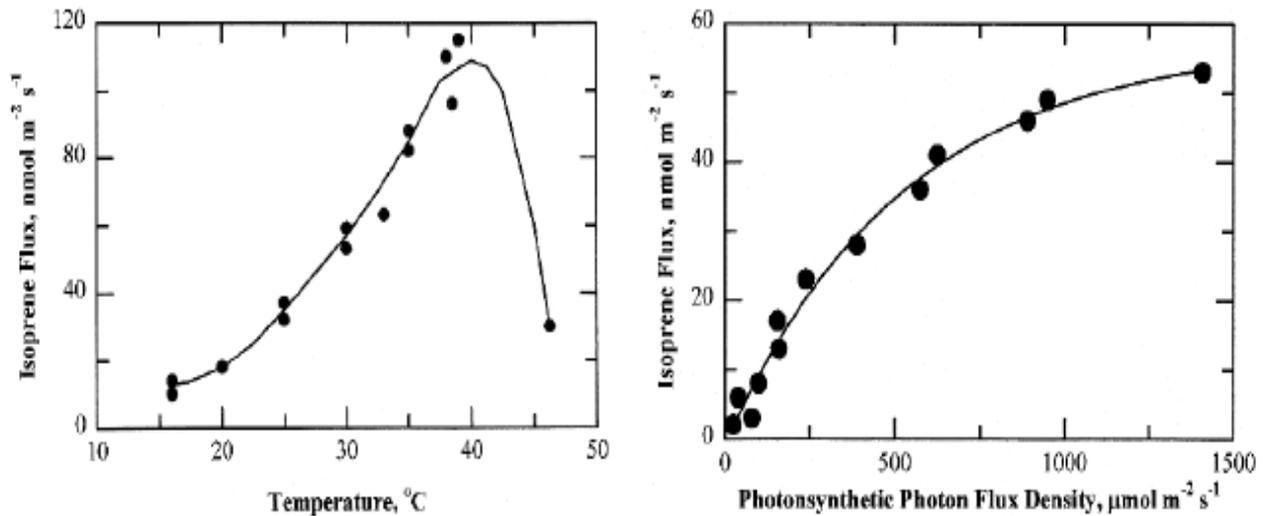


Figure 1.3 Influence de la température (feuilles de chêne blanc, gauche) et de la lumière (*Liquidambar styraciflua*, droite) sur les flux d'isoprène (Harley et al., 1996 ; Fuentes et al., 2000). Les flux sont exprimés par m² de surface foliaire. La ligne continue indique la tendance.

L'azote est nécessaire pour l'activité des enzymes et une corrélation positive entre les flux d'isoprène et le contenu en azote des feuilles a pu être observé. Dans le cas d'un déficit en eau dans la plante, l'effet sur les émissions est complexe car même si les émissions diminuent avec l'amenuisement de la disponibilité en eau, l'augmentation de température due à la baisse de la transpiration entraîne un effet inverse. Au final, le déficit en eau est souvent responsable d'une augmentation des émissions.

D'autre part, une claire tendance saisonnière affecte les émissions de COV. En effet, le stade de développement de la plante (l'apparition des bourgeons, des fleurs, des fruits, la sénescence des feuilles) et l'état de dormance de la plante jouent un rôle important sur les émissions. Il a été montré que des plantes typiquement émettrices d'isoprène comme le saule (*Salix phylicifolia*) ou le tremble (*Populus tremula*) libéraient de grandes quantités de mono-terpènes et autres alcènes au printemps pendant le débourrage (période d'éclosion des bourgeons) et les premiers stades de développement de la feuille. Les fortes émissions d'isoprène caractéristiques de ces espèces ne commencent quant à elles que lorsque le feuillage a atteint sa maturité en été (Hakola et al., 1998). Le stade de développement des

feuilles est donc un facteur déterminant pour les émissions. Les jeunes feuilles qui n'ont pas encore atteint leur taille finale n'émettent pas d'isoprène et ne possèdent pas l'enzyme qui permet de le synthétiser. L'émission d'isoprène ne démarre qu'une fois la feuille complètement développée et plus précisément après plusieurs jours d'exposition à des températures suffisamment élevées. Les conditions dans lesquelles se développent les feuilles peuvent aussi conditionner leurs émissions. Par exemple la figure 1.4 montre l'influence d'un environnement lumineux sur les feuilles: les feuilles se trouvant au sommet de la canopée dans un environnement très lumineux produisent des quantités plus importantes d'isoprène que les feuilles situées dans la canopée. Plusieurs autres études ont aussi montré des résultats similaires pour les émissions de mono-terpènes. L'observation des émissions chez le pin parasol (*pinus pinea*) a montré qu'au cours de l'année, les taux d'émission pouvaient changer d'un facteur 20, que la nature des émissions s'en trouvait changée et que la réponse à court terme des émissions à la lumière était aussi modifiée, ce qui souligne l'importance de la variation des émissions en fonction des saisons et doit être prise en compte pour les estimations.

Les COV jouent un rôle important dans la chimie de l'atmosphère à cause notamment de leur forte réactivité. Une fois dans l'atmosphère, les COV peuvent être éliminés par des processus physiques de dépôt humide (pluies) ou sec et peuvent subir des transformations par photolyse ou par réaction avec des radicaux. L'importance de chacun de ces processus dépend des propriétés physiques et chimiques des composés et détermine leur temps de vie dans l'atmosphère.

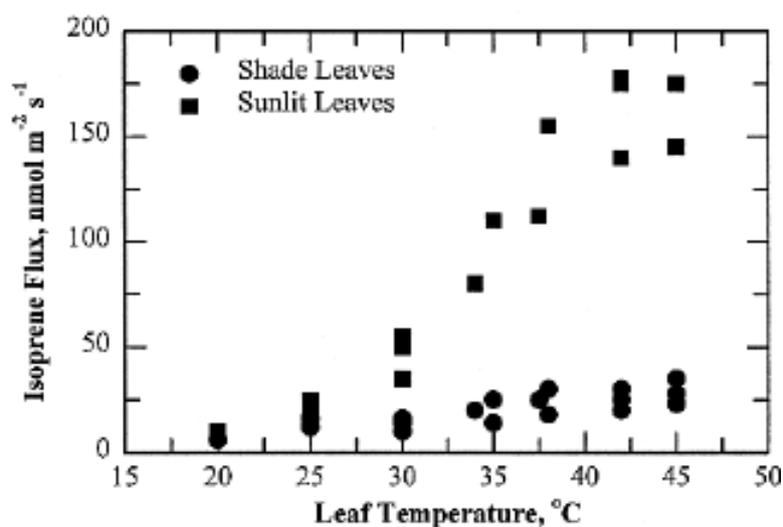


Figure 1.4 Émissions d'isoprène par des feuilles de liquidambar (*Liquidambar styraciflua*) situées au sommet de la canopée (22 m) exposées au soleil (carrés), et par des feuilles situées dans l'ombre à l'intérieur de la canopée (cercles) (Harley et al., 1996 ; Fuentes et al., 2000). Les flux sont exprimés par m² de surface foliaire et les niveaux de rayonnement enregistrés durant les mesures sont de 1000 μmol m⁻² s⁻¹.

De manière générale les processus de dépôt ne contribuent que très peu à l'élimination des COV sauf pour les espèces les plus inertes chimiquement. Les transformations par photolyse et les réactions chimiques représentent les principaux mécanismes d'élimination des COV et des produits de leurs réactions. Les temps de vie des COV sont très variables et peuvent être de quelques minutes seulement jusqu'à plusieurs années pour les moins réactifs.

En milieu naturel, des mesures de COV libérés dans l'air ambiant ont été réalisées sur des formations végétales variées et localisées dans différentes zones géographiques. Ces mesures sont effectuées dans une problématique liée à la formation d'ozone dans l'atmosphère. Elles consistent à donner un flux de COV émis par la végétation lors de leur exposition au soleil. Ces études sont focalisées sur l'isoprène et les différents mono-terpènes émis par les végétaux.

Owen et al. (1997) ont étudié l'émission de COV sur 18 plantes méditerranéennes dont l'arbousier (*Arbutus unedo*), le ciste (*Cistus incanus*), la bruyère (*Erica arborea*) et le pin (*Pinus pinea*). Ils ont montré que la somme des COV est égale à 0.3 µg/g pour le ciste, 5.9 µg/g pour le pin, 0.1µg/g pour l'arbousier et inférieur à 0.1 µg/g pour la bruyère. Ces concentrations sont variables suivant les saisons et sont d'autant plus importantes que la température est élevée. Ces auteurs montrent à ce propos qu'il existe une corrélation linéaire entre la quantité de COV émis et la température.

Cette linéarité est démontrée pour une gamme de température de 17°C à 37°C et n'est plus valable pour les températures supérieures à 37°C. Owen et al. (2002) ont mené une étude sur 10 espèces méditerranéennes dont le ciste de Montpellier, l'arbousier et différents pins. L'isoprène n'a été identifié que dans les COV émis par l'arbousier. Parmi les végétaux étudiés, c'est le ciste de Montpellier qui libère le plus de COV, particulièrement l' α -pinène.

Il existe des études sur l'émission des volatils à des températures supérieures à 50°C. Après les essais réalisés au CEREN, Courty et al. (2014) ont étudié les émissions avant inflammation des principales espèces végétales méditerranéennes. Il effectue en effet des analyses à des températures entre 70 et 180°C. Ils se focalisent uniquement sur l'étude du comportement des mono-terpènes du romarin. L'existence d'une température pour laquelle l'émission des terpènes est la plus importante a été démontrée, elle se situe autour de 175°C. Le tableau 1.2 présente les COV majoritaires de 5 espèces végétales présentes en méditerranée.

Nom de l'espèce	COV majoritaires
<i>Thymus vulgaris</i>	le thymol ($C_{10}H_{14}O$), le pcyène ($C_{10}H_{14}$) et le γ -terpinène ($C_{10}H_{16}$)
<i>Lavandula stæchas</i>	<i>l</i> -fenchone ($C_{10}H_{16}O$) et le camphor ($C_{10}H_{16}O$)
<i>Rosmarinus officinalis</i>	α -pinène ($C_{10}H_{16}$)
<i>Pinus pinea</i>	Limonène ($C_{10}H_{16}$)
<i>Cistus albidus</i>	3-hexen-1-ol ($C_6H_{12}O$) et le curcumène ($C_{15}H_{24}$)

Tableau 1.2 COV majoritaires de cinq espèces végétales méditerranéennes (Courty, 2014).

1.3 Les échanges thermiques

Il est essentiel de comprendre les échanges de chaleur (ou d'énergie) qui se produisent si l'on veut saisir le comportement au feu et les processus qui y sont reliés. Il existe une documentation abondante sur la question (Welty et al., 1976 ; DiNenno, 1988), mais on se limitera ici à attirer l'attention sur trois mécanismes: la conduction, la convection et le rayonnement. S'il est probable que les trois contribuent à chaque incendie, on constate souvent que l'un d'eux prédomine à un stade donné ou à un endroit donné (Drysdale, 2011).

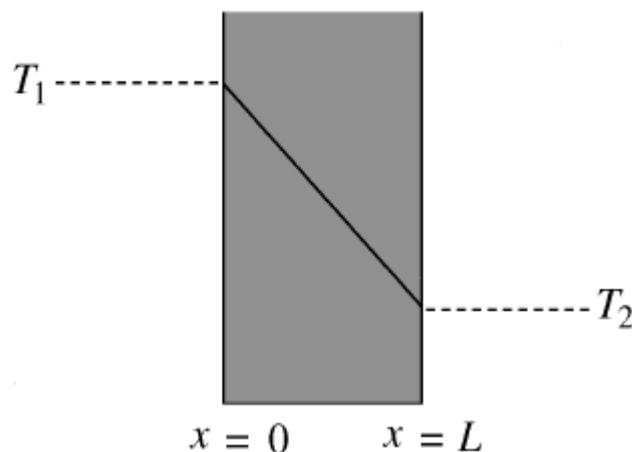


Figure 1.5 Représentation d'une plaque plane infinie, transfert de chaleur de la surface de température T_1 à l'autre extrémité de température T_2 (Drysdale 2011)

La conduction intervient dans le transfert de chaleur associé aux solides. La chaleur passe d'une région à haute température à une région à basse température; ce flux thermique peut être exprimé comme :

$$q'' = -k \frac{\Delta T}{\Delta x} \quad (1.2)$$

ΔT est la différence de température sur une distance Δx , pour une perte de chaleur à travers une plaque plane infinie, ce flux s'écrira en régime permanent:

$$q'' = \frac{k}{L} (T_1 - T_2) \quad (1.3)$$

L l'épaisseur de la plaque est la distance sur laquelle la température thermodynamique passe de T_1 à T_2 (Fig.1.5). En générale les matériaux qui sont de bons conducteurs thermiques sont aussi de bons conducteurs électriques. En effet, un transfert de chaleur peut se produire à la suite d'interactions impliquant des électrons libres dont le mouvement constitue un courant électrique lorsqu'une tension est appliquée. Dans les isolants, l'absence d'électrons libres signifie que la chaleur ne peut être transférée que sous forme de vibrations mécaniques à travers la structure du réseau moléculaire, ce qui est un processus beaucoup moins efficace.

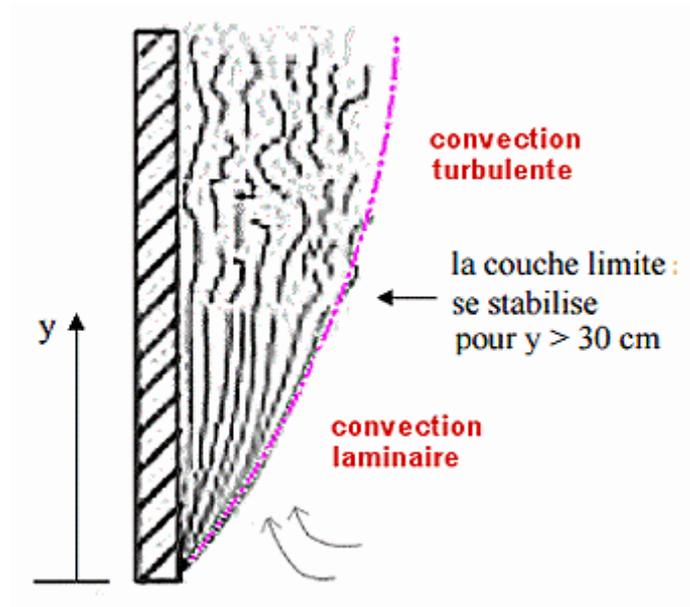


Figure 1.6 Convection naturelle sur une paroi verticale

La convection représente le transfert de chaleur entre un fluide (dans ce cas l'air, les flammes ou les produits de combustion) et une surface (solide ou liquide). La chaleur se sert du fluide comme véhicule pour se déplacer. La relation empirique dans ce cas est donnée par :

$$q'' = h_t \Delta T \quad (1.4)$$

Le coefficient de transfert thermique par convection h_t dépend de la configuration, de la surface et de la nature de l'écoulement du fluide le long de cette surface. $\Delta T = T - T_0$ pour une perte de chaleur d'un combustible de température de surface T à l'air ambiant de température T_0 . La convection sera forcée lorsque l'écoulement du fluide est forcé par un dispositif mécanique quelconque (e.g. vent, ventilateur). Elle est naturelle lorsqu'il existe une différence de température entre deux points d'un fluide, le fluide chaud, qui aura une masse volumique plus faible que le fluide froid aura tendance à monter sous l'effet de la poussée d'Archimède. Le tableau 1.3 donne quelques valeurs du coefficient de convection h_t .

Le fluide	h_t (W/m ² .K)
L'air, convection naturelle	6-30
L'air, convection forcée	30-300
L'eau, convection forcée	300-18000
L'eau, ébullition	3000-60000

Tableau 1.3 Ordre de grandeur du coefficient de convection (Kreith et al., 2011).

Le rayonnement, semblable à la lumière visible (sauf qu'il a une plus grande longueur d'onde), se propage sans nécessiter de support matériel (même à travers le vide), Il se déplace à la vitesse de la lumière (3×10^8 m/s). Le transfert thermique radiatif est alors un transfert d'énergie par onde électromagnétique. Les radiations de tout le spectre électromagnétique peuvent être absorbées, transmises ou réfléchies. Il devient le mode dominant de transfert de chaleur dans les incendies lorsque le diamètre du lit combustible augmente au-delà d'environ 0,3 m, il détermine la croissance et la propagation des incendies (Drysdale, 2011). A partir de l'équation de Stefan-Boltzmann, les pertes de chaleur par rayonnement peuvent être déduites:

$$q'' = \sigma \varepsilon (T^4 - T_0^4) \quad (1.5)$$

T est la température de surface du combustible et T_0 est la température ambiante. ε est l'émissivité de la surface (c'est-à-dire son aptitude à émettre un rayonnement), l'émissivité d'un corps noir est égal à l'unité tandis que pour une surface réelle $\varepsilon < 1$.

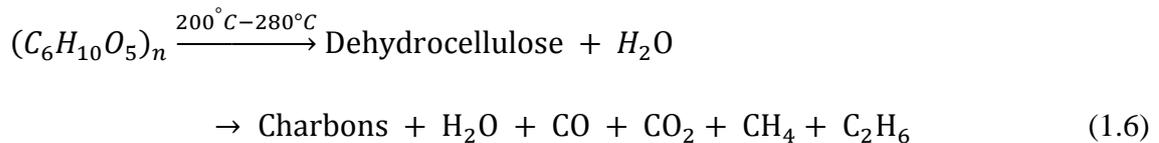
1.4 La pyrolyse et la combustion

1.4.2 La pyrolyse

La pyrolyse est le processus thermochimique qui conduit à l'allumage d'un combustible solide. C'est un phénomène de décomposition chimique complexe provoquée par l'absorption d'énergie (par exemple l'énergie reçue par une flamme ou un panneau radiant) (Davis, 1959 ; Williams, 1982; Drysdale, 2011). Les molécules lourdes présentes dans le végétal (comme la cellulose) se transforment en des molécules plus légères (hydrocarbures) que l'on retrouve lors des réactions de combustion. Une fois la phase d'évaporation passée, le combustible monte en température. Entre 130°C et 190°C la lignine et l'hemicellulose commencent à se dégrader et à pyrolyser : ce sont des réactions endothermiques. Au-dessus de 200°C, cette dégradation s'accélère. Il faut préciser que leur structure est moins régulière que celle de la cellulose et leur comportement vis à vis de la pyrolyse est complexe. Entre 200°C et 280°C une réaction chimique de déshydratation de la cellulose se produit avec modification des liaisons chimiques de la cellulose : la molécule de dehydrocellulose se forme. L'efficacité de cette transformation dépend de la vitesse de chauffe et de la quantité de minéraux présents. C'est également un processus endothermique. A ce stade le combustible a déjà perdu 35 % de sa masse initiale.

Au-dessus de 280°C deux réactions de pyrolyse s'effectuent en parallèle :

- La dehydrocellulose formée précédemment se décompose pour former des charbons, H_2O , CO et CO_2 , du méthane et de l'éthane ;



Où $(C_6H_{10}O_5)_n$ représente la cellulose.

- La cellulose non déshydratée se décompose pour former du levoglucosan qui produit à son tour des hydrocarbures volatils. Ces hydrocarbures sont ensuite évacués avec les autres gaz et forment 70 % de la valeur calorifique de la flamme. Cette réaction de pyrolyse est un mécanisme dit de «unzipping» de la molécule de cellulose (Williams, 1982).



Ces deux réactions mènent à la production de charbon et d'hydrocarbures. Elles s'effectuent à des vitesses de formation différentes. Il semblerait qu'une température basse favorise la formation de charbons (Drysdale, 2011).

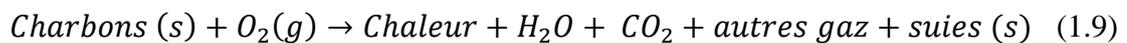
1.4.2 La combustion

La combustion est une réaction chimique exothermique entre le combustible (toute substance susceptible de brûler, c'est-à-dire pouvant être partiellement ou totalement détruite par le feu) et le comburant (le corps qui provoque et entretient la combustion du combustible; le plus souvent, le comburant est constitué par l'oxygène présent dans l'air ambiant). On distingue deux types de combustion : combustion couvante (lente) et combustion avec flammes (vive). Elles sont générées par le même processus, la pyrolyse décrite en générale par l'équation (1.8).



1.4.2.1 La combustion couvante (lente) :

La combustion couvante est une combustion lente, à basse température, sans flammes (Rein 2016). Elle est entretenue par la chaleur dégagée lorsque l'oxygène attaque directement la surface d'un combustible. A cause de sa basse température, la combustion lente est caractéristique par une réaction d'oxydation incomplète et émet ainsi un mélange de gaz et de particules toxiques, asphyxiants et irritants à un rendement plus élevé que les incendies enflammés. C'est une réaction hétérogène du combustible solide avec un comburant (Santoso et al., 2019), elle peut être décrite par l'équation suivante:



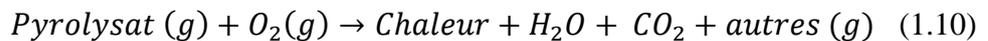
Dans un feu couvant, la zone carbonisée s'oxyde en surface, ce qui dégage localement assez de chaleur pour carboniser les zones voisines du combustible. Le processus est très lent, mais peut dans certains cas produire des flammes qui déclencheront très rapidement un incendie (Rein, 2016). Les feux couvants détruisent ainsi de grandes quantités de biomasse et causent de grands endommagements au sol (Fig.1.7).



Figure 1.7 Feu couvent (Rein, 2009)

1.4.2.2 La combustion vive :

La combustion vive (avec flammes) est typiquement différente de la combustion lente. Si la combustion lente est la réaction hétérogène du combustible solide avec un comburant, la combustion vive, quant à elle, est la réaction homogène du combustible gazeux avec un comburant, elle dégage plus de chaleur (voir tableau 1.4).



Caractéristiques	Combustion vive	Combustion lente
Pique de température (°C)	1500 à 1800	450 à 500
Vitesse de propagation (mm/min)	100	1
Chaleur Effective de combustion (kJ/kg)	16 à 30	6 à 12
Source d'allumage (kW/m ²)	30	8

Tableau 1.4 Tableau comparatif de quelques caractéristiques des combustions couvante et vive (Hadden et al., 2014; Rein, 2016).

La flamme est un phénomène de la phase gazeuse (Drysdale, 2011). La présence d'une flamme dépend du taux de génération en gaz de pyrolyse (le pyrolysat), notamment en hydrocarbures. La composition de ces gaz dépend de la quantité d'énergie reçue par la végétation (Rochoux, 2014), de la quantité d'oxygène, de la composition des végétaux et de la température.



Figure 1.8 Feu vif (avec flammes)

Comme cité ci-dessus, pour presque tous les solides, une décomposition chimique ou une pyrolyse est nécessaire pour donner des produits de poids moléculaire suffisamment bas qui peuvent se volatiliser à partir de la surface et entrer dans la flamme. Comme cela nécessite beaucoup plus d'énergie qu'une simple évaporation, la température de surface d'un solide brûlant a tendance à être élevée (généralement $400\text{ }^{\circ}\text{C}$). Les exceptions à cette règle sont les solides qui se subliment lors du chauffage, c'est-à-dire passent directement du solide à la phase vapeur sans décomposition chimique.

1.5 Les types d'inflammation

L'inflammation peut être définie comme le processus par lequel une réaction exothermique rapide est déclenchée, qui se propage ensuite et provoque le changement du matériau impliqué, produisant des températures largement supérieures à la température ambiante (Drysdale, 2011). On distingue deux types d'inflammation : l'auto-inflammation et l'inflammation pilotée (amorcée).

1.5.1 L'auto-inflammation

C'est le cas où la flamme se développe spontanément dans le mélange (gaz volatiles/air). La température du combustible doit être très élevée ce qui implique un transfert de chaleur par convection de la surface solide au gaz pour que l'inflammation se produise spontanément dans la couche limite chaude.

Ce phénomène appelé aussi inflammation spontanée se produit lorsque le matériau est entreposé en grande quantité d'une manière telle que la chaleur produite par une lente oxydation de surface ne peut s'échapper, entraînant une élévation de température dans la masse (Bowes, 1984). Si les conditions s'y prêtent, une telle situation peut mener à une réaction non maîtrisée qui produit un feu couvant à l'intérieur même du matériau.

Les réactions chimiques exothermiques présentent un risque d'incendie comme s'il s'agissait de «sources internes d'inflammation». Les substances susceptibles d'auto-échauffement et d'inflammation spontanée peuvent toutefois devenir des sources d'inflammation secondaires en provoquant l'inflammation de combustibles se trouvant dans leur voisinage.

Même si certains gaz (par exemple, le phosphore d'hydrogène, l'hydrure de bore ou l'hydrure de silicium) et certains liquides (par exemple, les métaux carbonyle, ou les composés organométalliques) sont susceptibles d'inflammation spontanée, la plupart des combustions spontanées prennent la forme de réactions de surface dans des solides. L'inflammation spontanée, comme toute inflammation, dépend de la structure chimique de la matière et surtout de son degré de dispersion. Si la surface spécifique est importante, la chaleur de réaction peut s'accumuler localement et contribuer à faire monter la température de la matière au-delà de la température d'inflammation spontanée.

Certains liquides peuvent s'enflammer spontanément s'ils entrent en contact avec de l'air sur des matières solides d'une grande surface spécifique. Les graisses, et particulièrement les huiles insaturées contenant des liaisons doubles, sont susceptibles de s'enflammer spontanément dans des conditions atmosphériques normales lorsqu'elles sont absorbées par des matières fibreuses ou qu'elles imprègnent des textiles d'origine végétale ou animale. De très graves incendies ont été causés par l'inflammation spontanée de produits de laine de verre ou de laine minérale faits de fibres incombustibles ou de matières inorganiques ayant une grande surface spécifique, qui avaient été contaminés par une huile.

L'inflammation spontanée a été principalement observée dans le cas des poussières de matières solides. Un métal ayant une bonne conductivité thermique doit se présenter sous forme de particules assez fines pour prendre feu spontanément sous l'effet d'une accumulation locale de chaleur. La probabilité d'inflammation spontanée est d'autant plus élevée que les particules sont petites. Certaines poussières métalliques (par exemple, le fer pyrophorique) s'enflamment spontanément au simple contact de l'air. Il faut donc prendre des précautions particulières pour prévenir l'inflammation spontanée lors de la manipulation, de l'entreposage et du traitement industriel de la poussière de charbon, de suies à particules très fines et de poussières de laques et de résines synthétiques. Par exemple les solides pyrophoriques doivent être manipulés de préférence dans une boîte à gants maintenue anhydre et sous atmosphère inerte. Les matières qui ont tendance à se décomposer spontanément sont particulièrement susceptibles de prendre feu sans source d'inflammation externe. L'hydrazine, par exemple, s'enflamme lorsqu'elle est versée sur n'importe quelle matière d'une grande superficie. Les peroxydes, d'utilisation courante dans l'industrie des plastiques, se décomposent facilement, se transformant en dangereuses sources d'inflammation pouvant à l'occasion amorcer une combustion explosive.

La violente réaction exothermique qui se produit lorsque certains produits chimiques entrent en contact les uns avec les autres peut être considérée comme un cas particulier d'inflammation spontanée. C'est le cas par exemple de l'acide sulfurique concentré avec n'importe quelle matière organique combustible, des chlorates avec des sels ou des acides de soufre ou d'ammonium, des composés organiques halogénés avec les métaux alcalins, etc. Le fait que ces produits soient incapables de se «supporter» les uns les autres (*matières incompatibles*) nécessite une attention particulière lorsqu'il faut les entreposer tant séparément qu'ensemble, ainsi que des règles spéciales de lutte contre l'incendie.

Il convient de mentionner en outre qu'un auto-échauffement dangereux peut dans certains cas résulter de mauvaises conditions matérielles (aération insuffisante, refroidissement déficient, manque d'entretien et de nettoyage, réactions provoquant un dégagement excessif de chaleur, etc.), ou être provoqué par celles-ci.

Certains produits agricoles peuvent également prendre feu spontanément: fourrages fibreux, semences huileuses, céréales germées, produits finis de l'industrie de transformation (tranches de betterave séchée, engrais, etc.). L'auto-échauffement de ces matières présente en

outre une caractéristique particulière: les températures dangereuses qui en découlent sont aggravées par certains processus biologiques exothermiques.

1.5.2 L'inflammation pilotée

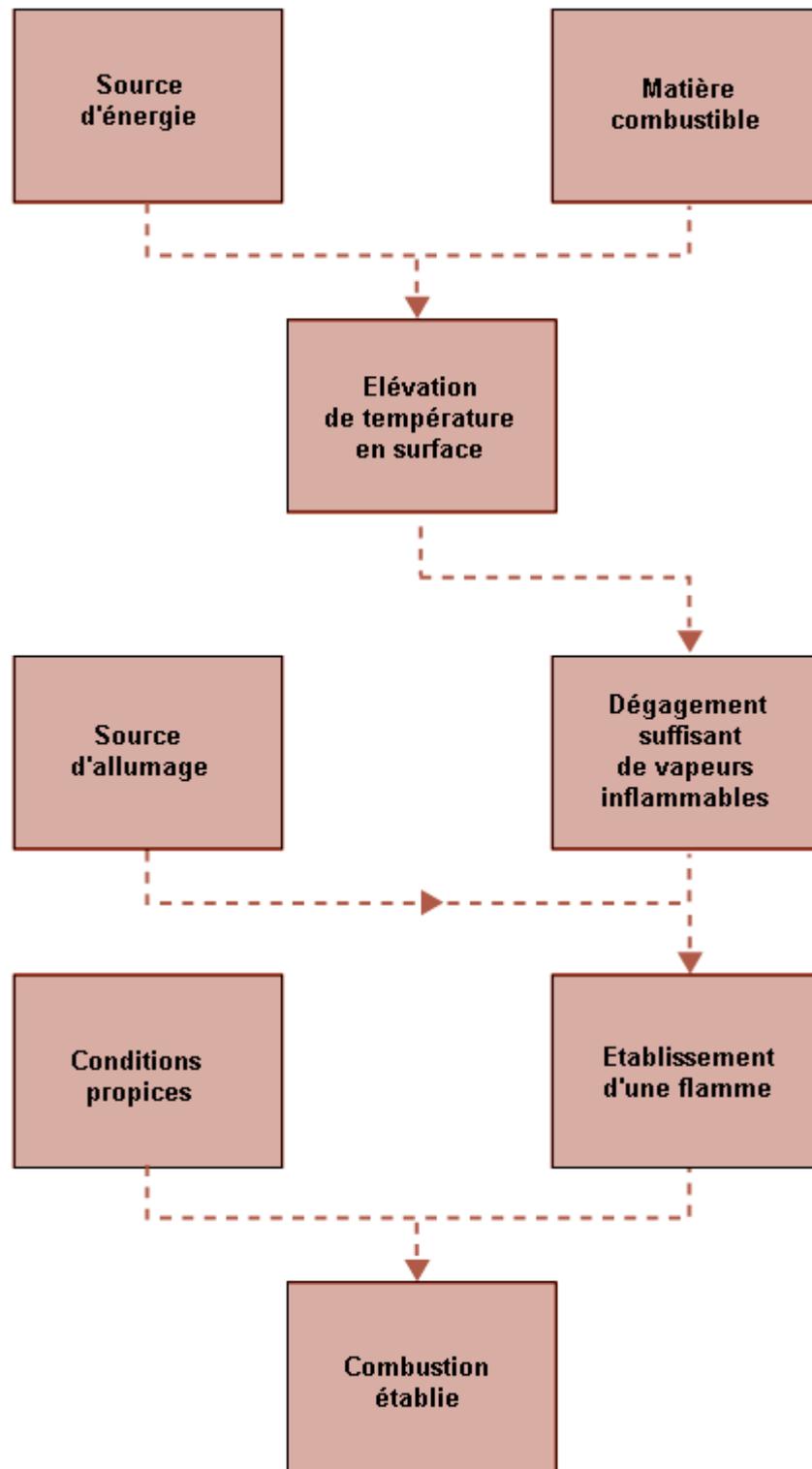


Figure 1.9 Scénario d'une combustion pilotée (Drysdale, 2011)

C'est une inflammation déclenchée dans le mélange (gaz volatiles/ comburant) par *une source d'inflammation (un pilote)* comme une étincelle électrique ou une flamme indépendante. Le schéma de la figure 1.9 présente les étapes de la combustion pilotée (*combustion amorcée*). Pour que la combustion puisse s'établir, les gaz volatils doivent atteindre la limite inférieure d'inflammabilité LII dans l'air à proximité de la source d'énergie locale (Lyon et Quintiere, 2007). Dans notre étude de la transition de phase d'inflammation (chapitre 3), seule l'inflammation pilotée est investiguée.

1.6 Les limites d'inflammabilité

La combustion vive (avec flamme) ne peut pas être maintenue en dehors de certaines limites définies en termes de composition combustible/oxydant/diluant. Une attention particulière a été portée sur la définition de ces limites dans les conditions de combustion pré-mélanges, c'est-à-dire dans les systèmes où le combustible et l'oxydant sont mélangés avant la combustion. Malgré l'intérêt scientifique pour le sujet qui remonte au dix-neuvième siècle, le mécanisme responsable des limites d'inflammabilités n'est pas encore compris. Néanmoins, Il y a eu une grande avancée sur le plan pratique Les fronts de flammes pré-mélangés ne peuvent se propager que dans une gamme de compositions de combustible et d'oxydant. Les limites de composition dans lesquelles une flamme peut se propager sont connues sous le nom de limites d'inflammabilité supérieures et inférieures et sont exprimées en termes de concentrations du combustible dans un mélange oxydant/diluant spécifié à une température et une pression spécifiées. Par exemple, la limite inférieure d'inflammabilité (LII) du méthane dans l'air à température et à pression normales est de 5% en volume, et la limite d'inflammabilité supérieure (LIS) est de 15% en volume. Ainsi, seuls les mélanges méthane/air contenant des concentrations de méthane comprises entre 5% et 15% de méthane favoriseront la propagation de la flamme. Pour la plupart des hydrocarbures simples, les limites inférieures et supérieures d'inflammabilité dans l'air correspondent à un rapport d'équivalence d'environ 0.5 et 3, respectivement. La méthode la plus largement utilisée pour mesurer les limites inflammables a été mise au point par le Bureau des mines des États-Unis (Coward et Jones, 1952). L'appareil est constitué d'un tube vertical de 1,5 m de long et de 0,05 m de diamètre qui est rempli avec le mélange combustible/oxydant/diluant à tester. Le haut du tube est fermé, et la base du tube est ouverte au début de l'essai. Le mélange est considéré comme étant dans les limites inflammables si la flamme peut se propager à mi-hauteur du tube de 1,5 m. La méthode CHETAH (Chemical Thermodynamics and Energy Hazard

Evaluation) développée par ASTM (American Society of Testing Materials) (ASTM, 2016) permet de décrire si le composé ou les composés en mélange ont un caractère inflammable. Elle permet d'estimer le risque de danger potentiel à partir de cinq caractéristiques et de quatre critères. Certains auteurs ont combiné des critères CHETAH pour définir un critère unique qui permet de calculer les limites inférieures d'inflammabilité (LII).

Les limites d'inflammabilité dépendent de la température initiale et de la pression. Masson et Wheeler (1918) ont démontré que l'écart de température de 20°C à 100°C faisait varier la LII de l'ordre de 1 %. Si le mélange gazeux contient également un gaz diluant inerte (diazote dans l'air), il existe une concentration minimale en gaz oxydant (CMO) au-dessous de laquelle le mélange gazeux ne s'enflamme plus. Cette valeur dépend de la nature du gaz diluant (N_2 , CO_2 , gaz rares, etc.). Dans le cas de feux de forêt, le gaz diluant est le diazote. Tous les composés ne sont pas testés expérimentalement, c'est pourquoi il existe des méthodes d'estimation de ces valeurs.

En plus de la méthode CHETAH, la méthode basée sur la règle de Le Chatelier-Boudouad pour le calcul des valeurs de LII, est basée sur une règle empirique développée par Le Chatelier à la fin du dix-neuvième siècle, on peut déterminer la limite inférieure inflammable des mélanges de gaz inflammables multiples dans l'air.

$$-\frac{\Delta H_c \times LII}{100} \cong 12 \text{ kcal} \quad (1.11)$$

Avec ΔH_c la chaleur de combustion, LII la Limite Inférieure d'Inflammabilité. Cette règle exprime la chaleur de combustion à 15°C d'une mole de mélange (air + combustible) dont la teneur est égale à la LII (% volumique) et est voisine de 12 kcal. C'est une estimation de la LII pour les composés organiques. Une généralisation de la règle de Le Chatelier pour plusieurs combustibles a été donnée par Coward et al. (1919):

$$\sum_{i=1}^N \frac{C_i}{LII_i} \geq 1 \quad (1.12)$$

Où C_i est le pourcentage en volume du gaz combustible i et LII_i est le pourcentage en volume du combustible dans l'air seulement du combustible à sa limite d'inflammabilité inférieure.

Pour la LSI, il n'existe qu'une seule méthode pour évaluer cette limite. High et Danner (1987) l'ont formulé de la manière suivante :

$$LSI = \exp(3,817 - 0,2627 N_C + 1,02 \cdot 10^{-2} N_C^2 + \sum_i g_i \psi_i) \quad (1.13)$$

Avec N_C le nombre d'atomes de Carbone de la molécule, g_i la participation des atomes ou groupement d'atomes et ψ_i la fraction volumique de chaque atome ou groupe d'atomes. High et Danner (1987) donnent des valeurs de g_i permettant de calculer facilement la valeur limite supérieure d'inflammabilité.

	Limite inférieure d'inflammabilité (% par volume)	Limite supérieure d'inflammabilité (% par volume)
Acétone	2,6	13
Benzène	1,3	7,9
<i>n</i> -Décane	0,75	5,6
Ethanol	3,3	19
<i>n</i> -Hexane	1,2	7,4
Méthane	5,0	15
Méthanol	6,7	36
Monoxyde de carbone	12,5	74
Propane	2,1	9,5

Tableau 1.5 La limite inférieure et la limite supérieure de quelques gaz

Une très petite étincelle électrique n'ayant qu'une énergie de 0,3 mJ est suffisante pour enflammer un mélange stœchiométrique propane-air. Il peut s'agir d'une décharge d'électricité statique à peine perceptible, comme celle qui se produit lorsqu'on touche un objet mis à la terre après avoir fait quelques pas sur une moquette synthétique. Des quantités d'énergie plus petites encore suffisent pour enflammer certains gaz particulièrement réactifs, comme l'hydrogène, l'éthylène ou l'acétylène.

1.7 Le point éclair et le point d'inflammation

Le Point éclair est la température minimale à laquelle il faut porter un liquide pour que les vapeurs émises s'enflamment en réserve d'une flamme, dans des conditions normalisées (NF.EN.160.13736 et NF.M.07.036). La concentration des vapeurs doit être supérieure ou égale à la LII.

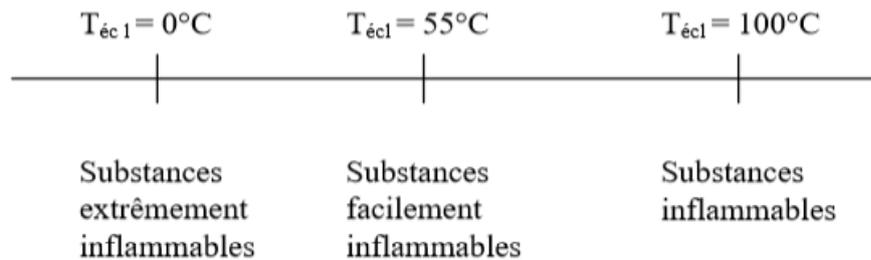


Figure 1.10 Caractérisation des substances en fonction du point éclair

Le point éclair permet de faire un classement des substances à risque (figure 1.10). Plusieurs systèmes de classification ont été développés sous les auspices de l'Union européenne et des Nations Unies pour faciliter le commerce international. Pour la réglementation DSEAR (Dangerous Substances and Explosive Atmospheres Regulations) par exemple, les substances extrêmement inflammables sont ceux qui ont un point éclair de température inférieure à 0°C (Drysdale, 2011).

Il faut dépasser légèrement le point éclair pour que la quantité de vapeurs émises suffise à l'entretien d'une flamme de diffusion (la combustion se produit dans les régions où le combustible gazeux et l'air se mélangent par diffusion). On atteint ainsi le *point d'inflammation*, également appelé *point de feu*. Dans le cas des combustibles solides, les mêmes principes s'appliquent, mais les températures en cause doivent être assez élevées pour produire une décomposition chimique. Le point d'inflammation est en général supérieur à 300°C , selon le combustible. Les matériaux ignifuges ont d'ordinaire un point d'inflammation sensiblement plus élevé. Le Tableau 1.6 montre quelques points d'éclair et d'inflammation de combustibles liquides et solides.

L'inflammabilité d'un solide dépend donc de la facilité avec laquelle on peut amener sa température de surface au point d'inflammation, par exemple en l'exposant à une chaleur rayonnée ou à un courant de gaz chauds. Cela dépend moins du processus de décomposition

chimique que de l'épaisseur et des propriétés physiques du solide, autrement dit de sa *conductivité thermique* (k), de sa *masse volumique* (ρ) et de sa *chaleur spécifique* (c_p^c)

Les solides minces ou fins, comme les copeaux de bois (et toutes les sections minces), peuvent très facilement prendre feu parce que leur masse thermique est faible. Autrement dit, il suffit d'une quantité relativement faible de chaleur pour élever leur température au point d'inflammation. Par contre, lorsque la surface d'un solide d'une certaine épaisseur est chauffée, une partie de la chaleur transmise est dissipée par conduction dans la masse du solide, ce qui limite l'élévation de sa température de surface. Il est possible de prouver que le taux d'élévation de la température superficielle dépend directement de l'*inertie thermique* du solide, c'est-à-dire du produit $k\rho c_p^c$. On le constate d'ailleurs en pratique: un matériau épais doté d'une forte inertie thermique (planche de chêne ou bloc de polyuréthane) met plus de temps à prendre feu sous l'effet d'un flux thermique donné qu'un matériau de la même épaisseur, mais d'une inertie thermique moindre (par exemple, panneau isolant en fibre ou mousse de polyuréthane), qui s'enflammera plus rapidement dans les mêmes conditions (Drysdale, 2011).

	Point d'éclair en vase clos¹ (°C)	Point d'inflammation² (°C)
<i>n</i> -Décane (l)	46	61,5
<i>n</i> -Dodécane (l)	74	103
Essence (indice d'octane 100) (l)	-38	—
Poly(méthacrylate de méthyle) (s)	—	~310
Poly(méthacrylate de méthyle) ignifugé (s)	—	~377
Polypropylène (s)	—	~330
Polypropylène ignifugé (s)	—	~397
Polystyrène (s)	—	~367
Polystyrène ignifugé (s)	—	~445

Tableau 1.6 Points d'éclair et d'inflammation de combustibles liquides et solides

l : liquide, *s* : solide

¹ Mesuré à l'aide de l'appareil à vase clos Pensky-Martens. ² Liquides: mesuré à l'aide de l'appareil à vase ouvert Cleveland. Solides. A noter: les résultats des produits ignifugés ont été obtenus en présence d'un flux thermique de 37 kW/m². (Drysdale et Thomson, 1994)

1.8 Les approximations de la théorie d'inflammation

1.8.1 Le temps d'inflammation

Pour décrire l'inflammation du combustible, il est nécessaire d'avoir une idée sur la condition du temps d'inflammation. Sa connaissance peut aider à expliquer ou à anticiper la séquence temporelle des événements dans un incendie (chronologie). En tout premier lieu, le chauffage du solide entraîne l'augmentation de sa température jusqu'à la production de gaz volatiles ou de pyrolyse (les COVs), la température est alors T_{pyr} . Ensuite les gaz émis doivent être transporté à l'air ambiant. Une fois que ce mélange atteint la limite LII, il suffit d'une source d'énergie proche pour qu'il y ait inflammation, c'est l'inflammation pilotée ou amorcée (Lyon et Quintiere, 2007). Dans le cas d'auto-inflammation (ou auto-allumage), il faut non seulement atteindre un mélange proche de la stœchiométrie mais un volume suffisant du mélange vapeur doit atteindre sa température d'auto-inflammation. Il faut donc que le mélange gaz inflammable-oxygène soit suffisant et ceci ne se passe qu'à de très haute température. Enfin pour l'inflammation pilotée, près du pilote le mélange inflammable procède à la réaction de combustion. La fig.1.11, extraite de la référence (Quintiere, 2016) illustre l'évolution de la température de surface en fonction du temps lors d'une inflammation pilotée.

