

THÈSE

POUR L'OBTENTION DU GRADE DE

DOCTEUR D'AIX-MARSEILLE UNIVERSITÉ

Spécialité : ÉNERGÉTIQUE

*Ecole Doctorale 353, Sciences pour l'Ingénieur : Mécanique, Physique,
Micro et Nanoélectronique*

Présentée par

Ahmed KACEM

* * * * *

Sous la direction de *Bernard PORTERIE*

Institut Universitaire Des Systèmes Thermiques Industriels

* * * * *

Modélisation numérique de la pyrolyse en atmosphères normalement oxygénée et sous- oxygénée

Soutenue le 30/05/2016 devant le jury :

A. TROUVÉ	<i>Professeur, Université du Maryland</i>	<i>Rapporteur</i>
T. ROGAUME	<i>Professeur, IRIAF/Institut P'/Université de Poitiers</i>	<i>Rapporteur</i>
A. COPPALLE	<i>Professeur, CORIA/INSA de Rouen</i>	<i>Examineur</i>
P. BOULET	<i>Professeur, LEMTA/Université de Nancy</i>	<i>Examineur</i>
B. PORTERIE	<i>Professeur, IUSTI/Aix-Marseille Université</i>	<i>Examineur</i>
S. SUARD	<i>Ingénieur de Recherche, IRSN</i>	<i>Examineur</i>
Y. PIZZO	<i>Ingénieur de Recherche, CNRS</i>	<i>Invité</i>

*“Les savants des temps passés et des nations révolues
n’ont cessé de composer des livres. Ils l’ont fait pour
léguer leur savoir à ceux qui les suivent. Ainsi
demeurera vive la quête de la vérité.”*

Al-Khawarizmi (780 – 850)

Remerciements

Tout d'abord, j'adresse mes remerciements à tous les membres du jury de ma thèse d'avoir accepté de juger mon travail. Je remercie en particulier Alexis Coppalle, Professeur à l'INSA de Rouen, pour avoir présidé le jury, ainsi que Thomas Rogaume, Professeur à l'Université de Poitiers, et Arnaud Trouvé, Professeur à l'Université du Maryland, pour avoir rapporté ce travail.

Je tiens à remercier Bernard Porterie, mon directeur de thèse de m'avoir encadré tout au long de ces années, d'avoir consacré beaucoup de temps et donné beaucoup d'énergie pour m'aider à réaliser ce travail. Il a su me guider et me conseiller avec beaucoup de patience. J'ai pu bénéficier de sa rigueur et sa grande expertise. Je lui suis reconnaissant pour tout ce qu'il a pu m'apprendre.

Je remercie également Sylvain Suard, mon encadrant à l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) de m'avoir fait bénéficier de son expertise scientifique. Merci pour tout ce que tu as pu m'apporter, pour être toujours présent durant ces trois années de thèse avec beaucoup de patience.

Merci à Jean Battiston, chef de service, et Laurence Rigollet, adjointe au chef du service, de m'avoir bien accueilli au sein du service SA2I à l'IRSN. Mes remerciements vont aussi à Jean-Marc Ricaud, chef du laboratoire LIE où j'ai effectué mes travaux de thèse.

Un grand merci à Yannick Pizzo, ingénieur de recherche à l'IUSTI, qui m'a aidé tout au long de cette thèse, notamment sur le plan expérimental. Ton expertise dans le domaine de l'incendie m'a été d'une grande aide, et tu as été toujours présent quand j'avais besoin de ton aide et de tes conseils. Merci pour ta bonne humeur et tes qualités humaines Mr. PMMA !

J'adresse également mes remerciements à Maxime Mense pour son implication et son aide lors des essais expérimentaux à l'IUSTI. Bon courage pour ta thèse, je suis sûr que tu l'auras brillamment !

Je tiens aussi à remercier Fabrice Babik pour son aide dans l'implémentation et le développement dans le code ISIS.

Un grand merci à Germain Boyer, ingénieur de recherche au LIE, pour toute son aide dans le développement dans ISIS et les discussions scientifiques intéressantes qui m'ont souvent permis de surmonter certains problèmes dans ma thèse. Merci pour tout Germain !

Je tiens aussi à remercier Mickaël Coutin, ingénieur de recherche au LEF, et David Alibert pour avoir mené les expérimentations dans le dispositif CADUCEE, nécessaires à cette thèse. Bon courage David pour la suite de ta thèse.

Je remercie également toutes les personnes des différents laboratoires dans lesquels j'ai travaillé (LIE, LEF, IUSTI) ou avec lesquels j'ai pu collaborer (LEMTA). Merci à Céline, Thomas, Jean-Paul, Samuel, Matthieu, François, Philippe, Laura, Marc, William, Sarah et Pascale. Merci également à Kévin, Romain, Patricio, Hugues, Laurent, Pascal et Serge.

Un grand merci à mes amis au LIE : Nicolas, Germain, Khaled, Chady et Dionysis. Votre bonne humeur a pu faciliter ces 3 années de thèse. Merci pour tous les débats passionnants qu'on a eu ensemble. Bon courage à vous tous pour la suite !

Je tiens aussi à remercier mes amis à l'IUSTI : Nathalie, Matthieu, Maxime et Yann. Vous étiez une vraie famille avec laquelle j'ai passé beaucoup de bons moments. Bon courage Nathalie pour la suite ! Bon courage à Matthieu pour la dernière ligne droite et à Maxime qui entame sa deuxième année de thèse prochainement.

Merci à tous mes amis qui m'ont encouragé tout au long de cette thèse, surtout aux moments les plus difficiles. Un grand merci à Jamel, Amine et Taoufik (et leurs familles) qui m'ont soutenu de toutes les manières possibles. Merci à Saied qui a toujours su me conseiller et me guider. Merci également à Faouzi et Raouf pour leur aide. Merci à Daly, Seif, Khaled, Ahmed, Amin, Marouan, Yazid, Yassin, Ilyes, Moez, Samia, Nadia, Hatem, Slim, ... Votre amitié était une source de force dans cette thèse.

Merci à tous les membres de ma famille pour leur soutien indéfectible :

شُكراً لأخي العزيز فادي، أنت الذي نقل لي حب الهندسة والفيزياء ورافقني منذ الصغر في كل محطات حياتي، أنا ممتن لك وفخور بك. شكراً لأختي العزيزة فاتن التي طالما وقفت إلى جانبي. شكراً لك يا ليندة على كل نصائحك

ووقوفك إلى جانبي في فترات حسّاسة من هذا المشوار. شكراً جزيلاً للحبيبتين الصغيرتين لينة ونور على لحظات السعادة التي أدخلتها عليّ.

أبي وأمّي العزيزان.. لا كلمات تفيكما حقّكما عليّ.. أنتما السبب في كلّ شيء والهدف من وراء كلّ شيء، سعادتكما لا ثمن لها. شكراً لكما على تحمّل نكساتي والمحبة الخالصة الصادقة، حفظكما الله ورعاكما. أحبّكما من القلب، هذا العمل لكما.

Avant-propos

Ce travail de thèse a été financé par *l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire* et la Région *Provence-Alpes-Côte-D'azur*.