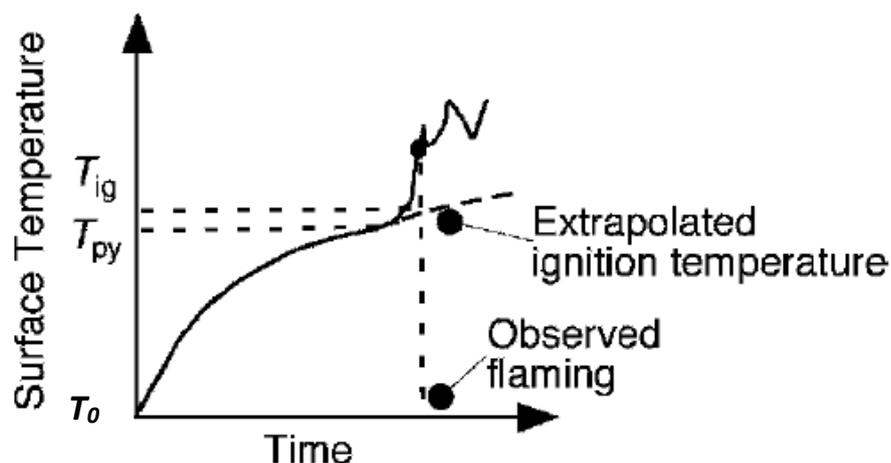


Figure 1.11 La température de surface du combustible vs. Temps d'exposition (Quintiere, 2006)

Le temps d'inflammation est exprimé comme la somme de trois durées de ces différents processus (Quintiere, 2006) :

$$t_{inf} = t_{pyr} + t_{mel} + t_{chem} \quad (1.14)$$

Où:

- t_{pyr} est le temps nécessaire à la surface du solide à atteindre la température de pyrolyse T_{pyr} qui permet aux produits volatiles inflammables de s'enflammer,
- t_{mel} est le temps de diffusion ou de transport nécessaire pour que la mixture (le mélange) inflammable combustible/oxygène atteigne la flamme pilote.
- t_{chem} est le temps requis par le mélange inflammable à procéder à la combustion une fois elle qu'atteint la flamme pilote.

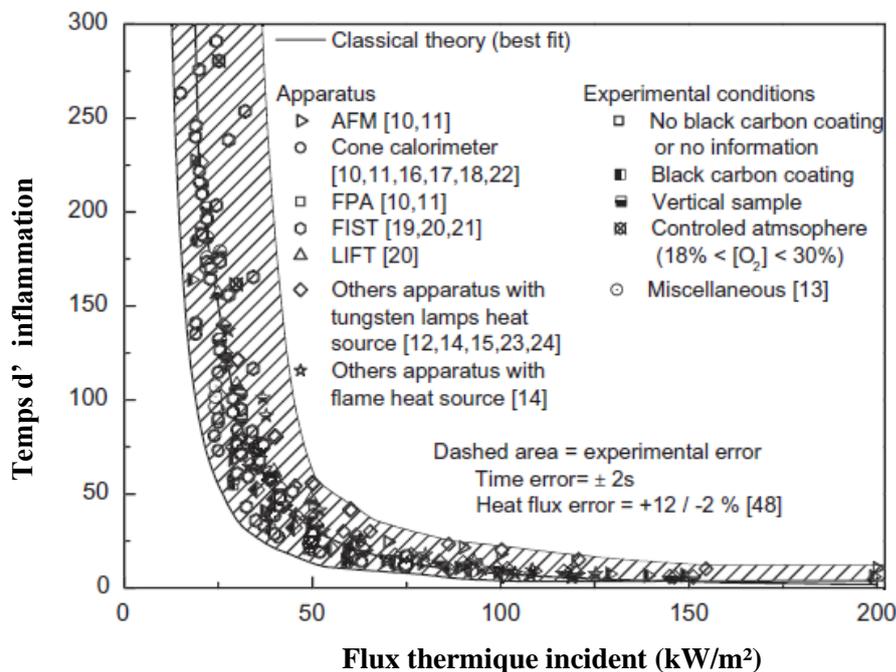


Figure 1.12 Evolution du temps d'inflammation en fonction du flux thermique incident pour le PMMA (selon différentes études voir la réf. Bal et Rein, 2011)

Notons que pour l'inflammation à l'aide d'un pilote $t_{inf} \approx t_{pyr}$, les deux autres temps étant très petits. Le temps d'inflammation est relié au flux thermique incident, si le flux est suffisamment grand, le mélange gazeux s'enflamme rapidement. Par contre, le temps d'inflammation est grand, si le flux incident est petit mais suffisant pour l'inflammation. Enfin, au point critique le temps d'inflammation diverge ($t_{inf} \rightarrow \infty$). Cette évolution du temps d'inflammation en fonction du flux thermique incident est illustrée dans la figure 1.12 extraite de la référence (Bal et Rein, 2011) pour le PMMA (Polyméthacrylate de méthyle). On voit bien que le temps d'inflammation suit la même évolution (aux erreurs près) pour différentes expériences utilisant différents appareils. Dans la région critique des

fluctuations sont observées annonçant le comportement probabiliste du temps d'inflammation dans cette région. Le comportement probabiliste de l'inflammation est étudié dans le chapitre 3.

1.8.2 L'approximation du combustible fin (mince)

Les combustibles considérés fins (minces) sont ceux qui peuvent être approximés comme n'ayant pas de gradients spatiaux internes de température (Quintiere, 2006). L'épaisseur physique " e " dans ce cas est très inférieure à la longueur de pénétration du flux thermique dans le combustible δ_T . Pour que le gradient de température soit faible dans l'épaisseur " e " :

$$e \ll \delta_T \approx \frac{k(T-T_0)}{q''} \quad (1.15)$$

Selon Quintiere (2006), $e \ll 3mm$. Les objets d'environ 1mm d'épaisseur sont considérés comme thermiquement fins. La théorie de l'inflammation des combustibles thermiquement fins est directe et peut s'appliquer à des matériaux d'épaisseur " e ", la température de surface évolue en fonction du temps selon l'équation (Quintiere, 2006):

$$T - T_0 = \frac{q''_{inc}}{h_t} \left(1 - e^{-\frac{h_t t}{\rho e c_p^c}}\right) \quad (1.16)$$

A partir de (1.16), le temps d'inflammation peut être déduit lorsque la température T atteint celle de l'inflammation T_{inf} . Pour de grandes intensités du flux thermique, le temps d'inflammation varie linéairement avec l'inverse du flux incident comme :

$$t_{inf} = [\rho e c_p^c (T_{inf} - T_0)] q''_{inc}^{-1} \quad (1.17)$$

1.8.3 L'approximation du combustible épais

Un combustible solide est considéré comme thermiquement épais lorsque son épaisseur " e " est supérieure ou égale à la longueur de pénétration thermique ($e \geq \delta_T$). Selon Quintiere (2006), les combustibles d'environ 8 cm d'épaisseur et plus sont dits thermiquement épais. Contrairement aux combustibles fins, l'équation de l'évolution temporelle de la surface du combustible est plus compliquée (Quintiere, 2006), elle est donnée par:

$$T - T_0 = \frac{q''_{inc}}{h_t} (1 - e^{-\gamma^2} erfc(\gamma)) \quad (1.18)$$

Avec $\gamma = h_t \sqrt{t / (k\rho c_p^c)}$ et $erfc(\gamma)$ est la fonction complémentaire de la fonction d'erreur $erf(\gamma)$ ($erfc(\gamma) = 1 - erf(\gamma)$). Sachant que la fonction d'erreur est définie par :

$$erf(\gamma) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^\gamma e^{-t^2} dt \quad (1.19)$$

Contrairement au cas des combustibles fins où le temps d'inflammation est simplement déduit de l'équation 1.16, le temps d'inflammation des combustibles épais, est déduit après approximations (voir Quintiere, 2006) et s'écrit comme :

$$t_{inf} \approx \frac{k\rho c_p^c}{\pi} \frac{\left(\frac{q''_{inc}}{h_t}\right)^2}{[q''_{inc} - h_t(T_{inf} - T_0)]^2} \quad (1.20)$$

Pour de grandes intensités du flux thermique, le temps d'inflammation varie linéairement avec l'inverse du carré du flux incident :

$$t_{inf} \approx \left[\frac{\pi}{4} k\rho c_p^c (T_{inf} - T_0)^2 \right] q''_{inc}^{-2} \quad (1.21)$$

1.8.4 Les critères d'inflammation

La pyrolyse se produit dans la phase solide et produit les gaz nécessaires pour alimenter la flamme. Des conditions appelés critères d'inflammation décrivent le moment où l'inflammation de la phase gazeuse aurait lieu. Pour un flux incident constant, il existe trois critères d'inflammation pilotée. Il s'agit de la température critique, de l'énergie critique et du taux de perte de masse critique.

- *La température critique* : C'est le critère le plus utilisé. Comme expliqué ci-haut dans la sous-section du temps d'inflammation, la température de surface du combustible augmente au fur et à mesure que le combustible est soumis à un flux de chaleur. Lorsque la température d'inflammation T_{inf} est atteinte le combustible s'enflamme. Pour les combustibles thermiquement fins comme ceux épais, le critère de la température critique aboutit aux équations donnant le temps d'inflammation pour chaque approximation citée ci-dessus (voir les sous-sections précédentes 1.8.2. et 1.8.3).

- *L'énergie critique* : Ce critère stipule qu'un échantillon s'enflammera après avoir absorbé une certaine quantité d'énergie. L'énergie critique est donc la différence entre l'énergie incidente et celle perdue. Vermesi et al. (2016) introduisent une série de simplifications pour l'estimation de l'énergie critique (telles que des pertes de chaleur négligeables et une température d'inflammation constante).
- *Taux de perte de masse critique* : Chaque élément solide soumis à une réaction de combustion subit une perte progressive de sa masse. La perte de masse est définie comme étant la variation de la masse d'un échantillon en fonction du temps, pour une température donnée. La dérivée de la perte de masse en fonction du temps est appelée taux de perte de masse ou vitesse de perte de masse. Elle caractérise la vitesse à laquelle un combustible solide est décomposé en gaz (Utiskul and Quintiere, 2008). Le taux de perte de masse critique est considéré comme le critère le plus fondamental (Vermesi et al., 2016 ; Lyon et Quintiere, 2007). Il suppose que l'inflammation aura lieu lorsque le mélange pyrolysat/air dépasse la limite inférieure d'inflammabilité LII une fois arrivé au pilote.

En plus de ces trois critères cités pour un flux incident constant, Vermesi et al. (2016) ont ajouté un autre critère pour un flux incident variant de manière parabolique avec le temps. Ce critère introduit la corrélation de l'énergie au carré du temps.

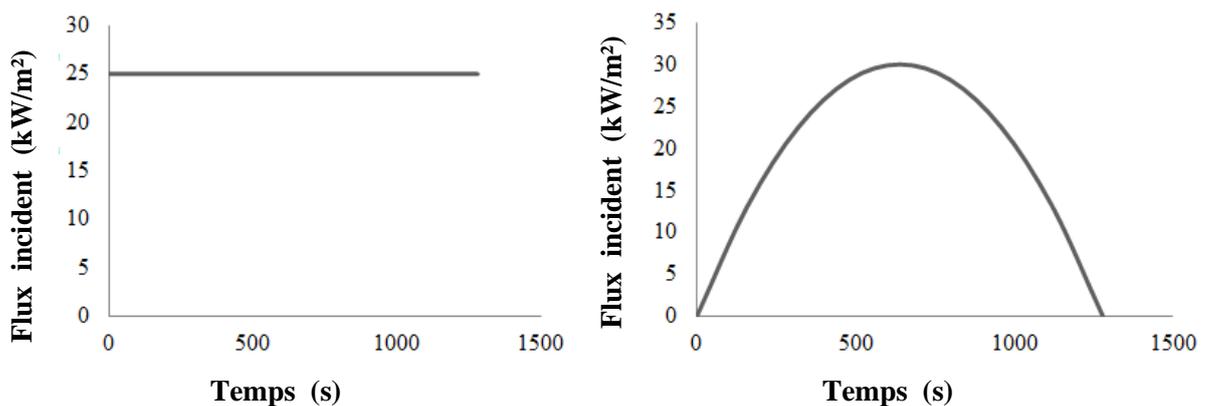


Figure 1.13 Flux incident constant (à gauche), flux incident de variation parabolique (à droite) (Vermesi et al., 2016)

1.9 Appareillage de mesure de l'inflammabilité et de la combustibilité : le cône calorimètre

Le cône calorimètre est un appareil d'essai développé au NIST (National Institute of Standards and Technology) par Babrauskas dans le début des années 80 (Babrauskas, 1984).

Il a été conçu essentiellement pour l'estimation du taux de dégagement de chaleur produit lors de la combustion de matériaux soumis à une densité de flux radiatif incident constant. Ce dispositif a été amélioré par la suite en tenant compte de l'émission des produits de combustion, principalement les gaz CO et CO₂ qui interviennent dans le calcul du taux de dégagement de chaleur (Babrauskas, 2016). Le cône calorimètre peut mesurer d'autres grandeurs physiques comme la chaleur effective de combustion, l'inflammabilité (temps d'inflammation), le dégagement des fumées, des suies et autres gaz toxiques. Notre laboratoire LEPM a acquis en 2017 un cône calorimètre de marque FTT (Fig.1.14) répondant aux normes ISO 5660-1 (2002) et ASTM E1354 (2017).

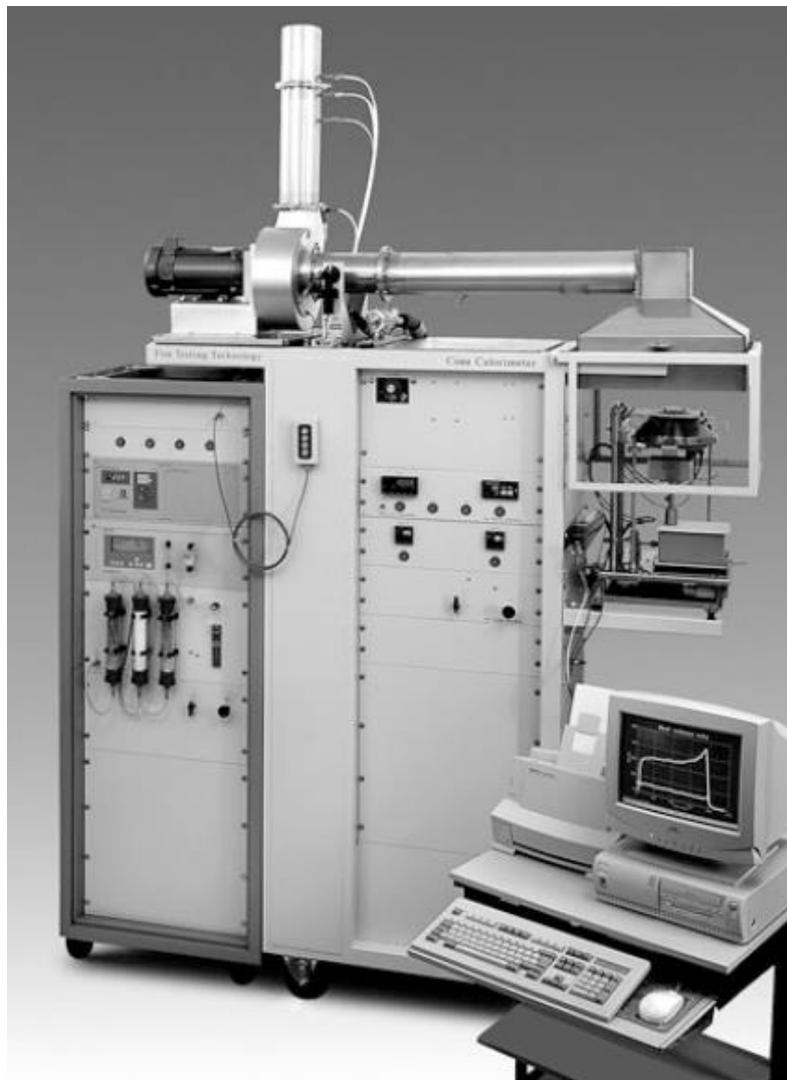


Figure 1.14 Cône calorimètre de marque FTT

Cet équipement n'étant pas opérationnel pendant la période de cette étude, un cône calorimètre inspiré des normes ASTM E1354 a été conçu au niveau de notre laboratoire (Fig.

1.15) pour réaliser ce travail où seul le temps d'inflammation a été mesuré. Par la suite ce dispositif a été amélioré en ajoutant une balance de précision 1 mg pour la mesure de la perte de masse.



Figure 1.15 Le cône calorimètre conçu au niveau du laboratoire LEPM

Comme indiqué ci-haut, le cône calorimètre été conçu en premier lieu à mesurer le taux de dégagement de chaleur. Effectivement le taux de dégagement de chaleur (de l'anglais Heat Release Rate HRR) est une variable importante dans la caractérisation de l'inflammabilité des matériaux et par conséquent dans l'évaluation des risques incendie. Il est déterminé en mesurant le débit de gaz de combustion et la consommation d'oxygène (Babrauskas, 1984). Le taux de dégagement de chaleur HRR est proportionnel à la puissance dégagée par la flamme q :

$$HRR = \frac{q}{S} \quad (1.22)$$

S étant la surface de l'échantillon et q la puissance dégagée calculée par :

$$q = \frac{\Delta h_c}{r_0} (\dot{m}_{O_{2,0}} - \dot{m}_{O_2}) \quad (1.23)$$

Où $\frac{\Delta h_c}{r_0}$: Chaleur de combustion dégagée par unité de masse d'oxygène O_2 consommé ($\approx 13.1 \text{ kJ/g}$ pour la majorité des combustibles).

Avec Δh_c : Chaleur nette de combustion

r_0 : Rapport masse d'oxygène stoïchiométrique/masse de combustible.

$\dot{m}_{O_{2,0}} - \dot{m}_{O_2}$: est la différence du débit massique échappement/admission de l'oxygène.

Si on mesure l'oxygène seulement avec évacuation de la vapeur d'eau (par un refroidisseur et un absorbant d'humidité, drierite dans le cas de notre cône) et du dioxyde de carbone CO_2 (par un absorbant chimique) et en supposant que le gaz de combustion ne contient que de l'oxygène O_2 et l'azote N_2 , la puissance dégagée s'écrira (Janssens, 2016):

$$q = \frac{\Delta h_c}{r_0} \frac{\psi}{1+\psi(\alpha-1)} \dot{m}_e \frac{M_{O_2}}{M_{air}} (1 - X_{H_2O}^{air} - X_{CO_2}^{air}) X_{O_2}^{A,air} \quad (1.24)$$

$$\text{Avec} \quad \psi = \frac{X_{O_2}^{A,air} + X_{O_2}^{A,e}}{(1 - X_{O_2}^{A,e}) X_{O_2}^{A,air}} \quad (1.25)$$

Où

ψ : Facteur de consommation d'oxygène

α : Facteur d'expansion volumétrique, la valeur couramment utilisée est 1.105 (voir Babrauskas, 1984).

\dot{m}_e : Le débit massique de gaz dans le conduit d'échappement du calorimètre (g/s). Il est donné par l'équation 1.29 ci-dessous.

M_{O_2} : La masse molaire de l'oxygène (32 g/mol).

M_{air} : La masse molaire de l'air de combustion ($\approx 29 \text{ g/mol}$).

$X_{H_2O}^{air}$: Fraction molaire réelle de la vapeur d'eau dans l'air de combustion.

$X_{CO_2}^{air}$: Fraction molaire réelle du CO_2 dans l'air de combustion.

$X_{O_2}^{A,air}$: Fraction molaire mesurée de l'oxygène O_2 dans l'air de combustion.

$X_{O_2}^{A,e}$: Fraction molaire mesurée de l'oxygène O_2 dans l'écoulement des gaz de sortie.

En fait, l'air de combustion ne contient pas que de l'oxygène mais les CO_2 , CO et d'autres gaz. En négligeant les autres gaz et si l'analyseur CO_2 est disponible, seul la vapeur d'eau sera évacué. L'expression du taux de dégagement de chaleur sera calculé par l'équation 1.24 avec changement de ψ :

$$\psi = \frac{X_{O_2}^{A,air} (1 - X_{CO_2}^{A,e}) - X_{O_2}^{A,e} (1 - X_{CO_2}^{A,air})}{(1 - X_{O_2}^{A,e} - X_{CO_2}^{A,e}) X_{O_2}^{A,air}} \quad (1.26)$$

Où

$X_{CO_2}^{A,e}$: Fraction molaire mesurée du dioxyde de carbone CO_2 dans l'écoulement des gaz de sortie.

$X_{CO_2}^{A,air}$: Fraction molaire mesurée du dioxyde de carbone CO_2 dans l'air de combustion.

Pour améliorer le calcul de la puissance dégagée, il faut avoir un analyseur CO , CO_2 , la formule devient plus compliquée :

$$q = \left[\frac{\Delta h_c}{r_0} \psi - \left(\left(\frac{\Delta h_c}{r_0} \right)_{CO} - \frac{\Delta h_c}{r_0} \right) \frac{1 - \psi}{2} \frac{X_{CO_2}^{A,e}}{X_{O_2}^{A,e}} \right] \frac{\dot{m}_e}{1 + \psi(\alpha - 1)} \frac{M_{O_2}}{M_{air}} (1 - X_{H_2O}^{air}) X_{O_2}^{A,e} \quad (1.27)$$

$$\text{Avec} \quad \psi = \frac{X_{O_2}^{A,air} (1 - X_{CO_2}^{A,e} - X_{CO}^{A,e}) - X_{O_2}^{A,e} (1 - X_{CO_2}^{A,air})}{(1 - X_{O_2}^{A,e} - X_{CO_2}^{A,e} - X_{CO}^{A,e}) X_{O_2}^{A,air}} \quad (1.28)$$

Où :

$\left(\frac{\Delta h_c}{r_0} \right)_{CO}$: Chaleur de combustion dégagée par unité de masse d'oxygène O_2 consommé pour le CO ($\approx 17.6 \text{ MJ/g}$)

$X_{CO}^{A,e}$: Fraction molaire mesurée du dioxyde de carbone CO dans l'écoulement des gaz de sortie.

Revenons au débit massique \dot{m}_e . Le débit massique de gaz dans le conduit d'échappement du calorimètre est calculé à partir de la différence de pression et de la température au niveau d'une plaque à orifice dans le conduit d'échappement :

$$\dot{m}_e = C \sqrt{\frac{\Delta P}{T_e}}$$

Où

ΔP : La différence de pression mesuré au niveau de la plaque à orifice dans le conduit d'échappement (Pa).

T_e : Température mesuré au niveau de la plaque à orifice dans le conduit d'échappement (K).

C : Constante de calibration. Un étalonnage (calibration) est réalisé par du méthane pur 99.99% pour déterminer cette constante. Cette calibration peut aussi être réalisé en utilisant l'éthanol pur.

Conclusion

Le feu est la manifestation d'une combustion non maîtrisée, A mesure que nous en apprenons davantage sur le feu, l'inflammation et la combustion, nous sommes mieux en mesure de quantifier et de prévoir le comportement au feu des matériaux et d'appliquer nos connaissances au domaine général de la sécurité en cas d'incendie.

Dans ce chapitre, nous avons exposé les différentes caractéristiques de l'inflammation. Nous avons commencé par donner une vue bien approfondie sur les composés organiques volatiles (COV) le premier responsable de l'inflammation, ensuite nous avons rappelé les différentes grandeurs impliquées dans l'inflammation et nous avons exposé quelques approximations de la théorie d'inflammation enfin le cône calorimètre, appareil de mesure de l'inflammabilité et de la combustibilité, est présenté.

Les gaz volatiles subissent une transition de l'état « non-inflammation » vers l'état « inflammation » pour comprendre cette transition de phase, il est nécessaire d'avoir une idée sur les concepts de la théorie des transitions de phase. Ces concepts sont abordés dans le chapitre suivant.

Références bibliographiques du chapitre 1

- ASTM (2016) https://www.astm.org/BOOKSTORE/PUBS/chetah_support.htm
- ASTM (2017), International, Designation E 1354-17, *Standard Test Method for Heat and Visible Smoke Release Rates for Materials and Products Using an Oxygen Consumption Calorimeter*, West Conshohocken, Pennsylvania: American Society for Testing and Materials.
- Babrauskas, V. (1984), Development of the cone calorimeter/A bench-scale heat release rate apparatus based on oxygen consumption, *Fire Mater.*, 8, 81–95.
- Babrauskas, V. (2016), *The Cone Calorimeter*, In: Hurley, M.J. (Ed) *SFPE Handbook of fire protection engineering*. Heidelberg: Springer. pp 952-980.
- Bal, N. et Rein, G. (2011), Numerical investigation of the ignition delay time of a translucent solid at high radiant heat fluxes, *Combustion and Flame*, 158, 1109-1116, doi:10.1016/j.combustflame.2010.10.014.
- Bowes, P.C. (1984), *Self-Heating: Evaluating and Controlling the Hazards*, Londres: Department of the Environment.
- Carde, J., Bernard-Dagan, C., Gleizes, M. (1980), *Membrane systems involved in synthesis and transport of monoterpene hydrocarbons in pine leaves, Biogenesis and function of plant lipids*, in: P.Mazliak, P.Benveniste, C.Costes, R.Douce, (eds). Amsterdam: Biomedical Press, pp. 441–444.
- Connolly, J.D. et Hill, R.A. (1991), *Dictionary of terpenoids*, Dordrecht: Springer.
- Croteau, R. et Gershenzon, J. (1994), *Genetic control of monoterpene biosynthesis in mints (Mentha :Lamiaceae)*, In: Ellis, B.E, Kuroki, G.W. and H.A. Stafford (eds), *Genetic Engineering of Plant Secondary Metabolism, Recent Advances in Phytochemistry*, Vol. 28, New York: Plenum, pp 193–229.
- Courty, L., Chetehouna, K, Lemée, L, Fernandez-Pello, C., Garo, J-P. (2014). Biogenic volatile organic compounds emissions at high temperatures of common plants from mediterranean regions affected by forest fires, *Journal of Fire sciences*, 32, 459-479.
- Coward, H.F., Carpenter, C.W., Payman, W. (1919), The Dilution Limits of Inflammability of Gaseous Mixtures. Part III. The Lower Limits of Some Mixed

Inflammable Gases with Air. Part IV. The Upper Limits of Some Gases, Singly and Mixed, in Air, *Journal of the Chemical Society*, 115, 27–36.

- Coward, H.F., et Jones, G.W. (1952), Bulletin No. 503, U.S. Bureau of Mines, Washington, DC.
- Davis, K.P., Byram, G. M., Krumm, W. R. (1959), *Forest Fire: control and use*, N.Y: McGraw-Hill.
- DiNunno, P.J., 1988: *Handbook of Fire Protection Engineering*, Boston: Society of Fire Protection Engineers (SFPE).
- Drysdale, D. et Thomson, H.E., (1994), *Fourth International Symposium on Fire Safety Science* (Ottawa, International Association for Fire Safety Science (IAFSS)).
- Drysdale, D. (2011), *An Introduction to Fire Dynamics*, 3^{ème} éd., Chichester: Wiley.
- FAO 2001. 'Evaluation des ressources forestières mondiales 2000'. Etude Forêts n° 140. Rome.
- firms (2019) <https://firms.modaps.eosdir.nasa.gov> . consulté Aout 2019.
- Gleizes, M., Pauly, G., Carde, J.-P, Marpeau, A., Bernard-Dagan, C. (1983), Monoterpene hydrocarbon biosynthesis by isolated leucoplasts of *Citrofortunella mitis*, *Planta*, 159, 373–381.
- Guenther, A., Hewitt, C.N., Erickson, D., Fall, R., Geron, C., Graedel, T., Harley, P., Klinger, L., Lerdau, M., McKay, W.A., Pierce, T., Scholes, B., Steinbrecher, R., Tallamraju, R., Taylor, J., Zimmerman, P. (1995), A global model of natural volatile organic compound emissions *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100, 8873–8892
- Hadden, R., Alkatib, A., Rein, G., José L. Torero, J.L. (2014), Radiant Ignition of Polyurethane Foam: The Effect of Sample Size. *Fire Technology* 50 (3), 673-691. doi: 10.1007/s10694-012-0257-x.
- Hakola, H., Rinne, J., Laurila, T. (1998), The hydrocarbon emission rates of tea-leafed willow (*Salix phylicifolia*), silver birch (*Betula pendula*) and european aspen (*Populus tremula*), *Atmospheric Environment*, 32, 1825–1833
- High, M.S. et Danner, R.P. (1987), *Engineering. Resource*, 26, 1395-1399.
- ISO 5660-1(2002), International Standard, *Reaction-To-Fire Tests—Heat Release, Smoke Production and Mass Loss Rate*, Geneva: International Organization for Standardization.

- Janssens, M. (2016), *Calorimetry*, In: Hurley, M.J. (Ed) *SFPE Handbook of fire protection engineering*. Heidelberg: Springer. pp 905-951.
- Kesselmeier, J., et Staudt, M. (1999), Biogenic Volatile Organic Compounds (VOC): An Overview on Emission, Physiology and Ecology, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 33, 23–88.
- Kleinig, H. (1989), The role of plastids in isoprenoid biosynthesis, *Annual Review of Plant Physiology and Plant Molecular Biology*, 40, 39–59.
- Kreith, F., Manglik, R.M., Bohn, M.S. (2011), *Principles of heat transfer, 7ième ed. U.S: Global Engeneering*.
- Ler dau, M., Guenther, A., Monson, R. (1997), Plant production and emission of volatile organic compounds. *BioScience*, 47, 373–383
- Loreto, F., Ciccioli, P., Cecinato, A., Brancaleoni, E., Frattoni, M., Fabozzi, C., Tricoli, D. (1996), Evidence of the photosynthetic origin of monoterpenes emitted by quercus ilexl. leaves by ¹³C labeling. *Plant Physiology*, 110,1317–1322.
- Lyon, R.E. et Quintiere, J.G. (2007), Criteria for piloted ignition of combustible solids, *Comb. Flame* 151, 551-559, [doi:10.1016/j.combustflame.2007.07.020](https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2007.07.020)
- Masson, T. et Wheeler, M. (1918), *Journal of the chemical Chemistry Society*, 45, 113-118.
- McCaskill, D. et Croteau, R. (1995), Monoterpene and sesquiterpene biosynthesis in glandular trichomes of peppermint (*Mentha x piperita*) rely exclusively on plastid-derived isopentenyl diphosphate. *Planta*, 197, 49–56.
- McGarvey, D.J. et Croteau, R. (1995), Terpenoid metabolism., *The Plant Cell*, 7, 1015–1026.
- Morvan, D., Méradji, S. et Accary, G. (2009), Physical modelling of fire spread in grasslands, *Fire Safety Journal*, 44, n° 1, 50–61.
- Monson, M. T., Ler dau, T. D., Sharkey, D., Schimel, S., Fall, R. (1995), Biological aspects of constructing volatile organic compound emission inventories, *Atmospheric Environment*, 29 (21), 2989–3002
- Owen S., Boissard C., Strett A., Duckham S.C., Csiky O., Hewitt C.N. (1997), *Atmospheric Environment*, 31, 101–118.
- Owen S., Harley P., Guenther A., Hewitt C.N. (2002), *Atmospheric Environment*, 36, 3147-3159.

- Quintiere, J.G. (2006), *Fundamentals of fire phenomena*, West Sussex :J.Wiley.
- Rajaonarivony, J.I, Gershenzon, J., Croteau, R. (1992), Characterization and mechanism of (4S)-limonene synthase, a monoterpene cyclase from the glandular trichomes of peppermint (*Mentha x piperita*), *Archives of biochemistry and biophysics*, 296, 49–57.
- Rein, G. (2016), *Smoldering combustion*, in: Hurley, M.J. (ed), *SFPE Handbook of fire protection engineering*, chap.19. Heidelberg :Springer pp. 581-603.
- Rochoux, M. (2014), *Vers une meilleure prévision de la propagation d'incendies de forêt : Évaluation de modèles et assimilation de données*, thèse de doctorat, Châtenay-Malabry, Ecole centrale de Paris.
- Santoso, M.A, Christensen, E., Yang, J., Rein G. (2019), Review of the Transition from Smouldering to Flaming Combustion in Wildfires, *Front. Mech. Eng.*, 5:49. doi:10.3389/fmech.2019.00049.
- Seufert, G., Kotzias, D., Sparta, C., Versino, B. (1995), Volatile organics in mediterranean shrubs and their potential role in a changing environment. *Biodiversity and Conservation*, 6 , 343–370
- Sharkey, T.D. (1991), *Stomatal control of trace gas emissions*. In: Sharkey, T. D., Holland, E. A. and Mooney, H. A. (eds), *Trace Gas Emissions from Plants*, San Diego: Academic Press, p.p 335–339.
- Silver, G.M. et Fall, R. (1991), Enzymatic synthesis of isoprene from dimethylallyl diphosphate in aspen leaf extracts, *Plant Physiology*, 97, 1588–1591.
- Soler E., Feron G., Clastre M., Dargent R., Gleizes M., Ambid C. (1992), Evidence for a geranyl-diphosphate synthase located within the plastids of *vitis vinifera* l. cultivated in vitro, *Planta*, 187,171–175.
- Sullivan A. (2009), Wildland surface fire spread modelling, 1990-2007. 1 : Physical and quasiphsical models, *International Journal of Wildland Fire*, 18, 349–368.
- Utiskul, Y.P. et Quintiere, J.G. (2008) , *Fire Safety Science–Proceedings of the Ninth International Symposium*, 827-838. doi:10.3801/IAFSS.FSS.9-827.
- Vermesi I., Roenner N., Pironi P., Hadden R.M., Rein G. (2016), Pyrolysis and ignition of a polymer by transient irradiation, *Comb. Flame* 163, 31-41, doi:[10.1016/j.combustflame.2015.08.006](https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2015.08.006)

- Viegas D.X, Simeoni, A. (2011), Eruptive behaviour of forest fires, *Fire Technology*, 47, 303-320.
- Welty, J.R., Wilson, R.E., Wicks, C.E. (1976). *Fundamentals of Momentum, Heat and Mass Transfer*, New York: Wiley.
- Williams, F.A. (1982), Urban and wildland fire phenomenology, *Progress in Energy and Combustion Science*, 8, 317–354.

Chapitre 2

Transitions de phase

2.1 Introduction

Une phase est un état de la matière ou de système en équilibre thermodynamique. Le même système (ou matière) peut se trouver dans plusieurs états ou phases différentes en fonction des conditions macroscopiques (température, pression, etc.). Considérons l'exemple bien connu de l'eau et de ces différents aspects. Ainsi, l'eau peut exister dans trois phases, le solide (la glace), le liquide (l'eau) et le gaz (la vapeur) que l'on peut distinguer au gré des saisons ou dans notre vie quotidienne. Les transitions d'une phase à l'autre sont très familières et correspondent, par exemple, au gel, à l'ébullition et à la sublimation. Ce qui caractérise ces transitions, c'est le changement qualitatif, la discontinuité des propriétés lors d'une petite modification d'un paramètre (comme la température). Cet exemple de transition de phase est le plus connu et le plus rencontré dans la vie quotidienne mais les transitions de phase de l'eau sont loin d'être un cas isolé. On retrouve les transitions de phase partout dans la nature et dans différents domaines. On peut citer par exemple les transitions :

ferromagnétique/paramagnétique (Pokrovskii, 1999; Ngo et Ngo, 2001; Stanley, 1971), isolant/ conducteur (Stauffer et Aharony, 1992), conducteur/supraconducteur (Yeomans, 1992; Ngo et Ngo, 2001), fluide/superfluide (Ngo et Ngo 2001), ordre /désordre dans les alliages (Papon, 1999), épidémie/endémie (Zekri et Clerc, 2001), propagation/non-propagation des feux de forêts (Stauffer et Aharony, 1992 ; Zekri et al., 2005), fluidité/non-fluidité dans le domaine de trafic routier (Chowdhury et al., 2000)...etc. Le phénomène de transition de phase est le phénomène le plus spectaculaire de la nature. Il correspond de façon



Figure 2.1 La fonte ambiante fraîche décrit une transition de phase solide-liquide

générale à un changement qualitatif et quantitatif des propriétés macroscopiques de la matière, un tel changement se produit lorsqu'un paramètre macroscopique pertinent (température, pression, etc.) appelé paramètre de contrôle atteint une certaine valeur appelé valeur seuil (ou valeur critique). Dans ce cas, la phase thermodynamique devient instable et le désordre est grand (Isihara, 1971; Papon et al., 1999). Dans ce chapitre, nous allons aborder quelques notions élémentaires sur les transitions de phase.

2.2 Quelques exemples de transitions de phase

2.2.1 Les transitions de phase solide /liquide/gaz

Le diagramme de la figure 2.2, est le diagramme (pression, température) montrant les domaines d'existence de trois phases (solide, liquide, gaz). Les lignes en trait plein qui séparent les différentes phases sont des zones de coexistence. La courbe AB est celle de la sublimation, elle sépare la phase solide de celle gazeuse. Le long de cette courbe les phases solide et gaz coexistent. De même, les courbes BC et BD sont les courbes de vaporisation et de fusion respectivement, elles séparent la phase liquide de la phase gazeuse respectivement la phase solide de celle liquide. BC (BD) est la courbe des points de coexistence des phases liquide et gaz (solide et liquide). La Fig. 2.2 montre que les températures de sublimation, d'évaporation et de fusion dépendent de la pression. On note deux points particuliers : le point triple T_t , à la jonction B des trois domaines, il correspond à un état dans lequel les trois phases existent simultanément, et le point critique C (p_c , T_c), point d'arrêt à la frontière entre domaines liquide et gaz. En tournant autour du point critique, on peut passer continûment de la phase liquide à la phase gazeuse sans transition discontinue. En tout point de la ligne BC la densité du liquide et celle du gaz sont différentes, sauf au Point C, elles sont identiques ce qui permet de distinguer les deux états (Ngo et Ngo, 2001). Contrairement à la ligne BC, la ligne BD (celle de fusion) ne se termine pas par un point critique.

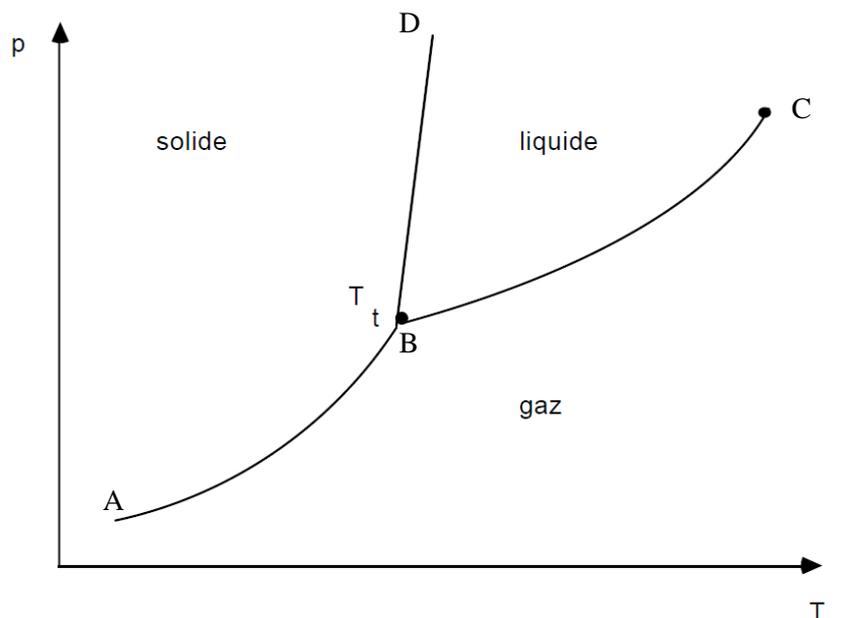


Figure 2.2 Diagramme de phase (pression, température) montrant les domaines d'existence de trois phases (solide, liquide, gaz)

2.2.1 La transition de phase ferromagnétique

Les matériaux ferromagnétiques présentent une aimantation permanente en l'absence de champ magnétique extérieur. Le ferromagnétisme s'observe pour quelques métaux de transitions comme le fer, le cobalt ou le nickel. Un nombre non négligeable d'électrons d'une couche incomplète ont leurs spins qui s'alignent dans une même direction.

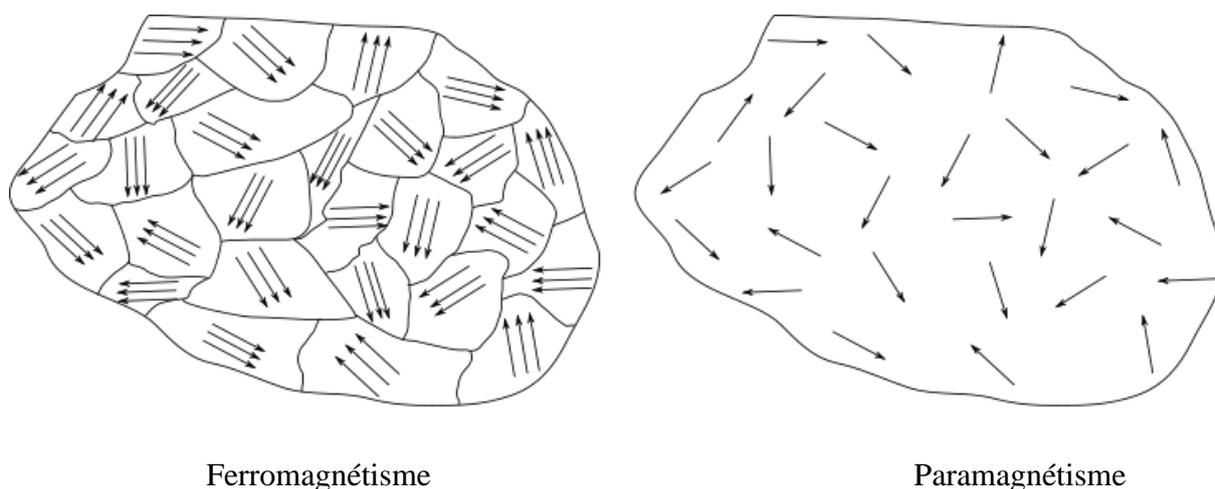


Figure 2.3 Différence d'orientation de spins entre un matériau ferromagnétique et un autre paramagnétique.

Lorsqu'un matériau est chauffé au dessus d'une certaine température appelée **température de curie T_c** , le ferromagnétisme disparaît au profit du paramagnétisme. Ceci est dû à ce que l'interaction qui tend à aligner les spins ne peut lutter contre l'agitation thermique qui tend à leur donner une orientation aléatoire (Papon, 1999 ; Yeomans, 1992 ; Ngo et Ngo, 2001). De même, le paramagnétisme disparaît au profit du ferromagnétique quand la température diminue au-dessous de **T_c** .