**Modélisation numérique de la pyrolyse en
atmosphères normalement oxygénée et sous-
oxygénée**

**Numerical modelling of pyrolysis in normal and
reduced oxygen concentration**

A. KACEM

Résumé

Les capacités prédictives des modèles à champ ou CFD (computational fluid dynamics) d'incendie dépendent de la précision avec laquelle le terme source dû à la pyrolyse du combustible est déterminé. Le taux de pyrolyse est un paramètre clé du comportement et du développement ultérieur du feu qui, à son tour, contrôle le transfert de chaleur à la surface du combustible. Dans la présente étude, un modèle de pyrolyse volumique d'un combustible solide semi-transparent (ici, du poly(méthacrylate de méthyle) ou PMMA) prenant en compte le rayonnement au sein du solide et la régression de l'interface gaz/solide a été couplé au code ISIS de l'IRSN incluant la turbulence, la combustion (réaction à une étape) et le rayonnement pour la phase gazeuse. Un algorithme génétique a été associé au modèle de pyrolyse afin de déterminer un jeu unique et optimal de paramètres cinétiques pour la pyrolyse du PMMA à partir de données d'une expérience de pyrolyse pure sous cône calorimètre en atmosphère normalement oxygénée. Des expériences de pyrolyse avec flamme de plaques planes carrées de PMMA de 10, 20 et 40 cm de côté ont été réalisées afin de valider les résultats du modèle couplé. L'analyse des résultats expérimentaux obtenus au centre de l'échantillon montre que i) pour les trois tailles de plaque, la vitesse de régression de la surface devient quasiment constante en fonction du temps et que, ii) bien que les flux radiatif et total augmentent significativement avec la taille de l'échantillon, la contribution radiative au flux de chaleur total reste pratiquement constante (~80%). Les résultats du modèle couplé sont en bon accord avec la littérature et les mesures de la présente étude en termes de flux de chaleur, de température de gaz et de vitesse de régression de la surface au centre de la plaque. Néanmoins, des écarts sont observés entre les taux de pyrolyse totaux mesurés et calculés qui sont dus à une sous-estimation du flux de chaleur incident aux bords de l'échantillon, ce que confirme la comparaison des topographies de surface prédites et mesurées d'échantillons brûlés. Une bonne concordance est obtenue entre les hauteurs de flammes calculées avec le modèle et celles déduites de la corrélation de Heskestad. Enfin, pour simuler de façon prédictive la pyrolyse du PMMA en atmosphère sous-oxygénée, une chimie à deux étapes avec prise en compte du phénomène d'extinction de la flamme, basé sur un diagramme d'inflammabilité, a été utilisée. La validation du modèle couplé a consisté à confronter les résultats des simulations aux mesures réalisées dans le dispositif CADUCEE de l'IRSN sur des plaques de PMMA de 20 cm de côté pour des fractions volumiques d'oxygène de 18,5% et 19,5%. La tendance observée expérimentalement, à savoir une baisse du taux de pyrolyse total et, à un degré moindre, des températures de flamme avec la fraction volumique d'oxygène est bien reproduite par le modèle.

Mots clés : pyrolyse, combustion, PMMA, modèle CFD, atmosphère sous-oxygénée, feu.

Abstract

The predictive capability of computational fluid dynamics (CFD) fire models depends on the accuracy with which the source term due to fuel pyrolysis can be determined. The pyrolysis rate is a key parameter controlling fire behavior, which in turn drives the heat feedback from the flame to the fuel surface. In the present study an in-depth pyrolysis model of a semi-transparent solid fuel (here, clear polymethyl methacrylate or PMMA) with spectrally-resolved radiation and a moving gas/solid interface was coupled with the CFD code ISIS of the IRSN which included turbulence, combustion and radiation for the gas phase. A combined genetic algorithm/pyrolysis model was used with Cone Calorimeter data from a pure pyrolysis experiment to estimate a unique set of kinetic parameters for PMMA pyrolysis. In order to validate the coupled model, ambient air flaming experiments were conducted on square slabs of PMMA with side lengths of 10, 20 and 40 cm. From measurements at the center of the slab, it was found that i) for any sample size, the experimental regression rate becomes almost constant with time, and ii) although the radiative and total heat transfers increase significantly with the sample size, the radiative contribution to the total heat flux remains almost constant (~80%). Coupled model results show a fairly good agreement with the literature and with current measurements of the heat fluxes, gas temperature and regressing surface rate at the center of the slabs. Discrepancies between predicted and measured total pyrolysis rate are observed, which result from the underestimation of the flame heat flux feedback at the edges of the slab, as confirmed by the comparison between predicted and observed topography of burned samples. Predicted flame heights based on a threshold temperature criterion were found to be close to those deduced from the correlation of Heskestad. Finally, in order to predict the pyrolysis of PMMA under reduced ambient oxygen concentration, a two-step chemical reaction and a flammability diagram for flame extinction was used. Model results are compared with data obtained in the experimental facility CADUCEE of the IRSN using PMMA slabs with side length of 20cm for ambient oxygen concentrations of 18.2 and 19.5%. Data show that the total mass loss rate and, to a lesser extent flame temperature, decrease with the oxygen concentration, which is well reproduced by the model.

Keywords: pyrolysis, combustion, PMMA, CFD model, reduced ambient oxygen, fire.

TABLE DES MATIERES

1. Introduction et contexte de l'étude	25
2. Revue bibliographique	31
2.1. Approche expérimentale	32
2.2. Approche théorique	40
2.2.1. <i>Modélisation de la dégradation thermique du PMMA</i>	40
2.2.2. <i>Couplage phases gazeuse et solide</i>	43
2.3. Effet de la concentration en oxygène du milieu ambiant.....	46
3. Modélisation de la pyrolyse	53
3.1. Rayonnement et propriétés radiatives du MST non gris	57
3.2. Modélisations de la pyrolyse en surface et en volume	59
3.2.1. <i>Pyrolyse en surface</i>	59
3.2.2. <i>Pyrolyse en volume</i>	61
3.2.3. <i>Résolution numérique</i>	62
3.3. Expérimentations	63
3.4. Détermination des coefficients cinétiques par algorithme génétique (AG)	64
3.5. Comparaison pyrolyse en volume/ en surface.....	70
3.5.1. <i>Pyrolyse pure (sans flamme)</i>	72
3.5.2. <i>Pyrolyse avec flamme</i>	74
3.5.3. <i>Quantification des écarts modèles/expérience</i>	75
3.6. Comportement gris/non gris.....	76
3.7. Détermination de l'épaisseur de la zone bullée	80
4. Modélisation de la phase gazeuse	83
4.1. Présentation du code ISIS	83
4.2. Equations générales.....	84

4.2.1.	<i>Sous-modèle de turbulence</i>	85
4.2.2.	<i>Sous-modèle de combustion</i>	86
4.2.3.	<i>Sous-modèle de rayonnement</i>	87
4.3.	Résolution numérique	88
5.	Couplage entre les phases gazeuse et solide	91
5.1.	Méthodologie	91
5.2.	Expérimentations	94
5.3.	Validation du modèle couplé.....	96
5.3.1.	<i>Flux de chaleur locaux</i>	98
5.3.2.	<i>Régression locale de la surface</i>	101
5.3.3.	<i>Débit total de pyrolyse (MLR)</i>	103
5.3.4.	<i>Champs de température dans la phase gazeuse</i>	105
6.	Modélisation du feu en atmosphère sous-oxygénée	109
6.1.	Traitement de la phase gazeuse	109
6.1.1.	<i>Cinétique chimique à deux étapes</i>	110
6.1.2.	<i>Limite d'inflammabilité</i>	115
6.2.	Expérimentations dans le dispositif CADUCEE.....	120
6.3.	Validation du modèle.....	124
7.	Conclusion et perspectives	127
8.	Annexes	131
A.	Optimisation de paramètres par un algorithme génétique.....	133
B.	Correction des mesures expérimentales des thermocouples	139
C.	Algorithme de Savitzky-Golay.....	145
9.	Bibliographie	149

LISTE DES FIGURES

Figure 1. Boîte à gants dans une installation nucléaire - Crédit : Noak/Le Bar floréal/IRSN	26
Figure 2. Processus mis en jeu dans la combustion d'un matériau plastique [32]...	42
Figure 3. Evolution de la fraction de suies dans la flamme en fonction de la concentration en O ₂ du milieu ambiant [37]	48
Figure 4. Pyrolyse sans flamme : plaque de PMMA exposée au rayonnement calibré du cône calorimètre	54
Figure 5. Pyrolyse avec flamme : modèle physique montrant les différentes composantes de transfert de masse et de chaleur impliquées à la surface en pyrolyse de la plaque de PMMA translucide	54
Figure 6. Coefficient d'absorption spectral en fonction du nombre d'onde (figure extraite de [17])	59
Figure 7. Dispositif expérimental sous cône calorimètre (reproduit à partir de [17])	63
Figure 8. Principe de fonctionnement d'un algorithme génétique.....	68
Figure 9. Modèle surfacique à 18 kW.m ⁻² : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et distance de régression de l'interface au centre de la plaque et (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de ±0,5 mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles.....	69
Figure 10. Modèle volumique à 18 kW.m ⁻² : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et position de la surface en régression au centre de la plaque et (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de ±0,5 mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles.....	70
Figure 11. Configuration de pyrolyse avec flamme.....	71
Figure 12. Pyrolyse pure à 18 kW.m ⁻² - Comparaison des modèles de pyrolyse volumique et surfacique : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et position de la surface en régression au centre de la plaque et (b) températures TC5 et	

TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5$ mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles 72

Figure 13. Pyrolyse pure à 14 kW.m^{-2} - Comparaison des modèles de pyrolyse volumique et surfacique : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et position de la surface en régression au centre de la plaque et (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5$ mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles 73