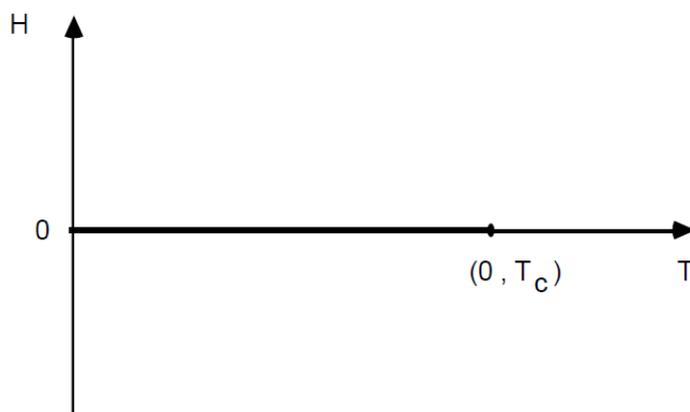


Figure 2.4 Diagramme de phase (champ magnétique, température) d'un simple ferromagnétique (Yeomans, 1992)

La figure 2.4 illustre le diagramme (champ magnétique, température) pour un corps qui présente une transition ferromagnétique. Ce diagramme présente une frontière sur l'axe $H = 0$ avec un point d'arrêt, qu'on appelle aussi point critique de la même manière que celui de la transition liquide-gaz illustré sur la Fig 2.2. En champ nul, à haute température ($T > T_c$) on observe une phase de spin symétrique, dite paramagnétique, sans aimantation spontanée. Quand T diminue et lorsque $T = T_c$ au point critique, une transition de phase paramagnétique/ferromagnétique a lieu. Enfin, pour $T < T_c$, on observe une brisure de symétrie correspondant à une phase ferromagnétique avec l'apparition d'une aimantation spontanée. Il y a une analogie avec la transition liquide-gaz, H et p jouant des rôles similaires.

Dans le diagramme de la figure 2.5, si on traverse la frontière ($H = 0$, $0 < T < T_c$), on observe un saut de l'aimantation ; ce saut diminue quand le point de franchissement de la frontière se rapproche du point critique ; au point critique, il n'y a plus de saut de l'aimantation.

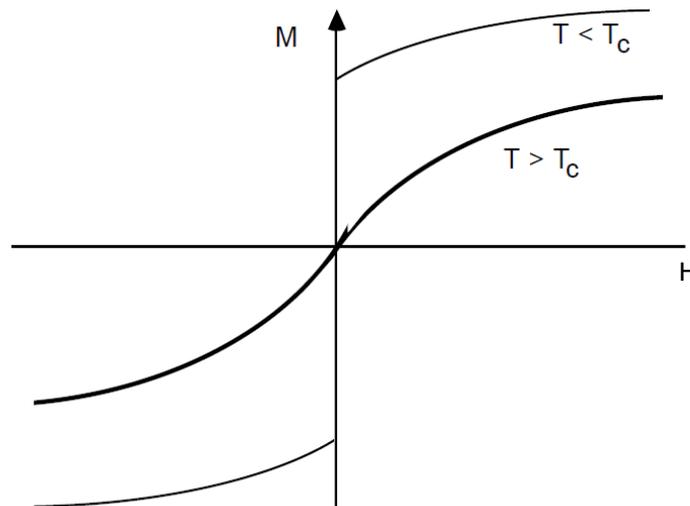


Figure 2.5 Courbe de l'aimantation $M(H)$ pour un ferromagnétique à différentes températures. L'aimantation ne présente une discontinuité que pour $T < T_c$ lorsque le champ change de signe (Yeomans, 1992).

2.3 Classification des transitions de phase

Le domaine des transitions de phase connaît, tout à la fois, une diversité extrêmement riche, mais aussi de nombreuses propriétés communes, voire universelles. Les transitions de phase étant caractérisées par leurs singularités thermodynamiques, c'est par la nature de ces singularités qu'on a, tout d'abord, tenté d'effectuer cette classification. Mais, avec l'évolution historique de la thermodynamique et de la physique statistique, diverses façons de discuter ces

singularités ont été, en leur temps, proposées. Ces différentes classifications traduisent l'évolution conceptuelle des méthodes d'études des transitions de phase.

2.3.1 Classification d'Ehrenfest

C'est une classification basée sur la continuité des dérivées n-ième de l'énergie libre (ou sur le degré de non-analyticité de l'énergie). Elle a été proposée par Paul Ehrenfest en 1933 (Ehrenfest et Ehrenfest, 1990), son idée de l'ordre de transition est basée sur l'expansion de la fonction du potentiel chimique en une série de Taylor en termes de dT et dP .

- **Les transitions du premier ordre :** sont celles pour lesquelles la dérivée première par rapport à une des variables thermodynamiques de l'énergie libre est discontinue (présence d'un "saut" dans cette dérivée).
- **Les transitions du deuxième ordre :** sont celles pour lesquelles la dérivée seconde par rapport à une des variables thermodynamiques de l'énergie libre n'est pas continue.

La classification d'Ehrenfest peut être généralisée et on peut définir des transitions d'ordre supérieur (on parlera de transitions multicritiques). Cependant, bien que la classification d'Ehrenfest ait le mérite de mettre en évidence des différences et des similitudes entre diverses transitions, elle se limite à des concepts thermodynamiques insuffisants pour bien comprendre la physique d'une transition.

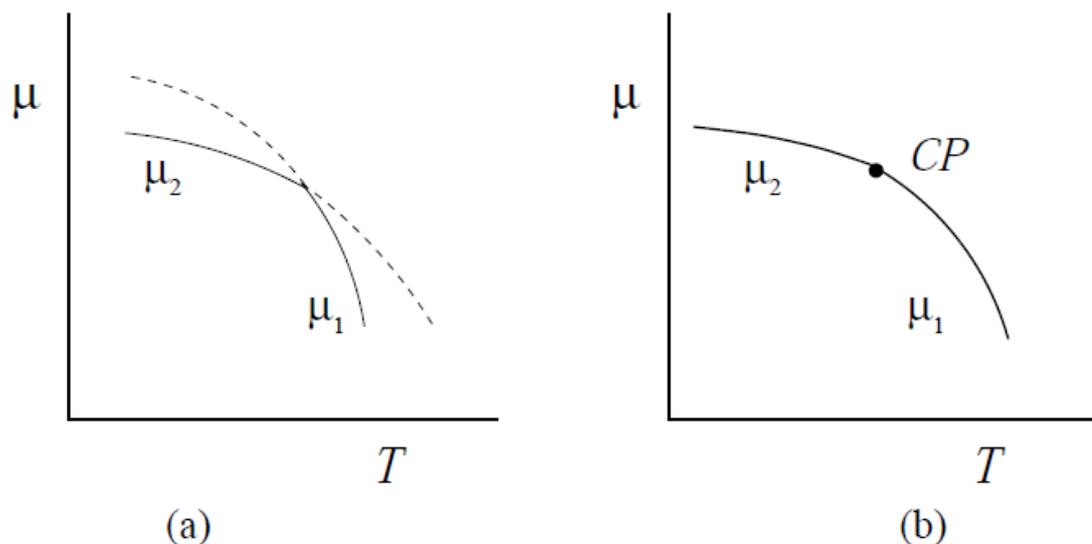


Figure 2.6 Potentiels chimiques de deux phases en contact lorsque $\mu_1 = \mu_2$ les deux phases coexistent. (a) Transition de phase du 1^{er} ordre (discontinuité du potentiel chimique), (b) Transition de phase continue (les deux phases se rencontrent au point critique CP)

2. 3.2 Classification actuelle des transitions de phase

Une approche plus moderne pour la classification des transitions est utilisée actuellement (Blundell et Blundell, 2006). Elle distingue également des transitions de premier et de second ordre, mais la définition est différente :

- **Les transitions de premier ordre** : sont celles qui impliquent une chaleur latente. Au cours de ces transitions, le système absorbe ou émet une quantité d'énergie fixe (et en général grande). Comme l'énergie ne peut pas être transférée instantanément entre le système et son environnement, toutes les parties ne subissent pas la transition au même moment (le système est hétérogène). Les deux phases sont en équilibre au point de la transition.

Ex : transition solide-liquide ou liquide-gaz. Il faut au point de la transition fournir de l'énergie supplémentaire au fluide pour transformer tout le solide (ou tout le liquide) en liquide (en gaz).

- **Les transitions de second ordre** sont des transitions de phase dites continues ; il n'y a pas de chaleur latente associée. On passe continûment d'une phase à l'autre sans que celles-ci ne soient en équilibre l'une avec l'autre.

Ex : transition ferromagnétique-paramagnétique ou supraconducteur-conducteur.

2.4 Le paramètre d'ordre

Le paramètre d'ordre est une caractéristique du système étudié qui permet en particulier de définir l'ordre d'une transition (Ngo et Ngo, 2001). Il est lié au changement (brisure) de symétrie.

Prenons l'exemple d'un matériau ferromagnétique. Dans la phase haute température, où il y a absence de l'aimantation, le système est invariant par rotation. Dans la phase basse température où il y a présence de l'aimantation, il n'est plus invariant que par rotation autour d'un seul axe, celui de l'aimantation spontanée. A ce changement de symétrie, en 1937 Landau associa la notion de paramètre d'ordre. Cette grandeur physique est nulle dans la phase la plus symétrique et non nulle dans la phase la moins symétrique (Landau et Lifshitz, 1970 ; Stanley, 1971). Le paramètre d'ordre est le paramètre physique nécessaire pour décrire l'ordre

caractérisant la phase la moins symétrique, c'est à dire caractérisant la brisure de symétrie. Cependant, les paramètres d'ordre peuvent aussi être définis pour des transitions qui ne rompent pas la symétrie, telle que la transition liquide-gaz. Dans ce cas, n'importe quelle variable thermodynamique pertinente pourra servir à distinguer le degré de différence des deux phases. Par exemple c'est la différence entre la densité du liquide et du gaz pour la transition liquide-gaz mais il ne s'agira pas, à strictement parler, d'un paramètre d'ordre au sens de Landau.

Système ou transition de phase	Paramètre d'ordre	Variable thermodynamique conjuguée
Gaz-Liquide	$ \rho_l - \rho_g $	Potentiel chimique μ
Ferromagnétique	Aimantation M	Champ magnétique H
Paraélectrique	Polarisation électrique P	Champ électrique E
Alliages binaires	Différence de probabilité d'occupation de deux sites	Différence de potentiel chimique
Superfluides	Fonction d'onde de la phase superfluide $\langle \Psi \rangle$	N'a pas de sens physique
Supraconducteurs	Gap supraconducteur Δ	N'a pas de sens physique
Percolation	Probabilité d'appartenir à l'amas infini	N'a pas de sens physique

Tableau 2.1 Quelques exemples de paramètres d'ordre et leurs variables conjuguées.

Le paramètre d'ordre est alors une quantité physique qui indique l'état macroscopique du système en dessous du point critique. Selon la nature du système, le paramètre d'ordre peut être de nature différente : il peut être un scalaire, un vecteur ou un objet mathématique complexe. *La dimensionnalité* du paramètre d'ordre est une quantité très importante. Désignée par la variable n , elle vaut 1 pour un scalaire, 3 pour un vecteur. Le tableau 2.1 donne quelques exemples de paramètres d'ordre.

Notons que la notion d'ordre de transition de phase peut être définie au sens de Landau,

- Les transitions de 1^{er} ordre sont celles pour lesquelles le paramètre d'ordre est discontinu à la transition.
- Les transitions de 2nd ordre sont celles pour lesquelles le paramètre d'ordre reste continu au passage de la transition.

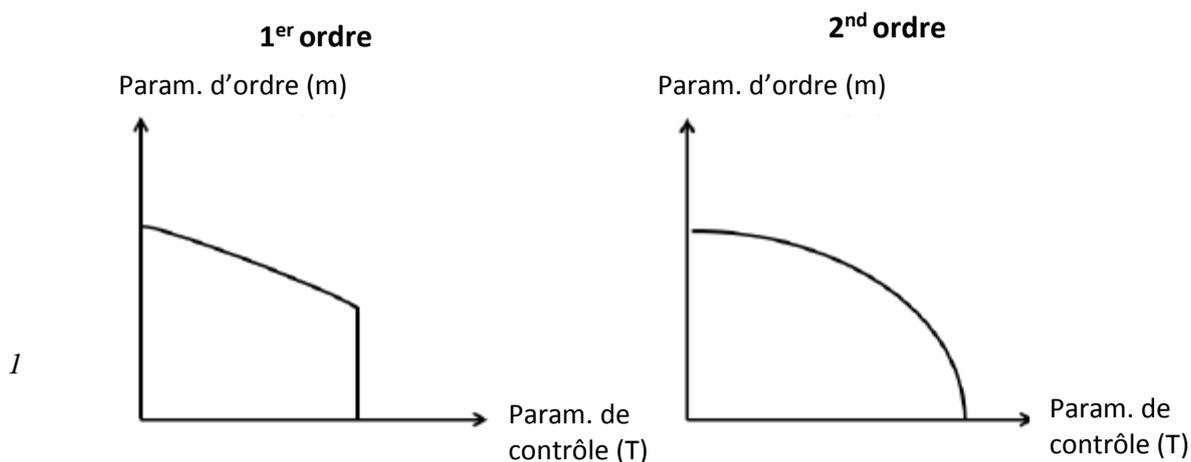


Figure 2.7 Classification des transitions de phase au sens de Landau

2.5 Les phénomènes critiques

2.5.1 Le comportement critique

Au voisinage d'un point de transition, deux phases de stabilité voisine coexistent. Ceci entraîne l'existence de fluctuations qui gouvernent, en général, le comportement du système au voisinage de la transition.

Considérons le cas d'un corps ferromagnétique. Pour $T > T_c$, la phase stable est une phase désordonnée. Cependant si T est proche de T_c , la phase ordonnée a une stabilité

comparable et il apparaît, par fluctuations, des zones localement ordonnées pendant un certain laps de temps. On est alors tenté de définir, physiquement pour ces fluctuations une *longueur de corrélation* ξ , donnant leur taille moyenne et un *temps de corrélation* t_{corr} donnant leur durée de vie moyenne. Cette longueur ξ et ce temps t_{corr} deviennent de plus en plus grands au fur et à mesure que l'on s'approche du point de transition. La longueur de corrélation ξ gouverne les *phénomènes critiques statiques* tandis que le temps t_{corr} gouverne les *phénomènes critiques dynamiques* que nous allons aborder plus loin.

Tous les autres paramètres étant fixés, ξ est fonction de la température T . $\xi(T)$ croît lorsque T s'approche du point critique T_c ($T \rightarrow T_c$). La longueur de corrélation ξ diverge à T_c (devient infinie en considérant un système infini). Au point critique, *les fluctuations sont importantes* à toutes les échelles.

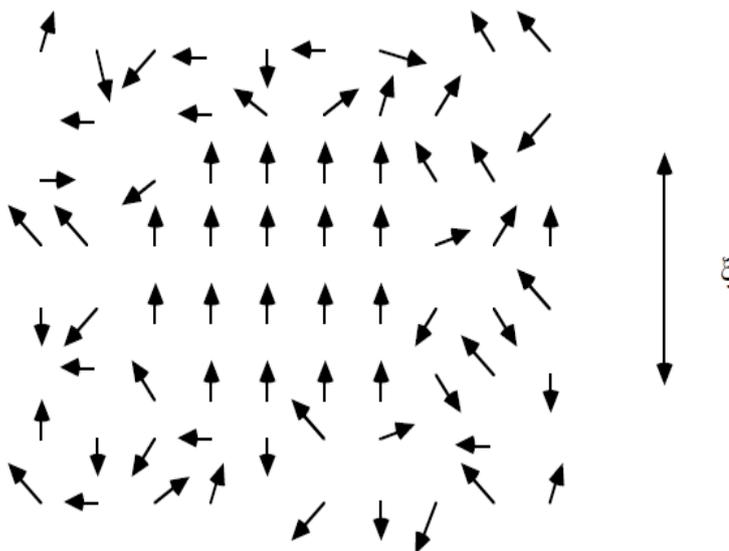


Figure 2.8 Fluctuations au voisinage du point critique, ξ longueur de corrélation

Remarquons que des fluctuations *de toutes tailles* au point critique sont observées à l'œil nu dans le cas d'un liquide (Ngo et Ngo, 2001). Il y a fluctuations en densité de toute taille. Certaines ont la dimension de l'ordre de grandeur de la lumière visible ($0,4 - 0,8 \mu m$). Il y a une forte réflexion de la lumière ceci est traduit par un aspect laiteux du fluide. C'est ce qui est appelé *opalescence optique*. Ainsi des fluctuations de tous ordres sont importantes.

2.5.2 Les exposants critiques

Il est intéressant de comprendre comment différents systèmes s'approchent du point critique. A l'approche du point critique, plusieurs fonctions thermodynamique diverge ou

converge (Reichl, 1998). On suppose près du point critique toute quantité thermodynamique 'A' se décompose en partie régulière qui reste finie (pas nécessairement continue) et une autre singulière qui peut diverger ou a des dérivées qui divergent. La partie singulière est supposée proportionnelle à $X - X_c$:

$$A \sim (X - X_c)^{\pm\gamma} \quad (2.1)$$

γ est l'exposant critique, A diverge ou converge lorsque le paramètre de contrôle X tend vers une valeur seuil (critique) X_c (Stanley, 197 ; Yeomans, 1992).

Prenons comme exemple la transition de phase ferromagnétique-paramagnétique. Divers exposants critiques sont définis comme :

$\beta =$ *exposant du paramètre d'ordre*. Il décrit le comportement de M au seuil de la transition. Lorsque $H=0$, l'aimantation M d'un ferromagnétique décroît en fonction de la température T et s'annule lorsque $T = T_c$. Pour T proche de T_c , M peut s'écrire comme :

$$M \sim (T_c - T)^\beta \quad (2.2)$$

$\delta =$ *exposant de l'isotherme critique*. Lorsque $T = T_c$, l'aimantation M s'annule pour un champ magnétique nul ($H=0$), mais M augmente rapidement lorsque H augmente. Pour H petit, la partie singulière de M est proportionnelle à :

$$M \sim H^{1/\delta} \quad (2.3)$$

$\gamma =$ *exposant de la susceptibilité*. Près de T_c la susceptibilité diverge.

$$\chi \sim (T - T_c)^{-\gamma} \quad (2.4)$$

Notons que γ est le même que ce soit pour $T > T_c$ ou $T < T_c$ mais la constante de proportionnalité est différente.

$\alpha =$ *exposant de la chaleur spécifique*. La chaleur spécifique à volume constant (pour les systèmes ferromagnétique lorsque $H=0$) diverge lorsque $T = T_c$:

$$C_V \sim (T - T_c)^{-\alpha} \quad (2.5)$$

De même que pour γ , α est le même que ce soit pour $T > T_c$ ou $T < T_c$ mais la constante de proportionnalité est différente.

ν = exposant de la longueur de corrélation. Comme mentionné ci-haut, la longueur de corrélation est une fonction de la température elle diverge au seuil de la transition (avec un exposant ν):

$$\xi \sim (T - T_c)^{-\nu} \quad (2.6)$$

η = exposant de la fonction de corrélation à l'isotherme critique. A T_c la longueur de corrélation ξ diverge et la fonction de corrélation Γ décroît en loi de puissance de r où d est la dimensionnalité du système.

$$\Gamma \sim r^{d-2+\eta} \quad (2.7)$$

Des lois d'échelles importantes concernant les fonctions thermodynamiques peuvent être déduites en supposant que la longueur de corrélation ξ est la seule longueur caractéristique du système.

$$\begin{aligned} \gamma &= \beta(\delta - 1) \\ \gamma &= \nu(2 - \eta) \\ \alpha + 2\beta + \gamma &= 2 \\ \nu d &= 2 - \alpha \end{aligned} \quad (2.8)$$

2.6 La notion d'universalité

L'universalité d'une quantité repose sur son invariance par rapport aux diverses transformations dans lesquelles elle intervient. Ainsi, l'hypothèse d'universalité proposée en 1971 par L. Kadanoff (1999) et confirmée par la méthode du groupe de renormalisation (Ngo et Ngo, 2001; Yeomans, 1992) stipule qu'une quantité est dite « universelle » si elle ne dépend que de certaines caractéristiques qualitatives essentielles du système qui sont :

- La dimension de l'espace physique (d),
- La dimensionnalité du paramètre d'ordre (n),
- La portée d'interaction et leurs anisotropies,
- La symétrie du système.

Ces facteurs définissent ainsi une classe d'universalité, chacune caractérisée par un ensemble d'exposants critique.

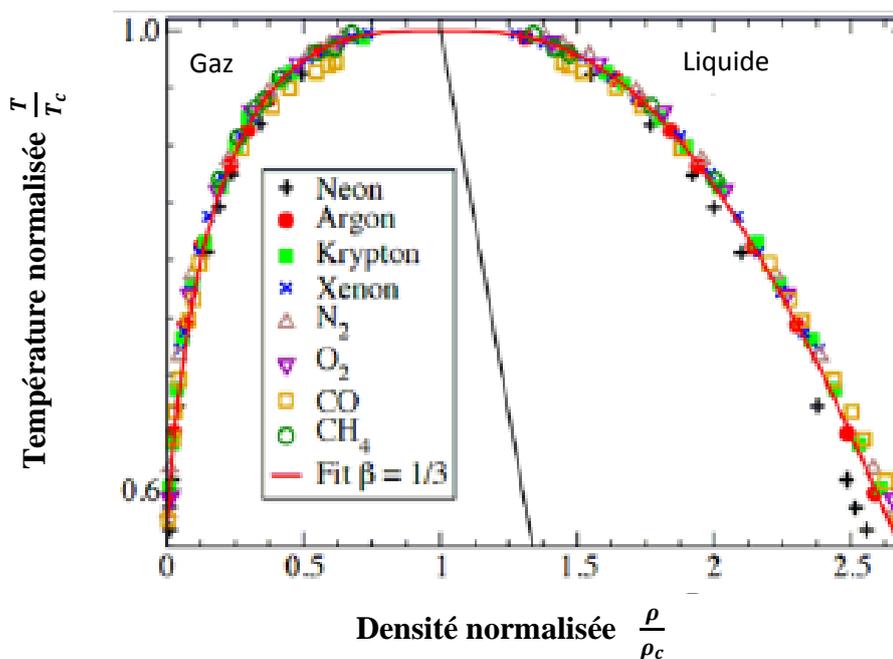


Figure 2.9 Lignes de coexistence de huit différents fluides, tracées en variables réduites (d'après Guggenheim, 1945)

Le grand intérêt des exposants critiques est qu'ils ne dépendent que des propriétés très générales des systèmes et non du détail des interactions. Ainsi, pour les systèmes ayant des interactions à courte portée, comme les liquides ou les matériaux ferromagnétiques, les exposants critiques ne dépendent que de la dimensionnalité spatiale d du système et de celle du paramètre d'ordre n . Ce sont donc d'excellentes quantités pour caractériser le système au voisinage du point critique et pour tester la validité des modèles, ils obéissent à des lois d'*universalité* car ils permettent de définir des classes qui englobent des transitions de phase qui peuvent paraître à première vue différentes. La figure 2.9 illustre le concept d'universalité. En effet pour la transition liquide-gaz, la température critique dépend du fluide considéré et des interactions entre atomes. Par contre dans ce diagramme de T/T_c en fonction de la densité normalisée ρ/ρ_c on observe une courbe où se placent les points correspondant à plusieurs fluides différents. L'exposant critique β associé à la différence des densités liquide ρ_l et gaz ρ_g (i.e. le paramètre d'ordre $\rho_l - \rho_g$) est le même $\beta = 1/3$. Il est constaté expérimentalement que cette loi d'universalité est satisfaite non seulement au voisinage du point critique mais aussi assez loin de celui-ci (Guggenheim, 1945).

2.7 Transition de phase statique et transition de phase dynamique

Le modèle de percolation est l'un des modèles les plus connus de transitions de phase (Stauffer et Aharony, 1992). Il caractérise les deux types de transitions de phase statique (à travers la percolation isotropique) et dynamique (à travers la percolation dirigée).

2.7.1 Transition de phase statique

La percolation est un modèle de physique statistique décrivant le mouvement de particules (ou d'entités) dans un milieu désordonné composé de deux types de matériaux (ou phase) conducteur ou non conducteur (Stauffer et Aharony, 1992 ; De Gennes, 1976 ; Ngo et Ngo, 2001), occupé ou non occupé, propagation ou pas de propagation, etc. Elle fait apparaître des transitions de phase de second ordre (Stauffer et Aharony, 1992 ; Gouyet 1992).

Deux types de percolation sont bien distincts: percolation de sites et percolation de liens (Fig. 2.8)

Percolation de sites : On considère un réseau carré avec N nœuds, si on met N_1 particules aux nœuds d'un réseau avec une seule particule par nœud (Ngo et Ngo, 2001), la probabilité d'occuper un site est donc $p=N_1/N$. On peut élaborer un labyrinthe aléatoire en affectant aux sites, l'un des deux états possible 1 ou 0, actif ou inactif, conducteur ou isolant, occupé ou vide, etc.

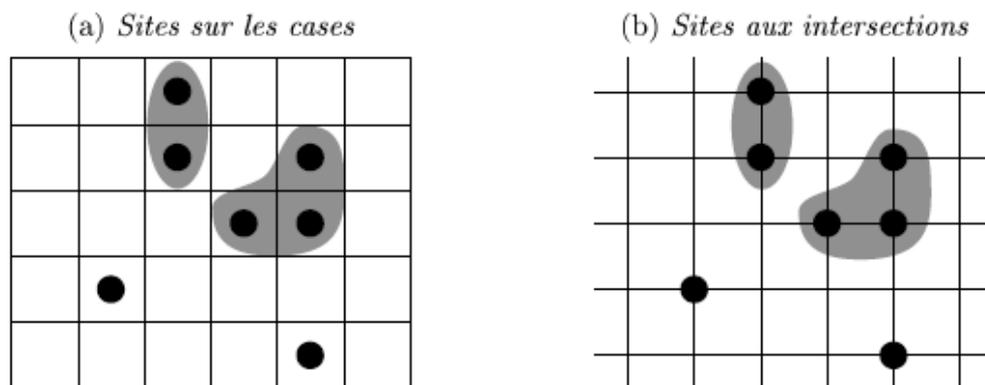


Figure 2.10 Représentation du réseau carré de sites (Stauffer et Aharony, 1992)

Un agrégat (un amas) est défini comme un ensemble de nœuds remplis (particules) juxtaposés, on dit que deux sites appartiennent au même amas s'il existe un chemin reliant

entre eux, on peut le définir également comme un ensemble de particules qui ont au moins un voisin (Fig 2.10).

Percolation de liens : On suppose qu'il y a une particule sur chaque site, chacune d'entre elles a 4 voisins et donc 4 liaisons possibles, soit q la probabilité pour qu'une liaison existe, avec cette hypothèse certaines liaisons existeront d'autres pas. Au totale la proportion de liaisons existantes sera égale à q .

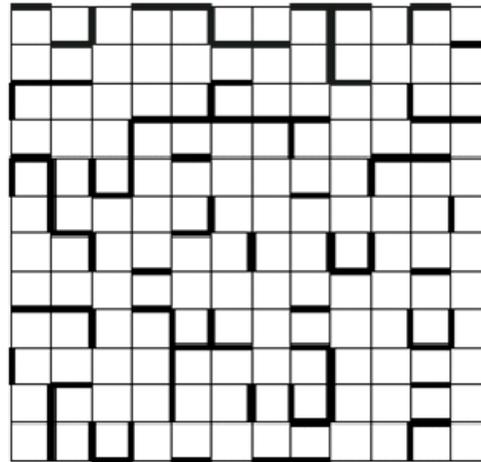


Figure 2.11 Représentation du réseau carré de liens

Un amas est défini comme un ensemble de particules tel que chacune est liée à au moins une autre particule de cet ensemble. D'une manière générale, au fur et à mesure que la proportion d'activité p s'accroît, la taille des amas augmente mais reste de taille finie. A partir d'une valeur déterministe p_c , un amas joignant les deux bords opposés du réseau apparaît, cet amas est l'amas percolant.

Pour des valeurs inférieures au seuil aussi bien que pour des valeurs supérieures, la taille linéaire des amas finis se caractérise par la longueur de corrélation. Elle se définit comme la distance moyenne entre deux sites du même amas. Selon Stauffer et Aharoney (1992), au voisinage de p_c c'est-à-dire lorsque $p - p_c$ est faible, la longueur de corrélation diverge :

$$\xi \sim (T - T_c)^{-\nu} \quad (2.9)$$

Le paramètre d'ordre de cette transition de phase est la probabilité d'appartenir à l'amas infini. Soit $P_\infty(p)$ la probabilité qu'un site appartienne à l'amas infini. Dans un échantillon de taille finie, la probabilité qu'un site soit un élément de l'amas percolant se

détermine en faisant le rapport du nombre de sites dans l'amas infini par le nombre total de sites actifs:

$$P_{\infty}(p) = \frac{\text{nombre de sites de l'amas infini}}{\text{nombre de sites actifs}} \quad (2.10)$$

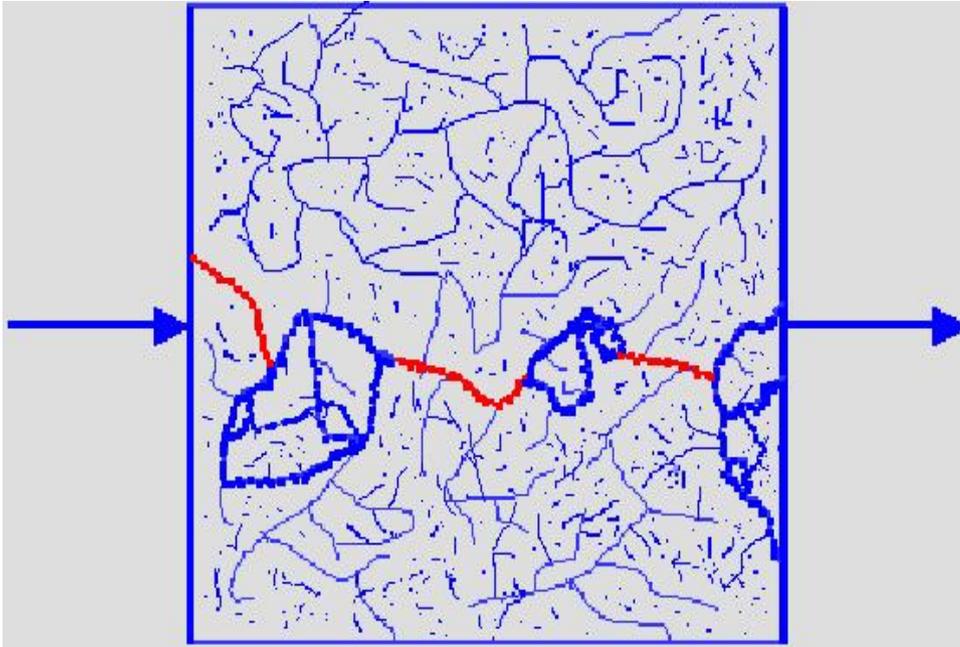


Figure 2.12 Au seuil de percolation un chemin continu à grande échelle apparaît

Lorsque $p < p_c$, il n'existe pas d'amas infini. Par conséquent, la probabilité d'y être attaché est nulle. Lorsque $p \geq p_c$, les simulations et les expériences amènent à supposer un comportement critique. De façon formalisée, ceci se résume par:

$$\begin{cases} P_{\infty} = 0 & \text{si } p < p_c \\ P_{\infty} \approx (p - p_c)^{-\beta} & \text{si } p \geq p_c \end{cases} \quad (2.11)$$

Remarquons par exemple pour un système composé de grains métalliques avec une proportion x et diélectriques avec une proportion $1-x$, le système est soit conducteur (percolant) soit diélectrique (non percolant) indépendamment du temps d'où son aspect statique.

2.7.2 Transition de phase dynamique

La percolation dynamique a suscité l'intérêt du monde scientifique ces dernières décennies (Grassberger, 1996; Marro and Dichakman, 1999; Hinrichsen, 2000 ; Odor, 2008). Cet effet dynamique a été modélisé par un ensemble de modèles simples qui évoluent en

fonction du temps. Chacun de ces modèles est constitué d'un réseau infini de cellules (pour des raisons numériques L est fini) connectés entre eux par des liens.

Ces liens de conductivité sont aléatoirement ouverts avec une probabilité p , qui représente le paramètre de contrôle microscopique du système. De plus, le nombre des voisins est limité selon le nombre des cellules adjacentes représentant le lien minimal. En outre, l'application de ces modèles est très successive et très vaste, parmi elles nous citons : la surface des réactions chimiques (Ziff et al., 1986), transition rugueuse (Jensen et al., 1990), propagation des épidémies (Kertesz et Wolf, 1989), la théorie des champs (Grassberger et De la Torre, 1979 ; Grassberger, 1982)...

La percolation dirigée introduite par Broadbent et Hammersley en 1957, est un modèle fondamental dans la mécanique statistique des systèmes hors équilibre. Elle est à l'origine, une percolation anisotrope avec une direction préférable dans le temps (t), ce qui nécessite une dimension du système égale ou supérieur à 2 ($d \geq 2$).

En fait, chaque cellule i du réseau située à la position (x_i, y_i, \dots, t_k) doit avoir des cellules voisines situées aux positions de t_{k-1} jusqu'à $t_k = 0$ (Fig. 2.13) (Henkel et al., 2008 ; Odor, 2008), la connectivité entre ces cellules est définie selon le paramètre de contrôle p qui spécifie le nombre des liens ouverts. En augmentant la valeur de cette probabilité une transition de phase aura lieu à une certaine valeur critique du paramètre de contrôle microscopique p , où le système passe d'une phase inactive ($p \ll$) vers une autre active.

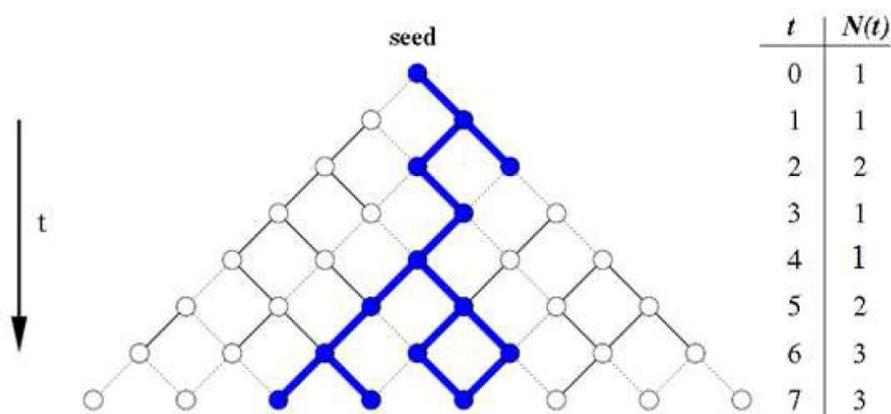
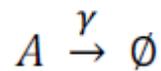


Figure 2.13 Evolution d'un réseau de percolation dirigée (Odor, 2008)

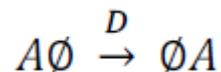
Par ailleurs, la classe des exposants critiques caractérisant la percolation dirigée a été découverte dans certains systèmes représentant un multiple d'états absorbants (Jensen et Dickman, 1993 ; Mendes, 1994 ; Park, 1995 ; Menyhard et Odor, 1996 ; Henkel et al., 2008).

L'interprétation du processus dynamique de la percolation dirigée devient possible en vertu du paramètre d'ordre qui prédit la direction temporelle. Par exemple, dans la percolation dirigée de lien, dont les liens sont aléatoirement bloqués, et que les lignes verticales correspondent à l'axe du temps (Fig. 2.13), le système évolue selon des lois probabilistes simples en connaissant juste le nombre de cellules infectées à l'étape t (Odor, 2008).

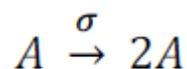
Ces règles probabilistes peuvent être considérées comme des règles de mise à jour d'un processus de réaction-diffusion. Par exemple, si les deux liens aux plus proches voisins de la cellule active A sont bloqués au temps $t + 1$, la trajectoire de la particule se termine (Fig. 2.14), ce qui signifie que la particule disparaît par un processus de mort :



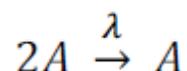
Si un seul lien est ouvert la particule diffuse efficacement vers la gauche ou vers la droite avec la même probabilité. C'est le processus de diffusion (Fig. 2.14):



Enfin, si les deux liens sont ouverts le duplex de particules créé forme une descendance (offspring) (Fig. 2.14). C'est à dire, il subit la réaction :



Néanmoins, chaque cellule du réseau peut être occupée au maximum par une particule. Donc, il est possible d'atteindre la même cellule par deux différentes particules (Fig. 2.14), c'est le processus de coalescence :



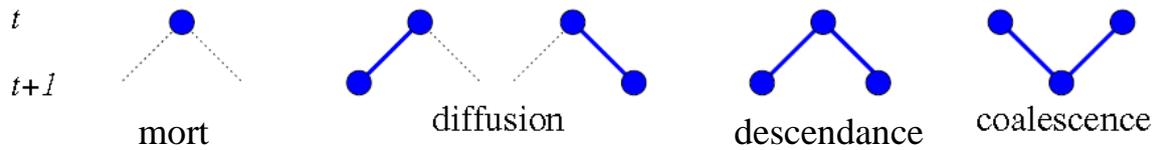


Figure 2.14 Lois probabilistes du processus réaction-diffusion dans la percolation dirigée (Odor, 2008)

En effet, dans un processus de percolation, le nombre de particules infectées $N(t)$ par une cellule (point d'éclosion) au cours du temps évolue avec la probabilité de connectivité P (Fig.2.15). Ce comportement mène à déduire l'ensemble des exposants universels de la percolation dirigée à la transition de phase.

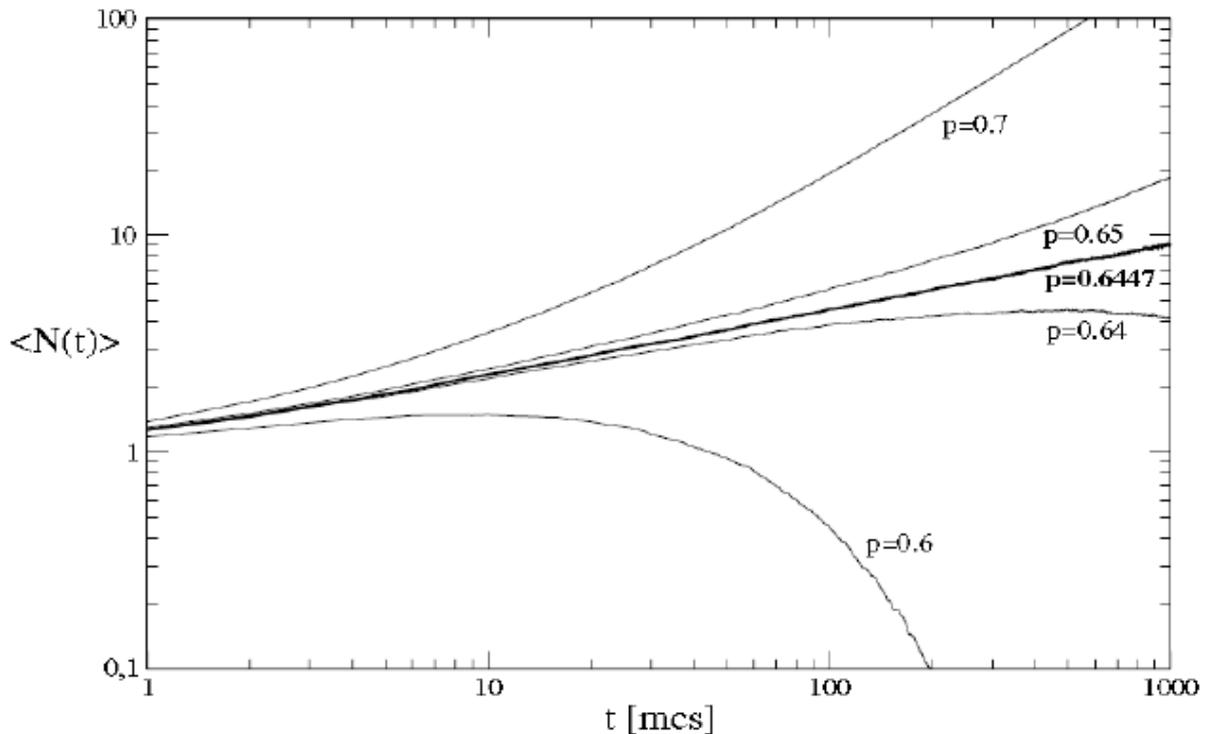


Figure 2.15 Evolution temporelle du nombre des cellules infectées pour différentes valeurs de probabilité de connexion (Henkel et al., 2008)

A ce stade, le nombre moyen de particules actives $N(t)$ généré par un processus de percolation dirigée, la probabilité de survivance $P_s(t)$ et le carré du rayon moyen $R^2(t)$ (proportionnel au carré la longueur de corrélation ξ^2) varient en puissance avec le temps de la propagation; définissant un ensemble d'exposants indépendants des détails microscopiques du système.

$$\begin{aligned}
N(t) &\sim t^\eta \\
P_s(t) &\sim t^{-\delta} \\
\xi^2 \propto R^2(t) &\sim t^z
\end{aligned}
\tag{2.12}$$

Les transitions de phase statiques sont caractérisées par une longueur de corrélation, alors que les transitions de phase dynamiques sont caractérisées en plus de la longueur de corrélation par un temps de corrélation t_{corr} . Elles sont caractérisées dans ce cas par ces lois de puissance :

$$\begin{aligned}
\xi &\sim (p - p_c)^{-v_\parallel} \\
t_{corr} &\sim (p - p_c)^{-v_\perp}
\end{aligned}
\tag{2.13}$$

Ces deux grandeurs sont reliées par :

$$t_{corr} \sim \xi^Z \tag{2.14}$$

avec $Z = \frac{v_\perp}{v_\parallel}$ est appelé exposant dynamique. Cet exposant est relié à l'exposant z du carré du rayon moyen déduit de (2.14) et de la troisième équation de (2.12):

$$z = 2/Z \tag{2.15}$$

z est l'exposant de la diffusion :

$$\begin{aligned}
z = 1 & \quad \textit{diffusion normale} \\
z > 1 & \quad \textit{super diffusion} \\
z < 1 & \quad \textit{sous diffusion}
\end{aligned}$$

La percolation dirigée caractérise donc une transition de phase hors équilibre (dynamique). Avec ces deux exemples, deux types de transition de phase sont distinguées : transition de phase statique (indépendante du temps) et transition de phase dynamique (évolution avec le temps).

Conclusion

Les concepts de transition de phase ont été exposés dans ce chapitre. On note l'importance des lois de puissance et des exposants critiques dans la caractérisation du comportement des paramètres du système dans la région critique où le désordre est maximal. D'autre part, on remarque que la diversité des systèmes dans la nature n'a pas empêché leurs

transitions de phase de se placer sous le même toit appelé l'universalité. Notons enfin que malgré que la théorie des transitions de phase soit une approche théorique, elle trouve un grand intérêt par les expérimentalistes et les chercheurs dans d'autres disciplines hors du domaine de la physique théorique. Dans notre étude expérimentale abordée au chapitre suivant, nous allons utiliser les concepts de cette théorie pour la détermination du flux critique pour l'inflammation des combustibles méditerranéens poreux. Les caractéristiques d'une transition de phase non-inflammation/inflammation sont étudiées.

Références bibliographiques du chapitre 2

- Blundell, S.J. et Blundell, K.M. (2006), *Concepts in Thermal Physics*, Oxford: Oxford University Press.
- Chowdhury, D., Santen, L., Schadschneider, A. (2000), Statistical physics of vehicular traffic and some related systems, *Physics Reports*, 329.
- De Gennes, P.G. (1976), percolation : un concept unificateur, *la recherche* 7 n°72, 919-927
- Ehrenfest, P. et Ehrenfest, T. (1990), *The Conceptual Foundations of Statistical Approach in Mechanics*, Mineola, NY: Dover.
- Guggenheim, E.A. (1945), *Journal of Chemical Physics*, 13,253.
- Grassberger, P. (1996), *Directed percolation: results and open problems*, WUB 96-2.
- Grassberger, P. (1982), *Z. Phys. B* 47, 365
- Grassberger, P. et De la Torre A. (1979) , *Ann. Phys. N.Y.*122 373.
- Henkel, M., Hinrichsen, H., Lübeck, S. (2008), *Non-Equilibrium Phase Transition. Vol. I :absorbing phase transition* , Bristol : Springer.
- Hinrichsen, H. (2000), *Adv. Phys.* 49, p 815.
- Isihara, A. (1971), *Statistical physics*, New York: Academic Press.
- Jensen, I., Fogedby, H.C., Dickman, R. (1990), *Phys.Rev. A* 41, 3411
- Jensen, I. et Dickman, R. (1993), *Phys. Rev. E* 48 , p 1710.
- Kadanoff, L.P (1999), *Statistical Mechanics: Statics, Dynamics and renormalization*, : Verlag : Springer.
- Kertesz, J. et Wolf, D.E. (1989), *Phys. Rev. Lett.* 62, 2571.
- Landau, L.D. et Lifshitz, E. M. (1970), *Statistical Physics*, Toronto: Pergamon Press,
- Marro J., Dickman R. (1999), *Nonequilibrium Phase Transitions in Lattice Models*, Cambridge : Cambridge University Press.
- Menyhard, N. et Odor, G. (1996), *J. Phys. A* 29, p 7739
- Mendes, J.F.F., Dickman, R., Henkel, M., Marques, M.C. (1994), *J. Phys. A*, 27, 3019.
- Ngo, C. et Ngo, H. (2001), *Physique statistique –Introduction*, Dunod, 2nd ed.
- Odor, G. (2008), *Universality in Nonequilibrium Lattice Systems theoretical foundation*, Singapore: World Scientific.

- Papon, P., Leblond, J., Meijer, H.E.P (1999), *Physique des Transitions de Phase. Concepts et applications*, Dunod.
- Park, H., Kim, M. H., Park, H. (1995), *Phys. Rev. E* 52, 5664.
- Pokrovskii, V.L., (1999), Two-dimensional magnetic phase transitions, *J.Magnet.Magnet. Mat*, 200, 515-531.
- Reichl, L.E. (1998), *A Modern Course in Statistical Physics*, 2nd ed. New York: Wiley Interscience.
- Stanley, H.E. (1971). *Introduction to phase transitions and critical phenomena*. Oxford: Clarendon Press.
- Stauffer, D. et Aharony, A. (1992), *Introduction to Percolation theory*, London: Taylor and Francis.
- Yeomans, J.M. (1992), *Statistical mechanics of phase transitions*, Oxford :Clarendon Press.
- Zekri, N. et Clerc, J.P (2001), *Phys. Rev. E* , 64, 056115.
- Zekri, N., Porterie B., Clerc J.P., Loraud J.C. (2005). Propagation in a two-dimensional weighted local small-world network, *Phys. Rev.E* ,71, 046121.
- Ziff, R. M., Gulari E., Barshad, Y. (1986), *Phys. Rev. Lett.* 56, 2553.

Chapitre 3

Etude de la transition de phase d'inflammation et estimation du flux critique

3.1 Introduction

Une combustion peut avoir lieu avec ou sans flammes (Turns, 2000). L'inflammation des combustibles est précédée par une transition liquide-gaz ou solide-gaz et la flamme ne se produit que dans la phase gazeuse (Drysdale, 2011). Lorsqu'une substance est exposée à un flux thermique, la température de sa surface augmente entraînant l'émission de gaz inflammables. Ces volatiles peuvent être dans l'état « flamme » si l'inflammation a lieu (temps d'inflammation fini) ou restent dans l'état « gaz » dans le cas de la non-inflammation (temps d'inflammation infini). La transition de phase non-inflammation/inflammation se réfère ici aux états du gaz ci-dessus. Le temps d'inflammation est un des paramètres qui caractérisent l'inflammabilité des matériaux. Dans la théorie d'inflammation, des expressions analytiques ont été proposées pour le temps d'inflammation aussi bien pour les combustibles

épais que ceux fins (Quintiere, 2006). Dans la limite des grandes intensités de flux thermique, le temps d'inflammation varie inversement avec l'intensité du flux pour les combustibles thermiquement fins, tandis qu'il varie inversement avec le carré de l'intensité du flux pour les combustibles thermiquement épais.

Comme il a été décrit dans le chapitre précédent, les transitions de phase sont omniprésentes dans la nature. Près de la transition, toute quantité physique A a un comportement singulier, où elle peut soit diverger ou converger vers 0 lorsque le paramètre de contrôle X tend vers une valeur seuil (critique) X_c (Stanley, 1971 ; Yeomans, 1992) selon la loi de puissance suivante:

$$A \propto (X - X_c)^{\pm\gamma} \quad (3.1)$$

Les transitions de phase caractérisées par le même exposant critique γ appartiennent à la même classe d'universalité (voir le chapitre précédent). On s'attend à ce qu'ils se comportent de la même manière même pour des phénomènes différents (Stanley, 1971 ; Yeomans, 1992 ; Stauffer et Aharony, 1992). Il est attendu que la transition de phase non-inflammation/inflammation examinée dans ce travail, obéisse à cette loi. Le paramètre de contrôle peut être ici le flux thermique incident q''_{inc} ou bien la teneur en eau h_e par exemple. En effet, Rothermel (1972) a trouvé que les feux de forêt ne peuvent se propager pour des teneurs en eau dépassant une valeur seuil entre 10 et 40%. L'existence d'une teneur en eau critique au-dessus de laquelle le combustible ne peut s'enflammer a été aussi prédite par Trabaud (1976). Mais selon des travaux récents aucune teneur en eau critique pour l'inflammation n'a été observée. Il a été conclu que la transition de phase d'inflammation est contrôlée seulement par le flux thermique (Terrah et al., 2020). Dans cette étude nous utilisons le flux thermique incident q''_{inc} comme paramètre de contrôle avec un seuil de transition q''_c . L'équation (3.1) devient alors:

$$t_{inf} \propto (q''_{inc} - q''_c)^{-\gamma} \quad (3.2)$$

La loi en puissance (3.2) a été déjà utilisée indirectement lors de l'estimation du flux critique d'inflammation pour des combustibles thermiquement fins en utilisant le cône calorimètre (Khan et al., 2009 ; Mindykowski et al., 2011). Le comportement linéaire de l'inverse du temps d'inflammation observé pour de grandes intensités du flux a été extrapolé à de basses intensités. Ceci suppose un comportement de l'inverse du temps d'inflammation comme $q''_{inc} - q''_c$. Il correspond à l'équation (3.2) avec un exposant $\gamma = 1$. D'autre part,

Babrauskas a comparé le comportement du temps d'inflammation de plusieurs échantillons de bois en fonction du flux incident. Il a trouvé que pour ces combustibles (thermiquement épais) le comportement du temps d'inflammation suit une loi en puissance similaire à (3.2) avec un exposant $\gamma = 1.828$ (Babrauskas, 2002). Comme dans les transitions de phase isolant/conducteur (Stauffer et Aharony, 1992), ferromagnétique/paramagnétique (Pokrovskii, 1999 ; Stanley, 1971) ou liquide/gaz (Blundell et Blundell 2006), un maximum de désordre est observé près du seuil de la transitions de phase. Dans le cas de la transition de phase d'inflammation, ce maximum de désordre conduit à des tests d'inflammabilité ratés (Vermesi et al., 2017a), ce qui suggère un processus probabiliste de l'inflammation. Par conséquent, l'estimation du flux thermique critique pour l'inflammation à l'aide des méthodes déterministes (ASTM, 2017) est discutable. L'effet de désordre est également présent pour les grandes intensités de flux thermique et induit des fluctuations du temps d'inflammation (voir la Fig.1 de la Ref. Bal et Rein, 2011).

Le flux critique d'inflammation est une propriété importante intéressant les agents de conservation des forêts et la protection civile, il leur permet de contrôler la propagation du feu en gérant les propriétés des combustibles des forêts ou en utilisant des retardateurs pour que le flux thermique reçu du front reste proche de la valeur seuil du flux thermique d'inflammation. Cette condition d'inflammation intéresse les scientifiques depuis plusieurs décennies (Quintiere et Harkleroad, 1984 ; Mikkola et Wichman, 1989 ; Delichatsios et Chen, 1993 ; Diitenberger, 1996 ; Khan et al., 2009 ; Mindykowski et al., 2011).

La transition de phase non-inflammation/inflammation de végétation Méditerranéenne morte (et vivante) est ici examinée à travers l'analyse de la dépendance du temps d'inflammation au flux incident. Pour ce, un modèle théorique simple de conservation d'énergie (Koo et al., 2005) et un dispositif expérimental basé sur un cône calorimètre sont utilisés.

3.2 Procédé expérimental

Trois différentes espèces de végétations sont utilisés: des aiguilles de pin d'Alep - *Pinus halepensis*- cueillis et allumées en Janvier 2018, des feuilles d'*Eucalyptus* cueillis et allumées en Août 2018 (végétations vivantes) et de la paille de blé allumée en Juillet 2018 (végétation morte). Afin de préserver l'aspect vivant des aiguilles du *Pinus halepensis* et des feuilles de l'*Eucalyptus*, ils sont brûlés le jour même de la cueillette. L'origine de ces

végétations est la zone arborée se trouvant derrière le parc automobile de l'université « USTO » pour le *Pinus halepensis* et l'*Eucalyptus*, quant à la paille de blé, elle provient des champs de plantation se trouvant dans la localité d'El Hamoul à une vingtaine de kilomètres de la ville d'Oran.

La teneur en eau du combustible déterminée par séchage dans un four micro-onde ou dans un dessiccateur est définie sur la base du combustible sec ou frais :

$$\begin{aligned}
 h_e &= \frac{m_e}{m_{sec}} && \text{base sec} \\
 h''_e &= \frac{m_e}{m_{sec}+m_e} && \text{base frais}
 \end{aligned}
 \tag{3.3}$$

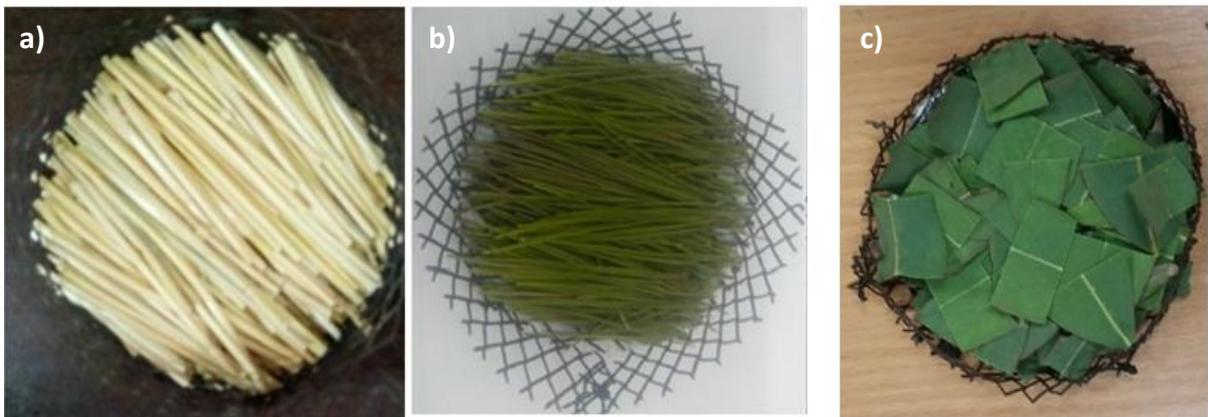


Figure 3.1 Exemples d'échantillons a) paille de blé, b) aiguilles du *Pinus halepensis*, c) feuilles d'*Eucalyptus*

Des échantillons de végétation de masse de 10 g sont mis dans un porte échantillon cylindrique de 10 cm de diamètre et 5 cm de hauteur avec des épaisseurs allant de 0,9 à 1,1 cm (correspondants à des charges approximatives de 1,27 kg/m²). Pour l'étude probabiliste de l'inflammation, des échantillons d'aiguilles de *Pinus halepensis* de masse 15 g (avec des épaisseurs comprises entre 1,2 et 1,5 cm) sont utilisés à titre de comparaison avec ceux de masse 10 g. On suppose que les particules de végétations sont thermiquement fines avec une épaisseur de feuilles ou un diamètre d'aiguilles inférieur à 1 mm (Fig.3.1).

L'échantillon est exposé à un flux thermique constant fournis par la résistance électrique, de puissance de 3000W, d'un cône calorimètre conçu dans notre laboratoire « L.E.P.M » et inspiré des normes internationales (ASTM, 2017). Il est placé à différentes distances de la source de telle sorte qu'il reçoit en son centre des amplitudes de flux thermique de rayonnement allant de 9 à 25 kW/m² (Fig. 3.2). Le flux thermique incident à la position centrale de la surface de l'échantillon est étalonné à l'aide d'un capteur de flux

thermique refroidi à l'eau de type Hukseflux SBG 01 fonctionnant dans la plage 0-200 kW/m². L'homogénéité du flux thermique incident dans l'échantillon n'est pas affectée par la variation de la distance au cône. En utilisant le capteur de flux thermique mentionné ci-dessus, on constate que le rapport entre l'intensité du flux au centre et son intensité moyenne est de 1,006 à une distance de 2,5 cm du fond du cône et de 1,04 à une distance de 15 cm. Ce rapport est inférieur à 1,06, ce qui répond à l'exigence d'uniformité ISO 5660-1 (Boulet, 2014).

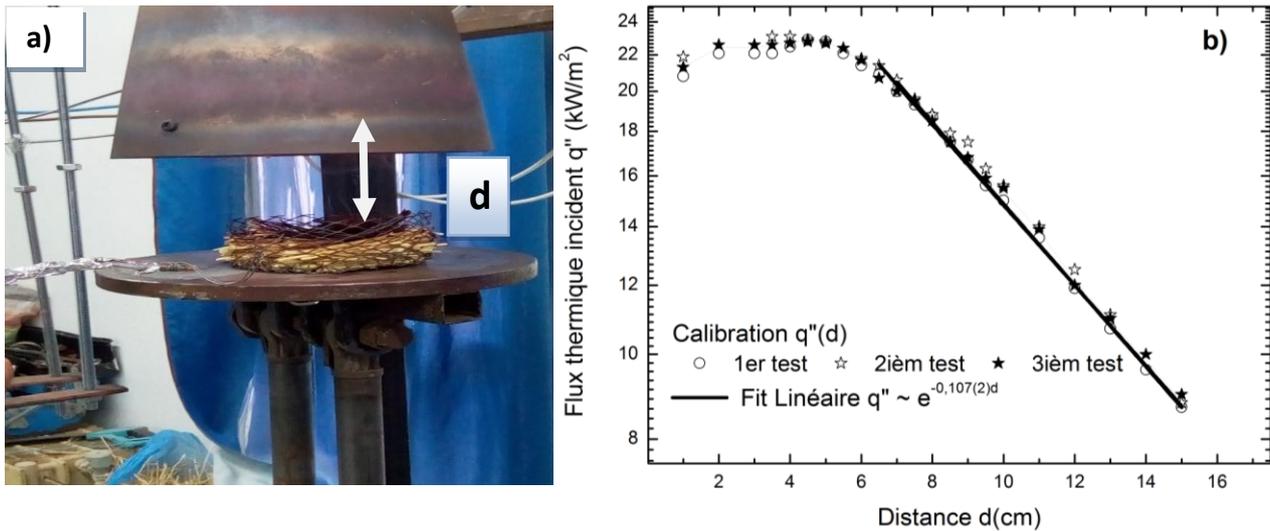


Figure 3.2 a) Image du dispositif expérimental, b) représentation schématique de la calibration du flux incident

L'inflammation de la végétation est contrôlée par une flamme pilote située à 1 cm au-dessus de la cible suivant les standards ASTM (2017). On considère que l'inflammation a eu lieu, si la flamme persiste pendant un temps supérieur à 4 s. Si une combustion couvante (lente) est observée avec une oxydation complète du combustible dans sa phase solide, on considère que l'inflammation ne peut pas se produire (Rein, 2016). Le temps d'inflammation est enregistré ainsi que le nombre de tests réussis, le temps de l'exposition au flux varie d'un test à l'autre et ne dépasse pas 75 min.

A cause de l'hétérogénéité de la structure de l'échantillon et pour la répétabilité, cinq (5) tests d'inflammation ont été réalisés pour chaque valeur du flux thermique incident. Dans la région de faibles intensités de flux thermique (proches de la valeur seuil), certains essais d'inflammation ont échoué, d'autres essais étaient nécessaires pour remplir la condition des cinq inflammations réussies. Afin d'étudier l'aspect probabiliste de l'inflammation, 50 tests ont été réalisés pour chaque condition de flux thermique. Les essais ont été réalisés dans une chambre aérée avec des températures ambiantes entre 13°C et 19°C et une humidité entre 50

et 60% pour les aiguilles du pin d'Alep et des températures ambiantes entre 20°C et 30°C et une humidité entre 45 et 55% pour les feuilles de l'*Eucalyptus* et la paille de blé.

3.3. Description du modèle

Sous l'action d'un flux thermique constant l'inflammation obéit généralement à trois critères : La température critique, l'énergie critique et le taux de perte de masse critique (Vermesi et al., 2016). Plusieurs modèles existent pour décrire l'inflammation aussi bien pour les combustibles épais que pour les combustibles fins incluant ces trois critères (DiDomizio, 2016 ; Utiskul et Quintiere, 2008). Le modèle utilisé est basé sur la conservation de l'énergie (Koo et al. 2005) et considère la température comme critère d'inflammation. Nous l'avons adopté dans cette étude car il décrit bien le processus d'inflammation (Quintiere, 2006) et il a été inclus dans le modèle du *Réseau de petit monde*, modèle de propagation des feux de forêts, qui a été validé sur des feux historiques et expérimentaux (Adou et al., 2010). Ce modèle est adapté ici au processus d'inflammation de végétations par le cône calorimètre du dispositif expérimental décrit ci-dessus voir (Fig.3.2) où un échantillon poreux composé de particules thermiquement fines (Fig.3.1) est soumis à un flux incident de chaleur q''_{inc} . L'allumage piloté se produit lorsque la température de surface atteint la température de pyrolyse (T_{pyr}). Le temps d'inflammation est généralement exprimé comme la somme de trois durées de différents processus supposés ne pas se produire simultanément (Quintiere, 2006) :

$$t_{inf} = t_{pyr} + t_{mel} + t_{chim} \quad (3.4)$$

Où:

- t_{pyr} est le temps nécessaire à la surface du solide à atteindre la température de pyrolyse T_{pyr} qui permet aux produits volatiles inflammables de s'enflammer.
- t_{mel} est le temps de diffusion ou de transport nécessaire pour que le mélange inflammable combustible/oxygène atteigne la flamme pilote.
- t_{chim} est le temps requis par le mélange inflammable à procéder à la combustion une fois qu'elle atteint la flamme pilote.

Généralement le deuxième et le troisième terme du côté droit de l'équation (3.4) sont suffisamment petit pour être négligés devant le premier terme t_{pyr} . Le flux effectif q''_{eff} est le flux absorbé par l'échantillon :

$$q''_{eff} = q''_{inc} - q''_{perdu} \quad (3.5)$$

En négligeant le transfert de chaleur par conduction pour l'approximation des combustibles thermiquement fins, le flux perdu par rayonnement et par convection est :

$$q''_{perdu} = h_t(T - T_0) + \sigma \varepsilon (T^4 - T_0^4) \quad (3.6)$$

L'énergie accumulée par un échantillon solide thermiquement fin pendant son délai d'inflammation est supposée permettre à la température de surface d'atteindre la température de pyrolyse T_{pyr} en trois étapes:

- i. Augmentation de la température de l'échantillon humide jusqu'à l'ébullition (373 K)
- ii. Evaporation de l'eau de l'échantillon humide à la température d'ébullition.
- iii. Augmentation de la température de l'échantillon séché jusqu'à T_{pyr} .

En négligeant la chaleur de la désorption de l'eau, la conservation d'énergie d'un combustible solide dans l'approximation thermiquement fin est:

$$\int_0^{t_{inf}} q''_{eff} S dt = \begin{cases} \int_{T_0}^{373 K} (m_{sec} c_p^c + m_e c_p^e) dT - \\ \int_{m_e}^0 L_v dM + \\ \int_{373 K}^{T_{pyr}} m_{sec} c_p^c dT \end{cases} \quad (3.7)$$

Comme le combustible considéré ici est poreux (Fig.3.1), la surface effective exposée au flux thermique est différente de celle du combustible solide. Pour un combustible humide, sa masse est reliée à sa densité $\rho(h_e)$ et sa porosité $\phi(h_e)$:

$$m(h_e) = \phi(h_e) \cdot \rho(h_e) \cdot S \cdot e \quad (3.8)$$

Le rapport de compacité ϕ est le rapport du volume de la partie solide (particules) à celui du lit combustible pour une même masse. Ce rapport est inférieur à un pour les combustibles poreux est égale à un ($\phi = 1$) pour un solide (*la porosité* = $1 - \phi$). En incluant en (3.7), l'expression de la teneur en eau h_e (3.3) et la masse du combustible sec (selon l'équation 3.8), l'équation de conservation d'énergie pour un combustible humide et poreux s'écrit:

$$\int_0^{t_{inf}} q''_{eff} dt = \begin{cases} \int_{T_0}^{373 K} \phi(0) \rho(0) e [c_p^c + h_e c_p^e] dT - \\ \int_{h_e}^0 \phi(0) \rho(0) e L_e dh'_e + \\ \int_{373 K}^{T_{pyr}} \phi(0) \rho(0) e c_p^c dT \end{cases} \quad (3.9)$$

On remarque à chaque étape de chauffage (première et troisième) l'apparition dans les termes du second membre de (3.9) d'une énergie caractéristique du combustible. Elle est définie comme l'énergie par unité de surface nécessaire pour augmenter la température du combustible d'un degré. Cette énergie qui dépend de la teneur en eau s'exprime comme :

$$E_0(h_e) = E_0 \left(1 + \frac{h_e c_p^e}{c_p^c} \right) \text{ avec } E_0 = \phi(0) \rho(0) e c_p^c \quad (3.10)$$

Le temps d'inflammation est donc la somme des durées des trois étapes de l'inflammation susmentionnées conduisant à (3.9). Pour résoudre l'équation 3.9, ces conditions aux limites sont nécessaires :

$$\begin{aligned} T(t = 0) &= T_0 & ; & & h'_e(T < 373 K) &= h_e \\ T(t = t_{inf}) &= T_{pyr} & ; & & h'_e(T > 373 K) &= 0 \end{aligned} \quad (3.11)$$

Puisque la température de pyrolyse (T_{pyr}) est la condition d'inflammation, la température critique apparait alors comme le seul critère utilisé dans le modèle représenté par (3.9). Cependant l'énergie critique, deuxième critère d'inflammation (Vermesi et al., 2016), définie comme l'énergie totale absorbée par unité de surface requise pour l'inflammation ($E_{inf} = \int_0^{t_{inf}} q''_{eff} dt$) apparait sur le côté droit de l'équation 3.9. Si les paramètres de la végétation sont constants, l'intégrale de (3.9) donnera :

$$E_{inf} = E_0 \left[(T_{pyr} - T_0) + \frac{h_e}{c_p^c} \{ c_p^e (373 - T_0) + L_e \} \right] \quad (3.12)$$

Type de matériau	Densité ρ	c_p^c à 300 K	h_e
Eau	997.05 (Wagner et Kretzschmar, 2010)	4182 (Wagner et Kretzschmar, 2010)	-
Paille de blé	500 (Lam et al., 2008)	1700 (Ahn et al., 2009)	0.11
Aiguilles du <i>Ph</i>	789 (Lamorlette et al., 2016)	1827 (Lamorlette et al., 2016)	1.27
Feuilles d' <i>Eu</i>	1800 (Okonkwo et al., 2006)	1547 (Cavagnol, 2013)	1.33

Tableau 3.1 Les paramètres physiques des combustibles utilisés dans le modèle et leurs contenances en eau

Par conséquent, le modèle basé sur une balance d'énergie comprend à la fois les critères d'inflammation d'énergie et de température (lorsque la température atteint la température de pyrolyse, l'énergie atteint l'énergie critique). Selon l'hypothèse de la cinétique de pyrolyse supposée par Drysdale (voir les équations 1.1 et 1.2 de Drysdale, 2011), le taux de perte de masse critique devrait être lié à la température T_{pyr} qui dépend de la chaleur de gazéification (voir l'équation 17 de Lyon et Quintiere, 2007). Le troisième critère apparaît donc implicitement dans le modèle à travers la température de pyrolyse.

L'énergie critique donnée par l'équation 3.12 dépend de la température ambiante T_0 , de la température de pyrolyse T_{pyr} et des paramètres physiques du combustible utilisé. Elle ne dépend ni du mode de transfert de chaleur ni du flux incident ni même du temps d'inflammation contrairement aux conclusions de Vermesi et al. (2017a) pour le cas du flux incident transitoire, où l'énergie a été trouvée corrélée au carré du temps d'inflammation. En calculant l'énergie critique (à partir de l'équation 3.9) numériquement par la méthode de Runge-Kutta pour les cas de transfert radiatif et convectif et en choisissant comme combustible la paille de blé sèche ($h_e = 0$) avec les paramètres indiqués dans le tableau 3.1 et pour une température de pyrolyse $T_{pyr} = 561 K$ (Koo et al., 2005), nous remarquons, comme attendu, que l'énergie critique ne dépend pas du flux incident ni du mode de transfert de chaleur (Fig. 3.3).

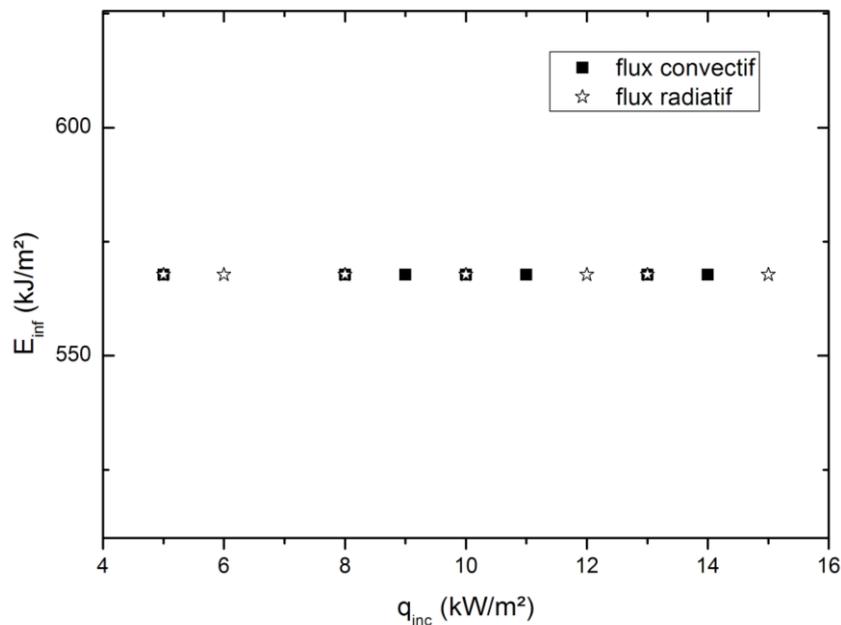


Figure 3.3 L'énergie critique d'inflammation en fonction du flux incident pour la paille sèche. Deux modes de transfert de chaleur sont considérés.

Le combustible s'enflammera ou non en fonction de l'intensité du flux thermique incident. Pour des intensités de flux thermique suffisamment importantes, l'inflammation se produit avec un temps d'inflammation réduit. Lorsque l'intensité du flux incident diminue, le temps d'inflammation augmente. Aucune inflammation ne se produit (temps d'inflammation infini) pour des intensités suffisamment faibles de flux incident de chaleur, car la température de surface n'atteint jamais la température de pyrolyse et par conséquent, l'énergie totale absorbée n'atteint jamais l'énergie critique E_{inf} . Il existe une intensité de flux incident critique q''_c au-dessus de laquelle l'inflammation se produit. Elle est définie comme l'intensité du flux incident pour laquelle la température de surface atteint la température de pyrolyse, c'est-à-dire l'énergie absorbée coïncide avec E_{inf} . Il a été démontré que le flux thermique critique pour l'inflammation est l'une des conditions d'inflammation piloté soutenue (voir l'équation 20 de Lyon et Quintiere, 2007). Ce flux seuil est donc le paramètre pertinent décrivant la transition de phase d'inflammation prédite par (3.2).

3.4 Résultats et discussion

Le but de ce travail est d'estimer le flux critique pour l'inflammation q''_c à partir des données expérimentales, en utilisant la loi de puissance caractérisant les transitions de phase exprimée par l'équation 3.2. Le flux critique ainsi estimé est comparé à celui trouvé par le modèle. En outre le processus probabiliste près de la région critique est étudié expérimentalement. Mais tout d'abord, nous allons examiner analytiquement le comportement du temps d'inflammation t_{inf} en fonction de $q''_{inc} - q''_c$ près du seuil de la transition.

3.4.1 Résolution analytique du modèle

a) Cas de perte de chaleur par convection

Nous allons considérer le cas où le flux perdu par convection est dominant, ou bien la température de surface est proche de la température ambiante ($(T - T_0)/T_0 \ll 1$) dans le cas du flux radiatif. Le flux perdu s'écrira alors $q''_{perdu} \cong h_t(T - T_0)$. Dans les trois étapes de (3.9), deux étapes correspondent à une augmentation de la température (chauffage), avec des durées t_1 (chauffage jusqu'à l'ébullition de l'eau du combustible à 373 K) et t_3 (chauffage du combustible sec de 373 K jusqu'à la pyrolyse). L'étape restante correspond à l'évaporation totale de l'eau du combustible avec une durée t_2 . Le temps d'inflammation est la durée totale

des trois étapes $t_{inf}(h_e) = t_1(h_e) + t_2(h_e) + t_3$. Chaque étape de chauffage est décrite par une équation différentielle de type équation de relaxation :

$$\frac{q''_{inc}}{h_t} - (T(t) - T_0) = \tau(h_e) \frac{d(T(t) - T_0)}{dt} \quad (3.13)$$

La solution de l'équation (3.13) est :

$$T(t) - T_0 = \frac{q''_{inc}}{h_t} (1 - e^{-t/\tau(h_e)}) \quad (3.14)$$

Ici $\tau(h_e)$ est le temps de relaxation relatif au chauffage d'un combustible ayant une contenance en eau h_e :

$$\tau(h_e) = \tau(1 + h_e \frac{c_p^e}{c_p^c}) \quad \text{avec } \tau = E_0/h_t \quad (3.15)$$

Le coefficient de transfert de chaleur est en fait le rapport E_0/τ . En remplaçant (3.14) dans (3.9), la conservation d'énergie des termes de chauffage du combustible devient:

$$\begin{aligned} \int_0^{t_1} q''_{inc} e^{-\frac{t}{\tau(h_e)}} dt &= \int_0^{373-T_0} \tau(h_e) h_t d(T - T_0) \\ \int_{t_1+t_2}^{t_1+t_2+t_3} q''_{inc} e^{-\frac{t}{\tau}} dt &= \int_{373-T_0}^{T_{pyr}-T_0} \tau h_t d(T - T_0) \end{aligned} \quad (3.16)$$

Concernant l'évaporation totale de l'eau du combustible, l'équation de conservation d'énergie devient:

$$\int_{t_1}^{t_1+t_2} (q''_{inc} - Q''_c) dt = - \int_{h_e}^0 \frac{E_0}{c_p^c} L_e dh'_e = \int_0^{h_e} \tau \frac{L_e E_0/\tau}{c_p^c} dh'_e \quad (3.17)$$

On obtient après l'intégration de (3.16):

$$\begin{aligned} q''_{inc} \left(1 - e^{-\frac{t_1(h_e)}{\tau(h_e)}}\right) &= Q''_c \\ q''_{inc} \left(e^{-\frac{t_1+t_2}{\tau}} - e^{-\frac{t_{inf}(h_e)}{\tau}}\right) &= q''_c - Q''_c \end{aligned} \quad (3.18)$$

Ici $Q''_c = h_t(373 - T_0)$ et $q''_c = h_t(T_{pyr} - T_0)$. Ces grandeurs définissent le flux incident pour lequel le processus de chauffage à l'ébullition (respectivement à la pyrolyse) est atteint asymptotiquement ($t_1(h_e) \rightarrow \infty$ respectivement $t_{inf}(0) \rightarrow \infty$). Le flux caractéristique q''_c définit donc le flux critique pour l'inflammation du combustible sec, alors que Q''_c définit le flux critique pour le chauffage à l'ébullition du combustible humide. A partir de (3.18), il

semble que le flux critique d'inflammation q''_c dépend de la teneur en eau. Cependant, il est paradoxal que la seconde équation de (3.18) conduise à une durée de chauffage du combustible sec dépendante des conditions initiales $t_3 = f(t_1 + t_2)$, donc de la teneur en eau. A partir de (3.13) la température maximale atteinte asymptotiquement ($t \rightarrow \infty$) ne dépend que du mode de transfert de chaleur, de la température ambiante et du flux incident :

$$q''_{inc} = h_t(T_{max} - T_0) \quad (3.19)$$

En outre, si nous considérons un flux incident suffisamment faible pour que le combustible ne puisse pas s'allumer ni évaporer son eau (première étape), la première équation de (3.16) avec $T_{max} < 373 K$ et $t_1 \rightarrow \infty$ deviendra :

$$\int_0^\infty q''_{inc} e^{-\frac{t}{\tau(h_e)}} dt = \int_0^{T_{max}-T_0} \tau(h_e) h_t d(T - T_0) \quad (3.20)$$

Après intégration, on retrouve (3.19) indépendamment de la teneur en eau. En conséquence, l'énergie intervenant dans le chauffage du combustible ne dépend que de la différence des températures initiale et finale. Cette énergie est donc décrite par une force qui dérive d'un potentiel au même titre que le potentiel gravitationnel et Coulombien (Beer et al., 2018). La seconde équation de (3.16) ne tient pas en considération cet aspect conservatif et ne décrit donc le chauffage durant la troisième étape que pour un combustible sec. Afin de lever ce paradoxe et prendre en considération l'aspect conservatif de l'énergie de chauffage, la seconde équation de (3.16) est remplacée par la différence d'énergies entre celle du chauffage de T_0 à T_{max} (T_{pyr}) et celle du chauffage de T_0 à 373 K pour le même état du combustible (sec) :

$$\int_0^{t_{inf}^{(0)}} [q''_{inc} - h_t(T - T_0)] dt - \int_0^{t_1^{(0)}} [q''_{inc} - h_t(T - T_0)] dt = \int_{373K}^{T_{pyr}} \tau h_t dT \quad (3.21)$$

La période de pyrolyse (phase sèche) est donc la différence entre le temps d'inflammation et celui du chauffage à 373 K pour un combustible sec $t_3 = t_{inf}(0) - t_1(0)$. Le temps d'inflammation pour une teneur en eau h_e devient :

$$t_{inf}(h_e) = t_1(h_e) - t_1(0) + t_2(h_e) + t_{inf}(0) \quad (3.22)$$

Les différents termes de l'équation 3.22 peuvent être obtenus à partir des équations 3.14, 3.17 et la première équation de (3.18) :

$$\begin{aligned}
 t_1(h_e) &= -\tau(h_e) \ln \left(1 - \frac{Q''_c}{q''_{inc}} \right) \\
 t_2(h_e) &= \tau \frac{h_e L_e E_0(0)/\tau(0)}{c_p^c q''_{inc} - Q''_c} \\
 t_{inf}(0) &= -\tau \ln \left(1 - \frac{Q''_c}{q''_{inc}} \right)
 \end{aligned} \tag{3.23}$$

L'expression générale du temps d'inflammation devient :

$$t_{inf}(h_e) = -\tau \left[\ln \left(1 - \frac{q''_c}{q''_{inc}} \right) + \frac{h_e}{c_p^c} \left(c_p^e \ln \left(1 - \frac{Q''_c}{q''_{inc}} \right) - \frac{L_e E_0 / \tau}{q''_{inc} - Q''_c} \right) \right] \tag{3.24}$$

- *Comportement asymptotique du temps d'inflammation*

Cette équation se réduit à un comportement linéaire de l'inverse du temps d'inflammation dans la limite des grandes intensités du flux thermique incident ($q''_c/q''_{inc} \ll 1$) en accord avec la théorie d'inflammation pour des combustibles fins (Quintiere, 2006) :

$$t_{inf}^{-1} = \frac{1}{\tau} \left(q''_c + \frac{h_e}{c_p^c} (c_p^e Q''_c + L_e h_t) \right)^{-1} q''_{inc} \tag{3.25}$$

La constante de linéarité décroît inversement avec la teneur en eau et le flux critique. En ce qui concerne les faibles intensités du flux incident, le flux critique pour l'inflammation est défini comme étant le flux incident pour lequel le temps d'inflammation diverge ($t_{inf}(h_e) \rightarrow \infty$). Cette condition de (3.24) est satisfaite pour deux solutions $q''_{inc} = Q''_c$ et $q''_{inc} = q''_c$. La première solution correspond au flux critique de chauffage jusqu'à l'ébullition de l'eau du combustible (divergence logarithmique) et aussi à l'évaporation totale de l'eau (divergence en puissance). La seconde solution correspond au flux critique pour l'inflammation (divergence logarithmique), qui est donc indépendant de la teneur en eau $q''_c(h_e) = q''_c$. On pouvait prévoir ce résultat à partir de (3.22), où pour $q''_{inc} > Q''_c$, seul le dernier terme $t_{inf}(0)$ peut diverger. Le flux critique q''_c dépend de la température critique (de pyrolyse) à partir de (3.19). Mais comme mentionné ci-haut, l'énergie critique est aussi une condition d'inflammation définie par (3.11), elle fait intervenir le flux critique et le temps de relaxation dans le cas d'un combustible sec :

$$E_{inf}(0) = \tau q''_c \tag{3.26}$$

Pour un combustible avec une contenance en eau h_e cette énergie critique fait apparaître le flux critique d'inflammation q''_c , et celui du chauffage à l'ébullition Q''_c en plus d'une énergie dissipative d'évaporation de l'eau :

$$E_{inf}(h_e) = \tau q''_c + (\tau(h_e) - \tau)Q''_c + t_2(h_e)(q''_{inc} - Q''_c) \quad (3.27)$$

Les deux premiers termes de cette équation (concernant le chauffage) sont des énergies de type conservatif tandis que le dernier est dissipatif.

- *L'effet de l'émission des gaz volatiles*

Ce modèle n'inclut pas explicitement la contribution de l'émission de composés volatiles inflammables à T_{pyr} . Si on néglige la teneur en eau ($h_e = 0$) pour simplifier, et on inclut l'émission des volatiles de la même manière que celle de l'évaporation de l'eau, le flux critique pour l'émission des volatiles Q''_c coïncidera avec q''_c (la température d'émission étant T_{pyr}). L'équation (3.24) deviendra alors :

$$\frac{t_{inf}}{\tau} = \frac{h_v L_v h_t}{c_p^c} (q''_{inc} - q''_c)^{-1} + \left(1 + h_v \frac{c_p^v}{c_p^c}\right) \ln \left(1 - \frac{q''_c}{q''_{inc}}\right)^{-1} \quad (3.28)$$

Ici L_v et c_p^v sont respectivement la chaleur latente et la chaleur spécifique des composés volatiles émises, h_v étant la proportion des volatiles dans le combustible. L'équation 3.28 décrit de manière plus complète l'inflammation, puisqu'elle inclut explicitement la troisième condition d'inflammation, qui est le taux de perte de masse critique dû à l'émission des composés volatiles lors de la pyrolyse (Vermesi et al., 2016). Cette équation combine les comportements en loi de puissance et logarithmique du temps d'inflammation en fonction de $q''_{inc} - q''_c$. La tendance en loi de puissance due au taux de perte masse critique domine la divergence près du flux critique.

b) Cas de perte de chaleur par rayonnement

Pour le cas des pertes radiatives, le flux perdu par l'échantillon est donné par la loi de Stefan-Boltzmann $q''_{perdu} = \sigma \varepsilon (T^4 - T_0^4)$. Cette expression remplace celle de la perte par convection dans (3.13). De la même manière que pour (3.13), l'équation différentielle gérant les étapes du chauffage est :

$$q''_{inc} - \sigma \varepsilon (T^4 - T_0^4) = E_0(h_e) \frac{dT}{dt} \quad (3.29)$$

Avec $E_0(h_e)$ définie par (3.10). La variation de température diminue donc au fur et à mesure que celle-ci augmente. La température maximale T_{max} est atteinte asymptotiquement ($t \rightarrow \infty$) à l'équilibre:

$$q''_{inc} = \sigma \varepsilon (T_{max}^4 - T_0^4) \quad (3.30)$$

En remplaçant (3.30) dans (3.29) et en séparant les variables, celle-ci peut être alors réécrite comme :

$$\frac{dT}{T_{max}^4 - T^4} = \frac{\sigma \varepsilon}{E_0(h_e)} dt \quad (3.31)$$

Le terme $\frac{1}{T_{max}^4 - T^4}$ pourrait être linéarisé :

$$\frac{1}{T_{max}^4 - T^4} = \frac{1}{4T_{max}^3} \left(\frac{1}{T_{max} - T} + \frac{1}{T_{max} + T} + \frac{2T_{max}}{T_{max}^2 + T^2} \right) \quad (3.32)$$

En incorporant (3.32) dans (3.31), le chauffage du combustible jusqu'à une température T pendant une durée t est décrit par l'équation de conservation d'énergie :

$$\int_0^t \frac{\sigma \varepsilon}{E_0(h_e)} dt = \frac{1}{4T_{max}^3} \int_{T_0}^T \left(\frac{1}{T_{max} - T'} + \frac{1}{T_{max} + T'} + \frac{2T_{max}}{T_{max}^2 + T'^2} \right) dT' \quad (3.33)$$

En intégrant, on obtient le temps de chauffage à une température donnée T :

$$\frac{t}{\tau(h_e)} = -\ln \left(\frac{T_{max} - T}{T_{max} - T_0} \frac{T_{max} + T_0}{T_{max} + T} \right) + 2 \operatorname{atan} \left(\frac{T}{T_{max}} \right) - 2 \operatorname{atan} \left(\frac{T_0}{T_{max}} \right) \quad (3.34)$$

Ici $\tau(h_e)$ est le temps caractéristique de chauffage du combustible ayant une contenance en eau h_e pour le cas de pertes de chaleur par rayonnement :

$$\tau(h_e) = \frac{E_0(h_e)}{4T_{max}^3 \sigma \varepsilon} = \tau \left(1 + h_e \frac{c_p^e}{c_p^c} \right); \quad \tau = \frac{E_0}{4T_{max}^3 \sigma \varepsilon} \quad (3.35)$$

Similairement au cas des pertes par convection, le coefficient de transfert de chaleur ici est E_0/τ . Ce temps caractéristique semble être un temps de relaxation puisque l'équation (3.31) est une équation générale de relaxation (Stanislavski and Weron, 2019). L'aspect dynamique de chauffage et processus de relaxation sera discuté plus loin où ce temps caractéristique apparaît comme un temps de relaxation. Nous l'appellerons ici temps de relaxation au même titre que celui de la convection. Contrairement au cas des pertes par convection, ce temps caractéristique dépend du flux incident qui est relié à la température maximale T_{max} par (3.30).