Figure 14. Pyrolyse avec flamme - Comparaison des modèles de pyrolyse volumique et surfacique : évolutions temporelles de : (a) la position de la surface en régression au centre de la plaque et des (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5$ mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles..... 74

Figure 15. Pyrolyse pure à 18 kW.m^{-2} - Comparaison du modèle gris utilisant un coefficient d'absorption de 1677 m^{-1} avec le modèle non gris : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et position de la surface en régression au centre de la plaque et (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5$ mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles 76

Figure 16. Pyrolyse pure à 14 kW.m^{-2} - Comparaison du modèle gris utilisant un coefficient d'absorption de 1677 m^{-1} avec le modèle non gris : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et position de la surface en régression au centre de la plaque et (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5$ mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles. 77

Figure 17. Pyrolyse avec flamme - Comparaison du modèle gris utilisant un coefficient d'absorption de 1677 m^{-1} avec le modèle non gris : évolutions temporelles de : (a) la position de la surface en régression au centre de la plaque et des (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5$ mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles 77

Figure 18. Pyrolyse pure à 18 kW.m^{-2} - Comparaison des modèles gris, pour différents coefficients d'absorption, et non gris : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et (b) position de la surface en régression au centre de la plaque. La barre d'erreur sur le diagramme (b) est de $\pm 0,5$ mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles..... 79

Figure 19. Evolution temporelle de l'épaisseur de la plaque et de la zone bullée. Le flux incident est ici de 18 kW.m^{-2}	81
Figure 20. Régression de la surface en pyrolyse de la plaque (représentation schématique approximative, zone bullée en gris). (a) interface à l'état initial, (b) interface en cours de régression	92
Figure 21. Représentation schématique et photographie du dispositif expérimental	95
Figure 22. Une vue d'une plaque de PMMA montrant le fluxmètre total refroidi couvert d'une pastille jaune de ZnSe.....	96
Figure 23. Evolutions avec le temps du flux total et radiatif pour la plaque de $10 \times 10 \times 3 \text{ cm}^3$ (Cas A). La région grisée correspond approximativement au retrait de la source de chaleur externe.....	99
Figure 24. Evolution avec le temps de la position de la surface en régression pour les trois échantillons de dimensions : (a) $10 \times 10 \times 3 \text{ cm}^3$, (b) $20 \times 20 \times 3 \text{ cm}^3$, et (c) $40 \times 40 \times 3 \text{ cm}^3$. Les lignes en pointillés représentent le meilleur fit linéaire des données expérimentales. $t=0$ correspond à l'allumage. La barre d'erreur est de $\pm 0,5 \text{ mm}$ et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles.....	102
Figure 25. Evolution avec le temps du taux de pyrolyse total pour les trois échantillons de dimensions : (a) $10 \times 10 \times 3 \text{ cm}^3$, (b) $20 \times 20 \times 3 \text{ cm}^3$, and (c) $40 \times 40 \times 3 \text{ cm}^3$. $t=0$ correspond à l'allumage.....	103
Figure 26. Flux de chaleur total (FCT) au centre et dans l'angle d'une plaque de PMMA de 20 cm de côté en combustion.....	104
Figure 27. Topographies mesurée (en haut) et calculée (en bas) de l'échantillon brûlé de 20 cm de côté.....	105
Figure 28. Evolutions des températures expérimentales et numériques moyennées sur le temps le long de l'axe de symétrie pour les trois tailles d'échantillon : (a) $10 \times 10 \times 3 \text{ cm}^3$, (b) $20 \times 20 \times 3 \text{ cm}^3$, and (c) $40 \times 40 \times 3 \text{ cm}^3$	106
Figure 29. Champs de température (en K) et les isothermes à 500, 600 et 700 K pour les trois cas simulés à $t = 1000 \text{ s}$. Le rectangle gris représente la plaque de PMMA et le rectangle noir correspond à la partie de la plaque sous le masque métallique	108

Figure 30. Diagramme d’inflammabilité d’une flamme de diffusion en fonction de la teneur en oxygène et de la température du milieu réactionnel.....	116
Figure 31. Comparaison des modèles à une étape sans LII et à deux étapes avec LII : champs de température (haut) et de fraction massique d’oxygène (bas). Ces champs correspondent à la phase de combustion quasi-stationnaire en atmosphère normalement oxygénée d’une plaque de PMMA de 20×20×3 cm ³	118
Figure 32. Comparaison des modèles à une étape sans LII et à deux étapes avec LII : températures de la phase gazeuse moyennées dans le temps le long de l’axe de symétrie	119
Figure 33. Comparaison des modèles à une étape sans LII et à deux étapes avec LII : évolutions temporelles (a) du taux de pyrolyse total et (b) de la position de l’interface	120
Figure 34. Le dispositif « CADUCEE ».....	122
Figure 35. Plaque de PMMA rainurée avec fluxmètre total.....	123
Figure 36. Dispositif utilisé au sein de l’enceinte de « CADUCEE »	123
Figure 37. Evolutions temporelles des débits de pyrolyse prédits et mesurés pour des teneurs en oxygène de l’air d’admission de (a) 21 %, (b) 19,5 % et (c) 18,2 %.....	125
Figure 38. Evolution des températures moyennées sur le temps le long de l’axe de symétrie (gauche) et des températures au niveau des 4 thermocouples (droite) pour deux niveaux d’oxygène ambiant : (a) 21 %, (b) 19,5 % et (c) 18,2 %	126
Figure 39. Thermocouple de type K – Effet Seebeck.....	139
Figure 40. Comparaison des mesures de températures dans la phase gazeuse pour trois diamètres de thermocouple (0,25, 0,5 et 1mm)	143

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1. Catalogue des études expérimentales menées pour évaluer la contribution des composantes de flux surfacique au débit de pyrolyse. La valeur entre parenthèses correspond à la hauteur depuis le front de flamme (en cm) où le flux (en kW.m ⁻²) a été mesuré ou estimé [17]. na : non fourni.	38
Tableau 2. Données d'entrée du modèle de pyrolyse.....	66
Tableau 3. Valeurs des paramètres cinétiques obtenues par AG pour le modèle de pyrolyse surfacique	68
Tableau 4. Valeurs des paramètres cinétiques obtenues par AG pour le modèle de pyrolyse volumique et comparaison avec les valeurs issues de Vovelle et al. [23] et de Wilde [64].....	69
Tableau 5. Erreurs relatives en norme L1 et L2 sur le taux de pyrolyse dans les cas de pyrolyse pure et sur la distance de régression de l'interface dans le cas de pyrolyse avec flamme.....	75
Tableau 6. Erreurs relatives en norme L1 et L2 sur le taux de pyrolyse dans les cas de pyrolyse pure et sur la distance de régression de l'interface dans le cas de pyrolyse avec flamme pour un milieu gris ou non-gris	78
Tableau 7. Pyrolyse pure à 18 kW.m ⁻² - Erreurs relatives en norme L1 et L2 sur le taux de pyrolyse pour un milieu gris, pour différents coefficients d'absorption, et non-gris	80
Tableau 8. Données d'entrée et paramètres numériques utilisés dans les trois simulations (Cas A, B et C)	97
Tableau 9. Flux de chaleur de la flamme dans les trois cas simulés. Les flux de chaleur sont moyennés sur les 400 s premières secondes de la phase de combustion stationnaire. Le flux convectif est la différence entre le flux total et le flux radiatif. La plage d'erreur donnée correspond à la plage la plus large de valeurs obtenues (c.à.d. du minimum au maximum).....	100

Tableau 10. Hauteurs de flamme (en m) déterminées à partir de la corrélation de Heskestad et du modèle couplé en utilisant des critères de température de 500, 600 et 700 K	107
Tableau 11. Températures et flux aux parois de CADUCEE	121
Tableau 12. Flux de chaleur totaux moyens de la flamme vers l'interface gaz/solide en fonction de la teneur en oxygène de l'air d'admission. Les flux de chaleur sont moyennés sur les 400 premières secondes de la période de combustion stationnaire. La plage d'erreur donnée correspond à la plage la plus large de valeurs obtenues (c.à.d. du minimum au maximum).....	124

Nomenclature

A_b	aire de la surface en combustion de l'échantillon [m^2]
A_p	coefficient pré-exponentiel de la loi d'Arrhenius du modèle de pyrolyse surfacique [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$]
A_s	coefficient pré-exponentiel de la loi d'Arrhenius du modèle de pyrolyse volumique [s^{-1}]
c_p	chaleur spécifique à pression constante [$\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$]
D	coefficient de diffusion [$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$]
E_{bv}	émittance spectrale du corps noir [$\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$]
E_p	énergie d'activation de la loi d'Arrhenius du modèle de pyrolyse surfacique [$\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}$]
E_s	énergie d'activation de la loi d'Arrhenius du modèle de pyrolyse volumique [$\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}$]
G	rayonnement incident [$\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$]
g	champ gravitationnel [$\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$]
H_f	hauteur de flamme [m]
H_g	chaleur de gazéification [$\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}$]
h	enthalpie [$\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}$], coefficient d'échange convectif [$\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$]
I, \mathbf{I}	intensité radiative [$\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$], tenseur unité
k	énergie cinétique turbulente (TKE) [$\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}$]
L	épaisseur initiale de l'échantillon [m]
\dot{m}_s	débit total de pyrolyse [$\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}$]
\dot{m}_s''	flux massique local des produits de pyrolyse [$\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$]
\dot{m}_s'''	taux de génération des produits de pyrolyse par unité de volume du combustible [$\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-3}$]
MLR	débit de pyrolyse total [$\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$]
n	indice de réfraction
Pr	nombre de Prandtl
p	pression [Pa]
q, \mathbf{q}	flux de chaleur, vecteur flux de chaleur [$\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$]

\dot{Q}'''	production de chaleur par unité de volume [W.m ⁻³]
\mathbf{r}	vecteur position [m]
R_u	constante universelle des gaz [J.mol ⁻¹ .K ⁻¹]
Re	nombre de Reynolds
s	rapport stœchiométrique
T	température [K]
t	temps [s]
u_x	composante de vitesse de la phase gazeuse dans la direction x [m.s ⁻¹]
u_{reg}	vitesse de régression de l'interface gaz/solide [m.s ⁻¹]
\mathbf{u}	vitesse de la phase gazeuse [m.s ⁻¹]
W_k	masse molaire de l'espèce gazeuse k [kg.mol ⁻¹]
x	coordonnée spatiale dans la direction normale à la plaque [m]
Y	fraction massique
Z	fraction de mélange
Δh_c	chaleur de combustion du PMMA [J.kg ⁻¹]
Δh_{fk}^0	chaleur de formation standard de l'espèce gazeuse k [J.kg ⁻¹]
ε	dissipation de TKE [m ² .s ⁻³], émissivité du PMMA vierge
κ	coefficient d'absorption [m ⁻¹]
λ	conductivité [W.m ⁻¹ .K ⁻¹]
μ	viscosité [kg.m ⁻¹ .s ⁻¹]
ν	fréquence du rayonnement [Hz]
ρ	masse volumique [kg.m ⁻³]
σ	constante de Stefan-Boltzmann ($\sigma = 5.67 \times 10^{-8}$ W.m ⁻² .K ⁻⁴)
$\sigma_k, \sigma_t, \sigma_\varepsilon$	nombres de Prandtl/Schmidt turbulents
Ω	direction de propagation du rayonnement
<i>Indices</i>	
o	Initial, face supérieure de la plaque de PMMA
b	corps noir
ch	chimique
$cond$	conduction
$conv$	convection
ext	externe

<i>e</i>	effectif
<i>F</i>	combustible
<i>g</i>	phase gazeuse
<i>I</i>	interface gaz/solide
<i>k</i>	espèce gazeuse <i>k</i>
<i>L</i>	face inférieure de la plaque de PMMA
<i>rad</i>	radiatif
<i>reg</i>	surface du PMMA en régression
<i>s</i>	phase solide
<i>soot</i>	suie
<i>t</i>	turbulent
∞	ambiant

Exposants

+	direction ascendante (<i>x</i> positifs)
-	direction descendante (<i>x</i> négatifs)
<i>I</i>	injection du combustible
<i>ox</i>	injection du comburant

Acronymes

CADUCEE	Controlled Atmosphere Device for Unburnt and Carbon Emission
CCD	Charge Coupled Device
CFD	Computational Fluid Dynamics
DNS	Direct Numerical Simulation
DOM	Discrete Ordinates Method
EBU	Eddy Break Up
EDC	Eddy Dissipation Concept
IRSN	Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire
ISIS	Incendie Simulé pour la Sûreté
LES	Large Eddy Simulation
FDS	Fire Dynamics Simulator
FEF	Facteur d'Extinction de Flamme
MLR	Total Mass Loss Rate
MMA	Méthacrylate de méthyle
MST	Matériau Semi-Transparent

NIST	National Institute of Standards and Technology
PMMA	Poly(méthacrylate de méthyle)
POM	Polyoxyméthylène
RANS	Reynolds Averaged Navier Stokes
tas	Terminologie anglo-saxonne
TKE	Turbulent Kinetic Energy

Chapitre 1

INTRODUCTION ET CONTEXTE DE L'ETUDE

Les incendies font partie des risques majeurs dans les installations nucléaires en raison de l'éventuelle perte de confinement, et donc de la dissémination de matières radioactives, qu'ils peuvent entraîner. Les risques induits peuvent aussi toucher les populations environnantes. Parmi les incendies les plus graves, on peut citer ceux qui ont touché à deux reprises l'usine de production d'armes nucléaires Rocky Flats au Colorado le 11 septembre 1957 et le 11 mai 1969. Le premier incendie est relatif à un feu de plutonium qui s'est propagé à l'intérieur d'une boîte à gants en PMMA (Figure 1) utilisée pour manipuler des matériaux radioactifs, entraînant des pertes estimées à plus d'un million de dollars. Le deuxième a lui aussi touché une boîte à gants et a endommagé l'intégralité du bâtiment. Le nettoyage de ce dernier a duré près de deux ans et a conduit les autorités américaines à renforcer les règles de sécurité pour la lutte contre l'incendie, en installant notamment des systèmes automatiques d'aspersion d'eau et des pare-feu.

Dans le domaine industriel hors nucléaire, la maîtrise du risque incendie est tout aussi capitale. Plusieurs incendies d'origines diverses ont marqué l'histoire :

- Le 25 mars 1911 un incendie s'est déclaré dans l'usine de confection Triangle Shirtwaist à New York, faisant 146 morts et 71 blessés parmi le personnel en moins de 25 minutes ;
- Le 16 avril 1947, l'explosion de nitrate d'ammonium chargé à bord du navire SS Grandchamp dans le port de Texas City a engendré un incendie dans une usine fabriquant du styrène, faisant 581 morts et blessant 3000 personnes ;

- Le 19 novembre 1984, l'incendie d'un complexe pétrochimique à San Juanico au Mexique a fait 600 morts et 7000 blessés ;
- Le 10 mai 1993, une zone de stockage dans une usine de jouets à Bangkok a pris feu. L'incendie, limité au départ, s'est rapidement propagé. Par manque de moyens de sécurité (alarmes, sorties de secours, extincteurs, etc.), 188 personnes ont trouvé la mort ;
- Le 24 novembre 2012, un incendie s'est déclaré dans une usine de textile à Dhaka au Bangladesh, faisant 117 morts et plus de 200 blessés.

Si ce travail de thèse est essentiellement centré sur le risque incendie dans les installations nucléaires (spécificités liées à la nature des combustibles présents et au confinement des locaux, le plus souvent ventilés mécaniquement), les thèmes scientifiques développés et les outils associés, de par leur caractère générique, peuvent être facilement étendus à des domaines hors-nucléaire, comme les feux en milieux urbain ou industriel.



Figure 1. Boîte à gants dans une installation nucléaire - Crédit : Noak/Le Bar
floréal/IRSN

Dans les installations nucléaires (hors générateurs de puissance), les boîtes à gants (Figure 1) sont très présentes et constituent la première barrière de confinement. La boîte à gants est généralement constituée de panneaux en polymères incluant des gants permettant de manipuler en sécurité les matières radioactives. Elle est totalement

étanche et maintenue en dépression. Ses hublots sont généralement constitués d'un matériau polymère thermoplastique, le poly(méthacrylate de méthyle) ou PMMA. Le PMMA a des applications dans de nombreux secteurs tels que le bâtiment (appareils sanitaires, vitrages, objets décoratifs), les systèmes d'affichage et d'éclairage (lampes, enseignes,..). Le PMMA est en outre un matériau largement utilisé par les académiques dans le domaine de la sécurité incendie car il brûle sans former de résidu carbonneux, qu'il se sublime presque entièrement et qu'il possède des propriétés dont la plupart sont relativement bien connues. La dégradation thermique de ce combustible, soumis à une source de chaleur externe, génère des produits volatils inflammables susceptibles de propager le feu et d'accroître, en retour, sa pyrolyse.