Déterminons maintenant les durées des trois étapes avant l'inflammation. La durée de la première étape est obtenue à partir de (3.34) pour $T = 373 K$:

$$\frac{t_1(h_e)}{\tau(h_e)} = -\ln\left(\frac{T_{max}-373}{T_{max}-T_0} \frac{T_{max}+T_0}{T_{max}+373}\right) + 2\operatorname{atan}\left(\frac{373}{T_{max}}\right) - 2\operatorname{atan}\left(\frac{T_0}{T_{max}}\right) \quad (3.36)$$

La deuxième étape est celle de l'évaporation de l'eau à 373 K. En remplaçant les pertes par convection dans (3.17) par celles par rayonnement et en utilisant (3.35), l'équation de conservation d'énergie devient :

$$\int_{t_1}^{t_1+t_2} [q''_{inc} - Q''_c] dt = \int_0^{h_e} \tau L_e \frac{E_0/\tau}{c_p^c} dh'_e \text{ avec } Q''_c = \sigma \varepsilon (373^4 - T_0^4) \quad (3.37)$$

Cette équation est similaire à (3.17) et on obtient après intégration:

$$t_2(h_e) = \tau \frac{h_e L_e}{c_p^c} \frac{E_0/\tau}{q''_{inc} - Q''_c} \quad (3.38)$$

Comme pour le cas des pertes convectives Q''_c définit le flux incident pour lequel le temps d'évaporation de l'eau diverge ($t_2(h_e) \rightarrow \infty$). On remarque aussi que pour $q''_{inc} = Q''_c$ la première étape de chauffage jusqu'à l'ébullition est atteinte asymptotiquement ($t_1(h_e) \rightarrow \infty$) puisque $T_{max} = 373 K$ dans ce cas. Le flux Q''_c est donc un flux critique pour l'évaporation de l'eau et pour le chauffage jusqu'à l'ébullition. En prenant en considération le caractère conservatif de l'énergie du chauffage, le temps d'inflammation est déduit de (3.22). Les deux premiers termes de cette équation sont donnés par (3.36), alors que le troisième terme est donné par (3.38). Le dernier terme est le temps d'inflammation pour un combustible sec et peut être obtenu à partir de (3.34) avec $T = T_{pyr}$:

$$\frac{t_{inf}(0)}{\tau} = -\ln\left(\frac{T_{max}-T_{pyr}}{T_{max}-T_0} \frac{T_{max}+T_0}{T_{max}+T_{pyr}}\right) + 2\operatorname{atan}\left(\frac{T_{pyr}}{T_{max}}\right) - 2\operatorname{atan}\left(\frac{T_0}{T_{max}}\right) \quad (3.39)$$

Le temps d'inflammation d'un combustible ayant une contenance en eau h_e sera donc :

$$\begin{aligned} \frac{t_{inf}(h_e)}{\tau} = & -\ln\left[\left(\frac{T_{max}-373}{T_{max}-T_0} \frac{T_{max}+T_0}{T_{max}+373}\right)^{h_e \frac{c_p^e}{c_p^c}} \left(\frac{T_{max}-T_{pyr}}{T_{max}-T_0} \frac{T_{max}+T_0}{T_{max}+T_{pyr}}\right)\right] + 2\operatorname{atan}\left(\frac{T_{pyr}}{T_{max}}\right) + \\ & 2h_e \frac{c_p^e}{c_p^c} \arctan\left(\frac{373}{T_{max}}\right) - 2(1 + h_e \frac{c_p^e}{c_p^c}) \arctan\left(\frac{T_0}{T_{max}}\right) + \frac{h_e L_e}{c_p^c} \frac{E_0/\tau}{q''_{inc} - Q''_c} \end{aligned} \quad (3.40)$$

On retrouve $t_{inf}(0)$ en posant $h_e = 0$. On remarque de (3.39) et (3.40) que le temps d'inflammation varie linéairement avec la teneur en eau :

$$\frac{t_{inf}(h_e)}{\tau} = \frac{t_{inf}(0)}{\tau} + \frac{h_e}{c_p^c} \left(c_p^e \left\{ -\ln \left(\frac{T_{max}-373}{T_{max}-T_0} \frac{T_{max}+T_0}{T_{max}+373} \right) + 2\arctan \left(\frac{373}{T_{max}} \right) - 2\arctan \left(\frac{T_0}{T_{max}} \right) \right\} + L_e \frac{E_0/\tau}{q''_{inc}-Q''_c} \right) \quad (3.41)$$

Ce comportement linéaire est en désaccord avec les résultats de Terrah et al. (2020) et Hamamousse et al. (2021) où le temps d'inflammation augmente exponentiellement avec la teneur en eau en base frais (2nd équation de 3.3), qui reste non-linéaire en base sec. L'une des raisons possibles de ces désaccords est l'émission des gaz du combustible qui accompagnent l'émission de la vapeur d'eau (Ciccioli et al., 2014). Ce processus n'est pas pris en compte explicitement dans le modèle. Mais nous avons montré que l'effet de l'émission de gaz affecte seulement les résultats près du flux critique. Or, dans leurs études, ils ont utilisé un flux incident loin du flux critique. L'autre raison possible de ce désaccord est la compacité du combustible. En effet, l'épaisseur des échantillons considérés par Terrah et al. (2020) et Hamamousse et al. (2021) variait entre 1 et 2 cm. Par conséquent le flux radiatif incident ne chauffe que la partie supérieure dont l'épaisseur correspond à la longueur optique du rayonnement. Cette partie va donc chauffer et évaporer l'eau, alors que le flux thermique sera transféré par conduction aux parties inférieures. L'évaporation de l'eau des couches internes refroidira la couche supérieure, ce qui retardera considérablement l'inflammation. L'influence de la porosité dans ce cas-là est très importante (voir section c.1/ ci-dessous).

- *Comportement asymptotique du temps d'inflammation*

Contrairement au cas des pertes convectives où le flux incident est proportionnel à la température maximale, dans le cas des pertes radiatives la relation entre le flux incident et la température maximale est non-linéaire (voir équation 3.30). Le flux critique d'inflammation est le flux pour lequel $T_{max} \rightarrow T_{pyr}$. A partir de (3.30) nous avons :

$$q''_c = \sigma \varepsilon (T_{pyr}^4 - T_0^4) \quad (3.42)$$

Afin de retrouver le comportement du temps d'inflammation pour de faibles intensités du flux incident ($q''_{inc} \rightarrow q''_c$) et pour de grandes intensités ($q''_{inc} \gg q''_c$), nous introduisons dans l'expression (3.40), les grandeurs q''_{inc} (3.30), q''_c (3.42) et Q''_c intervenant dans (3.37). En utilisant les variables réduites $\theta_0 = \frac{T_0}{T_{max}}$, $\theta_v = \frac{373}{T_{max}}$ et $\theta_{pyr} = \frac{T_{pyr}}{T_{max}}$, (3.40) devient alors :

$$\frac{t_{inf}(h_e)}{\tau} = \left[-\ln \left(\left(1 - \frac{q''_c}{q''_{inc}} \right) \frac{(1 + \theta_0)^2 (1 + \theta_0^2)}{(1 + \theta_{pyr})^2 (1 + \theta_{pyr}^2)} \right) + 2 \operatorname{atan}(\theta_{pyr}) - 2 \operatorname{atan}(\theta_0) \right] - \frac{h_e}{c_p^e} \left[c_p^e \left\{ \ln \left(\left(1 - \frac{Q''_c}{q''_{inc}} \right) \frac{(1 + \theta_v)^2 (1 + \theta_v^2)}{(1 + \theta_v)^2 (1 + \theta_v^2)} \right) - 2 \operatorname{atan}(\theta_v) + 2 \operatorname{atan}(\theta_0) \right\} - L_e \frac{E_0/\tau}{q''_{inc} - Q''_c} \right] \quad (3.43)$$

Comme défini précédemment, le flux critique pour l'inflammation est le flux incident pour lequel le temps d'inflammation diverge. Comme pour le cas des pertes convectives, l'équation 3.43 avec $t_{inf}(h_e) \rightarrow \infty$ admet deux solutions : $q''_{inc} = q''_c$ et $q''_{inc} = Q''_c$. La première solution apparait dans le premier terme (terme sec $t_{inf}(0)$) de (3.43) et correspond au flux critique pour l'inflammation (avec une divergence logarithmique). La seconde solution n'apparait que dans le second terme (humide) de (3.43) et correspond au flux critique de chauffage jusqu'à l'ébullition de l'eau du combustible (divergence logarithmique) et aussi pour l'évaporation totale de l'eau (divergence en puissance). Près du flux critique, la même singularité $\ln \left(1 - \frac{q''_c}{q''_{inc}} \right)$ que pour le cas des pertes convectives (3.23) domine l'expression du temps d'inflammation (3.43) avec $\theta_{pyr} \rightarrow 1$. Le flux critique pour l'inflammation est donc indépendant de la teneur en eau $q''_c(h_e) = q''_c$ quel que soit le mode de transfert de chaleur. Il est important de vérifier l'indépendance du flux critique en teneur en eau. Cela revient à vérifier l'indépendance de la température maximale de la teneur en eau (voir section c.2/ ci-dessous).

Pour de grandes intensités du flux incident ($q''_{inc} \gg q''_c$), la température maximale est grande devant celle de pyrolyse $T_{max} \gg T_{pyr}$ à partir de (3.30) et (3.42). Donc les variables réduites sont petites ($\theta_0 \ll 1$, $\theta_v \ll 1$ et $\theta_{pyr} \ll 1$) et le flux incident peut être approché à $q''_{inc} \approx \sigma \varepsilon T_{max}^4$. En développant (3.43) au premier ordre on a :

$$\frac{t_{inf}(h_e)}{\tau} \approx \frac{q''_c + \frac{h_e c_p^e}{c_p^c} Q''_c}{q''_{inc}} + 4 \left\{ (\theta_{pyr} - \theta_0) + \frac{h_e c_p^e}{c_p^c} (\theta_v - \theta_0) \right\} + L_e \frac{E_0/\tau}{q''_{inc}} \quad (3.44)$$

Sachant qu'à partir de (3.35) le temps de relaxation dépend du flux incident ($\tau = \frac{E_0}{4T_{max}^3 \sigma \varepsilon}$), le temps d'inflammation devient :

$$t_{inf}(h_e) \approx \frac{E_0 \left(q''_c + \frac{h_e c_p^e}{c_p^c} Q''_c \right)}{4(\sigma\varepsilon)^{\frac{1}{4}} q''_{inc}{}^{\frac{7}{4}}} + E_0 \left\{ \frac{\left((T_{pyr} - T_0) + \frac{h_e c_p^e}{c_p^c} (373 - T_0) + L_e \right)}{q''_{inc}} \right\}$$

$$\propto q''_{inc}{}^{-1} + O(q''_{inc}{}^{-7/4}) \quad (3.45)$$

Comme pour les pertes convectives, on retrouve donc le résultat de la théorie d'inflammation pour des combustibles thermiquement fins avec les pertes radiatives.

- *L'effet de l'émission des gaz volatiles*

Maintenant, afin de rendre compte de l'effet d'émission des gaz de pyrolyse sur le temps d'inflammation, nous considérons (comme dans le cas des pertes convectives) un combustible sec, avec une émission des produits de pyrolyse à T_{pyr} , ce qui signifie $\theta_v = \theta_{pyr}$ et $Q''_c = q''_c$. Le temps d'inflammation devient :

$$\frac{t_{inf(0)}}{\tau} = \left(1 + \frac{h_v c_p^v}{c_p^c} \right) \left[-\ln \left(\left(1 - \frac{q''_c}{q''_{inc}} \right) \frac{(1+\theta_0)^2 (1+\theta_0^2)}{(1+\theta_{pyr})^2 (1+\theta_{pyr}^2)} \right) + 2 \operatorname{atan}(\theta_{pyr}) - 2 \operatorname{atan}(\theta_0) \right] + L_v \frac{E_0/\tau}{q''_{inc} - q''_c} \quad (3.46)$$

Comme pour le cas des pertes convectives, le temps d'inflammation (avec émission des volatiles) présente deux types de divergence: un logarithmique correspondant au chauffage, et un autre en puissance correspondant à l'émission des gaz de pyrolyse à T_{pyr} . La divergence en puissance domine près du flux critique, ce qui est en accord avec les résultats de Mindykowski et al. (2011) et Khan et al. (2009). On remarque que le flux critique, défini à partir de la différence des températures de pyrolyse et ambiante (3.42), est le même avec ou sans introduction de l'émission des gaz. Par conséquent, le flux critique *vient* du critère d'inflammation de température T_{pyr} , alors que le comportement en puissance du temps d'inflammation près du flux critique *vient* du critère d'inflammation de perte de masse. On retrouve donc la dualité température critique/perte de masse critique proposée par Vermisi et al. (2017b). Le troisième critère d'inflammation E_{inf} est relié à la température critique à travers (3.12). Notons que cette énergie critique ne peut pas être reliée au flux critique et au temps caractéristique comme dans le mode de transfert de chaleur par convection (3.27). En effet, le temps caractéristique du chauffage dans le cas des pertes radiatives dépend du flux incident (3.35) alors que l'énergie critique est indépendante de ce flux (3.12).

c) Vérification expérimentale de l'influence de la teneur en eau

Nous soulignons deux conclusions importantes de l'analyse théorique du modèle : 1/ la dépendance linéaire du temps d'inflammation en teneur en eau ; 2/ l'indépendance du flux critique à la teneur en eau.

c.1/ Dépendance linéaire du temps d'inflammation en teneur en eau

Afin d'éliminer l'effet de la compacité sur le comportement du temps d'inflammation, nous avons considéré l'échantillon en une seule couche avec une masse 3.5 g soumis un flux thermique d'environ 17 kW/m^2 . La dépendance en teneur en eau (base frais) du temps d'inflammation moyen obtenu sur 3 tests est comparé sur la figure 3.4a aux résultats avec une épaisseur de 1.5 cm. Dans cette figure l'écart type des résultats en une couche est représenté, alors que pour les résultats avec compacité tous les points sont présentés. On voit bien que pour les échantillons en une couche, le temps d'inflammation varie linéairement avec la teneur en eau (**base frais**) aux erreurs statistiques près. Ce temps augmente exponentiellement pour les échantillons de 1.5 cm d'épaisseur, ce qui démontre l'influence importante de la compacité. Mais la linéarité observée expérimentalement ne correspond pas aux prédictions de (3.24) et (3.41) car le comportement théorique du temps d'inflammation est linéaire avec la teneur à **base sec**.

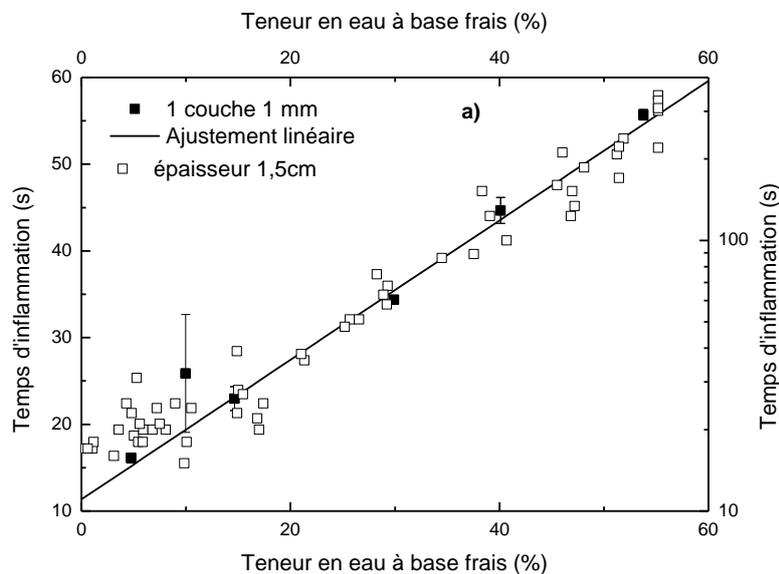


Figure 3.4a Temps d'inflammation en fonction de la teneur en eau (base frais) pour un échantillon de 1 mm d'épaisseur (échelle linéaire) et de 1.5 cm d'épaisseur (échelle semi-logarithmique).

Afin de comparer les résultats expérimentaux aux prédictions théoriques, nous présentons les résultats de la figure 3.4a en fonction de la teneur en eau en base sec (voir figure 3.4b). Notons qu'à partir des équations (3.3) ces deux teneurs en eau sont reliées par $h''_e = h_e/(1 + h_e)$. On voit que la linéarité pour l'échantillon de 1 mm d'épaisseur se limite à des teneurs en eau relativement petites (inférieures à 0.7), au-delà le temps d'inflammation a tendance à saturer. La même tendance est observée pour l'échantillon de 1.5 cm d'épaisseur (comportement exponentiel induit par la compacité pour des teneurs en eau inférieures à 0.7 puis saturation). Maintenant on se limite aux échantillons de 1 mm d'épaisseur. Connaissant l'expression affine du temps d'inflammation montrée par la figure 3.4a $t_{inf} = a h''_e + b$ et en utilisant l'expression de h''_e en fonction de h_e , l'expression du temps d'inflammation devient

$$t_{inf}(h_e) = [t_{inf}(\infty) - t_{inf}(0)] \frac{h_e}{1+h_e} + t_{inf}(0) \quad (3.47)$$

Afin d'éviter la divergence du temps d'inflammation pour un matériau où il n'y a que de l'eau, $t_{inf}(\infty)$ correspond à un combustible dont la masse sèche est négligeable devant la masse de l'eau. Dans ce cas-là, le temps mis pour le chauffage et l'évaporation de l'eau est dominant et correspond donc à la saturation du temps d'inflammation. Par conséquent, pour une masse de combustible finie, le temps d'inflammation reste fini quelle que soit la teneur en eau, ce qui confirme l'inexistence d'une teneur en eau critique pour l'inflammation comme observée récemment par Terrah et al. (2020).

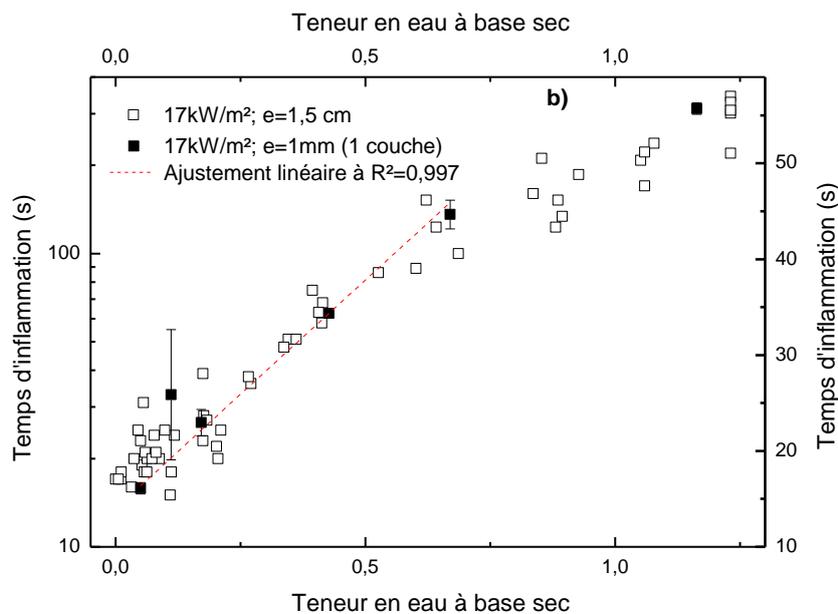


Figure 3.4b Temps d'inflammation en fonction de la teneur en eau (base sec) pour un échantillon de 1 mm d'épaisseur (échelle linéaire) et de 1.5 cm d'épaisseur (échelle semi-logarithmique).

Les prédictions théoriques n'expliquent donc pas les tendances à grandes teneurs en eau. Nous attribuons cette tendance de saturation à l'émission des volatiles qui accompagnent la vapeur d'eau tel qu'observé par Ciccioli et al. (2014). En effet à partir d'une certaine teneur en eau, les gaz volatiles émis sont suffisants et peuvent atteindre la limite inférieure d'inflammabilité (Zabetakis 1965). Ainsi l'inflammation peut avoir lieu avant que l'eau ne soit complètement évaporée, ce qui n'est pas pris en compte par le modèle.

c.2/ Indépendance du flux critique à la teneur en eau

Dans le but de vérifier expérimentalement la dépendance de la température maximale T_{max} (par conséquent le flux critique) en teneur en eau, nous avons soumis des échantillons de combustibles de pin d'Alep à un flux thermique suffisamment faible pour qu'il n'y ait pas d'inflammation ($q''_{inc} = 10 \text{ kW/m}^2$). Ces échantillons de masse 10 g sont préparés à différents états de teneur en eau : sec (séchés au four micro-onde pendant 3 min) et frais. Nous rappelons que la température maximale est la température pour laquelle tout le flux incident est perdu, ceci correspond à (3.19) pour le cas convectif et (3.30) pour le cas radiatif. Dans le présent cas expérimental, nous avons aussi bien les pertes par convection que par radiation d'où :

$$q''_{inc} = h_t(T_{max} - T_0) + \sigma\varepsilon(T_{max}^4 - T_0^4) \quad (3.48)$$

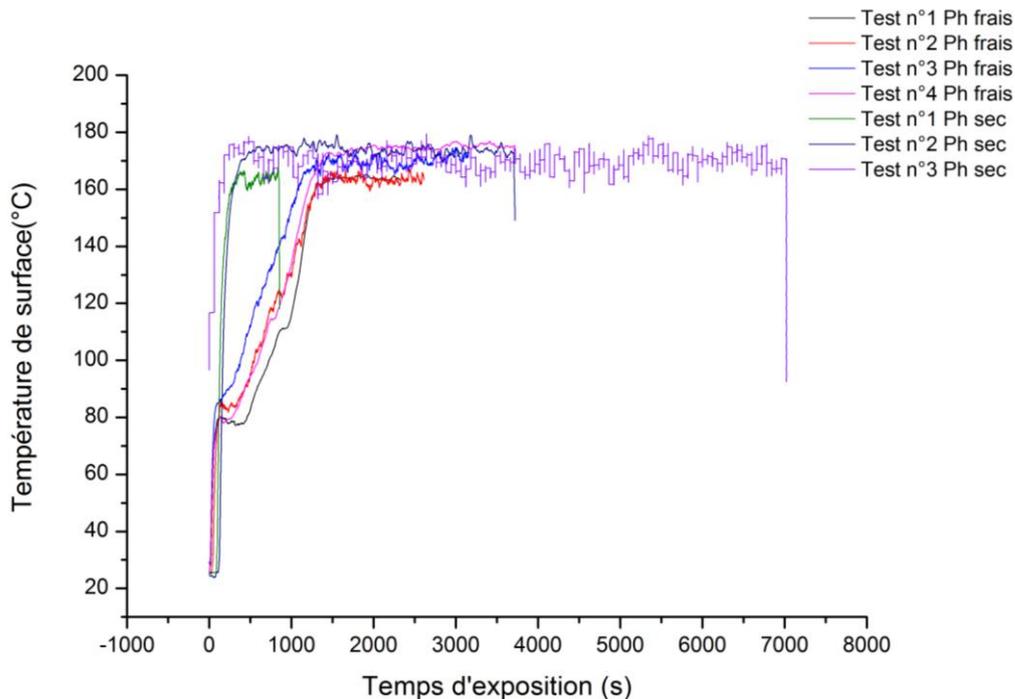


Figure 3.5 Evolution de la température de surface du lit combustible poreux en fonction du temps d'exposition pour des combustibles secs et frais.

Dans la phase de saturation, la température fluctue autour d'une valeur moyenne (voir figure 3.5). Ces fluctuations sont causées par la compétition refroidissement (par écoulement d'air frais)/chauffage (par flux thermique). On observe une légère augmentation de la température de saturation (maximum 10 °C) du combustible sec par rapport au frais. Cette différence de température maximale est due à la différence du flux effectif incident au niveau de la surface. En effet, en plus du flux incident reçu par le cône calorimètre, la surface reçoit un flux supplémentaire dû au re-transfert de la chaleur par rayonnement des couches internes, ce qui augmente le flux effectif. Concernant le combustible frais, l'émission de vapeur d'eau refroidit la surface ce qui réduit le flux effectif et par conséquent la température maximale. On remarque également dans la figure 3.5 que l'augmentation de la température de surface est abrupte pour le combustible sec tandis qu'elle est linéaire pour le frais. Ceci est attribué à l'évaporation graduelle de l'eau des couches internes qui refroidissent la surface. Cette augmentation graduelle de la température avant la saturation devrait dépendre de la porosité du lit végétal. Une étude systématique de l'effet de la porosité est en cours dans le cadre de la thèse de M^{lle} Hanane Boutchiche. L'influence de la porosité ne nous permet donc pas de vérifier l'indépendance de la température maximale en teneur en eau.

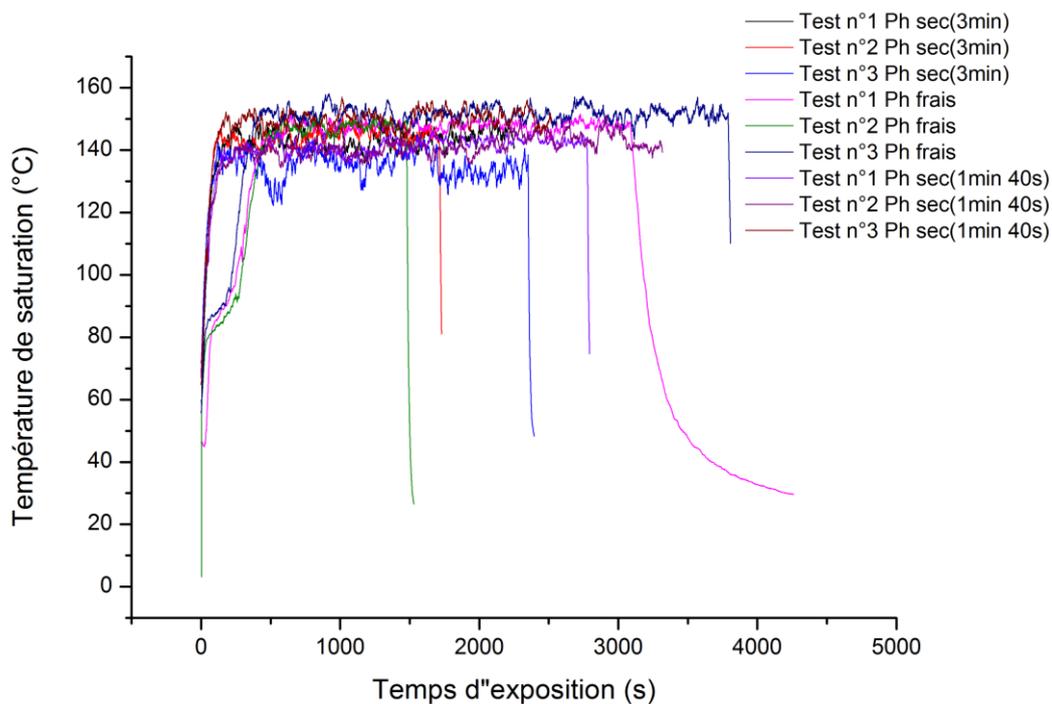


Figure 3.6 Evolution de la température de surface du combustible étalé sur une seule couche en fonction du temps d'exposition pour des combustibles dans différents états de la teneur en eau.

Afin de vérifier cette indépendance nous avons utilisé des échantillons étalés sur une seule couche avec des aiguilles disposées parallèlement sur le porte échantillon, le thermocouple étant disposé perpendiculairement aux aiguilles pour minimiser l'influence de son déplacement lors du chauffage. Dans ces expériences, nous avons ajouté, en plus des deux états de la teneur en eau sus-indiqués, un état partiellement humide (aiguilles séchés pendant 1min 40 s). D'après la fig.3.6 les températures maximales semblent coïncider pour toutes les courbes à quelques degrés près, ce qui confirme l'indépendance de la température maximale (et par conséquent du flux critique pour l'inflammation) en teneur en eau. Mais si on examine la température maximale moyenne pour chaque état de la teneur en eau, on remarque une légère augmentation de la température de 3 à 5 degrés en passant du sec au frais. En outre, un noircissement de la surface du combustible frais est observé en comparaison avec le sec. Ceci est causé par l'oxydation de la surface du combustible frais lors de l'évaporation de l'eau, ce qui signifie que son émissivité est différente de celle du sec. En utilisant (3.48) et en considérant que le flux incident est constant (absence de l'influence de la porosité discutée plus haut), on déduit que l'émissivité du combustible frais (noircit) a diminué.

Avant de comparer les résultats analytiques à ceux expérimentaux et d'examiner l'aspect comportement en puissance près du flux critique, nous allons investiguer la dynamique de chauffage du combustible. En effet, dans le développement précédent nous avons défini un temps de relaxation. Il est important d'étudier le type de relaxation décrivant le chauffage pour les deux modes de transfert de chaleur étudiés ici.

3.4.2 Dynamique de chauffage du combustible

Dans le processus de chauffage décrit ci-haut (3.9), on remarque que l'échantillon évolue vers un état d'équilibre et peut être décrit par l'approximation de la réponse linéaire. Selon cette approximation, l'évolution du système vers son état d'équilibre dépend de la perturbation et d'une fonction de réponse liée aux caractéristiques du système. La réponse $Y(t)$ du système obéit à la formule intégrale suivante d'après l'équation A1.1 de Kremer et Schonhals (2003) :

$$Y(t) = Y_{\infty} + \int_{-\infty}^t \tilde{J}(t - t') \frac{dx(t')}{dt'} dt' \quad (3.49)$$

Où $\tilde{J}(\tau)$ la fonction de mémoire ou de matière qui peut être mesurée comme la réponse du système lorsque la perturbation est de type fonction δ ($\frac{dx}{dt} = x_0 \delta(t)$). Dans ce cas $\tilde{J}(t) =$

$(Y(t) - Y_\infty)/x_0$. Pour le cas du présent dispositif expérimental (échantillon soumis au flux radiatif d'un cône calorimètre), la fonction de réponse est la température de surface de l'échantillon $T(t)$, et la perturbation est le flux thermique par unités de surface absorbé par l'échantillon. Pour un échantillon sec, (3.9) peut être réécrite sous la forme de (3.49) et devient :

$$T(t) = T_0 + \int_0^t \frac{1}{E_0(t')} \frac{dE_{abs}}{dt'} dt' \quad (3.50)$$

Notons ici que le flux effectif absorbé par l'échantillon est $q''_{eff} = dE_{abs}/dt$. La fonction mémoire du combustible est donc inversement proportionnelle à l'énergie par unité de surface E_0 définie par (3.10) et qui dépend en général du temps (incluant la perte de masse et la variation de la chaleur spécifique). Par analogie avec les définitions du tableau A1.1 de Kremer et Schonhals (2003) cette fonction mémoire définit ici la susceptibilité thermique de l'échantillon.

Maintenant, examinons l'évolution temporelle de la réponse du système. Nous avons trouvé ci-haut que pour des pertes de chaleur par convection la température du combustible est décrite par un processus de relaxation exponentielle d'après (3.13) et (3.14) avec un temps de relaxation $\tau = E_0/h_t$. Dans le cas des pertes radiatives, l'équation décrivant l'évolution de la température reste du premier ordre mais devient non-linéaire (voir équations 3.29 et 3.31). Cette équation est aussi une équation générale de relaxation (Stanislavski et Weron, 2019) puisqu'elle peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{d\Phi}{dt} = -r(t)\Phi(t) \quad \text{avec} \quad r(t) = \frac{\sigma\varepsilon}{E_0} (T_{max} + T(t))(T_{max}^2 + T(t)^2) \quad (3.51)$$

Avec

$$\Phi(t) = \frac{T_{max} - T(t)}{T_{max} - T_0} \quad (3.52)$$

La fonction de relaxation $\Phi(t)$ obéit aux conditions aux limites :

$$\begin{aligned} (t = 0 \rightarrow T = T_0) & \quad \Phi(0) = 1 \\ (t = \infty \rightarrow T = T_{max}) & \quad \Phi(\infty) = 0 \end{aligned} \quad (3.53)$$

Dans le cas d'une relaxation normale (exponentielle), la fonction $r(t)$ est constante et correspond à l'inverse du temps de relaxation. A cause du comportement dépendant du temps

de cette fonction, le processus de chauffage décrit par les pertes de chaleur radiatives peut correspondre à une relaxation anormale.

Les différents types de relaxation (normale et anormale) ont été étudiés dans différents domaines (Bouchaud, 2008 ; Stanislavski et Weron, 2019). Les relaxations anormales sont souvent modélisées par une fonction empirique de forme exponentielle étirée proposée par Kohlrausch-Williams-Watts (Kohlrausch, 1854 ; Williams et Watts, 1970):

$$\Phi(t) = e^{-\left(\frac{t}{\tau}\right)^\beta} \text{ avec } 0 < \beta < 1 \quad (3.54)$$

On retrouve les phénomènes de relaxation de ce type dans plusieurs domaines comme les diélectriques (Kremer et Schonals, 2003 ; Stanislavski et Weron, 2019) et la viscoélasticité (Sahraoui et Zekri, 2018). Le processus de relaxation a été relié à celui de la diffusion (Bouchaud, 2008). Dans le cas présent du chauffage du combustible, une partie de la chaleur incidente est rediffusée vers le milieu ambiant supposé suffisamment grand par rapport à l'échantillon. La chaleur perdue augmente avec la température du combustible (3.4). L'équilibre est atteint lorsque le flux de chaleur incident est totalement rediffusé vers le milieu ambiant et la température du combustible atteint asymptotiquement sa valeur maximale ($t \rightarrow \infty$). Il a été montré qu'une décroissance exponentielle étirée avec exposant $\beta < 1$ dans (3.54) correspond à une sous diffusion (Metzler et al., 1999). Concernant la propagation des feux de forêts une super-diffusion a été observée correspondant à un phénomène de super-relaxation (Porterie et al., 2008). Qu'en sera-t-il dans le cas du processus de relaxation thermique avec pertes radiatives?

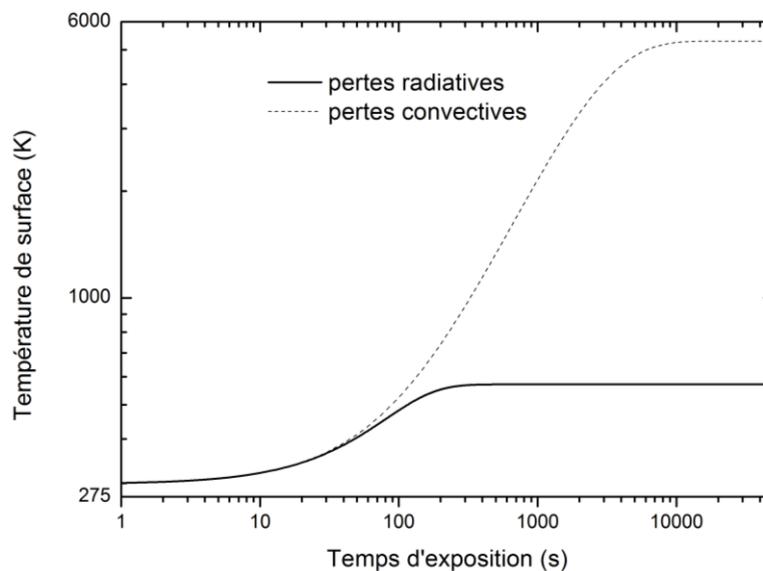


Figure 3.7 L'évolution temporelle de la température de surface d'un combustible sec pour différents modes de pertes de chaleur avec un flux incident de 5 kW/m^2

En comparant l'évolution de la température pour les cas de pertes radiative et convective pour un combustible sec à $q''_{inc} = 5 \text{ kW/m}^2$ dans la Fig.3.7, on retrouve pour les deux cas une évolution de type relaxation (une température maximale atteinte asymptotiquement). D'autre part, la température maximale est beaucoup plus grande (un ordre de grandeur) dans le cas des pertes convectives. Cette température maximale est atteinte beaucoup plus rapidement dans le cas des pertes radiatives.

Si, pour les pertes convectives, le chauffage est décrit par une relaxation de type exponentielle (3.14) pour le cas des pertes radiatives, on remarque dans (3.34), que le premier terme (le logarithme) fait apparaître la fonction de relaxation Φ définie par (3.52). La relaxation dans ce cas semble exponentielle et le temps caractéristique τ semble bien un temps de relaxation. Afin d'examiner le type de relaxation pour les pertes radiatives, on présente dans la figure 3.8 (en échelle semi-logarithmique) la fonction de relaxation Φ en fonction du temps en termes du temps caractéristique τ . Une décroissance linéaire correspondrait à une relaxation exponentielle (normale) comme c'est le cas des pertes convectives (3.14), alors qu'une déviation de la linéarité pourrait indiquer une relaxation anormale. Une décroissance non-linéaire est observée au début du processus du chauffage pour les pertes radiatives.

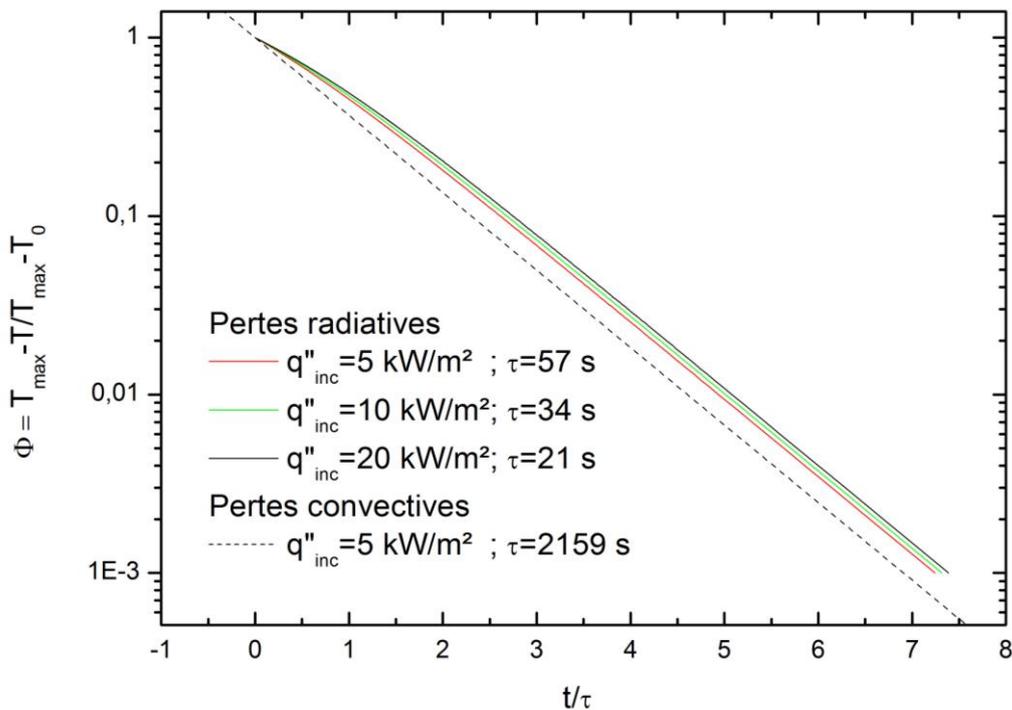


Figure 3.8 La fonction Φ (3.52) en fonction de t/τ pour différentes intensités du flux incident avec pertes radiatives et convectives données par (3.14). Les courbes sont en échelle semi-logarithmique

Au-delà du temps caractéristique, la tendance devient linéaire ce qui correspond à une relaxation exponentielle. Cette déviation au début du chauffage provient des termes en arc tangente dans (3.34), alors que pour des temps suffisamment grands, le terme en logarithme domine. On remarque sur la Fig.3.8 que le temps de relaxation ne dépend pas du flux incident dans le cas des pertes convectives ($\tau = 2159$ s à partir de l'équation 3.15), alors qu'il diminue en $q''_{inc}^{-3/4}$ pour le cas de pertes radiatives d'après l'équation 3.35. D'autre part, deux ordres de grandeurs séparent les temps caractéristiques des deux modes de transfert de chaleur.

3.4.3 Comparaison résultats modèle-données expérimentales

Les données expérimentales sont confrontées dans la Fig.3.9 aux résultats du modèle en considérant des pertes radiatives, où l'inverse du temps d'inflammation est présenté en fonction du flux thermique incident. Puisque les tendances sont similaires pour les trois combustibles investigués, seuls les résultats du modèle pour la paille de blé sont présentés pour éviter l'encombrement sur la figure. Trois températures de pyrolyse sont considérées pour ce combustible : 410 K, 500 K et celle utilisée par Koo et al. 561 K (2005). Ces températures sont choisies en remarquant que la température critique d'auto-inflammation varie de 254 à 530°C pour le bois (Babrauskas 2001) et de 380 à 511°C pour le *Cistus Monspelienis* selon la taille des particules (Tihay-Felicelli et al., 2016). Pour l'allumage piloté, la température de pyrolyse est beaucoup plus petite.

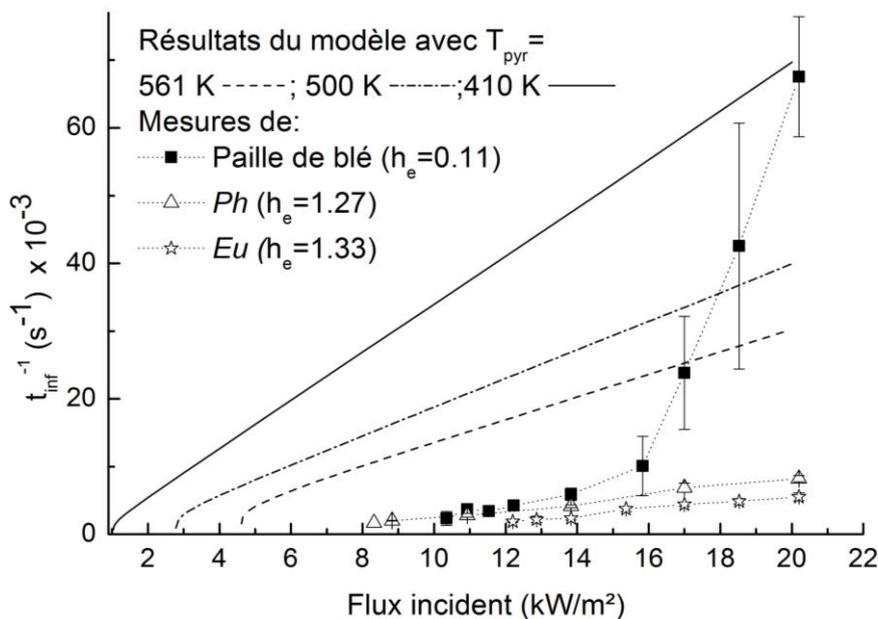


Figure 3.9 L'inverse du temps d'inflammation vs. flux thermique incident. Comparaison des données expérimentales avec les résultats du modèle.