Pour prévenir le risque incendie et évaluer ses effets sur l'installation et l'environnement, la simulation numérique des scénarios d'incendie se révèle être, en particulier depuis quelques années, un moyen performant et peu coûteux. Quel que soit l'outil de simulation utilisé (code à zones, code à champ, etc.), sa capacité prédictive est étroitement dépendante de la précision avec laquelle le terme source, dû à la dégradation thermique des matériaux combustibles impliqués, ici le PMMA, est déterminé. Il est donc primordial de bien représenter les phénomènes physiques et chimiques qui ont lieu dans les phases gazeuse (turbulence, combustion turbulente, rayonnement, production de suies) et solide (cinétique de dégradation de la phase condensée, rayonnement et conduction), ainsi que le couplage fort entre ces deux phases. A cela s'ajoute une difficulté supplémentaire qui réside dans le fait que le comportement du feu dépend des caractéristiques du milieu environnant, en particulier de sa concentration en oxygène.

L'objet de ce travail de thèse est donc de développer et valider un modèle de pyrolyse adapté aux milieux semi-transparentes, comme le PMMA, et de le coupler à un code CFD afin de le rendre prédictif et ce, pour des atmosphères normalement oxygénée et sous-oxygénée.

Le deuxième chapitre présente une synthèse de l'état de l'art concernant la pyrolyse et la combustion du PMMA, aux plans expérimental et numérique. L'effet de la viciation du milieu ambiant sur la combustion et le développement du feu y est discuté.

Dans le troisième chapitre, différentes approches de modélisation de la pyrolyse sont comparées : dégradation thermique volumique ou surfacique, solide opaque ou semi-transparent, milieu semi-transparent gris ou non gris. On présente ensuite la méthodologie utilisée pour la détermination des paramètres cinétiques du modèle de pyrolyse. Cela consiste à combiner le modèle de pyrolyse à un algorithme génétique afin de localiser un jeu unique de paramètres conduisant au meilleur accord entre les résultats du modèle et les mesures expérimentales obtenues lors d'un seul essai de pyrolyse sans flamme d'une plaque de PMMA.

Le quatrième chapitre présente le code CFD ISIS (Incendie Simulé pour la Sûreté) de l'IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire), utilisé dans les simulations numériques. Les différents sous-modèles physiques de turbulence, de combustion, de rayonnement et de production/destruction de suies, nécessaires à la modélisation de la phase gazeuse sont décrits.

La méthodologie adoptée pour le couplage entre les phases gazeuse et solide est présentée dans le cinquième chapitre et le modèle couplé y est validé à l'aide d'expérimentations sur des plaques de combustible de tailles différentes. Ainsi, le modèle de pyrolyse le plus fin, prenant en compte la dégradation en volume, le caractère spectral du rayonnement au sein du solide et l'interface gaz/solide mobile, est couplé avec le code ISIS. Des expériences sur des plaques carrées de PMMA de 10, 20 et 40 cm de côté, positionnées horizontalement, ont été réalisées. Les mesures expérimentales sont comparées aux résultats obtenus avec le modèle couplé, en termes d'évolution temporelle des flux de chaleur, radiatifs et convectifs, et de régression de l'interface gaz/solide au centre de la plaque, de températures de la phase gazeuse le long de l'axe de symétrie, et de taux de pyrolyse totaux.

Enfin, dans le sixième chapitre, on s'intéresse à la combustion de plaques de PMMA en atmosphère sous-oxygénée. Un modèle de combustion à deux étapes ainsi qu'un modèle d'extinction locale de flamme basé sur un diagramme d'inflammabilité y sont présentés. Les résultats des simulations numériques du modèle couplé sont comparés aux résultats expérimentaux obtenus sur une plaque de PMMA de 20 cm de côté, placée en position horizontale dans le dispositif expérimental CADUCEE (Controlled

Atmosphere Device for Unburnt and Carbon Emission) de l'IRSN, pour différents niveaux d'oxygène du milieu réactionnel.

Le dernier chapitre présente les conclusions et les perspectives de ce travail.

Chapitre 2

REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

2.1 • Approche expérimentale

2.2 • Approche théorique

2.3.1. Modélisation de la dégradation thermique du PMMA

2.3.2. Couplage phases gazeuse et solide

2.3 • Effet de la concentration en oxygène du milieu ambiant

Le développement d'outils numériques prédictifs pour la simulation du comportement du feu constitue une problématique majeure dans le domaine de la sécurité incendie. Le terme « prédictif » signifie que les données d'entrée du modèle doivent être indépendantes du phénomène physique. A titre d'exemple, les conditions de ventilation du compartiment (pressions d'admission et d'extraction, coefficient de décharge) et les paramètres intrinsèques du combustible vérifient cette condition, contrairement au taux de pyrolyse. En effet, le comportement du feu dépend du taux de pyrolyse du combustible, qui dépend lui-même du flux de chaleur émis par la flamme et reçu à la surface du combustible, traduisant un couplage fort entre les phases gazeuse et solide.

La définition de la pyrolyse au sens de la norme ISO 13943 est la décomposition chimique d'une substance sous l'action d'une source de chaleur (flamme, cône calorimètre, etc...) en l'absence d'oxygène ou en atmosphère suffisamment pauvre en oxygène pour éviter l'oxydation et la combustion (absence de flamme). La pyrolyse est un processus fondamental car elle conditionne la production d'espèces gazeuses combustibles disponibles à la réaction de combustion. La décomposition thermique est

le processus par lequel l'action de la chaleur entraîne un changement de la composition chimique de la substance, en présence d'oxygène ou non. Comme le souligne E. Guillaume [1], « en science du feu, aucune hypothèse n'est émise quant à la présence ou l'absence d'oxygène ». C'est la raison pour laquelle, dans le domaine de la sécurité incendie, on utilise le mot pyrolyse, au sens large, pour décrire la dégradation des matériaux combustibles et la production de gaz combustibles qui alimentent la flamme.

Comme cela a été mentionné précédemment, le matériau retenu dans le cadre de cette thèse est le PMMA translucide, matériau polymère semi-transparent présent dans les installations nucléaires et très utilisé dans les études académiques en raison de ses propriétés (i.e. il se sublime presque entièrement sans former de résidu carbonneux et la plupart de ses propriétés sont relativement bien connues).

La revue bibliographique qui suit commence par un rappel des études expérimentales menées sur la dégradation thermique du PMMA. Elle présente, ensuite, une synthèse des différents modèles de pyrolyse et, enfin, une synthèse non-exhaustive des études réalisées sur l'influence de la concentration en oxygène sur ce processus.

2.1. Approche expérimentale

De nombreuses études expérimentales ont été réalisées sur le PMMA dans le but de décrire son comportement lorsqu'il est exposé au feu. Le Tableau 1 rassemble les études les plus connues sur le sujet, en précisant les configurations retenues et les données auxquelles elles permettent d'accéder, comme par exemple le taux de pyrolyse local ou total ou la contribution d'une ou plusieurs composantes du flux de chaleur à la surface du combustible. Ces études sont brièvement discutées ci-dessous.

Configuration verticale

Dans leurs travaux précurseurs, Orloff et al. [2] ont conduit une analyse détaillée du transfert de chaleur à la surface de plaques verticales de PMMA translucide de 1,57 m de

largeur, 0,41 cm de hauteur et 4,5 cm d'épaisseur. Ils ont mesuré le taux de pyrolyse et le rayonnement total (flamme plus surface) vers le milieu environnant à différentes hauteurs le long de la plaque et ont corrélé l'augmentation de ce taux en fonction de la hauteur à celle du rayonnement de la flamme. Le rayonnement émis par la surface le long de la plaque est déduit de celui mesuré à mi-hauteur de la plaque au moyen d'un radiomètre à thermopiles, en reliant le taux de perte de masse à la température de surface équivalente corps noir par une loi d'Arrhenius d'ordre zéro. Malgré la grande taille de l'échantillon, la correction d'Arrhenius utilisée n'entraîne que de faibles variations du flux re-rayonné, inférieures à $\pm 7\%$. Le flux convectif provenant de la flamme est déduit du bilan stationnaire d'énergie à la surface de l'échantillon supposé thermiquement épais. Une faible diminution du flux convectif avec la hauteur est observée.

Deux ans plus tard, Orloff et al. [3] ont poursuivi leurs travaux sur des échantillons de plus grande taille (3,56 m×0,914 m×6,4 cm). Contrairement à l'étude précédente, le flux convectif est supposé constant et égal à celui mesuré à mi-hauteur de la plaque, ce qui permet de calculer le flux re-rayonné à partir du bilan d'énergie stationnaire. La transmittance de la flamme en fonction de la hauteur est déduite de mesures de luminance énergétique (radiance) et du flux radiatif, en supposant que la flamme, ni mince, ni épaisse, est une couche de gaz homogène, gris, isotherme, absorbant et émettant (non diffusant). Les résultats obtenus renforcent les conclusions de l'étude précédente, à savoir que, pour des plaques verticales de grandes dimensions, le rayonnement de la flamme est le mode de transfert dominant à la surface du combustible et pilote ainsi les taux de pyrolyse locaux, et que ces taux augmentent avec la hauteur.

Quintiere et al. [4] ont mesuré le flux incident à la surface de l'échantillon au-dessus de la zone en combustion pour six matériaux différents, en particulier le PMMA. Un flux externe variable est maintenu tout au long de l'essai, ce qui a conduit à quelques variations du flux de chaleur provenant de la flamme (Tableau 1).

Dans [5], Kulkarni et Kim ont estimé le flux conductif à l'intérieur d'échantillons verticaux de PMMA, translucide ou noir, de 1,9 cm d'épaisseur, 7,5 cm de largeur et 15 cm de hauteur, à partir de mesures de température interne. Ils ont observé un comportement fortement instationnaire en début de combustion, suggérant que

l'hypothèse de solide thermiquement épais n'est pas appropriée. Par la suite, quand les pertes conductives atteignent un plateau, cette hypothèse semble applicable, comme le montrent les résultats expérimentaux obtenus.

Kulkarni et al. [6] et Brehob et Kulkarni [7] ont déterminé expérimentalement le flux total arrivant à la surface de grandes plaques de PMMA translucides ou noires, positionnées verticalement (120 cm de hauteur, 30 cm de largeur et 3,2 cm d'épaisseur) en présence d'un flux radiatif externe.

A plus grande échelle, sur des échantillons de PMMA de 5 m de hauteur, 0,6 m de largeur et 2,54 cm d'épaisseur, en position verticale, Wu and Tewarson [8] ont conduit des expérimentations, mesurant des flux totaux de plus de 40 kW.m⁻².

Dans leur étude sur l'influence de la concentration en oxygène du milieu réactionnel, Beaulieu et Dembsey [9] ont utilisé des fluxmètres enchâssés et affleurant la surface en pyrolyse des plaques de PMMA noir afin d'évaluer le flux de chaleur total provenant de la flamme, mais aussi les contributions radiatives et convectives au flux total, pour des échantillons de PMMA noir de 2,5 cm d'épaisseur et des concentrations en oxygène du milieu ambiant de 20,9 et 40 %. Ils ont aussi mesuré la hauteur et la température de flamme. On retiendra la valeur du flux de chaleur total dans la zone de pyrolyse de 33±3 kW.m⁻² obtenue dans la configuration verticale et une concentration en oxygène de 20,9 %.

Tsai and Wan [10] ont développé des expérimentations spécifiques dans le but d'évaluer le rôle joué par des parois latérales sur le processus de propagation de la flamme pour différentes largeurs de plaques de PMMA et en particulier sur les flux radiatifs et totaux issus de la flamme. Des échantillons de PMMA translucides de 6 et 20 mm d'épaisseur, de 1 m de hauteur et d'une largeur variant de 10 à 90 cm ont été utilisés. Ils ont montré que la largeur de l'échantillon affecte peu la distribution du flux de chaleur total et que les flux radiatifs sont généralement plus faibles que ceux obtenus dans les études antérieures.

Cinq ans plus tard, Tsai [11] a repris cette thématique sur l'influence des parois latérales en réalisant des expérimentations similaires sur des échantillons de PMMA translucide de même hauteur, mais de 9 mm d'épaisseur et d'une largeur allant de 10 à 70 cm. Il confirme le peu d'influence de la largeur de flamme sur le flux total incident.

Plus récemment, Gollner et al. [12], [13] ont étudié les effets de l'angle d'inclinaison de la surface combustible sur la propagation ascendante de la flamme sur des plaques de PMMA de hauteur 20 cm, de largeur 10 cm et d'épaisseur 1,27 cm, montées sur un support métallique orientable. Les flux totaux ont été estimés en utilisant des calorimètres à peau mince (tas : thin-skin calorimeters) disposés le long de l'axe du support au-dessus de la plaque de PMMA. Le flux re-rayonné est estimé en supposant une température de surface équivalente corps noir égale à la température de pyrolyse.

Dans [14], Leventon et Stoliarov se sont intéressés au flux total incident issu de la flamme en cours de propagation le long de plaques de PMMA translucide de dimensions 15 cm×5 cm×0,5 cm. Les flux obtenus se situent entre 35 et 40 kW.m⁻².

En 2013 et 2015, Singh et Gollner [15], [16] ont étudié la possibilité de corréler le taux de pyrolyse local au gradient local de température à la surface qui est directement relié au flux convectif via le nombre de transfert de masse. Ils ont estimé des valeurs de flux convectif de l'ordre de 27,4 kW.m⁻² et 13 kW.m⁻² à des distances respectives de 10 et 80 mm en aval du bord d'attaque de plaques de PMMA de 8 cm×8 cm×1,27 cm en position verticale.

Pizzo et al. (2015) [17] ont réalisé plusieurs campagnes d'essai afin de caractériser la pyrolyse de plaques de PMMA translucide en configuration verticale avec flamme. Les tailles d'échantillons utilisés sont données dans le Tableau 1. Les auteurs ont évalué le flux total le long de la plaque verticale en fonction de la hauteur. Les valeurs obtenues sont de 30,9- 27,6-24,5-23,4 kW.m⁻² à 2,5-5-10-20 cm du bord d'attaque, montrant que le flux total est inversement proportionnel à la hauteur. Ces résultats confirment les conclusions de Tsai et Wan [10]. Le flux radiatif réémis a été mesuré au centre de la plaque (i.e. à 10 cm du bord d'attaque) à 11,5 kW.m⁻² et est ensuite utilisé pour estimer le flux radiatif à d'autres hauteurs [2]. Le taux de pyrolyse total est déduit de l'évolution temporelle de la perte de masse, alors que le taux local est estimé à différentes hauteurs à partir de la position au cours du temps de l'interface gaz/solide. Cette dernière montre en outre que la vitesse de régression est constante, traduisant une combustion stationnaire.

Configuration horizontale

Si de nombreuses études ont été réalisées en configuration verticale, comme le montre le paragraphe précédent, très peu, en revanche, se sont intéressées à la combustion de plaques de PMMA en configuration horizontale.

Dans [18], Linteris et ses collaborateurs ont exposé des échantillons de $10 \times 10 \times 2,54$ cm³ de PMMA noir à des flux de 0 to 75 kW.m⁻² sous cône calorimètre. Les données expérimentales disponibles concernent les évolutions temporelles de la puissance dégagée par la combustion et du débit de pyrolyse, la structure de flamme à partir d'images vidéo, mais aussi la masse finale de l'échantillon et la topographie de la surface de l'échantillon brûlé. Ils ont observé que les plaques de PMMA ne brûlent pas uniformément et que cet effet est encore plus prononcé à bas flux, en particulier lorsque l'échantillon n'est soumis à aucun flux externe. L'épaisseur de l'échantillon brûlé en fonction de la position à la surface de la plaque est utilisée pour estimer les variations locales du taux de pyrolyse et le flux net total incident.

L'étude de Beaulieu et Dembsey, citée précédemment, a également porté sur la combustion de plaques de PMMA noir en configuration horizontale. Pour de petits échantillons de 10,2 cm de diamètre, brûlant en atmosphère normalement oxygénée, les résultats suivants ont été obtenus : un flux de chaleur total stationnaire de 20 ± 3 kW.m⁻², composé d'une part radiative de 12 ± 3 kW.m⁻² et d'une part convective de 8 ± 3 kW.m⁻², un taux de pyrolyse de $5,8 \pm 1$ g.m⁻².s⁻¹, une hauteur de flamme de $17,8 \pm 0,64$ cm, et une température de flamme de 1184 ± 100 K. Les auteurs ont montré, sur la base d'essais réalisés sur des échantillons de plus grande taille, de 17,8 à 122 cm de diamètre, la « non scalabilité » du flux de chaleur provenant de la flamme. Pour l'échantillon de 17,8 cm de diamètre, un flux de chaleur total de 31 ± 3 kW.m⁻² et un débit de pyrolyse de $7,7 \pm 1$ g.m⁻².s⁻¹ ont été mesurés. Comme cela a été déjà observé par Linteris et al. [18], Beaulieu et Dembsey ont montré que le flux de chaleur incident total varie considérablement à la surface de l'échantillon, avec des valeurs plus élevées au centre de la plaque.