Nous remarquons dans Fig.3.9 que pour des intensités de flux supérieures à 16 kW/m^2 , une tendance linéaire peut être ajustée pour les données de paille avec un coefficient de corrélation ($R^2 \approx 0.998$), bien meilleur que pour *Ph* et *Eu* ($R^2 \approx 0.96$). Cette tendance linéaire, prédite analytiquement à partir de (3.25) et (3.45), est aussi confirmée pour les trois températures considérées. Puisque le comportement linéaire apparaît pour les hauts flux, le flux critique pour l'inflammation devrait être bien inférieur à 16 kW/m^2 . Remarquons ici la forte pente des données de paille par rapport à celles du *Ph* et *Eu* sur la figure 3.9. Cela peut s'expliquer par la faible teneur en eau des échantillons de paille séchés naturellement ($h_e = 0,11$) comparée à celles des autres combustibles ($h_e > 1$). La teneur en eau contribue à la pente du comportement linéaire comme prédit par (3.25) et (3.45). Pour des valeurs élevées de la teneur en eau, des fluctuations du temps d'inflammation apparaissent comme observé pour les données *Ph* et *Eu*. En effet, des substances volatiles inflammables accompagnent l'évaporation de l'eau (Ciccioli et al., 2014), ce qui conduit soit à renforcer l'inflammation à cause des volatiles soit à l'empêcher en raison de la présence de vapeur d'eau au niveau de la flamme pilote. La pente obtenue de l'ajustement linéaire des données de la paille pour de grandes intensités de flux thermique ($q''_{inc} > 16 \text{ kW/m}^2$) est de $0.0131 \pm 0.0004 \text{ m}^2/\text{kJ}$ sur la figure 3.9. Cette valeur de la pente correspondrait aux résultats du modèle pour une température de pyrolyse $T_{pyr} = 325 \text{ K}$ (non illustré sur la figure). Aucun essai d'allumage piloté n'a été observé expérimentalement à cette température de surface. De plus, le modèle à $T_{pyr} = 325 \text{ K}$ donne des valeurs de temps d'inflammation bien inférieures à celles des données expérimentales. Les résultats numériques (raisonnables) du temps d'inflammation les plus proches des résultats expérimentaux de la paille sont ceux utilisant une température de pyrolyse de 410 K même si la pente est encore faible. Examinons maintenant les résultats pour les faibles intensités de flux thermique. On remarque que les courbes deviennent non linéaires comme prédit analytiquement. En outre, des fluctuations du temps d'inflammation sont observées pour les données expérimentales à cause du caractère hétérogène du lit combustible (non inclus dans le modèle). Le flux critique correspond dans cette figure à l'intersection des courbes avec l'axe horizontal ($1/t_{inf} = 0$). Cette méthode nécessite la connaissance de q''_c avec une précision infinie. Pour les résultats numériques, q''_c est donné par (3.42) indépendamment de la teneur en eau, mais seules les solutions numériques avec quatre chiffres de précision sont présentées sur cette figure, ce qui correspond à des valeurs de q''_c à 0.1 W près. Cependant pour les mesures expérimentales les incertitudes du capteur sont bien plus grandes (100 W).

Comme discuté ci-haut, l'estimation du flux critique à partir de l'extrapolation à l'axe horizontal des données expérimentales est donc difficile en raison des fluctuations du temps d'inflammation et de son comportement non linéaire. Afin de contourner ce problème, une méthode est proposée, basée sur le concept des transitions de phase décrits par la loi de puissance universelle (3.2) près du seuil d'inflammation (Blundell et Blundell, 2006 ; Pokrovskii, 1999 ; Stauffer et Aharony, 1992 ; Stanley, 1971 ; Yeomans, 1992). Pour cela, les résultats numériques et les données expérimentales du temps d'inflammation illustrés sur la Fig. 3.9 sont présentés maintenant sur la Fig. 3.10 en fonction de $q''_{inc} - q''_c$ en échelle logarithmique. Le flux critique q''_c est ici un paramètre inconnu qui est varié jusqu'à ce que le meilleur ajustement en loi de puissance (linéaire dans cette figure) soit atteint. Les meilleurs ajustements linéaires des données à faibles intensités du flux thermique incident sont obtenus avec un coefficient de corrélation $R^2 > 0.95$ (les paramètres ajustés sont illustrés dans Fig.3.10a). Cependant, les résultats numériques montrent un meilleur comportement linéaire sur la Fig.3.10b où seulement l'axe du flux incident est en échelle logarithmique en accord avec l'équation 3.41. Pour les résultats numériques, les valeurs du flux critique déterminés à quatre chiffres de précision à partir de la figure 3.9 sont illustrées sur Fig.3.10b. Remarquons que pour la température 410 K, le flux critique ($q''_c = 1.0395 \text{ kW/m}^2$) est très faible par rapport à celui estimé des données de la paille de blé ($q''_c = 6.8 \pm 0.8 \text{ kW/m}^2$). Par conséquent, le modèle ne semble pas en mesure de reproduire les données expérimentales et le comportement pour de faibles valeurs du flux. Comme prévu, le flux critique pour l'inflammation de la paille de blé obtenu par cette méthode est loin de la région du comportement linéaire qui commence à 16 kW/m^2 sur la figure 3.9.

Comparons les valeurs du flux critique estimées à partir de l'ajustement des paramètres des données des figures 3.10. Le flux critique pour l'inflammation est plus important pour les feuilles d'*Eucalyptus* $q''_c = 9.6 \pm 0.6 \text{ kW/m}^2$ que pour la paille de blé ($q''_c = 6.8 \pm 0.8 \text{ kW/m}^2$) et les aiguilles du *Pinus halepensis* ($q''_c = 4.0 \pm 0.5 \text{ kW/m}^2$). Ceci confirme l'important indice de sensibilité au feu observé dans les forêts Méditerranéennes pour les aiguilles du *Pinus halepensis* (Alexandrian et Rigolot ; 1992). Les feuilles de *Eucalyptus* ont besoin d'un flux plus grand pour leur inflammation. Mais ce combustible a largement contribué aux feux de forêts extrêmes survenus en Portugal en 2017, où il est dominant (Häusler et al., 2018). En effet, les feuilles d'*Eucalyptus* sont connues par leur grande teneur en huiles et par la rapidité de propagation de feux de cimes. (Pyne et al., 1996 ; Gabbert, 2014). Remarquons que le flux critique pour l'inflammation estimé à partir des

données expérimentales des aiguilles de pin est plus faible comparé à celui d'environ 8 kW/m^2 donné par la littérature (Lamorlette et al., 2015; Torero, 2010). En fait, les valeurs du flux critique données par la littérature sont estimées par des méthodes déterministes réalisées suivant le standard ASTM 1354 (2017). Or d'après les concepts des transitions de phase, un désordre maximal apparaît dans la région critique (ici près du seuil d'inflammation). Ceci se traduit par l'échec de tests d'inflammation donnant lieu à un comportement probabiliste. Cet aspect probabiliste est observé dans le présent travail (voir la sous-section suivante).

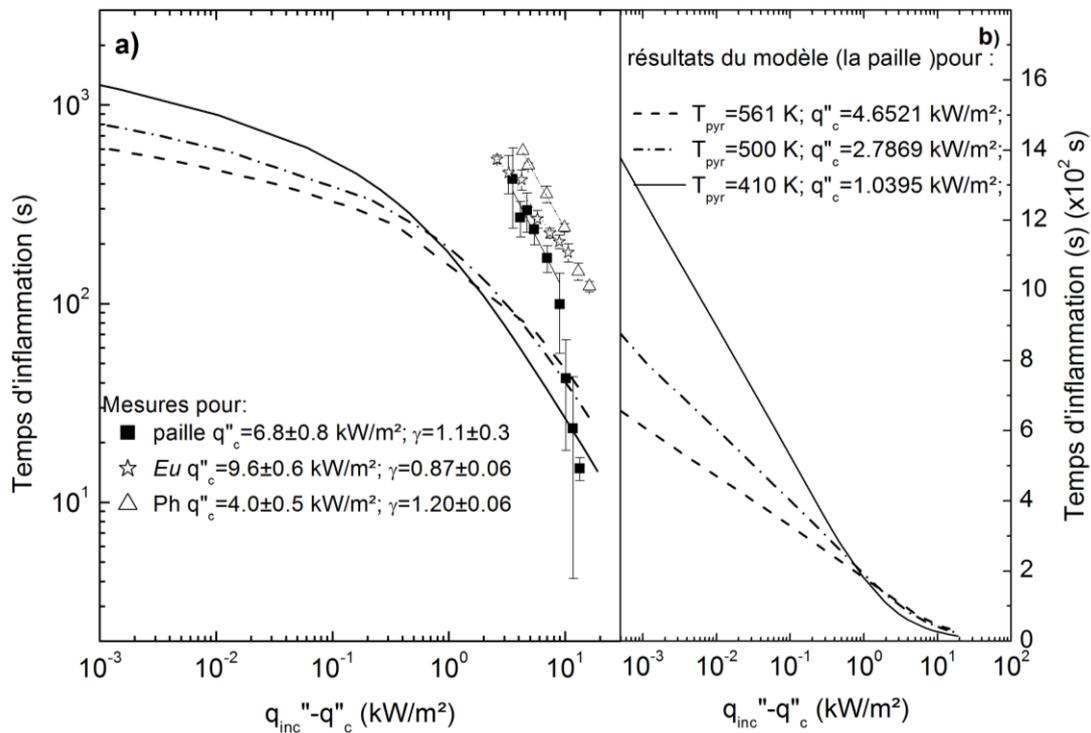


Figure 3.10 Temps d'inflammation vs. $q''_{inc} - q''_c$ a) résultats du modèle (courbes) et données expérimentales (symboles) en échelle logarithmique, b) résultats du modèle pour la paille sèche en échelle semi-logarithmique

L'autre paramètre important décrivant les transitions de phase est l'exposant de la loi de puissance (3.2). Il est estimé pour les données expérimentales à partir de la pente de l'ajustement linéaire dans la figure 3.10a. Les valeurs estimées de cet exposant coïncident, aux erreurs près, pour les combustibles en forme d'aiguilles ($\gamma = 1.20 \pm 0.06$ pour *Ph*, et $\gamma = 1.1 \pm 0.3$ pour la paille), mais sont plus petites pour les combustibles en forme de feuilles ($\gamma = 0.87 \pm 0.06$ pour l'*Eu*). Par conséquent la transition de phase d'inflammation dans le cas des feuilles n'appartient pas à la même classe d'universalité de celle des aiguilles (Stanley, 1971, Yeomans, 1992, Stauffer et Aharony, 1992). Ceci suggère différents processus d'inflammation pour ces deux formes de combustibles. Parmi les causes de cette différence on peut citer le taux d'évaporation des gaz volatiles qui affecte directement l'inflammabilité du

combustible. Ce taux dépend fortement de la taille, de l'arrangement des particules et de la compacité du combustible (Beyler, 2016). D'après des études récentes utilisant la microscopie à balayage électronique, les feuilles ont beaucoup plus de pores que les aiguilles (Hamamousse et Boutchiche, 2018).

Ce modèle a réussi à décrire le processus d'inflammation en accord avec la théorie d'inflammation (Quintiere, 2006). D'autre part, il a été inclus dans le modèle de propagation de *Petit Monde* qui a été validé pour des feux expérimentaux et historiques (Adou et al., 2010). Cependant, il existe des déviations par rapport aux données expérimentales, en particulier pour les faibles intensités du flux thermique. Ces déviations peuvent être causés par :

- a) L'absence d'utilisation du troisième critère d'inflammation (le taux de perte de masse critique) dans le modèle (Lyon et Quintiere, 2007; Vermesi et al., 2016). L'incorporation de ce critère dans le modèle permettra de reproduire le comportement en puissance observé expérimentalement (Fig.3.10a).
- b) La valeur constante de la capacité calorifique du combustible c_p^c tout au long du chauffage (voir Tableau 3.1), alors qu'elle dépend de la température.
- c) L'absence de la convection induite par la source de chaleur (résistance du cône ou les flammes) dans la modélisation de l'inflammation ou de la propagation des feux de forêts. Un tel effet risque de diminuer ou augmenter le flux incident, et peut expliquer certaines inflammations anormalement lentes ou des comportements inattendus des feux de forêts comme ceux des feux de jonction (Viegas et al., 2012 ; Raposo et al., 2018).
- d) L'homogénéité des combustibles des forêts considérée dans le modèle, ce qui conduit à un processus d'inflammation déterministe correspondant à un temps d'inflammation moyen. Ainsi, les fluctuations observées du temps d'inflammation et les tests d'inflammation ratés dans le cas des faibles intensités du flux (comportement probabiliste) ne sont pas reproduits par le modèle.

Afin de reproduire les données du temps d'inflammation, il est nécessaire d'inclure dans le modèle le comportement des paramètres mentionnés ci-dessus. Cependant, il est difficile de connaître par exemple la dépendance à la température de la capacité calorifique et du taux d'émission des volatiles dans les conditions du dispositif expérimental (voir Fig.3.2). Concernant la capacité calorifique, sa dépendance en température peut être mesurée au

laboratoire grâce au balayage calorimétrique différentielle/analyse thermo-gravimétrique (DSC/TGA). Une dépendance linéaire en température de la capacité calorifique a été proposée pour simuler le processus d'inflammation (Lyon et Quintiere, 2007). Cependant, la forte augmentation de température dans les conditions du cône calorimètre peut influencer de manière significative son comportement où des tendances non linéaires peuvent apparaître pour certains taux d'augmentation de température (Toledo, 2007). Concernant le taux d'émission des volatiles, il n'existe pas à notre connaissance de résultats quantitatifs sur leur dépendance en température surtout pour des températures de pyrolyse, où par exemple un taux d'émission maximal a été observé autour de 175 °C (Courty et al., 2014). D'après Drysdale (2011) le taux de perte de masse se comporte avec la température suivant une loi d'Arrhenius avant l'inflammation. Ce comportement peut être influencé par la distribution des pores dans le combustible (Hamamousse et Boutchiche, 2018). Enfin concernant le dernier point du désaccord (d), afin d'inclure l'hétérogénéité du combustible dans le modèle, il est nécessaire de connaître sa répartition dans le lit végétal (distribution du rapport de compacité) ainsi que la composition microscopique hétérogène des particules de combustible. Puisque l'hétérogénéité du combustible n'est pas incluse dans le modèle, l'analyse probabiliste de l'inflammation dans la sous-section suivante pour les aiguilles de pin ne concerne que les données expérimentales.

3.4.4 L'effet probabiliste de la transition de phase d'inflammation

D'après le désaccord (d) discuté dans la sous-section précédente, près du flux critique (seuil de la transition) certains tests d'inflammation échouaient, ce qui a nécessité des tests supplémentaires pour satisfaire la condition de cinq tests de la figure 3.10a. Des situations similaires où l'inflammation peut réussir ou échouer ont été observées lors de l'inflammation de combustibles par des particules chaudes (près du seuil) simulant le processus d'inflammation par brandons (Hadden et al., 2010). En effet de petites sphères métalliques de diamètres variant entre 8 mm et 19.1 mm ont été chauffées à des températures entre 500°C et 1300°C, puis projetées sur le combustible pour simuler l'effet des brandons. La région critique est ici la ligne critique diamètre/température de la sphère. Le comportement probabiliste observé dans la région critique provient de la complexité des végétaux. Cette complexité est fort probablement due à la contenance en eau (h_e) et à la compacité (ϕ) du lit végétal (Rothermel, 1972 ; Beyler, 2016). Selon Rothermel (1972), il existe un rapport de compacité optimal conduisant à un maximum d'intensité du feu et de vitesse de réaction. On

passe d'une combustion limitée en oxygène pour des rapports suffisamment grands vers une combustion limitée en combustible pour des rapports suffisamment petits (Van Wagendonk, 2006). Ce rapport de compacité, défini par (3.8), est en réalité une quantité moyenne qui peut être déduite de la compacité locale (à travers l'échantillon) ce qui induit un comportement stochastique du processus d'inflammation des combustibles poreux. Il a été constaté que le taux d'émission des gaz augmentait à mesure que le flux thermique incident augmentait pour les combustibles solides (Shi et Chew, 2012). Il est prévu qu'il en soit de même pour les combustibles poreux. Suivant les travaux de Vermesi et al. (2017b), la condition duale du seuil d'inflammation (température critique/ taux de perte de masse critique) doit être satisfaite. Pour des intensités du flux incident suffisamment importantes, la distribution de compacité (pour un taux de compacité moyen donné) entraîne des fluctuations du temps d'inflammation, mais les deux critères d'inflammation (taux de perte de masse critique et température critique) sont toujours atteints. Le temps d'inflammation est donc le temps minimum pour atteindre la condition dual du seuil d'inflammation. En revanche, dans la région critique, le taux de perte de masse et la température fluctuent autour de leurs valeurs critiques. Dans ce cas, des configurations où au moins une des deux conditions de seuil d'inflammation n'est pas remplie apparaissent conduisant à l'échec des tests.

Examinons maintenant le comportement probabiliste des tests d'inflammation. Pour chaque flux thermique incident, la probabilité d'inflammation est définie comme le rapport du nombre de tests réussis au nombre total de tests réalisée ($P_{inf} = N_{inf}/N_{test}$). La précision sur la probabilité d'inflammation ainsi estimée dépend de nombres de tests (N_{test}). Pour un faible nombre de tests la distribution de la probabilité d'inflammation suit une loi binomiale. Elle deviendrait Gaussienne pour un nombre infini de tests $N_{test} \rightarrow \infty$ (Landau et Lifshitz 1970) et devrait obéir au théorème de la limite centrale (Lindeberg 1922). Selon la loi des grands nombres (Landau et Lifshitz, 1970 ; Lindeberg, 1922) le nombre moyen des tests d'inflammation réussis et sa variance sont respectivement $\langle N_{inf} \rangle = pN_{test}$ et $\Delta N_{inf}^2 = pN_{test}(1 - p)$. Par conséquent les fluctuations relatives du nombre de tests réussis devraient décroître inversement avec la racine du nombre de tests comme :

$$\frac{\Delta N_{inf}}{\langle N_{inf} \rangle} = \frac{1}{\sqrt{N_{test}}} \sqrt{\frac{1-p}{p}} \quad (3.55)$$

Par conséquent à la limite $N_{test} \rightarrow \infty$ les fluctuations statistiques du nombre de tests réussis s'annulent. En utilisant (3.55) la déviation standard de la probabilité d'inflammation devient pour un nombre de tests fini mais suffisamment grand:

$$\Delta P_{inf} = \frac{\Delta N_{inf}}{N_{test}} = \frac{N_{inf}}{N_{test}} \sqrt{\frac{1-N_{inf}/N_{test}}{N_{inf}}} = P_{inf} \sqrt{\frac{1}{N_{inf}} - \frac{1}{N_{test}}} \quad (3.56)$$

Dans la figure 3.11a la probabilité d'inflammation est présentée en fonction du flux thermique incident pour des échantillons de pin d'Alep. Deux masses d'échantillons sont utilisées pour comparaison : 10 g et 15 g (ou en utilisant (3.8): $\phi = 0.16$ et 0.20 respectivement). Un intervalle d'intensités de flux thermique suffisamment grand est balayé de manière à inclure la région critique ($0 < P_{inf} < 1$). Pour chaque intensité du flux cinquante tests d'inflammation sont réalisés ($N_{test} = 50$). Les barres d'erreurs estimées à partir de (3.56) sont représentées sur la figure 3.11a sauf pour les flux où il n'y a aucune inflammation ($N_{inf} = 0$). Comme attendu la probabilité est égale à 1 pour des intensités du flux incident suffisamment grandes ($P_{inf}(q''_{inc} \gg q''_c) = 1$), alors qu'elle s'annule pour des intensités plus faibles que celle du flux critique ($P_{inf}(q''_{inc} < q''_c) = 0$). La région critique est définie alors comme l'intervalle ($\delta q''$) des intensités du flux incident où la probabilité P_{inf} vérifie l'inégalité $0 < P_{inf} < 1$. On voit que la région critique est plus large pour les échantillons de plus petit rapport de compacité ($\delta q''(\phi = 0.16) > \delta q''(\phi = 0.20)$), ce qui suggère que la région critique d'inflammation devient abrupte pour des combustibles solides ($\phi \rightarrow 1$).

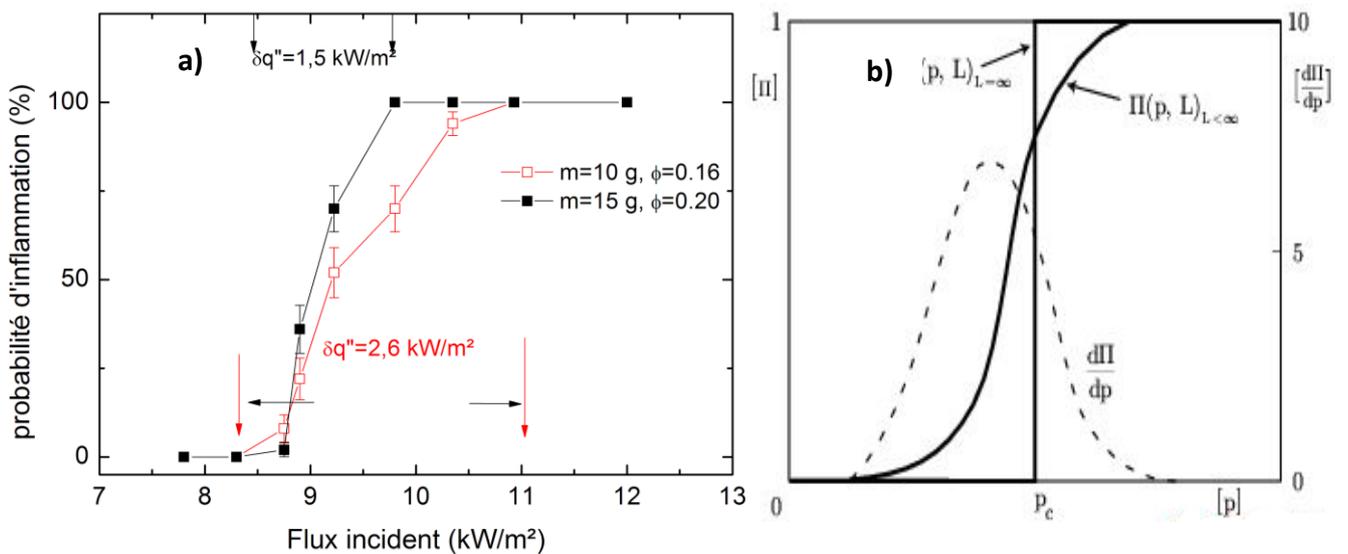


Figure 3.11 a) Probabilité d'inflammation pour Ph (avec erreurs statistiques) vs. flux incident. Les flèches montrent la largeur de la région de transition $\delta q''$. b) Probabilité de percolation $\Pi(p)$ pour différentes tailles L du système (d'après Stauffer et Aharony 1992 p.72).

Ce comportement est similaire à celui de la théorie de la percolation même si les phénomènes sont très différents. La probabilité de percolation devient plus étroite lorsque la taille du système tend vers l'infini, comme illustré sur la figure 3.11b (Stauffer et Aharony, 1992). Le rapport de compacité joue pour la transition d'inflammation le même rôle que la taille du système pour la transition de percolation.

La probabilité d'inflammation minimale pouvant être estimée sur la figure 3.11a est $P_{inf} = 2\%$ (c'est-à-dire un test réussi sur 50). De toute évidence, d'après la figure 3.11a, la probabilité d'inflammation pour le flux critique estimé à partir de Fig.3.10a ($q_c = 4,0 \pm 0,5 \text{ kW} / \text{m}^2$) devrait être bien inférieure à cette limite. On s'attend à ce que cette probabilité limite s'annule pour $N_{test} = \infty$. Les valeurs données par la littérature pour le flux critique pour l'inflammation (Lamorlette et al., 2015 ; Torero, 2010) ont été estimées selon les normes ASTM 1354 (2017) avec seulement quelques tests (au plus 5 tests pour la répétabilité) ce qui correspond à une probabilité d'inflammation autour de 20%. On voit sur la figure 3.11a que ces valeurs sont proches de l'intensité du flux thermique correspondant à $10\% \leq P_{inf} \leq 20\%$. Ainsi, le désaccord entre la valeur du flux critique pour l'inflammation estimée à partir de la figure 3.10a (comportement en puissance) et celle donnée par la littérature est principalement due au comportement probabiliste de l'inflammation, ignoré par les méthodes d'estimation utilisées dans la littérature. Les méthodes déterministes surestiment donc le flux thermique seuil, car il existe des configurations où le combustible peut être encore allumé. Le flux seuil estimé à partir de la figure 3.10a apparaît alors plus précis et devrait être considéré pour des raisons de sécurité incendie.

Si l'estimation du flux thermique critique est de peu d'importance pour les gestionnaires d'incendie pendant et après propagation d'un feu de forêt, elle est en revanche d'une extrême importance avant l'incendie pour les considérations de sécurité suivantes:

- *Le contrôle de la propagation des incendies à travers l'aménagement du territoire:* cela se fait par la plantation de végétaux à faible inflammabilité et/ou à faible taux de dégagement de chaleur. Les combustibles à haute teneur en eau peuvent aussi être de bons ignifuges.

- *Les coupures de combustible à l'interface forêt/habitat:* la largeur de coupure de combustibles est généralement estimée de manière à empêcher l'allumage du côté urbain (Kaiss et al., 2007). Dans ce cas le flux thermique est inférieur au flux seuil d'inflammation. Un flux thermique critique obtenu à partir des méthodes déterministes serait surestimé et

permettrait probablement le déclenchement d'un incendie du côté urbain. Ainsi, même faible, le feu initié peut être amplifié avant l'intervention des pompiers.

Un comportement d'inflammation probabiliste similaire à celui de la figure 3.11a a été observé dans le cas de l'allumage de liquides inflammables par des surfaces chaudes (Colwell et Reza, 2005). Ce comportement probabiliste a été attribué à la fois à la nature statistique des données et aux variations paramétriques aléatoires des conditions d'essai. Cela pourrait aussi être dû au processus hétérogène du mélange air/combustible (diffusion du combustible dans l'air en mouvement). La largeur de la région critique observée pour probabilité d'inflammation est dans ce cas attribuée à la composition microscopique du combustible liquide même s'il est compact ($\phi = 1$).

3.5 Analyse perspective de la transition de phase de propagation

La vitesse de propagation est l'une des grandeurs les plus étudiées par la communauté scientifique des incendies pour la caractérisation des feux de forêt. Elle correspond à l'inverse du temps d'inflammation. Cependant, la transition de phase propagation/non-propagation n'est pas seulement induite par le flux thermique critique délivré par la flamme, mais aussi par son temps de résidence (temps de combustion), ou en d'autres termes par l'énergie de combustion délivrée par la flamme :

$$E_{comb} = \int_0^{t_{comb}} HRR dt = HRR \cdot t_{comb} \quad (3.57)$$

Ici HRR est le taux de dégagement de chaleur défini au chapitre 1. La part d'énergie incidente au lit combustible dépend du facteur de vue F comme:

$$E_{comb}^c = F \cdot HRR \cdot t_{comb} \quad (3.58)$$

Le facteur de vue dépend de la position du combustible par rapport à la flamme. Notons ici que le temps de combustion est fini ($t_{comb} \approx 30$ s pour les aiguilles, si elles sont disposées dans des lits non-compactés d'après Wotton et al., 2012), contrairement au temps d'inflammation qui peut être maintenu jusqu'à l'inflammation dans le cas du cône calorimètre. Il est plus judicieux de raisonner en termes d'énergie plutôt qu'en termes de temps. Le flux critique de propagation est déterminé en comparant l'énergie critique d'inflammation d'après (3.12) à l'énergie de combustion définie par (3.58). La propagation du feu n'est possible que si la chaleur de combustion incidente au lit combustible (3.58) est au moins égale à l'énergie

nécessaire pour l'inflammation du combustible le plus proche de la flamme (3.12), même si le flux incident est supérieur au flux thermique critique pour l'inflammation. Une illustration schématique du comportement des énergies d'inflammation et de combustion est présentée dans la figure 3.12a. Dans cette illustration, les combustibles sont disposés de manière régulière comme montré dans la figure 3.12b, où le combustible en feu dégage un flux total HRR. L'énergie incidente au combustible le plus proche de la flamme définie par (3.58) est proportionnelle au flux incident ($q''_{inc} \approx HRR.F$), alors que l'énergie d'inflammation ne dépend pas de q''_{inc} d'après (3.12). Il est évident dans cette figure que le flux critique de propagation (intersection des deux lignes) est supérieur au flux critique d'inflammation. Zekri et al. (2005) ont distingué cette transition de phase de propagation (qu'ils ont appelé transition dynamique) de celle de percolation induite par l'hétérogénéité spatiale du combustible (Stauffer et Aharony, 1992).

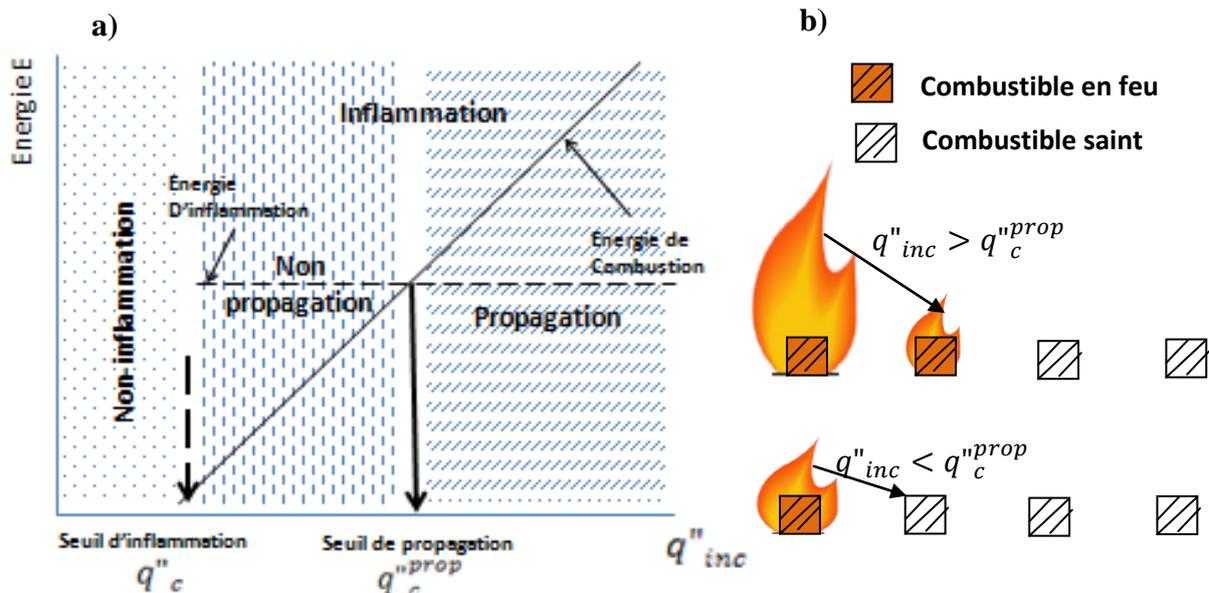


Figure 3.12 a) Représentation schématique des énergies d'inflammation et de combustion vs. flux incident. Les seuils d'inflammation et de propagation sont clairement indiqués. b) Représentation schématique 1D de la propagation du feu pour des combustibles régulièrement disposés.

3.6 Caractérisation de la transition de phase d'inflammation

Nous avons trouvé précédemment que la transition d'inflammation est bien une transition de phase caractérisée statistiquement par un comportement en puissance et un exposant critique. Il est important de caractériser cette transition. Comme décrit dans le chapitre précédent, la transition de phase peut être dynamique ou stationnaire (indépendante du temps). Elle peut aussi être classifiée de premier ordre ou continue.

Concernant le premier point, on note que le temps d'inflammation caractérise cette transition de phase. On peut donc le considérer comme un temps de corrélation, ce qui confère à cette transition un caractère dynamique comme pour la percolation dirigée. Ce temps de corrélation diverge lorsque le flux tend vers le flux critique. D'autres grandeurs peuvent être étudiées comme le débit des gaz (où taux de perte de masse). Ce débit augmente avec le temps lors du chauffage du combustible. Par conséquent il semble que cette transition est bien une transition dynamique. Cependant, dans les transitions de phase dynamiques il existe aussi une longueur de corrélation, qui correspond à l'effet d'échelle. Cet effet qui correspond à la taille de l'échantillon n'a pas été étudié ici. On propose en perspective une étude d'échelle afin d'établir la relation en puissance entre le temps et la longueur de corrélation permettant de déterminer l'exposant dynamique Z .

Concernant la classe de cette transition de phase, il est utile de la comparer à des transitions de premier ordre comme la transition liquide/gaz et celles continues comme la transition paramagnétique/ferromagnétique. Les deux transitions sont caractérisées par une température seuil. Mais dans les transitions de phase de premier ordre il existe en plus une chaleur latente. Dans le cas de la transition liquide/gaz, le liquide reste dans son état lorsqu'il atteint la température seuil. Afin de passer à l'autre phase, il lui faut en plus une chaleur supplémentaire lui permettant de passer à la phase gazeuse. Essayons d'utiliser ce raisonnement pour voir si la transition de phase d'inflammation nécessite ou non une chaleur supplémentaire. Dans le processus d'inflammabilité, la condition d'inflammation correspond à un mélange gaz/air où le gaz atteint une proportion limite comme discuté ci-dessus (limite inférieure d'inflammabilité LII), ainsi qu'une température seuil. Cette limite est atteinte, la température seuil étant donnée par la flamme pilote, le gaz s'enflamme et ne requiert pas d'énergie supplémentaire pour cela. Ceci mène à la conclusion que l'inflammabilité est une transition de phase continue.

Concernant le paramètre d'ordre, la similarité entre le comportement de la probabilité d'inflammation et celle de percolation (voir Figures 3.8a et 3.8b) nous pousse à imaginer que ce paramètre est un analogue à la probabilité d'appartenir à l'amas infini en percolation (Stauffer et Aharony, 1992). Contrairement à la percolation où la condition de transition est l'apparition de l'amas infini, dans le cas de l'inflammation, il y a deux conditions : la température seuil (fournie par la flamme pilote) et la concentration limite du gaz LII dans l'air. En utilisant cette analogie, nous pouvons proposer comme paramètre d'ordre la

probabilité que le gaz émit appartienne au mélange avec une concentration LII et qu'il passe par la flamme pilote.

Conclusions

Le temps d'inflammation de combustibles de forêts méditerranéennes a été mesuré à l'aide d'un cône calorimètre, et estimé analytiquement et numériquement au moyen d'un modèle basé sur la conservation d'énergie. Bien que le modèle ait été largement utilisé dans la description du processus d'inflammation et la prédiction de la propagation des feux de forêt, il ne parvient pas à estimer le temps d'inflammation dans la région critique. La cause principale de ce désaccord vient de la condition du taux de perte de masse critique non-incluse dans le modèle. Lors de l'étude de la dynamique du chauffage, nous avons montré que l'évolution temporelle de la température a un comportement de relaxation de type exponentielle aussi bien pour une perte de chaleur radiative (asymptotiquement) que convective. Dans le cas de pertes radiatives, une déviation de la relaxation normale est observée au début du chauffage, alors que son temps de relaxation est beaucoup plus petit que celui du cas de pertes convectives. Nous avons remarqué aussi que le temps de relaxation dépend du flux incident dans le cas des pertes radiatives alors que pour des pertes convectives, il ne dépend que des propriétés du combustible et du mode de transfert de chaleur. L'énergie critique dans le cas de ce dernier mode de transfert de chaleur correspond au produit du temps de relaxation et du flux critique dans le cas des combustibles secs. Pour les pertes radiatives, cette relaxation est vérifiée seulement asymptotiquement (lorsque la température maximale atteinte par le combustible est suffisamment grande et tend vers celle de la pyrolyse).

Le concept des transitions de phase d'inflammation examiné ci-dessus, avec un comportement en puissance du temps d'inflammation nous a mené à introduire une nouvelle méthode d'estimation du flux critique pour l'inflammation pour les combustibles poreux. Les valeurs seuil du flux obtenues avec cette méthode sont beaucoup plus petites que celles mentionnées dans la littérature (par exemple 4 kW/m² contre 8 kW/m² pour les aiguilles de pin). Cette différence provient du comportement probabiliste de l'inflammabilité dans la région critique qui n'est pas pris en considération par la littérature. Ceci aura des conséquences sur la sécurité incendie dans de nombreuses situations de feux de forêt. Ce comportement probabiliste peut être interprété par les hétérogénéités dans l'arrangement des particules du combustible, dans le processus d'écoulement et de diffusion des gaz et aussi de la composition microscopique du combustible. Enfin, la comparaison avec d'autres transitions

de phase nous a conduit à la conclusion que la transition d'inflammabilité est dynamique et continue (absence de chaleur latente). Finalement les résultats analytiques incluant la teneur en eau ont montré qu'il n'existe pas de teneur en eau critique pour l'inflammation ce qui confirme les résultats de Terrah et al.

Références bibliographiques du chapitre 3

- Adou, J.K., Billaud, Y., Brou, D.A., Clerc, J-P., Consalvi, J.L., Fuentes, A., Kaiss, A., Nmira, F., Porterie, B., Zekri, L., Zekri, N. (2010), Simulating wildfire patterns using a small-world network model, *Ecol.Modelling*, 221, 1463-1471.
- Ahn, H.K., Sauer, T.J., Richard, T.L., Glanville, T.D. (2009), Determination of thermal properties of composting bulking materials, *Bioresource Technology*, 100, 3974–3981. doi:[10.1016/j.biortech.2008.11.056](https://doi.org/10.1016/j.biortech.2008.11.056)
- Alexandrian, D., Rigolot, E. (1992), Sensibilité du pin d'Alep à l'incendie, *Forêt méditerranéenne*, 3, 185-198.
- ASTM (2017), International, Designation E 1354-17, *Standard Test Method for Heat and Visible Smoke Release Rates for Materials and Products Using an Oxygen Consumption Calorimeter*.
- Babrauskas, V. (2001), *Ignition of Wood: A Review of the State of the Art*. London: Interflam Interscience Communications, pp 71–88.
- Babrauskas, V. (2002), Ignition of wood: A Review of the State of the Art, *J.Fire Prot. Eng.* 12 163–189, doi:[10.1177/10423910260620482](https://doi.org/10.1177/10423910260620482)
- Bal, N. et Rein, G. (2011), Numerical investigation of the ignition delay time of a translucent solid at high radiant heat fluxes, *Combustion and Flame*, 158, 1109-1116, doi:[10.1016/j.combustflame.2010.10.014](https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2010.10.014).
- Beer, F.P., Johnston, E.R.Jr., Cornwell, P.J., Self, B.P. (2018), *Mécanique pour ingénieurs vol.2 : Dynamique*, Montreal, Canada : De Boeck Supérieur, 3^{ème} ed.
- Beyler, C. (2016), *Flammability limits of premixed and diffusion flames*, in: M.J. Hurley (Ed), *SFPE Handbook of fire protection engineering*, chap.17, Heidelberg :Springer, pp. 529-553.
- Blundell, S.J. et Blundell, K.M. (2006), *Concepts in Thermal Physics*, Oxford: Oxford University Press.
- Bouchaud, J.P. (2008), *Anomalous relaxation in complex systems: from stretched to compressed exponentials anomalous transport*, in: R. Klages, G. Radon, I. M. Sokolov (Eds.), *Anomalous Transport: Foundations and Applications*, Weinheim: Wiley.

- Boulet, P., Parent, G., Acem, Z., Collin, A., Försth, M., Bal, N., Rein, G., Torero, J. (2014), Radiation emission from a heating coil or a halogen lamp on a Semi-transparent sample, *Int. J. of Thermal Sci.* 77, 223-232, doi:10.1016/j.ijthermalsci.2013.11.006
- Cavagnol, S. (2013), Approche multi-échelle de l'emballement des réactions exothermiques de torréfaction de la biomasse ligno-cellulosique de la cinétique chimique au lit de particules. thèse de doctorat, École Centrale Des Arts Et Manufactures.
- Chandler, C., Cheney, P., Thomas, P., Trabaud, L., Williams, D. (1983) *Fire in forestry*. Vol. I. *Forest fire behaviour and effects*. New York : Wiley
- Ciccio, P., Centritto, M., Loreto, F. (2014), Biogenic organic volatile compound emissions from vegetation fires, *Plant Cell Environ.* 37, 1810–1825, <https://doi.org/10.1111/pce.12336>
- Colwell, J.D. et Reza, A. (2005), Hot Surface Ignition of Automotive and Aviation Fluids, *J. Fire Technology*, 41, 105–123
- Courty, L., Chetehouna, K., Lemée, L., Fernandez-Pello, C., Garo, J-P. (2014), Biogenic volatile organic compounds emissions at high temperatures of common plants from mediterranean regions affected by forest fires, *Journal of Fire sciences* 32, 459-479.
- Delichatsios, M. et Chen, Y. (1993), Asymptotic, Approximate, and Numerical Solutions for the Heatup and Pyrolysis of Materials Including Reradiation Losses, *Combustion and Flame*, 92, 292-307.
- DiTenberger, M. (1996), Ignitability Analysis using the Cone Calorimeter and LIFT Apparatus, *Proceedings of the International Conference on Fire Safety*, Columbus, OH, 22, 189-197.
- DiDomizio, M.J., Mulherin, P., Weckman E.J. (2016), Ignition of wood under time-varying radiant exposures, *Fire Saf.J.* , 82, 131–144
- Drysdale, D. (2011), *An Introduction to Fire Dynamics*, Chichester: John Wiley & Sons, 3^{ème} ed.
- Gabbert, B. (2014), Eucalyptus and fire, *Wildfire today*, March 3, <https://wildfiretoday.com/2014/03/03/eucalyptus-and-fire/>

- Hadden, R.M., Scott, S., Fernandez-Pello, C. (2011), Ignition of combustible fuel beds by hot particles: an experimental and theoretical study, *J. Fire Technology*, 47, 341–355, <https://doi.org/10.1007/s10694-010-0181-x>.
- Hamamousse, N. , Mosbah, O., Kaiss, A., Boutchiche, H., Chaib,F., Hammane, Y., Terrah, S.M., Sabi, F.Z., Clerc, J-P., Chikhaoui, A., Rahli, O., Ghamnia, M., Giroud, F., Zekri, N. (2021), Effect of drying on the ignitability and combustibility of *Pinus halepensis* needles, *Fire Saf.J.* (soumis)
- Hamamousse N. et Boutchiche H. (2018), Etude des surfaces de végétations par microscopie électronique à balayage, LEPM, communication privé.
- Häusler, M., Nunes, J.P., Soares, P., Sánchez, J.M., Silva, J.M.N., Warneke, T., Keizer, J.J., Pereira, J.M.C. (2018), Assessment of the indirect impact of wildfire (severity) on actual evapotranspiration in Eucalyptus forest based on the surface energy balance estimated from remote-sensing techniques, *International Journal of Remote Sensing*, 39, 6499-6524. [doi:10.1080/01431161.2018.1460508](https://doi.org/10.1080/01431161.2018.1460508)
- Kaiss, A., Zekri, L., Zekri, N., Porterie, B., Clerc, J-P , Picard, C. (2007), Efficacité des coupures de combustible dans la prévention des feux de forêt, *C.R.Physique*, 8 462-468, [doi:10.1016/j.crhy.2007.02.002](https://doi.org/10.1016/j.crhy.2007.02.002).
- Khan, M.M., De Ris, J.L., Ogden S.D. (2008), Effect of Moisture on Ignition Time of Cellulosic Materials, *Fire Safety Science-proceedings of the Ninth International Symposium*, 167- 178.
- Kohlrausch, R. (1854), Theorie des elektrischen rckstandes in der leidener flasche, *Annalen der Physik*, 167 , 179–214. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/32/14/201>
- Koo, E., Pagni, P., Woycheese, P., Stephens, S., Weise, D. and Huff, J. (2005) A Simple Physical Model for Forest Fire Spread Rate, *Fire Safety Science-proceedings of the Eighth International Symposium*, 851-862
- Kremer, F. et Schonhals, A. (2003), *Broadband Dielectric Spectroscopy*, Berlin Heidelberg New York : Springer-Verlag
- Lam, P.S., Sokhansanj, S., Bi ,X., Lim, C.J., Naimi, L.J., Hoque, M., Mani, S., Womac, A.R., Ye, X.P., Narayan, S. (2008), Bulk Density of Wet and Dry Wheat Straw and Switchgrass particles, *Applied Engineering in Agriculture*, 24, 351-358, [doi: 10.13031/2013.24490](https://doi.org/10.13031/2013.24490)
- Lamorlette, A., El Houssami, M., Thomas, J.C., Simeoni, A., Morvan, D. (2015), dimensional analysis of forest fuel layer ignition model: Application to the ignition of

pine needle litters. *Journal of Fire Sciences*, 33, 320-335, [doi:10.1177/0734904115591177](https://doi.org/10.1177/0734904115591177)

- Landau, L.D. et Lifshitz, E. M. (1970), *Statistical Physics*, Toronto: Pergamon Press, p.343.
- Lindeberg, J.W. (1922) Eine neue Herleitung des Exponentialgesetzes in der Wahrscheinlichkeitsrechnung, *Mathematische Zeitschrift*, 15, 211-225. <http://www.digizeitschriften.de/dms/img/?PID=GDZPPN002367076>
- Lyon, R. E. et Quintiere J.G. (2007), Criteria for piloted ignition of combustible solids, *Comb. Flame* 151, 551-559, [doi:10.1016/j.combustflame.2007.07.020](https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2007.07.020)
- Metzler, R., Eli Barkai, E. et Klafter, J. (1999), Anomalous Diffusion and Relaxation Close to Thermal Equilibrium: A Fractional Fokker-Planck Equation Approach, *Physical review letters*, 82, 3563-3567
- Mikkola, E. et Wichman, I. (1989), On the Thermal Ignition of Combustible Materials, *Fire and Materials*, 14, 87-96.
- Mindykowski, P., Fuentes P, Consalvi J.L, Porterie, B. (2011), Piloted Ignition of Wildland Fuels, *Fire Saf. J.* ,46 (1-2), 34-40.
- Okonkwo, E.M., Odigire, J.O., Ugwu, J.O., Mu'azu, K., Williams, I.S., Nwobi, B.E., Okoriel, F.K., Oriah, V.N. (2006) Design of pilot plant for the production of essential oil from Eucalyptus leaves, *Journal of Scientific & Industrial Research*, 65, 912-915. <http://hdl.handle.net/123456789/4957>.
- Pokrovskii, V.L., (1999), Two-dimensional magnetic phase transitions, *J.Magnet.Magnet. Mat*, 200, 515-531.
- Porterie, B. Kaiss, A., Clerc, J.P., Zekri, L., Zekri, N. (2008), Universal scaling in wildfire fractal propagation, *Appl. Phy. letters* ,93, 204101
- Pyne ,S.J., Andrews, P.L., Laven, R.D. (1996). *Introduction to Wildland Fire*. New York.: J.Wiley & Sons
- Quintiere J.G. (2006). *Fundamentals of fire phenomena*, West Sussex: J.Wiley & Sons.
- Quintiere, J.G. et Harkleroad, M. (1984). New Concepts for Measuring Flame Spread Properties, *National Bureau of Standards*, Gaithersburg, MD NBSIR 84-2943.