Des expériences de pyrolyse pure en configuration horizontale ont été conduites par Pizzo et al. [17] en exposant des plaques de $10 \times 10 \times 3 \text{ cm}^3$ de PMMA translucide à des flux incidents de 14 et 18 kW.m^{-2} sous cône calorimètre. Pour ces valeurs du flux externe, inférieures au flux critique d'inflammation spontanée du PMMA considéré ($\sim 20 \text{ kW.m}^{-2}$), la pyrolyse se produit en absence de flamme. Les données expérimentales sont relatives aux évolutions temporelles de la régression de surface et de deux températures au sein du solide. Les résultats obtenus sous 18 kW.m^{-2} sont utilisés dans la présente étude. Comme le soulignent les auteurs, quand la température de surface est quasiment constante, une phase de combustion stationnaire a lieu. Ceci est confirmé par le comportement linéaire de la courbe de régression en fonction du temps, avec des vitesses de régression de $2,96$ et $4,60 \text{ }\mu\text{m.s}^{-1}$ sous un flux externe de 14 et 18 kW.m^{-2} respectivement.

Cette revue bibliographique montre la difficulté à déterminer et différencier les composantes de flux de chaleur à la surface des plaques de PMMA, moteur de la pyrolyse. Une grande dispersion des résultats est observée qui peut être attribuée à plusieurs raisons : aux méthodes de mesure, à la variabilité de la composition du PMMA et par conséquent de ses propriétés thermo-physiques, ou aux conditions opératoires.

Tableau 1. Catalogue des études expérimentales menées pour évaluer la contribution des composantes de flux surfacique au débit de pyrolyse. La valeur entre parenthèses correspond à la hauteur depuis le front de flamme (en cm) où le flux (en kW.m⁻²) a été mesuré ou estimé [17]. na : non fourni.

Etude	Configuration Dimensions en cm	q_{fl}^{conv}	q_{fl}^{rad}	q_{fl}	q_{rr}	MLR (g.m ⁻² .s ⁻¹)	Remarques
Orloff et al. (1974) [2]	157×41×4,5 PMMA translucide Verticale	6,48 (38,1) 4,13 (76,2) 5,54 (152,4)	13,53 (38,1) 17,93 (76,2) 21,51 (152,4)	Rayonnement + Convection 20,01 (38,1) 22,06 (76,2) 27,05 (152,4)	Mesuré 8,60 (76,2) et estimé à d'autres hauteurs par une correction d'Arrhenius et une émissivité surfactive unitaire	Local et déduit de la régression de surface mesurée tous les 5 cm le long de l'axe de la plaque	Mesures du rayonnement total (flamme+surface) vs. hauteur Pas de réflexion du rayonnement de la flamme
Orloff et al. (1976) [3]	356×91,4×6,4 PMMA translucide Verticale	5,5 (152,4)	14,47 (51) 22,1 (152) 36,5 (356)	Rayonnement + Convection 20,2 (51) 27,6 (152) 42,0 (356)			Mesures de rayonnement vs. hauteur Transmittance de la flamme entre le rayonnement de la flamme et le RHF
Quintiere et al. (1986) [4]	28,4×28,4×na PMMA Verticale + rayonnement externe q_{ex}			21,6 ($q_{ex}=15$) 24,0 ($q_{ex}=17$) 19,6 ($q_{ex}=24$) 21,4 ($q_{ex}=30$)			
Kulkarni et Kim (1990) [5]	15×7,5×1,9 PMMA translucide et noir Verticale						Transfert conductif déduit de mesures TC (~8 pour le PMMA translucide)
Kulkarni et al. (1994) [6]	120×30×3,2 PMMA translucide et noir Verticale + rayonnement externe			31,9 (noir) 34,6 (translucide)			Mesures de la température interne au solide
Brehob et Kulkarni (1998) [7]	120×30×3,2 PMMA translucide Verticale + rayonnement externe			34,6			
Wu et Tewarson (1996) [8]	500×60×3,2 PMMA Verticale			Jusqu'à 40			
Gollner et al. (2011, 2013) [12], [13]	20×10×1,27 PMMA Différentes orientations vs. verticale (-60° → +60°)			16	6,1 (T_p et $\varepsilon=1$)	Total mesuré	

Tsai (2011) [11]	100×10-70×0,9 PMMA translucide Verticale			Jusqu'à 35			
Beaulieu et Dembsey (2008) [9]	Horizontale : diamètre : 10,5-17,8-61-122 PMMA noir d'épaisseur 2,5 cm	D10,5 : 8±3	D10,5 : 12±3	D10,5 : 20±3 D17,8 : 31±3 D61 : 47±10 D122 : 60±10		D10,5 : 5,8±1 D17,8 : 7,7±1 D61 : 17,6±6 D122 : 20±6 Mise en évidence de variations locales	Autres mesures à 40% d'oxygène dans l'air ambiant
	Verticale : 10,2×10,2×2,5 PMMA noir			33±3(à 5,8±3 du bas de l'échantillon) 33±3(13,9±3) 30±3(19,7±3) 24±3(24,7±3) 17±3(29,8±3)			
Tsai et Wan (2005) [10]	100×10-70×2 PMMA translucide Verticale		2,31-3,47 (85,8) (mesuré)	23,58-30,21(85,0) pour des largeurs de 10 à 70 cm (mesuré)			
Leventon et Stoliarov (2013) [14]	15×5×0,5 PMMA translucide Verticale			35 de 6 à 15 cm le long de la plaque 40 de 2 à 5 cm le long de la plaque			
Lintaris et al. (2005) [18]	10×10×2,54 PMMA noir Verticale et horizontale + rayonnement externe (0- 75 kW.m ⁻²)			Déduit de la mesure de la régression locale de l'échantillon brûlé		Variations locales déduites de la topographie de l'échantillon brûlé	Mesure du HRR Mesure de la topographie de l'échantillon brûlé
Pizzo et al. (2015) [17]	20×10×3 PMMA translucide Verticale	-	-	23,4 – 30,9 (20 – 2,5)	11,5 (10) et estimé à d'autres hauteurs par une correction d'Arrhenius et une émissivité surfactive unitaire [2]	Total et local déduit de la régression de surface mesurée à 4 hauteurs (20- 10-5-2,5) le long de l'axe de la plaque [19]	Régression stationnaire
	10×10×3 PMMA translucide Horizontal Rayonnement externe, sans flamme $q_{in}=14$ ou 18 kW.m ⁻²	-	Flux externe imposé à 14 ou 18 kW.m ⁻²	-	-	-	Total Local déduit de la régression de surface mesurée au centre de la plaque

2.2. Approche théorique

Les processus mis en jeu dans la dégradation thermique et la combustion d'un matériau polymère, comme le PMMA, sont résumés dans la Figure 2. Sous l'effet d'un flux de chaleur provenant d'une source de chaleur externe (cône calorimètre, flamme, etc.) le matériau s'échauffe par conduction et rayonnement. Il se dégrade thermiquement conduisant à un changement de phase. Il se forme une phase gazeuse à l'intérieur du matériau, sous la forme d'une zone bullée de quelques millimètres d'épaisseur au voisinage de l'interface, et une phase liquide à la surface de l'échantillon. Lorsque le flux d'exposition augmente, la température de surface augmente, la zone bullée devient de plus en plus fine, est constituée de bulles de plus en plus petites, et la viscosité de la phase liquide diminue, facilitant ainsi l'éjection des produits gazeux de pyrolyse [20]. Dans le cas du PMMA, la phase liquide est le plus souvent négligée. La dégradation thermique du PMMA conduit donc à sa dépolymérisation totale (en méthacrylate de méthyle ou MMA) au niveau de la phase condensée, ce qui produit des gaz combustibles qui réagissent avec l'oxygène au niveau de la phase vapeur pour former une flamme de diffusion au-dessus de l'échantillon. Les flux rayonnés et convectés par cette flamme (qui peuvent, le cas échéant, s'ajouter au flux externe) vers la surface du combustible contribuent à leur tour à la pyrolyse. Il se crée ainsi un couplage entre la flamme et le dégagement de produits de pyrolyse qui tend à entretenir la combustion.