- Raposo, J.R., Viegas, D.X., Xie, X., Almeida, M., Figueiredo, A.R., Portoand, L., Sharples, J. (2018). Analysis of the physical processes associated with junction fires at laboratory and field scales, *Int. J. Wild. Fire*, 27 52–68, doi:10.1071/WF16173
- Rein, G. (2016). *Smoldering combustion*, in: M.J.Hurley (Ed), *SFPE Handbook of fire protection engineering*, chap.19. Heidelberg :Springer pp. 581-603.
- Rothermel, R.C. (1972). A mathematical model for predicting fire spread in wildland fuels. *USDA For. Serv. Res. Pap.* INT-115. 40.
- Sahraoui, S; et Zekri, N. (2019), On fractional modeling of viscoelastic foams, *Mechanics Research Communications*, 96, 62–66.
- Shi, L. et Chew, M.Y.L. (2012). Experimental study of woods under external heat flux by autoignition: Ignition time and mass loss rate, *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 111, 1399-1407 , doi:10.1007/s10973-012-2489-x
- Stanislavski, A. et Weron, K. (2019) ‘*Fractional calculus tools applied to study the nonexponential relaxation in dielectrics*’, in: V.E. Tarasov (Ed.) *Handbook of Fractional Calculus with Applications in Physics*. Berlin :De Gruyter.
- Stanley, H.E. (1971). *Introduction to phase transitions and critical phenomena*. Oxford: Clarendon Press
- Stauffer, D. et Aharony, A. (1992), *Introduction to Percolation Theory*. London :Taylor and Francis.
- Terrah, S.M., Sabi, F.Z., Mosbah, O., Dilem, A., Hamamousse, N., Sahila, A., Harrouz, O., Boutchiche, H., Chaib, F., Zekri, N., Kaiss, A., Clerc, J.P., Giroud, F., Viegas, D.X. (2020). Nonexistence of critical fuel moisture content for flammability, *Fire Saf. J.* 111, 102928, doi :10.1016/j.firesaf.2019.102928.
- Tihay-Felicelli, V., Santoni, P.A., Barboni, T., Leonelli, L. (2016). Autoignition of Dead Shrub Twigs: Influence of Diameter on Ignition, *Fire Technol.* 52 897–929, doi:10.1007/s10694-015-0514-x.
- Toledo, R.T. (2007), *Fundamentals of food process engineering*. 3^{ième} ed. Springer Science Business Media, LLC, p.579.
- Torero, J. (2016). *Flaming ignition of solid fuels* In: Hurley, M.J. (Ed) *SFPE Handbook of fire protection engineering*. Heidelberg: Springer. pp 633-661

- Trabaud, L. (1976), Inflammabilité et combustibilité des principales espèces des garrigues de la région méditerranéenne, *Oecol. Plant.* 11 117–136
- Turns, S.R. (2000), *An introduction to combustion: Concepts and applications*, 2nd ed, Singapour :McGraw-Hill
- Utiskul, Y.P. et Quintiere, J.G. (2008) , *Fire Safety Science–Proceedings of the Ninth International Symposium*, 827-838. doi:10.3801/IAFSS.FSS.9-827
- Van Wagtenonk, J.W. (2006). *Fire as a Physical Process*, In: Sugihara et al. (Eds), *Fire in California's Ecosystems*, Chap. 3, California: University of California Press., doi: 10.1525/california/9780520246058.003.0003.
- Vermesi, I., Roenner, N., Pironi, P., Hadden, R.M, Rein,G. (2016), Pyrolysis and ignition of a polymer by transient irradiation, *Comb. Flame* 163, 31-41, doi:[10.1016/j.combustflame.2015.08.006](https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2015.08.006)
- Vermesi, I., DiDomizio, M.J., Richter, F., Weckman, E.J., Rein, G. (2017a), Pyrolysis and spontaneous ignition of wood under transient irradiation: Experiments and a-priori predictions, *Fire Saf. J.*, 91 , 218-225, doi:10.1016/j.firesaf.2017.03.081
- Vermesi, I., Roenner, N., Rein, G. (2017b), Blind predictions of polymer pyrolysis and the dual threshold for Ignition, *Imperial Hazelab Repository*. <https://doi.org/10.5281/zenodo.3228479>.
- Viegas, D.X., Raposo, J., Davim, D., Rossa, C. (2012), Analysis of the physical processes associated with junction fires at laboratory and field scales, *Int. J. Wildland Fire*, 21, 843-856
- Wagner, W. et Kretschma, H.J (2010), *Properties of Water and Steam*, in: VDI Heat Atlas, Berlin Heidelberg :Springer-Verlag, 2nded p.154.
- Williams, G. et Watts, D.C. (1970), Non-symmetrical dielectric relaxation behaviour arising from a simple empirical decay function, *Transactions of the Faraday Society*. 66, 80. <https://doi.org/10.1039/TF9706600080>

- Wotton, B.M., Gould, J.S., MacCaw, W.L., Cheney, N.P., Taylor, S.W. (2012), Flame temperature and residence time of fires in dry eucalypt forest, *Int.J.Wild.Fire.* 21, 270-281. doi:10.1071/WF10127.
- Yeomans J.M. (1992), *Statistical mechanics of phase transitions*. Oxford : Clarendon Press.
- Zabetakis, M.G (1965), Flammability characteristics of combustible gases and vapors, *U.S Bureau of mines Bulletin* 627.
- Zekri, N., Porterie B., Clerc J.P., Loraud J.C. (2005), Propagation in a two-dimensional weighted local small-world network, *Phys. Rev.E* ,71, 046121.

Conclusion générale

et

Perspectives

Dans ce travail de thèse, les concepts de la théorie des transitions de phase sont utilisés pour l'étude des propriétés d'inflammation de différentes végétations méditerranéennes. Les données expérimentales utilisant un cône calorimétrique développé au niveau de notre laboratoire L.E.P.M et inspiré des normes ASTM sont comparées aux résultats analytiques et numériques d'un modèle basé sur la conservation d'énergie et qui comprend les critères d'inflammation d'énergie et de température. Ce modèle a été adopté dans cette étude car il décrit correctement le processus d'inflammation et surtout qu'il a été inclus dans le modèle du *Réseau de petit monde*, modèle de propagation des feux de forêts qui a été validé sur des feux historiques et expérimentaux. Nous avons adapté ce modèle au processus d'inflammation des végétations décrit par le dispositif expérimental (cône calorimètre). Un développement

analytique du modèle a été réalisé concernant les processus de chauffage du combustible et d'évaporation de la contenance en eau pour le cas des pertes radiatives et convectives. En particulier, nous avons trouvé que l'énergie nécessaire au chauffage du combustible ne dépend que du mode de transfert de chaleur et de la différence de température initiale et finale. Ce comportement de l'énergie de chauffage nous mène à conclure que cette énergie est issue de « forces conservatives » de manière similaire à l'énergie potentielle gravitationnelle et Coulombienne. Deux conséquences ont été tirées de ce résultat :

- i) Le flux critique pour l'inflammation est indépendant de la teneur en eau aussi bien pour le processus de pertes radiatives que convectives. Ceci confirme le résultat de Terrah et al. (2020) selon lequel il n'existe pas de teneur en eau critique pour l'inflammation.
- ii) Dans le cas de non-inflammation du combustible, la température maximale atteinte par le combustible dépend uniquement du mode de transfert de chaleur, ce qui nous permet de proposer en perspectives une méthode de détermination des constantes de transfert de chaleur (coefficient de convection et émissivité radiative).

D'autre part, l'étude de la dynamique de chauffage, nous a mené à définir une énergie E_0 caractéristique du combustible. En utilisant les concepts de la théorie de réponse linéaire, nous avons démontré que la susceptibilité thermique du combustible lors du chauffage n'est autre que l'inverse de cette énergie. Or, la communauté scientifique du feu (par exemple Alexandrian et Rigolot) caractérise les combustibles en termes de susceptibilité à l'inflammation à partir de bases empiriques. Il est probablement plus intéressant d'utiliser une définition incluant la susceptibilité thermique ainsi qu'une susceptibilité à l'émission des gaz ce qui caractériserait le combustible sur des bases physico-chimiques. D'autre part, la dynamique de chauffage semble obéir à un processus de relaxation de type exponentielle dans le cas des pertes convectives. Pour les pertes radiatives une relaxation anormale semble apparaître au début du chauffage, mais devient exponentielle asymptotiquement.

Le modèle confirme les prédictions de la théorie de l'inflammation, selon lesquelles l'inverse du temps d'inflammation augmente linéairement avec le flux incident pour de fortes intensités. Cependant il échoue à reproduire le comportement en puissance des données expérimentales dans la région critique à cause de l'absence de la condition d'inflammation de

perte de masse critique, correspondant à la limite inférieure d'inflammabilité des gaz volatiles émis lors de la pyrolyse et mélangés à l'air.

En outre, il a été montré expérimentalement que près de la région critique, l'inflammation devient probabiliste (des tests d'inflammation échouent). Ceci nous a poussé à étudier la probabilité d'inflammation en fonction du flux incident. Le comportement probabiliste obtenu ressemble bien à celui de la probabilité de percolation malgré la grande différence entre ces deux phénomènes. Les hétérogénéités de la composition et de l'arrangement des particules du combustible pourraient être les principales causes d'un tel aspect probabiliste. Nous avons trouvé que la région probabiliste est réduite lorsque le rapport de compacité augmente. Il est intéressant d'étudier en perspectives cette probabilité d'inflammation pour des combustibles solides.

Ce comportement probabiliste nous a permis d'expliquer le désaccord entre le flux critique obtenu ici à partir de la loi en puissance découlant de la théorie des transitions de phase et celui obtenu dans la littérature à partir des méthodes déterministes. Le flux thermique critique pour l'inflammation qui est un paramètre très important dans la prévention incendie est toujours surestimé par les méthodes décrites dans la littérature. Ainsi une nouvelle méthode est proposée dans ce travail pour l'estimation du flux critique basée sur le comportement du temps d'inflammation en loi de puissance caractéristique de la théorie des transitions de phase.

Enfin, nous avons discuté le type stationnaire ou dynamique ainsi que l'ordre de la transition de phase non-inflammation/inflammation. Cette discussion nous a permis de conclure que cette transition de phase est dynamique puisqu'elle inclue un temps de corrélation. C'est aussi une transition continue puisqu'il n'y a pas de chaleur latente.

En perspectives, ce travail pourrait être étendu à d'autres types de combustibles (non-poreux), et l'effet de la porosité devrait être examiné dans le cadre de l'analyse probabiliste. D'autre part, le modèle utilisé ici devrait être amélioré en incorporant des grandeurs physiques qui évoluent avec la température (chaleur spécifique et charge). Il est très important d'inclure explicitement la perte de masse dans le modèle puisqu'elle est à l'origine du comportement en puissance du temps d'inflammation observé expérimentalement. En outre, comme ce modèle fait partie d'un modèle de propagation des feux de forêt (*Petit Monde*), le

développement analytique réalisé ici devrait permettre d'améliorer ce modèle surtout pour réaliser une simulation en temps réel. En effet, le modèle de *Petit Monde* simule la propagation du feu par étapes de temps prédéfinies. Or ces étapes de temps conduisent à une surestimation de l'énergie critique d'inflammation. Les formules analytiques obtenues devraient réduire considérablement le temps de calcul et définir des étapes de temps en fonction de la configuration du front. Finalement, la classification des combustibles pourrait être améliorée en utilisant la nouvelle définition de la susceptibilité basée sur la théorie de la réponse linéaire.

Production Scientifique

I-Publications :

1- **F.Z. Sabi**, S.M. Terrah, O. Mosbah, A. Dilem, N. Hamamousse, A. Sahila, O. Harrouz, H. Boutchiche, F. Chaib, N. Zekri, A. Kaiss, J.-P. Clerc, F. Giroud , D.X. Viegas. **“Ignition/non-ignition phase transition: A new critical heat flux estimation method”**, *Fire Safety Journal* 119 (2021) 103257

2- O. Harrouz, F. Frenzel, O. Mosbah, S M. Terrah, **F. Z. Sabi**, A. Sahila, N. Zekri, F.Kremer, **“Investigation on the physical properties of *Eucalyptus* and *Pinus halepensis* essential oils using Dielectric Spectroscopy and GC-MS Spectrometry”**, *Journal of Applied Spectroscopy*, 88 n°3 (2021) 505.

3- S.M. Terrah, **F.Z. Sabi** , O. Mosbah, A. Dilem, N. Hamamousse, A. Sahila, O. Harrouz, H. Boutchiche, F. Chaib, N. Zekri, A. Kaiss, J.-P. Clerc, F. Giroud , D.X. Viegas, **“Nonexistence of critical fuel moisture content for flammability”**, *Fire Safety Journal* 111 (2020) 102928

4- H.Boutchiche, **F. Z. Sabi**, O. Mosbah, A. Sahila, S.M. Terrah, N. Zekri
“ Study of the Physical Properties of *Pinus Halepensis* of Oran. Application to the Flammability”, *A.J.R.T* 4 n°1 (2020) 8-16

5- **F.Z Sabi**, S.M Terrah SM, O.Mosbah, A.Dilem, N.Hamamousse, A.Sahila, O.Harrouz, N.Zekri; A.Kaiss, J-P. Clerc, O.Rahli, F. Giroud, C.Picard, (2018), **“Ignition/non ignition phase transition”**, In *Advances in Forest Fire Research 2018*, ed D.X Viegas (ADAI/CEIF Coimbra), pp 506-513.

6- S.M Terrah SM, **F.Z Sabi**, O.Mosbah, A.Dilem, N.Hamamousse, A.Sahila, O.Harrouz, N.Zekri; A.Kaiss, J-P. Clerc, O.Rahli, F. Giroud, C.Picard, (2018), **“Is there a critical fuel moisture content for flammability?”**, In *Advances in Forest Fire Research 2018*, ed D.X Viegas (ADAI/CEIF Coimbra), pp 522-528

II-Présentations:

1- O.Mosbah, S.M Terrah , **F.Z Sabi**, A.Dilem, N.Hamamousse, A.Sahila, O.Harrouz, N.Zekri, A.Kaiss, J-P. Clerc, O.Rahli, F. Giroud, C.Picard **“Effet de la charge sur l’inflammabilité des végétaux (matériaux poreux). Application : Pin d’Alep”**. International Conference on Renewable Energy and Energy Conversion. 11-13 Nov 2019, USTO, Algeria

2- N.Hamamousse, N.Zekri, A.Kaiss, A.Sahila, O.Mosbah, H.Boutchiche, F.Chaib, Y.Hammane, S.M Terrah, **F.Z Sabi**, J-P. Clerc, A.Chikhaoui, O.Rahli, M.Ghamnia, F. Giroud **“Fuel drying methods comparison and their effect on ignition and combustion properties of *Pinus halepensis*”**. 6th International Fire Behavior and Fuels Conference. April 29th - May 3th, 2019, Marseille-France.

- 3- F.Z. Sabi, S.M. Terrah , O.Mosbah, A.Dilem, N.Hamamousse, A.Sahila, O.Harrouz, N.Zekri, A.Kaiss, J-P. Clerc, O.Rahli, F. Giroud, C.Picard, “Ignition/Non ignition Phase Transition” . International Conference on Forest Fire ResearchVIII, 12 -15 Nov, 2018 Coimbra, Portugal.**
- 4- S.M. Terrah , F.Z. Sabi, O.Mosbah, A.Dilem, N.Hamamousse, A.Sahila, O.Harrouz, N.Zekri, A.Kaiss, J-P. Clerc, O.Rahli, F. Giroud, C.Picard, “On the existence of critical and characteristic fuel moisture content for flamability”. International Conference on Forest Fire ResearchVIII, 12 -15 Nov, 2018 Coimbra, Portugal.**
- 5- F.Z. Sabi, S.M Terrah, N.Zekri, “Transfert de Chaleur et flux critique d’inflammation”. Workshop LAAR’17 sur la physique du rayonnement et ses applications, 13-14 Nov 2017 Oran, Algeria.**
- 6- F.Z.Sabi, N.Zekri, “ Transition de phase d’inflammation”. Journée de sensibilisation sur la biodiversité, 22 mai 2017, USTO Algérie**
- 7- N.Zekri, F.Z.Sabi, M.Terrah, L.Belhadji, A.Dilem, N.Hamamousse, A.Bendjaballah, A.Kaiss, J-P. Clerc, “Simulation des feux de forêt en Algérie; effet de l'humidité et des COVs”. Journée de sensibilisation sur la biodiversité 22 mai 2017, USTO Algérie**
- 8- F.Z.Sabi, N.Zekri, “Etude de l’effet de la variation du vent sur la propagation d’un front de feu”. Colloque International STOP FEU, 17-19 Dec. 2010 Oran Algeria**



Ignition/non-ignition phase transition: A new critical heat flux estimation method

F.Z. Sabi^a, S.M. Terrah^a, O. Mosbah^a, A. Dilem^a, N. Hamamousse^{a,b}, A. Sahila^a, O. Harrouz^a, H. Boutchiche^a, F. Chaib^a, N. Zekri^{a,*}, A. Kaiss^b, J.-P. Clerc^b, F. Giroud^c, D.X. Viegas^d

^a Université des Sciences et de la Technologie d'Oran, LEPM BP 1505 El Mnaouer Oran, Algeria

^b Aix Marseille Université, CNRS, IUSTI UMR 7343, 13453, Marseille, France

^c CEREN, Domaine de Valabre, 13120, Gardanne, France

^d ADAI, CEIF, University of Coimbra, Portugal

ARTICLE INFO

Keywords:

Critical heat flux for ignition
Phase transitions
Power-law behavior
Ignition probability

ABSTRACT

Flaming ignition properties of dead and live thin wildland porous fuels submitted to different incident heat flux intensities are examined experimentally using a cone calorimeter. Data are compared to analytical and numerical results of a model that uses an energy balance and includes energy and temperature ignition criteria. The model provides the linear trend of ignition time for large heat flux intensities, but fails to reproduce the behavior of data near threshold ignition, because it does not include explicitly volatiles emission at pyrolysis. A new method is proposed for the estimation of the critical heat flux for ignition of porous fuels, based on the ignition time behavior as a power-law that characterizes phase transitions theory. The critical heat flux for ignition thus estimated has been found small compared to literature data. The discrepancy is due to the probabilistic ignition behavior observed in the critical region and ignored by literature that uses deterministic methods for the estimation of the critical heat flux for ignition. The heterogeneities of fuel particles composition and arrangement could be the major causes of such a probabilistic aspect.

1. Introduction

A substance exposed to a heat flux that raises its temperature emits flammable gases that may lead to its ignition. There are flaming or smoldering ignition types that are functions of both gas and solid phase chemistry [1]. While spontaneous ignition is rare and requires high flux intensities to occur [2], piloted ignition is prevalent in wildland fires and requires the aid of ignition sources (e.g. flame, firebrand or spark). Sustained flaming ignition (fire point) is the onset of near-stoichiometric burning with a diffusion flame [3,4]. Ignition time is one of the parameters characterizing the fuels flammability. In thermal ignition theory, ignition time can be expressed analytically for both thin and thick fuels [3]. In the limit of large incident heat flux intensities ignition time behaves inversely with the flux for thin fuels, while for thick fuels it behaves inversely with the square of the flux. As stated by Drysdale [5], the flame is a gas phase phenomenon, where emitted volatiles can be either in the flame state if ignition occurs (finite ignition time) or remain in their gaseous state if ignition does not (infinite ignition time).

Phase transitions are among the most recurrent phenomena in na-

ture. They are understood in thermodynamics as the abrupt or continuous transformation of a system from one phase or state of matter to another. They can be observed in various fields like conductor/insulator or percolation [6], liquid/gas [7] and paramagnetic/ferromagnetic transitions [8,9]. For all these phenomena, any physical quantity A either diverges or vanishes according to a universal power-law formula when the control parameter X tends to its threshold (critical) value X_c [8, 10]:

$$A \sim (X - X_c)^{\pm\gamma} \quad (1)$$

Nomenclature

$c_p^{i-f,w}$	specific heat (J/kg.K)	<i>eff</i>	effective
DSC	Differential Scanning Calorimetry	<i>ign</i>	ignition/ignited tests
e	thickness (m)	<i>inc</i>	incident
E_{ign}	critical ignition energy (kJ/m ²)	<i>lost</i>	lost
<i>Eu</i>	Eucalyptus	<i>max</i>	maximum

(continued on next page)

* Corresponding author.

E-mail address: nouredine.zekri@univ-usto.dz (N. Zekri).

(continued)

h_c	convection coefficient (W/m ² .K)	<i>mix</i>	mixture
h_w	fuel moisture content	<i>pyr</i>	pyrolysis
L_w	water latent heat at 373 K (J/kg)	<i>test</i>	tests
$m_{i=dry,w}$	mass (kg)	<i>w</i>	water
$N_{i=ign,test}$	number of	<i>0</i>	ambient
p	asymptotic probability		<u>Superscripts</u>
Ph	Pinus halepensis	<i>f</i>	fuel
P_{ign}	ignition probability	<i>w</i>	water
$q''_{i=c, eff, inc, lost}$	heat flux (kW/m ²)		<u>Greek</u>
Q''_c	evaporation critical flux (kW/m ²)	Δ	standard deviation
S	base area of sample holder (m ²)	$\delta q''$	width of the critical region (kW/m ²)
$t_{i=chem,ign, mix, pyr}$	time (s)	ϵ_{fb}	fuel bed emissivity
$T_{i=0,max,pyr}$	temperature (K)	γ	critical exponent
TGA	Thermal Gravimetry Analysis	ρ	density (kg/m ³)
Subscripts		σ	Stefan-Boltzmann constant (W/m ² .K ⁴)
<i>c</i>	critical	τ	relaxation time of dry fuel (s)
<i>chem</i>	chemical reaction (combustion)	τ'	relaxation time of moist fuel (s)
<i>dry</i>	dry	φ	packing ratio

Phase transitions characterized by the same critical exponent γ are said to belong to the same class of universality, and are expected to behave similarly even for different phenomena [8,10]. Ignition/non-ignition phase transition is here referred to the different states of the gas phase: flame (ignitable) or gas (non-ignitable). The physical quantities involved in this transition are thus expected to follow the universal power-law behavior in (1) predicted by the theory of phase transitions. If the physical quantity A is ignition time, and the incident flux q''_{inc} is the control parameter X with a threshold value q''_c , the power-law equation (1) becomes:

$$t_{ign} \propto (q''_{inc} - q''_c)^{-\gamma} \quad (2)$$

The power-law formula (2) has been indirectly used for the estimation of the critical heat flux for ignition of thin fuels using cone calorimeter tests [11,12]. The linear trend of the inverse ignition time observed for large heat flux intensities was extrapolated to low flux intensities, which assumes a power-law behavior like in (2) with an exponent $\gamma = 1$. On the other hand, Babrauskas compared a large number of data sets on the piloted ignition of wood specimens (thick fuels) in various orientations and heating conditions [13]. He found a power-law behavior equation (2) with an exponent $\gamma = 1.828$. The power-law behavior in (2) is thus expected to occur at low incident heat flux intensities both for thin and thick fuels. The theory of phase

transitions predicts also an enhancement of disorder in the critical region [6,8,10] that leads to failed tests [14], and suggests a probabilistic process. Hence, the estimation of the critical heat flux for ignition using the deterministic methods (ASTM 1354 standard) [15] is questionable. Disorder effect is also present for large heat flux intensities and induces fluctuations of ignition time (see for example the top Fig. 1 of [16]).

The critical heat flux for ignition is an important property that allows wildland managers and firefighters control the fire spread by managing the wildland fuel properties, or using retardants so that the front heat flux intensities remain close to their threshold values. This flammability condition was also subject of scientific interest for several decades (see Refs. [11,12,17–20]). The threshold heat flux value q''_c depends on the heat transfer, weather conditions and fuel properties (nature, ignition temperature, porosity, compactness and moisture content) [21–23]. According to Rothermel, wildland fires with dead fuels will not spread above some threshold value of fuel moisture content [24] (typically assumed to be between 10% and 40%). Recently, no critical moisture content for ignition was observed [25].

The present work focuses on ignition/non-ignition phase transition of live and dead Mediterranean porous fuels by studying the ignition time variation with the incident heat flux. Experimental data from a cone calorimeter are compared to model results based on energy conservation for thermally thin fuels. Although more sophisticated ignition models can be adopted [26], this model was chosen because it has been used to validate several historical and experimental wildland fire spread [27,28]. Using the power-law formula (2), the threshold value of incident heat flux is estimated from experimental data. The probabilistic aspect of ignition is also experimentally investigated in the critical region.

2. Experimental setup

Vegetation samples (needles or leaves) of 10 g mass are placed in a cylindrical holder of a mesh shape of 10 cm diameter and 5 cm height with sample thicknesses in the range 0.9 – 1.1 cm. The corresponding fuel load is 1.27 kg/m². For the probabilistic study of ignition, samples of *Ph* needles of mass 15 g (with thicknesses lying in the range 1.2 – 1.5 cm) are used for comparison with those of mass 10 g. An example of vegetation sample is presented in Fig. 1a. Particles are assumed to be thermally thin with leaves thickness or needles diameter of less than 1 mm.

The sample is exposed to a constant radiative heat flux provided by the heat source of a cone calorimeter with an electrical resistance of 3000 W nominal power. It is placed at different distances from the heat source, so that it receives radiation heat flux magnitudes ranging from 9 to 25 kW/m² at its center (see Fig. 1b). The incident heat flux at top surface center position of the sample is calibrated using a water-cooled heat flux sensor of type Hukseflux SBG 01 working in the range 0 – 200 kW/m². The homogeneity of the incident heat flux in the sample is

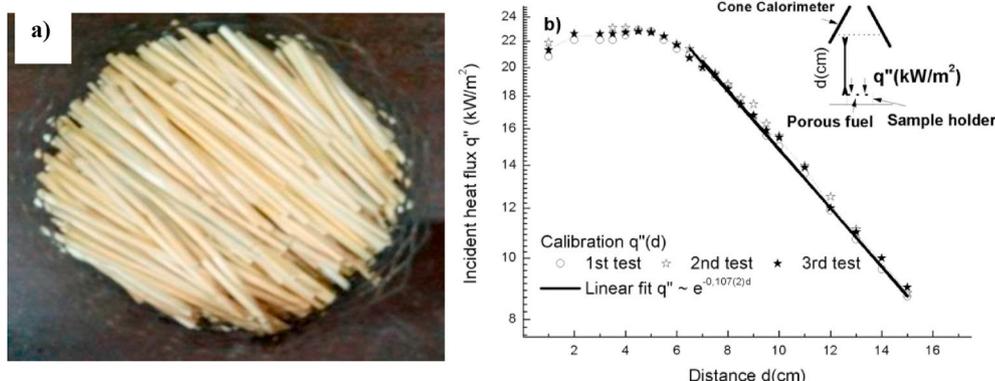


Fig. 1. a) a picture of straw in the holder as an example of fuel sample. b) A schematic representation of the calibration flux and the experimental setup.

not affected by varying the distance to the cone. Using the above mentioned heat flux sensor, it is found that the ratio of the flux intensity at center to the average one is 1.006 at a distance of 2.5 cm from the bottom of the cone, and is 1.04 at a distance of 15 cm. This ratio is smaller than 1.06, which meets the uniformity requirement ISO 5660-1 [29]. The ignition process is controlled by a pilot flame located 1 cm above the sample top surface according to ASTM 1354 standards [15], and the ignition time is recorded. The fuel moisture content is here defined on dry basis:

$$h_w = \frac{m_w}{m_{dry}} \quad (3)$$

It was determined by oven drying both in a microwave and desiccator. Three different species of vegetation were used: *Ph* needles (fresh live fuel) harvested and ignited in January 2018, straw needles (dead fuel dried naturally) ignited in July 2018, and *Eu* leaves (fresh live fuel) harvested and ignited in August 2018. In order to neglect chemical composition changes and to guarantee the live character of *Ph* and *Eu* samples, vegetation particles are harvested and ignited within the same day. The ignition test is accounted successful if the flame persistence time is greater than 4 s. We consider that ignition did not occur if the smoldering combustion is observed with a complete oxidation of the fuel in its solid phase [30]. The time of exposition to the heat flux varies from a test to another, with a maximum time of 75 min.

Due to the heterogeneity of the sample structure, five (5) ignition tests were realized for each value of the incident heat flux for repeatability. In the region of low heat flux intensities (close to the threshold value) some ignition tests failed and more tests were required as to fulfill the five successful ignitions condition. In order to investigate the probabilistic aspect of ignition, 50 tests were performed for each heat flux condition. The tests were conducted in a draft-free room with temperatures and relative humidity respectively in the ranges of 13-19°C, and 50 – 60% for *Ph* needles and 20-30°C and 45 – 55% for straw and *Eu* leaves.

3. Model description

As mentioned above, the present model is based on the energy conservation. It has been used to describe ignition process [3,28], and has been also included in the *Small World Network* model of fire spread that validated historical and experimental fires [27]. This model is applied here to the cone calorimeter experimental setup (Fig. 1b), where a porous sample composed of thin particles (Fig. 1a) is submitted to a constant heat flux q''_{inc} provided by the cone heater. Piloted ignition occurs if the surface temperature of the sample reaches the pyrolysis temperature (T_{pyr}). Here the gradient temperature of the sample particles (considered as thin) is neglected, and in-depth temperature can be represented by surface temperature. Ignition time is usually expressed as the sum of times of different processes assumed to not occur simultaneously [3]:

$$t_{ign} = t_{pyr} + t_{mix} + t_{chem} \quad (4)$$

Usually the time for fuel/oxygen mixture to reach pilot, and that for the mixture to proceed to combustion are sufficiently small to be neglected compared to t_{pyr} . Three ignition criteria are known for constant irradiation flux: the critical temperature, the critical energy and the critical mass loss rate [31]. As pyrolysis temperature is the condition of ignition, only the critical temperature (T_{pyr}) is considered in this model. The effective heat flux q''_{eff} absorbed by the fuel sample is:

$$q''_{eff} = q''_{inc} - q''_{lost} \quad (5)$$

Neglecting the conductive heat transfer in thermally thin approximation, the heat flux lost from the sample is composed of a radiative and a convective part:

$$q''_{lost} = h_c(T - T_0) + \sigma \epsilon_b(T^4 - T_0^4) \quad (6)$$

The energy accumulated by a thin solid sample during its ignition delay is assumed to allow surface temperature reach pyrolysis temperature T_{pyr} in three steps: i) the temperature raise of moist sample up to boiling (373 K), ii) the evaporation of water from moist sample at boiling temperature, iii) the temperature raise of dried sample up to T_{pyr} . Neglecting the heat of water desorption, the energy conservation for a solid fuel in the thermally thin approximation is:

$$\int_0^{t_{ign}} q''_{eff} S dt = \begin{cases} \int_{T_0}^{373 K} (m_{dry}c_p^f + m_w c_p^w) dT \\ \int_{m_w}^0 L_v dM + \\ \int_{373 K}^{T_{pyr}} m_{dry}c_p^f dT \end{cases} \quad (7)$$

As the fuel considered here is porous (see Fig. 1a), the effective surface exposed to the heat flux in the holder is different from that of the solid fuel. For a fuel sample with moisture content h_w its mass is related to its density $\rho(h_w)$ as:

$$m(h_w) = \varphi(h_w) \cdot \rho(h_w) \cdot S \cdot e \quad (8)$$

The packing ratio φ is the ratio of volume of the solid part (particles) to that of the fuel bed for the same mass. This ratio is smaller than one for porous fuels and is unity ($\varphi = 1$) for solid fuels. If the expressions of moisture content h_w in (3) and the dry fuel mass in (8) are included in (7), the energy conservation for porous fuels becomes:

$$\int_0^{t_{ign}} q''_{eff} dt = \begin{cases} \int_{T_0}^{373 K} \varphi(0)\rho(0)e [c_p^f + h_w c_p^w] dT - \\ \int_{h_w}^0 \varphi(0)\rho(0)e L_w dh_w + \\ \int_{373 K}^{T_{pyr}} \varphi(0)\rho(0)e c_p^f dT \end{cases} \quad (9)$$

Ignition time is thus the sum of the times involved in the three above mentioned steps leading to equation (9). To solve equation (9) for $T(t)$ and $h_w(t)$, the following boundary conditions are needed:

$$\begin{aligned} T(t=0) &= T_0; & h_w'(T < 373 K) &= h_w \\ T(t=t_{ign}) &= T_{pyr}; & h_w'(T > 373 K) &= 0 \end{aligned} \quad (10)$$

Among the three ignition criteria mentioned above, the critical temperature appears to be the unique criterion used in the model represented by (9). However, the critical energy (second ignition criterion [31]) defined as the total absorbed energy per unit area required for ignition ($E_{ign} = \int_0^{t_{ign}} q''_{eff} dt$) appears in the left side of (9). If the fuel parameters are constant, the integration of (9) yields:

$$E_{ign} = \varphi(0)\rho(0)e \left[c_p^f (T_{pyr} - T_0) + h_w \left\{ c_p^w (373 - T_0) + L_w \right\} \right] \quad (11)$$

Hence the model includes both energy and temperature ignition criteria. According to the pyrolysis kinetics assumed by Drysdale (see equations 1.1 and 1.2 of [5]), the critical mass loss rate is expected to be related to T_{pyr} that depends on the heat of gasification (see equation (17) of [4]). The third ignition criterion appears thus implicitly used in the model through the pyrolysis temperature. The critical energy in (11) depends on ambient temperature, critical temperature T_{pyr} , and the physical characteristics of water and fuel, but does not depend on heat transfer mechanism. It is here independent of ignition time contrary to the results of transient irradiations [32], where this energy is square correlated to ignition time. Note that in Ref. [32] the lost heat flux is neglected assuming a low thermal inertia. However, thermal inertia

varies with temperature during pyrolysis due to the increase of heat capacity and mass loss.

The fuel will either ignite or not depending on the intensity of incident heat flux. For sufficiently large heat flux intensities, ignition occurs with a small ignition time. As the intensity of the incident flux decreases, ignition time increases. No ignition occurs (infinite ignition time) for sufficiently low incident heat flux intensities, because the surface temperature never reaches pyrolysis temperature ($T_{max} < T_{pyr}$), and consequently, the total absorbed energy never reaches the critical energy E_{ign} from (11). There exists a critical incident flux intensity q''_c above which ignition occurs. It is defined as the incident flux for which the maximum surface temperature reached asymptotically ($t \rightarrow \infty$) coincides with pyrolysis temperature ($T_{max} = T_{pyr}$), or equivalently, the absorbed energy coincides with E_{ign} . The critical heat flux for ignition has been shown to be one of the conditions of sustained piloted ignition (see equation (20) of [4]). This threshold flux is thus the relevant parameter describing the ignition phase transition predicted by (2).

4. Results and discussion

This section aims to compare ignition time results obtained by the current model with experimental data, and to estimate the critical heat flux for ignition q''_c according to the power-law formula (2). Furthermore, the ignition probabilistic process occurring near the critical region is investigated experimentally. Let us first consider a simple case where equation (9) can be solved analytically. This allows examine the trend of the ignition time in terms of $q''_{inc} - q''_c$ near threshold flux.

4.1. Analytical resolution of the model for a simple case

Equation (9) can be solved analytically assuming convective losses heat flux $q''_{lost} \cong h_c(T - T_0)$. This occurs also for radiative losses flux if surface temperature is close to ambient ($(T - T_0)/T_0 \ll 1$). Let us first neglect moisture content in (9) that is reduced to a one step integral equation with a continuous surface temperature rise. The corresponding differential equation is a relaxation-like equation with a relaxation time $\tau = \varphi(0) \rho(0) e c_p^f / h_c$:

$$\frac{q''_{inc}}{h_c} - (T(t) - T_0) = \tau \frac{\partial(T(t) - T_0)}{\partial t} \quad (12)$$

The solution of equation (12) (see also in Ref. [3] equation 7.27) is:

$$T(t) - T_0 = \frac{q''_{inc}}{h_c} (1 - e^{-t/\tau}) \quad (13)$$

In the non-ignition state, the maximum temperature $T_{max} = T_0 + q''_{inc}/h_c \leq T_{pyr}$ is reached asymptotically ($t \rightarrow \infty$), and corresponds to equilibrium $q''_{inc} = q''_{lost}$. As defined in the previous section, the critical heat flux for ignition is the incident flux for which the asymptotic condition $T_{max} = T_{pyr}$ is satisfied. For dry fuels we have:

$$q''_c = q''_c(h_w = 0) = h_c(T_{pyr} - T_0) \quad (14)$$

In the ignition state, ignition time is deduced analytically from (13) with $T(t_{ign}) = T_{pyr}$. Using the equation (14), we have:

$$t_{ign} / \tau = \ln \left(1 - \frac{q''_c}{q''_{inc}} \right)^{-1} \sim \ln(q''_{inc} - q''_c)^{-1} \quad (15)$$

In the limit of sufficiently large intensities of the incident heat flux ($q''_c/q''_{inc} \ll 1$), the logarithmic behavior in (15) is reduced to the inverse linear behavior of ignition time:

$$t_{ign}^{-1} = \frac{1}{\tau} \frac{q''_{inc}}{q''_c} = \frac{1}{\tau} \frac{q''_{inc}}{h_c(T_{pyr} - T_0)} \quad (16)$$

This linear behavior was deduced previously by Quintiere (see equation 7.28 of [3]), and has been observed experimentally for large intensities of heat flux [11,12]. By taking $h_w = 0$ in (11), the critical

energy depends thus on the relaxation time of the heating process and the critical heat flux through the relation $E_{ign} = \tau q''_c$.

Let us now include the contribution of water heating and evaporation on ignition time of moist fuels. In the first step (moist fuel heating), the differential equation involved in (9) remains relaxation-like similarly to equation (12) with a relaxation time $\tau' = \tau(1 + h_w c_p^w / c_p^f)$. The second step is characterized by a critical heat flux for water evaporation $Q''_c = h_c(373 - T_0)$. Solving the differential equations involved in (9) for each step, yields:

$$T(t) - T_0 = \frac{q''_{inc}}{h_c} (1 - e^{-t/\tau'}) \quad \text{for } T_0 \leq T < 373K \quad (17a)$$

$$h_w(t) = \frac{q''_{inc} - Q''_c}{\varphi(0) \rho(0) e L_w} t \quad \text{for } T = 373 K \quad (17b)$$

$$T(t) - T_0 = \frac{q''_{inc}}{h_c} (1 - e^{-t/\tau}) \quad \text{for } 373 K \leq T < T_{pyr} \quad (17c)$$

The total ignition time is the sum of the times involved in the three processes of ignition (see appendix):

$$t_{ign} / \tau = -\ln \left(e^{-h_w \frac{L_w}{c_p^w} \frac{c_p^f}{Q''_c} \left(1 - \frac{Q''_c}{q''_{inc}} \right)^{1+h_w \frac{c_p^w}{c_p^f}} - \frac{q''_c - Q''_c}{q''_{inc}}} \right) \quad (18)$$

The logarithmic expression in (15) is recovered here for $h_w = 0$. The critical heat flux for ignition of moist fuels $q''_c(h_w)$ corresponds to the incident flux for which the argument of the logarithmic term of (18) vanishes. In the limit of large intensities of the incident flux ($q''_{inc} \gg q''_c$), and for not very large values of moisture content so that the argument of exponential in (18) remains small, equation (18) can be approximated at first order as:

$$\frac{t_{ign}}{\tau} \approx \left[\left(1 + h_w \frac{L_w}{c_p^w} \frac{c_p^f}{(T_{pyr} - T_0)} \right) q''_c + h_w \frac{c_p^w}{c_p^f} Q''_c \right] q''_{inc}^{-1} \quad (19)$$

Hence, the inverse ignition time is still linearly varying with the incident heat flux similarly to dry fuels in (16), but with a slope strongly decreasing with moisture content.

However, the model does not include explicitly the contribution of flammable volatiles emission at T_{pyr} . If moisture is neglected ($h_w = 0$) for simplicity, and the emission of volatiles at T_{pyr} is included as in (17b), the critical heat flux for their emission Q''_c would coincide with q''_c defined by (14). Equation (18) becomes:

$$\frac{t_{ign}}{\tau} = \frac{h_v L_v h_c}{c_p^f} (q''_{inc} - q''_c)^{-1} + \left(1 + h_v \frac{c_p^v}{c_p^f} \right) \ln \left(1 - \frac{q''_c}{q''_{inc}} \right)^{-1} \quad (20)$$

Here L_v and c_p^v are respectively the latent heat and heat capacity of emitted volatiles, and h_v is the mass proportion of volatiles in the fuel. Equation (20) provides a more complete description of ignition, since it includes explicitly the third ignition criterion (the critical mass loss rate due to volatiles emission at pyrolysis). It combines both power-law and logarithmic behavior of ignition time with respect to $q''_{inc} - q''_c$. The power-law trend dominates the divergence near threshold flux. In the next subsection, the critical heat flux for ignition is estimated by assuming the power-law behavior of ignition time for experimental data.

4.2. Model comparison with experimental data

Now let us compare model results to experimental data. Porous fuels composed of thermally thin particles (as shown in Fig. 1a) are submitted to a cone calorimeter providing a constant heat flux (see section 2). The lost heat flux is then dominantly radiative (non-linear with temperature), and thus equation (9) cannot be solved analytically. This equation is then solved numerically using the second order Runge-Kutta method

Table 1

The physical parameters of the fuels used in the model and their moisture content.

Material type	Density ρ	c_p^f at 300 K	h_w from (3)
Water	997.05 [35]	4182 [35]	–
Straw	500 [36]	1700 [37]	0.11
<i>Ph</i> needles	789 [38]	1827 [38]	1.27
<i>Eu</i> leaves	1800 [39]	1547 [40]	1.33

for the parameters shown in Table 1, and using $\varepsilon_{fb} = 0.9$, $L_w = 2.257 \times 10^6 J/kg$ and $T_0 = 298 K$. As the trends of temperature are similar for the three fuels considered here, only model results for straw are presented to avoid clutter. In order to compare model results with experimental data for straw, two pyrolysis temperatures are considered (410 K and 500 K) in addition to that used by Koo et al. [28] ($T_{pyr} = 561 K$). The critical temperature for auto-ignition was found to vary from 254 to 530 °C for wood [33], and from 380 to 511 °C for *Cistus Monspeliensis* depending on the particle size [34]. For piloted ignition, the pyrolysis temperature is much smaller.

The temperature evolution, which is a solution of (9), is shown in Fig. 2a for different intensities of the heat flux. Surface temperature follows a relaxation-like trend similarly to equation (13), with a maximum temperature $T_{max} < T_{pyr}$ reached asymptotically in case of non-ignition (i.e. for $q''_{inc} < q''_c$). Ignition occurs when $T_{max} > T_{pyr}$ as shown for $q''_{inc} = 5 kW/m^2$ in Fig. 2a. Using the above definition of the critical heat flux for ignition of dry fuels (i.e. $T_{max} = T_{pyr}$) yields:

$$q''_c = \sigma \varepsilon_{fb} (T_{pyr}^4 - T_0^4) \quad (21)$$

As discussed above, the critical energy depends on the critical heat flux and the relaxation time ($E_{ign} = \tau q''_c$) independently of heat transfer mechanism. Here, temperature evolution exhibits an anomalous relaxation governed by a relaxation equation similar to equation (12), but involving the non-linear term $T^4 - T_0^4$ [41,42]. The relaxation time for such a radiative heat transfer can be deduced using equations (11) and (21).

Experimental data are compared to model results in Fig. 2b, where the inverse of the ignition time is presented as a function of the incident heat flux. For intensities of the flux larger than $16 kW/m^2$, a linear trend

can be fitted for straw data with a correlation coefficient ($R^2 \approx 0.998$), much better than for *Ph* and *Eu* ($R^2 \approx 0.96$). This trend is predicted analytically from (19) and confirmed by model results. Hence, the critical heat flux for ignition is expected to be much smaller than $16 kW/m^2$. Note here the sharp slope for straw data compared to those of *Ph* and *Eu* in Fig. 2b. This can be explained by the small moisture content of straw samples dried naturally ($h_w = 0.11$) compared to that of the other fuels ($h_w > 1$). For not very large moisture content values, the line slope decreases when the moisture content increases, similarly to the trend of (19). High moisture contents lead also to increase the fluctuations of ignition time (as observed for *Ph* and *Eu* data) by either strengthening flammable volatiles emission [23] or by preventing ignition because of the presence of water vapor at pilot. The line slope of straw data at large heat flux intensities ($q''_{inc} > 16 kW/m^2$) is $0.0131 \pm 0.0004 m^2/kJ$ in Fig. 2b. This value of the slope corresponds to model results with a pyrolysis temperature $T_{pyr} = 325 K$ (not shown). No piloted ignition test has been observed experimentally at this surface temperature. In addition, the model at $T_{pyr} = 325 K$ yields ignition time values much smaller than those of experimental data. The closest reasonable results to experimental data for straw are those using a pyrolysis temperature of 410 K even if the slope is still small.

As expected, the curves become non-linear for low heat flux intensities. Furthermore, fluctuations of data on ignition time are observed because of the heterogeneous character of fuel bed (not included in the model). The critical heat flux corresponds to the intersection of the curves with horizontal axis ($1/t_{ign} = 0$) in Fig. 2b. This requires the knowledge of q''_c with infinite accuracy. For model results q''_c is given by (21) for dry fuels, but only numerical solutions with values at four digits of precision are shown in Fig. 2b. This corresponds to $|q''_{inc} - q''_c| < 0.1 W$. Sensor's uncertainties for experimental measurements are of 100 W.

The extrapolation to horizontal axis is difficult for experimental data on ignition time because of their fluctuations and non-linear behavior. The present estimation method of the critical heat flux for ignition for the current fuels is based on the phase transitions concepts described by the universal power-law behavior in (2) near threshold flux [6–9] as discussed above. Experimental data and numerical results shown in Fig. 2b are now presented in Fig. 3a in logarithmic scale with respect to $q''_{inc} - q''_c$, where q''_c is an unknown parameter that is varied until the

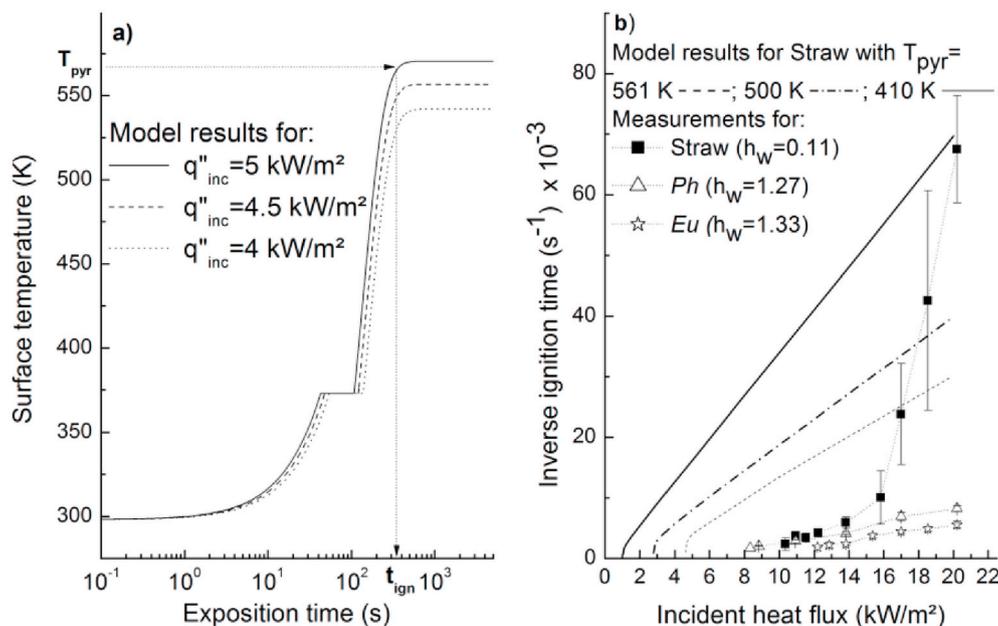


Fig. 2. a) Surface temperature vs. exposition time for various incident flux intensities for straw. b) The inverse ignition time vs. incident heat flux for experimental data and model results.

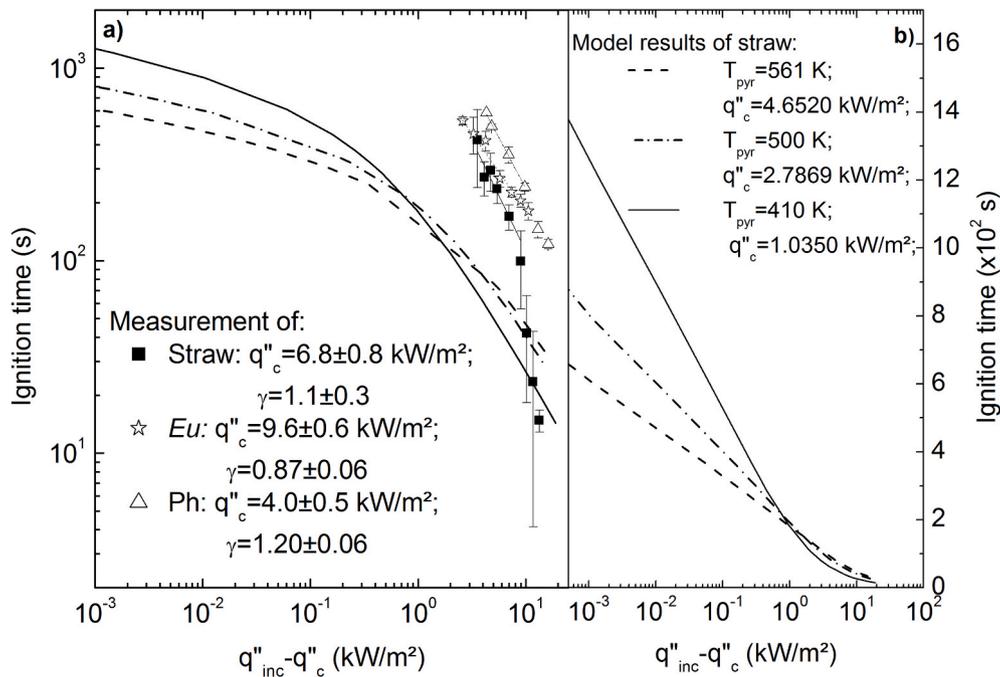


Fig. 3. The ignition time vs. $q''_{inc} - q''_c$ for: a) model results (curves) and experimental data (symbols) in logarithmic scale, b) model results in semi-logarithmic scale.

best power-law fit (appearing as a line) is reached. The best linear fits of data at low heat flux intensities are obtained with correlation coefficients $R^2 > 0.95$ (the fitted parameters appear in Fig. 3a). However, numerical results clearly show a better linear behavior in Fig. 3b, where only the heat flux axis is presented in logarithmic scale, confirming the logarithmic behavior predicted by the model in (18). For numerical results, the values of the critical heat flux determined at four digits precision from Fig. 2b are shown in Fig. 3b. The value at 410 K ($q''_c = 1.0395$ kW/m²) is very small compared to that estimated for straw data ($q''_c = 6.8 \pm 0.8$ kW/m²). Hence, the model seems to fail in reproducing data and behavior at low values of the flux. As expected above, clearly the critical heat flux for ignition for straw data is far from the region of linear behavior that begins at 16 kW/m² in Fig. 2b.

Now let us compare the values of the critical heat flux and power-law exponent estimated from the fit parameters of data in Fig. 3a. The critical heat flux for ignition appears much larger for Eu leaves ($q''_c = 9.6 \pm 0.6$ kW/m²) than for straw ($q''_c = 6.8 \pm 0.8$ kW/m²) and Ph needles ($q''_c = 4.0 \pm 0.5$ kW/m²). This confirms the large fire susceptibility index of Ph needles observed in the Mediterranean wildlands [43]. *Eucalyptus* leaves are found here less easily flammable, but this fuel contributed significantly to extreme wildfires that occurred in 2017 in Portugal (where it is the major fuel) [44]. Indeed, Eu leaves are known to produce a large amount of oils, and Eu crown fires spread rapidly [45, 46]. It is worth noticing that the value of the critical flux for ignition estimated from data of Ph needles appears small compared to that given by literature (around 8 kW/m²) [38,47]. The values of literature are estimated using a deterministic method according to ASTM 1354 standards [15]. In the concepts of phase transitions on which the present critical flux estimation method is based, a maximum disorder is expected near threshold flux. Ignition tests may thus fail leading to a probabilistic behavior. The other quantity estimated from Fig. 3a is the power-law exponent that corresponds to the line slope. The estimated values of the exponent appear the same for needles within statistical errors ($\gamma = 1.20 \pm 0.06$ for Ph, and $\gamma = 1.1 \pm 0.3$ for straw), but they are smaller for Eu leaves ($\gamma = 0.87 \pm 0.06$). Hence, needles and leaves ignition phase transition belongs to different classes of universality as defined above [6–9], suggesting different ignition processes. The rate of gas evaporation at ignition depends strongly on the shape, particle arrangement and

compactness of the fuel [48]. From recent investigations using electron scanning microscopy, leaves were found to have much more pores than needles [49].

Although the model is successful in describing ignition process [3] and in validating the spread of previous wildfires [24], there are discrepancies with experimental data particularly for low heat flux intensities. These disagreements may be caused by:

- The lack of use of the third ignition criterion (the critical mass loss rate) in the model [4,31]. If flammable volatiles emission is included in the model (in the second term of equation (9)), ignition time will behave as a power-law in the critical region similarly to equation (20) as observed for experimental data in Fig. 3a.
- The constant value of fuel heat capacity c_p^f used in the model (see Table 1). This quantity depends on temperature during pyrolysis process.
- The absence of convection induced by the heat source (e.g. the flames) particularly for fire spread modeling. Such an effect enhances the incident flux, and may explain unexpected wildfire behaviors like junction fires [50,51].
- The homogeneity of wildland fuels considered in the model, leading to a deterministic ignition process that corresponds to an average ignition time. Hence, the observed fluctuations of ignition time and the failed ignition tests at low intensities of the flux (probabilistic behavior) are not reproduced by the model.

In order to reproduce the ignition time data it is necessary to include the behavior of the above mentioned parameters in the model. However, it is difficult to know for example the temperature dependence of heat capacity and the rate of volatiles emission in the conditions of experimental setup. Concerning heat capacity, its temperature dependence can be measured in laboratory by means of DSC/TGA. A linear temperature dependence of heat capacity was proposed to simulate the ignition process [4]. However, the sharp temperature rise in the conditions of the cone calorimeter may strongly influence its behavior, and non-linear trends might appear for higher temperature rises [52]. Regarding the rate of volatiles emission, its temperature dependence is known only qualitatively especially at high temperatures, where a maximum

emission rate was observed around 175 °C [53]. Before ignition, the mass loss rate is expected to behave with temperature according to an Arrhenius law [5] that could be influenced by the distribution of pores in fuel particles [49]. Finally concerning the last discrepancy point, accounting for the fuel heterogeneity in the model requires the knowledge of fuel distribution in the sample (distribution of packing ratio), and even that of microscopic components in fuel particles. Since the fuel heterogeneity is not included in the model, the probabilistic analysis of ignition is investigated only experimentally in the next subsection for *Ph* fuels.

4.3. Probabilistic effects of the ignition phase transition

As discussed above (see discrepancy d), not all ignition tests may succeed near threshold heat flux. Therefore, additional tests were required to fulfill the five successful ones in Fig. 3a. Similar situations where ignition may succeed or not have been also observed for fuel bed ignition by hot particles that simulate spotting processes near diameter/temperature critical line [54]. The probabilistic ignition behavior appearing in the critical region is most probably caused by the complexity of wildland fuels (e.g. moisture content and random arrangement and compactness of vegetation particles in the sample [24, 48]). According to Rothermel [24], there is an optimal packing ratio allowing maximum fire intensity and reaction velocity. It separates oxygen-limited combustion for sufficiently large ratios and fuel-limited combustion for sufficiently small ratios [55]. The packing ratio ϕ defined by (8) is in fact an average quantity that can be deduced from a distribution of local compactness (throughout the sample). This induces the stochastic behavior of ignition process for porous fuels. The rate of gas emission was found to increase as the incident heat flux increases for solid fuels [56], and is expected to increase also for porous fuels. According to the work of Vermisi et al. [57], the dual threshold condition (critical mass loss rate and critical temperature) must be fulfilled for ignition. For sufficiently large incident heat flux intensities, the distribution of compactness or porosity (for a given packing ratio) leads to fluctuations of ignition time, but both ignition criteria (the critical mass loss rate for sustained ignition [4] and the critical temperature) are always reached. Ignition time is thus the minimum time to reach the dual threshold condition. In contrast, in the critical region both the mass loss rate and temperature fluctuate around their critical values. In this case configurations where at least one of the two threshold conditions is not fulfilled appear, leading to failing tests.

Let us now examine the probabilistic behavior of ignition tests. Ignition probability is defined for each incident heat flux as the ratio of the number of successfully ignited tests to the total number of tests ($P_{ign} = N_{ign}/N_{test}$). This probability is equal to unity for sufficiently large intensities of the flux ($P_{ign}(q''_{inc} \gg q''_c) = 1$), and vanishes for intensities smaller than the threshold flux ($P_{ign}(q''_{inc} < q''_c) = 0$). The critical region for ignition is thus defined as the interval of incident heat flux intensities $\delta q''$ where ignition probability P_{ign} lies in the range $0 < P_{ign} < 1$. The accuracy of the estimated ignition probability depends on the number of tests (N_{test}). For a small number of tests (few tests), the ignition probability distribution is a binomial law (either succeeded or failed ignition). It is expected to become Gaussian [58] and obeys the central limit theorem [59] in the limit $N_{test} \rightarrow \infty$. Let p be the limit value of ignition probability for a given intensity of the flux ($P_{ign} = p$ for $N_{test} = \infty$). According to the law of large numbers [58,59], the average number of successfully ignited tests and its variance are respectively $N_{ign} = pN_{test}$, and $\Delta N_{ign}^2 = pN_{test}(1 - p)$. Hence, relative fluctuations of the number of ignited tests asymptotically decrease inversely with the square root of the number of tests as:

$$\frac{\Delta N_{ign}}{N_{ign}} = \frac{1}{\sqrt{N_{test}}} \sqrt{\frac{1-p}{p}} \quad (22)$$

Hence, in the limit $N_{test} \rightarrow \infty$ the statistical fluctuations of the number of ignited tests vanish. Using (22), the standard deviation of ignition probability for large but finite number of tests is:

$$\Delta P_{ign} = \frac{\Delta N_{ign}}{N_{test}} = \frac{N_{ign}}{N_{test}} \sqrt{\frac{1 - N_{ign}/N_{test}}{N_{ign}}} = P_{ign} \sqrt{\frac{1}{N_{ign}} - \frac{1}{N_{test}}} \quad (23)$$

In Fig. 4, ignition probability is presented as a function of the incident heat flux for *Ph* samples with two values of the mass: 10 g and 15 g (or using equation (8): $\phi = 0.16$ and 0.20 respectively). A wide range of heat flux intensities is swept including the critical region ($0 < P_{ign} < 1$) with fifty tests ($N_{test} = 50$) for each intensity of the flux. The error bars estimated from (23) are shown in Fig. 4 except for tests with no ignition ($N_{ign} = 0$). The minimum ignition probability that can be measured here is $P_{ign} = 2\%$ (i.e. one successful test). Obviously, from Fig. 4 ignition probability at the estimated critical heat flux $q''_c = 4.0 \pm 0.5$ kW/m² is expected to be much smaller than this limit probability. The ignition probability at ($q''_c = 4.0 \pm 0.5$ kW/m²) would correspond to the limit probability for $N_{test} = \infty$. The values of the critical heat flux for ignition presented in literature [38,47] were estimated according to ASTM 1354 standards [15] with only few tests (at most 5 tests for repeatability). These values are consistent with the value of the heat flux corresponding to $P_{ign} \cong 20\%$ in Fig. 4. Hence, the difference between the value of the critical heat flux for ignition estimated from Fig. 3a and that given by literature is mainly due to the probabilistic behavior of ignition, ignored by the methods of literature. Deterministic methods thus over-estimate threshold heat flux, since there are still configurations where the fuel can be ignited. The threshold flux estimated from Fig. 3a appears then much more accurate for fire safety purposes.

If the estimation of the critical heat flux is of least importance for fire managers in case of large wildland fire spread, it is on the other hand of extreme importance before fire event in the following cases:

- *The control of fire spread through the wildland properties management:* this is done by planting fields of vegetation with low flammability and/or low heat release rate. Fuels of high moisture content can be good retardant of fire.
- *Fuel breaks at the wildland/urban interface:* the fuel break width is usually estimated so that fuels cannot be ignited on the urban side [60], because the heat flux is smaller than threshold flux for ignition. A critical heat flux obtained from deterministic methods would be over-estimated, and would allow probably fire initiation at the urban side. Thus, even weak, the initiated fire may be strengthened before fire fighters' intervention.

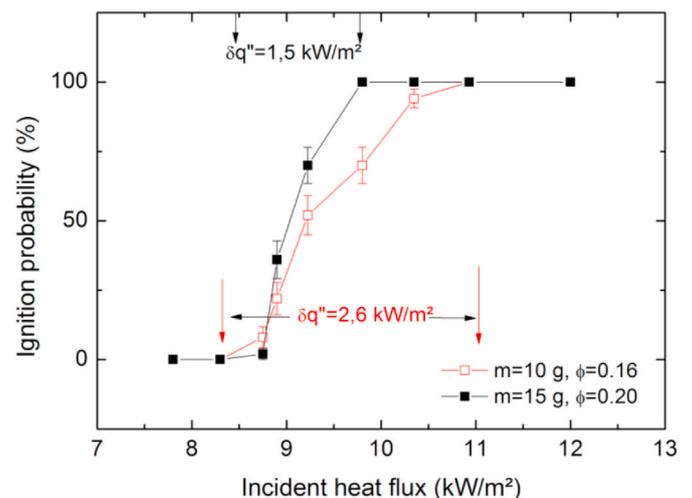


Fig. 4. Ignition probability for *Ph* needles (with errors) vs. incident heat flux. The arrows show the width of the transition region $\delta q''$.

A similar probabilistic ignition behavior as in Fig. 4 has been observed in the case of ignition of flammable liquids by hot surfaces [61]. It has been attributed to both the statistical nature of data and parametric variations in test conditions. It could be due to the heterogeneous air/fuel mixing process (fuel diffusion in flowing air). The width of the critical region of ignition probability for drop liquids could depend on the microscopic composition of the liquid fuel. In Fig. 4, the width ($\delta q''$) seems to decrease as the packing ratio increases. It would be interesting to investigate such a probabilistic aspect for solid fuels like PMMA, although cheaper solid fuels might be used for this end.

The rate of spread is one of the most used quantities by fire science community for wildland fires characterization. It corresponds to the inverse of ignition time, but the spread/non-spread transition is not only induced by the critical heat flux delivered by the flame but also by its residence time (combustion time). Fire spread is not possible if the residence time of the flame is smaller than the time required by the nearest fuel bed for its ignition, even if the heat release rate of burning fuel is larger than the critical heat flux for ignition. The flame residence time of burning fuels is finite (e.g. around 30 s for needles if arranged in non-compacted beds [62]) whereas the heat flux supplied by the cone calorimeter can be maintained until ignition. Zekri et al. [63] have distinguished this spreading transition (called dynamic transition) from that induced by the spatial heterogeneity of the fuel [6].

5. Conclusions

Ignition time of Mediterranean wildland fuels was measured using a cone calorimeter, and estimated analytically and numerically by means of a model based on energy balance. Although the model was widely used to describe ignition process and to predict wildland fire spread, it fails in estimating ignition time in the critical region. The main cause of this disagreement comes from the critical mass loss rate that misses from the ignition criteria used by the model. The critical heat flux for ignition was estimated for experimental data using a new method based on the power-law behavior of ignition time characterizing phase transitions.

Appendix

Let us demonstrate equation (18) using the above energy conservation equation (9), which can be rewritten as:

$$\left\{ \begin{array}{l} \int_0^{t_1} [q''_{inc} - h_c(T - T_0)] dt + \\ \int_{t_1+t_2}^{t_1+t_2} [q''_{inc} - h_c(T - T_0)] dt + \\ \int_{t_1+t_2}^{t_{ign}} [q''_{inc} - h_c(T - T_0)] dt \end{array} \right. = \left\{ \begin{array}{l} \int_{T_0}^{373K} \varphi(0)\rho(0)e [c_p^f + h_w c_p^w] dT - \\ \int_{h_w}^0 \varphi(0)\rho(0)e L_w dh_w^* + \\ \int_{373 K}^{T_{pyr}} \varphi(0)\rho(0)e c_p^f dT \end{array} \right. \quad (A.1)$$

Ignition time is the sum of the 3 steps durations of (A.1): the heating up to boiling temperature ($T_0 \leq T < 373$ K) for a time span t_1 , water evaporation for time span t_2 , and dry fuel heating up to pyrolysis for time span $t_{ign}-t_1-t_2$. From (A.1), the differential equation of the first step is:

$$q''_{inc} - h_c(T - T_0) = \tau' h_c \frac{d(T - T_0)}{dt} \quad (A.2)$$

where the moist fuel relaxation time is $\tau' = \tau \left(1 + h_w \frac{c_p^w}{c_p^f} \right)$. The solution of (A.2) is:

$$T - T_0 = \frac{q''_{inc}}{h_c} \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau'}} \right) \quad (A.3)$$

Replacing equation (A.3) in the first term of (A.1), the energy conservation for the first step yields:

The threshold value of the flux was found much smaller than those mentioned in literature (e.g. for *Ph* needles), with fire safety consequences in many wildland fire situations. The discrepancy is explained by the probabilistic ignition behavior appearing in the critical region, which was ignored by the deterministic methods of literature. It is suggested that such a probabilistic behavior is due to the heterogeneities of fuel particles arrangement and even probably to those of the microscopic components flow and diffusion processes. This opens the question of assessing the probabilistic behavior for solid fuels ($\varphi = 1$).

CRedit authorship contribution statement

F.Z. Sabi: Software, Formal analysis, Writing - original draft, Visualization. **S.M. Terrah:** Formal analysis, Validation. **O. Mosbah:** Formal analysis, Validation. **A. Dilem:** Formal analysis, Validation. **N. Hama-mousse:** Formal analysis, Validation. **A. Sahila:** Formal analysis, Validation. **O. Harrouz:** Formal analysis, Validation. **H. Boutchiche:** Formal analysis, Validation, Investigation. **F. Chaib:** Formal analysis, Validation, Investigation. **N. Zekri:** Formal analysis, Validation, Project administration, Funding acquisition, Writing - review & editing, Software, Data curation, Conceptualization, Methodology, Supervision, Writing, . **A. Kaiss:** Writing - review & editing, Formal analysis, Resources. **J.-P. Clerc:** Conceptualization, Data curation. **F. Giroud:** Resources, Formal analysis. **D.X. Viegas:** Writing - review & editing, Formal analysis, Validation.

Declaration of competing interest

There is no conflict of interest for this submission.

Acknowledgement

This work has been supported by the Algerian Direction Générale de la Recherche Scientifique et du Developpement Technologique under the framework of the FNRSdT, laboratory code W1030400.

$$\int_0^{t_1} q''_{inc} e^{-\frac{t}{\tau}} dt = \int_0^{373-T_0} \tau' h_c d(T-T_0) \quad (\text{A.4})$$

This yields after integration:

$$q''_{inc} \left(1 - e^{-\frac{t_1}{\tau}}\right) = Q''_c \quad (\text{A.5})$$

Here $Q''_c = h_c(373 - T_0)$. The first step time t_1 is:

$$t_1 = \tau \ln \left(1 - \frac{Q''_c}{q''_{inc}}\right)^{-1} \quad (\text{A.6})$$

Regarding the second step duration t_2 (water evaporation) $q''_{lost} = h_c(373 - T_0) = Q''_c$ and the energy conservation yields:

$$\int_{t_1}^{t_1+t_2} (q''_{inc} - Q''_c) dt = - \int_{h_w}^0 \varphi(0)\rho(0)eL_w dh'_w = \int_0^{h_w} \tau \frac{L_w h_c}{c_p^f} dh'_w \quad (\text{A.7})$$

Then:

$$t_2 = \tau h_w \frac{L_w h_c / c_p^f}{q''_{inc} - Q''_c} \quad (\text{A.8})$$

The third step corresponds to pyrolysis of dry fuel in the temperature range $373 \text{ K} \leq T < T_{pyr}$. Temperature solution is similar to equation (A.3) with a relaxation time $\tau = \varphi(0)\rho(0)ec_p^f/h_c$ instead of τ' . The energy conservation equation for the third step is then:

$$\int_{t_1+t_2}^{t_1+t_2+t_3} [q''_{inc} - h_c(T-T_0)] dt = \int_{373-T_0}^{T_{pyr}-T_0} \tau h_c d(T-T_0) \quad (\text{A.9})$$

Here temperature exhibits a relaxation process as in (A.3) with a relaxation time τ . This yields after integration:

$$q''_{inc} \tau \left(e^{-\frac{t_1+t_2}{\tau}} - e^{-\frac{t_{ign}}{\tau}} \right) = \tau (q''_c - Q''_c) \quad (\text{A.10})$$

With $q''_c = h_c(T_{pyr} - T_0)$. Rewriting $t_1 + t_2$ from equation (A.6) and equation (A.8) yields:

$$t_1 + t_2 = \tau \left(1 + h_w \frac{c_p^w}{c_p^f}\right) \ln \left(1 - \frac{Q''_c}{q''_{inc}}\right)^{-1} + \tau h_w \frac{L_w h_c / c_p^f}{q''_{inc} - Q''_c} \quad (\text{A.11})$$

Finally we have:

$$e^{-\frac{t_{ign}}{\tau}} = e^{-h_w \frac{L_w h_c / c_p^f}{q''_{inc} - Q''_c}} \left(1 - \frac{Q''_c}{q''_{inc}}\right)^{1+h_w \frac{c_p^w}{c_p^f}} - \frac{(q''_c - Q''_c)}{q''_{inc}} \quad (\text{A.12})$$

The logarithm of (A.12) yields equation (18)

$$t_{ign} / \tau = - \ln \left(e^{-h_w \frac{L_w h_c / c_p^f}{q''_{inc} - Q''_c}} \left(1 - \frac{Q''_c}{q''_{inc}}\right)^{1+h_w \frac{c_p^w}{c_p^f}} - \frac{q''_c - Q''_c}{q''_{inc}} \right) \quad (\text{A.13})$$

References

- [1] H. Zhang, *Fire-Safe Polymers and Polymer Composites*, US Department of Transport, 2004. Report Number: DOT/FAA/AR-04/11.
- [2] A.M. Grishin, V.P. Zima, V.T. Kuznetsov, A.I. Skorik, Ignition of combustible forest materials by a radiant energy flux, *Combust. Explos. Shock Waves* 38 (2002) 24–29, <https://doi.org/10.1023/A:1014097631884>.
- [3] J.G. Quintiere, *Fundamentals of Fire Phenomena*, J.Wiley & Sons West Sussex, 2006.
- [4] R.E. Lyon, J.G. Quintiere, Criteria for piloted ignition of combustible solids, *Combust. Flame* 151 (2007) 551–559, <https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2007.07.020>.
- [5] D. Drysdale, *An Introduction to Fire Dynamics*, third ed., A John Wiley & Sons, Ltd., Publication, 2011.
- [6] D. Stauffer, A. Aharony, *Introduction to Percolation Theory*, Taylor and Francis, London, 1992.
- [7] S.J. Blundell, K.M. Blundell, *Concepts in Thermal Physics*, Oxford University Press, Oxford, 2006.
- [8] H.E. Stanley, *Introduction to Phase Transitions and Critical Phenomena*, Clarendon Press Oxford, 1971.
- [9] V.L. Pokrovskii, Two-dimensional magnetic phase transitions, *J. Magnetism and Magnetic materials* 200 (1999) 515–531, [https://doi.org/10.1016/S0304-8853\(99\)00406-0](https://doi.org/10.1016/S0304-8853(99)00406-0).
- [10] J.M. Yeomans, *Statistical Mechanics of Phase Transitions*, Clarendon Press, Oxford, 1992.
- [11] P. Mindykowski, P. Fuentes, J.L. Consalvi, B. Porterie, Piloted ignition of wildland fuels, *Fire Saf. J.* 46 (2011) 34–40, <https://doi.org/10.1016/j.firesaf.2010.09.003>.
- [12] M.M. Khan, J.L. DeRis, S.D. Ogden, Effect of moisture on ignition time of cellulosic materials, *Fire Saf. Sci. Proc. Ninth Int. Symp.* 9 (2008) 167–178, <https://doi.org/10.3801/IAFSS.FSS.9-167>.
- [13] V. Babrauskas, Ignition of wood: a review of the state of the art, *J.Fire Prot. Eng.* 12 (2002) 163–189, <https://doi.org/10.1177/10423910260620482>.
- [14] 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, <https://doi.org/10.1016/j.firesaf.2017.03.081>.

- [15] ASTM International, Designation E 1354-17, Standard Test Method for Heat and Visible Smoke Release Rates for Materials and Products Using an Oxygen Consumption Calorimeter.
- [16] N. Bal, G. Rein, Numerical investigation of the ignition delay time of a translucent solid at high radiant heat fluxes, *Combust. Flame* 158 (2011) 1109–1116, <https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2010.10.014>.
- [17] J.G. Quintiere, M. Harkleroad, New Concepts for Measuring Flame Spread Properties, National Bureau of Standards, Gaithersburg, MD NBSIR, 1984, 84-2943.
- [18] E. Mikkola, I. Wichman, On the thermal ignition of combustible materials, *Fire Mater.* 14 (1989) 87–96, <https://doi.org/10.1002/fam.810140303>.
- [19] M. Delichatsios, Y. Chen, Asymptotic, approximate, and numerical solutions for the heatup and pyrolysis of materials including reradiation losses, *Combust. Flame* 92 (1993) 292–307, [https://doi.org/10.1016/0010-2180\(93\)90041-Z](https://doi.org/10.1016/0010-2180(93)90041-Z).
- [20] M. Dietenberger, Ignitability analysis using the cone calorimeter and LIFT apparatus, Proceedings of the International Conference on Fire Safety 22 (1996) 189–197. Columbus, OH.
- [21] A.P. Demitrakopoulos, K.K. Papaioannou, Flammability assessment of Mediterranean forest fuels, *Fire Technol.* 37 (2001) 143–152, <https://doi.org/10.1023/A:1011641601076>.
- [22] G.M. Byram, Combustion of forest fuel, in: K.P. Davis (Ed.), *Forest Fire: Control and Use*, McGraw-Hill, New York, 1959, pp. 61–89.
- [23] P. Ciccioli, M. Centritto, F. Loreto, Biogenic organic volatile compound emissions from vegetation fires, *Plant Cell Environ.* 37 (2014) 1810–1825, <https://doi.org/10.1111/pce.12336>.
- [24] R.C. Rothermel, A Mathematical Model for Predicting Fire Spread in Wildland Fuels, USDA, 1972, p. 40. *For.Serv.Res. Pap. INT-115*.
- [25] S.M. Terrah, F.Z. Sabi, O. Moshbah, A. Dilem, N. Hamamousse, A. Sahila, O. Harrouz, H. Boutchiche, F. Chaib, N. Zekri, A. Kaiss, J.P. Clerc, F. Giroud, D. X. Viegas, Nonexistence of critical fuel moisture content for flammability, *Fire Saf. J.* 111 (2020), 102928, <https://doi.org/10.1016/j.firesaf.2019.102928>.
- [26] M.J. DiDomizio, P. Mulherin, E.J. Weckman, Ignition of wood under time-varying radiant exposures, *Fire Saf. J.* 82 (2016) 131–144, <https://doi.org/10.1016/j.firesaf.2016.02.002>.
- [27] J.K. Adou, Y. Billaud, D.A. Brou, J.P. Clerc, J.L. Consalvi, A. Fuentes, A. Kaiss, F. Nmira, B. Porterie, L. Zekri, N. Zekri, Simulating wildfire patterns using a small-world network model, *Ecological Modelling* 221 (2010) 1463–1471, <https://doi.org/10.1016/j.ecolmodel.2010.02.015>.
- [28] P. Koo, P. Pagni, P. Woycheese, S. Stephens, D. Weise, J. Huff, A simple physical model for forest fire spread rate, *Fire Saf. Sci. Proc. Eight Int. Symp.* (2005) 851–862.
- [29] 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 Semi-transparent sample, *Int. J. Therm. Sci.* 77 (2014) 223–232, <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2013.11.006>.
- [30] G. Rein, Smoldering combustion, in: M.J. Hurley (Ed.), *SPFE Handbook of Fire Protection Engineering*, Springer, Heidelberg, 2016, pp. 581–603, chap.19.
- [31] I. Vermesi, N. Roenner, P. Pironi, R.M. Hadden, G. Rein, Pyrolysis and ignition of a polymer by transient irradiation, *Combust. Flame* 163 (2016) 31–41, <https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2015.08.006>.
- [32] P. Reszka, P. Borowiec, T. Steinhaus, J.L. Torero, A methodology for the estimation of ignition delay times in forest fire modelling, *Combust. Flame* 159 (2012) 3652–3657, <https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2012.08.004>.
- [33] V. Babrauskas, Ignition of Wood: A Review of the State of the Art, *Interflam Interscience Communications Ltd., London*, 2001, pp. 71–88.
- [34] 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, <https://doi.org/10.1007/s10694-015-0514-x>.
- [35] W. Wagner, H.J. Kretzschmar, Properties of water and steam, in: *VDI Heat Atlas*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg 2nd ed., 2010, p. 154.
- [36] P.S. Lam, S. Sokhansanj, X. Bi, C.J. Lim, L.J. Naimi, M. Hoque, S. Mani, A. R. Womac, X.P. Ye, S. Narayan, Bulk density of wet and dry wheat straw and switchgrass particles, *Appl. Eng. Agric.* 24 (2008) 351–358, <https://doi.org/10.13031/2013.24490>.
- [37] H.K. Ahn, T.J. Sauer, T.L. Richard, T.D. Glanville, Determination of thermal properties of composting bulking materials, *Bioresour. Technol.* 100 (2009) 3974–3981, <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2008.11.056>.
- [38] A. Lamorlette, M. El Houssami, J.C. Thomas, A. Simeoni, D. Morvan, A dimensional analysis of forest fuel layer ignition model: Application to the ignition of pine needle litters, *J. Fire Sci.* 33 (2015) 320–335, <https://doi.org/10.1177/0734904115591177>.
- [39] E.M. Okonkwo, J.O. Odigire, J.O. Ugwu, K. Mu'azu, I.S. Williams, B.E. Nwobi, F. K. Okoriel, V.N. Oriah, Design of pilot plant for the production of essential oil from Eucalyptus leaves, *J. Sci. Ind. Res.* 65 (2006) 912–915. <http://hdl.handle.net/123456789/4957>.
- [40] S. Cavagnol, Approche multi-échelle de l'emballage des réactions exothermiques de torréfaction de la biomasse ligno-cellulosique de la cinétique chimique au lit de particules. Phd thesis, École Centrale Des Arts Et Manufactures, 2013 (see also the references therein).
- [41] J.P. Bouchaud, Anomalous relaxation in complex systems: from stretched to compressed exponentials anomalous transport, in: R. Klages, G. Radon, I. M. Sokolov (Eds.), *Anomalous Transport: Foundations and Applications*, Wiley Weinheim, 2008.
- [42] A. Stanislavski, K. Weron, Fractional calculus tools applied to study the nonexponential relaxation in dielectrics, in: V.E. Tarasov (Ed.), *Handbook of Fractional Calculus with Applications in Physics*, De Gruyter Berlin, 2019.
- [43] D. Alexandrian, E. Rigolot, Sensibilité du pin d'Alep à l'incendie, *Forêt méditerranéenne* 3 (1992) 185–198. <http://hdl.handle.net/2042/40447>.
- [44] M. Häusler, J.P. Nunes, P. Soares, J.M. Sánchez, J.M.N. Silva, T. Warneke, J. J. Keizer, J.M.C. Pereira, Assessment of the indirect impact of wildfire (severity) on actual evapotranspiration in eucalyptus forest based on the surface energy balance estimated from remote-sensing techniques, *Int. J. Rem. Sens.* 39 (2018) 6499–6524, <https://doi.org/10.1080/01431161.2018.1460508>.
- [45] S.J. Pyne, P.L. Andrews, R.D. Laven, *Introduction to Wildland Fire*, Wiley, New York, 1996.
- [46] B. Gabbert, Eucalyptus and fire, *Wildfire today*, March 3,, <https://wildfiretoday.com/2014/03/03/eucalyptus-and-fire/>, 2014.
- [47] J.L. Torero, A. Simeoni, Heat and mass transfer in fires: scaling laws, ignition of solid fuels and application to forest fires, *Open Therm. J.* 4 (2010) 145–155, <https://doi.org/10.2174/1874396X01004010145>.
- [48] C. Beyler, Flammability limits of premixed and diffusion flames, in: M.J. Hurley (Ed.), *SPFE Handbook of Fire Protection Engineering*, Springer, Heidelberg, 2016, pp. 529–553, chap.17.
- [49] N. Hamamousse, H. Boutchiche, Etude des surfaces de végétation par microscopie électronique à balayage, LEPM, private communication, 2018.
- [50] D.X. Viegas, J. Raposo, D. Davim, C. Rossa, Study of the jump fire produced by the interaction of two oblique fire fronts. Part 1. Analytical model and validation with no-slope laboratory experiments, *Int. J. Wildland Fire* 21 (2012) 843–856, <https://doi.org/10.1071/WF10155>.
- [51] J.R. Raposo, D.X. Viegas, X. Xie, M. Almeida, A.R. Figueiredo, L. Portoand, J. Sharples, Analysis of the physical processes associated with junction fires at laboratory and field scales, *Int. J. Wildland Fire* 27 (2018) 52–68, <https://doi.org/10.1071/WF16173>.
- [52] R.T. Toledo, *Fundamentals of Food Process Engineering*, third ed., Springer Science Business Media, LLC., 2007, p. 579.
- [53] L. Courty, K. Chetehouana, L. Lemée, C. Fernandez-Pello, J.-P. Garo, Biogenic volatile organic compounds emissions at high temperatures of common plants from mediterranean regions affected by forest fires, *J. Fire Sci.* 32 (2014) 459–479, <https://doi.org/10.1177/0734904114536128>.
- [54] R.M. Hadden, S. Scott, C. Fernandez-Pello, Ignition of combustible fuel beds by hot particles: an experimental and theoretical study, *J. Fire Technology* 47 (2011) 341–355, <https://doi.org/10.1007/s10694-010-0181-x>.
- [55] J.W. Van Wagendonk, Fire as a physical process, in: Sugihara, et al. (Eds.), *Fire in California's Ecosystems*, University of California Press, California, 2006, <https://doi.org/10.1525/california/9780520246058.003.0003>. Chapter: 3.
- [56] L. Shi, M.Y.L. Chew, Experimental study of woods under external heat flux by autoignition: Ignition time and mass loss rate, *J. Therm. Anal. Calorim.* 111 (2012) 1399–1407, <https://doi.org/10.1007/s10973-012-2489-x>.
- [57] I. Vermesi, N. Roenner, G. Rein, Blind Predictions of Polymer Pyrolysis and the Dual Threshold for Ignition, *Imperial Hazelab Repository*, 2017, <https://doi.org/10.5281/zenodo.3228479>.
- [58] L.D. Landau, E.M. Lifshitz, *Statistical Physics*, Pergamon Press, Toronto, 1970, p. 343.
- [59] J.W. Lindeberg, Eine neue Heirleitung des Exponentialgesetzes in der Wahrscheinlichkeitsrechnung, *Math. Z.* 15 (1922) 211–225. <http://www.digizeitschriften.de/dms/img/?PID=GDZPPN002367076>.
- [60] A. Kaiss, L. Zekri, N. Zekri, B. Porterie, J.-P. Clerc, C. Picard, Efficacité des coupures de combustible dans la prévention des feux de forêt, *C.R.Physique* 8 (2007) 462–468, <https://doi.org/10.1016/j.crhy.2007.02.002>.
- [61] J.D. Colwell, A. Reza, Hot surface ignition of automotive and aviation fluids, *J. Fire Technology* 41 (2005) 105–123.
- [62] B.M. Wotton, J.S. Gould, W.L. MacCaw, N.P. Cheney, S.W. Taylor, Flame temperature and residence time of fires in dry eucalypt forest, *Int. J. Wildland Fire* 21 (2012) 270–281, <https://doi.org/10.1071/WF10127>.
- [63] N. Zekri, B. Porterie, J.P. Clerc, J.C. Loraud, Propagation in a two-dimensional weighted local small-world network, *Phys. Rev.E* 71 (2005), 046121, <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.71.046121>.