2.2.1. Modélisation de la dégradation thermique du PMMA

Plusieurs modèles de dégradation thermique de matériaux en phase solide ont été développés ([5], [17], [21]–[24]). Ils diffèrent principalement par les phénomènes physiques pris en compte selon que la pyrolyse ait lieu uniquement à la surface de la plaque de combustible (modèles d'ablation ou de pyrolyse surfacique) ou au sein même du solide (modèles de pyrolyse volumique). Ces modèles peuvent aussi différer par les hypothèses utilisées notamment celles portant sur la prise en compte ou non du

rayonnement à l'intérieur du milieu (opaque^a ou semi-transparent^b) ou sur la modélisation des propriétés radiatives du milieu semi-transparent (milieu gris ou non gris), mais aussi sur la prise en compte de la régression de la surface de pyrolyse. Seuls quelques modèles prennent en compte les variations spectrales de l'absorption radiative au sein du matériau [5], [21] et la régression de la surface du polymère [17], [18], [24].

Staggs [25] a développé un modèle thermique traitant la pyrolyse par une réaction globale à une étape en phase solide et un modèle simple pour le transport de masse à l'intérieur du solide qui suppose que le polymère remplit instantanément les vides créés par le changement de phase solide/gaz en profondeur.

Sohn et al. [21] ont étudié, numériquement, l'influence de différentes hypothèses sur la dégradation d'une plaque de PMMA horizontale exposée à un rayonnement extérieur appliqué perpendiculairement à la surface de la plaque et de manière uniforme. Ils ont ainsi comparé les résultats obtenus en supposant le milieu gris ou non gris, opaque ou semi-transparent, et en faisant varier l'indice de réfraction du polymère, le coefficient d'absorption, l'épaisseur de la plaque et le flux radiatif incident. Cette étude, qui présente un grand intérêt, souffre d'une absence totale de validation. Pour chaque type de plaque, trois modèles de pyrolyse (notés A, B et C) ont été étudiés et déclinés pour des milieux opaques ou semi-transparentes. Le modèle A [26] traite la pyrolyse comme un phénomène de surface et repose sur la donnée de la température de pyrolyse T_p et de la chaleur de gazéification H_g . Ce modèle d'ablation^c implique que la température dans le solide ne peut pas dépasser T_p . Dès que la température de surface atteint T_p , le flux incident sur la surface est utilisée pour la pyrolyse et la

^a Pour un matériau opaque, le rayonnement n'est pas transmis à l'intérieur du matériau. Les phénomènes radiatifs (absorption, réflexion, émission) se font uniquement à la surface du matériau.

^b Un milieu semi-transparent est susceptible, non seulement de réfléchir à sa surface une fraction du rayonnement incident, mais aussi, sur une certaine distance, d'absorber, de diffuser ou de transmettre l'autre fraction et simultanément d'émettre.

^c Dans un modèle d'ablation, la cinétique de la dégradation thermique est infiniment rapide et le taux de pyrolyse est supposé nul tant que la température de surface est inférieure à une température critique prédéfinie T_p . Lorsque la température atteint T_p , le taux de pyrolyse est calculé en supposant que la température de surface est maintenue à T_p .

redistribution d'énergie dans le solide par conduction. Le modèle B [27] est lui aussi un modèle de pyrolyse à la surface, mais utilise une chimie à une étape approchée par une loi d'Arrhénius qui dépend de la température de surface instantanée calculée. Le modèle C [28] traite d'une pyrolyse ayant lieu en profondeur. Ce modèle utilise, comme le modèle B, une loi d'Arrhénius dépendant de la température calculée à l'intérieur du solide. Un terme source de pyrolyse apparaît dans l'équation de bilan d'énergie.

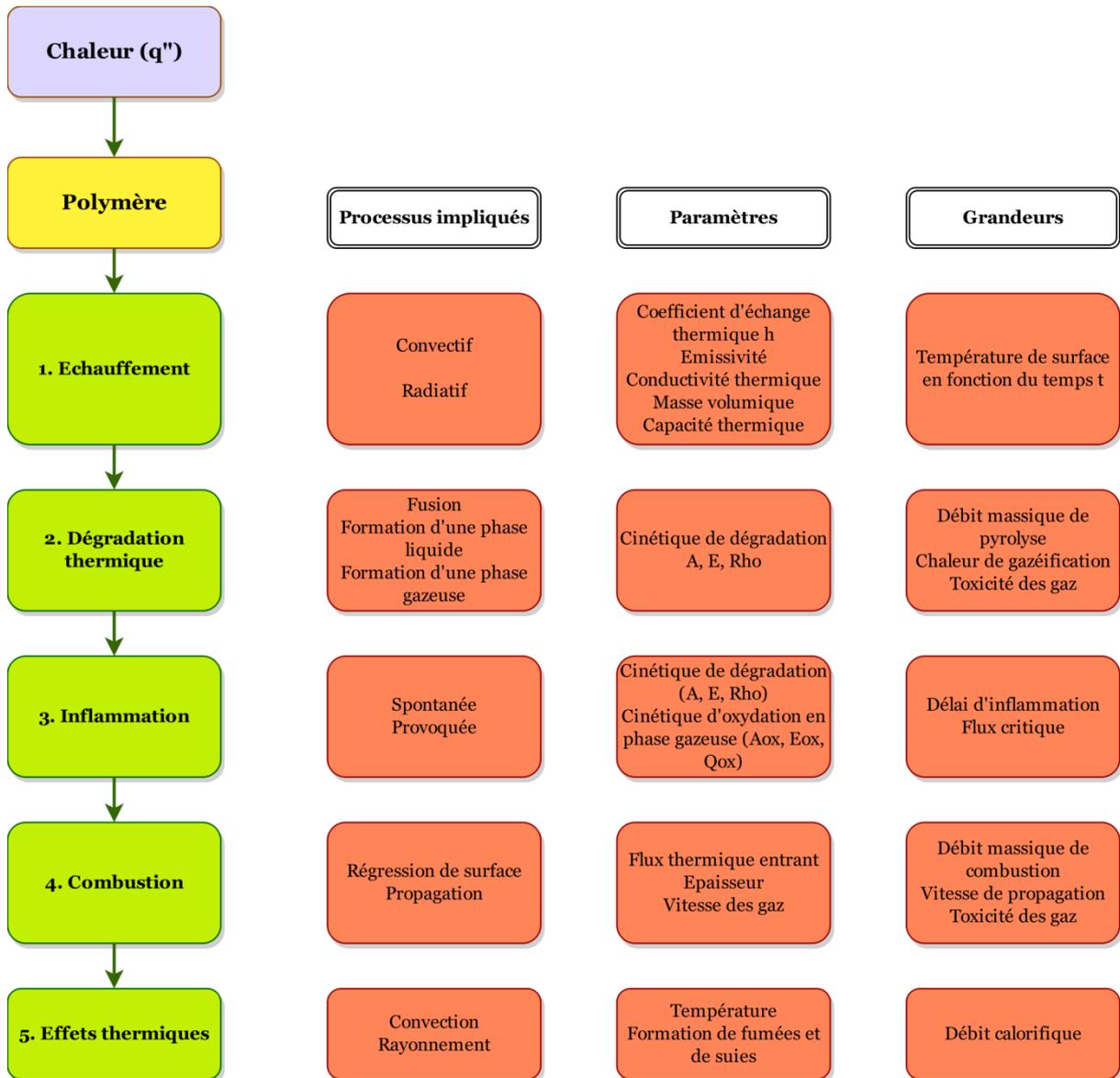


Figure 2. Processus mis en jeu dans la combustion d'un matériau plastique [29]

Sohn et al. [21] ont conclu que l'effet de l'épaisseur de la plaque était négligeable sur le taux de pyrolyse et que la perte de chaleur par convection à la surface est importante pour l'estimation du taux de pyrolyse, puisque ce dernier augmente de 29 % si l'on néglige la convection. Ils ont aussi conclu que la prise en compte du rayonnement en profondeur a tendance à diminuer le taux de pyrolyse pour les modèles A et B et à l'augmenter pour le modèle C, en raison d'une accumulation de la chaleur au sein du combustible.

Jiang et al. [30] ont étudié l'absorption de la chaleur au sein d'un matériau semi-transparent, en l'occurrence du PMMA noir, afin de déterminer expérimentalement le coefficient d'absorption du matériau et d'établir un modèle analytique permettant de prédire le temps d'inflammation du matériau. Il a été établi que le flux incident pénètre suffisamment dans la profondeur du PMMA, ce qui a pour effet de diminuer le gradient de température à la surface et retarder l'inflammation. Par ailleurs, l'absorption en profondeur devient de plus en plus importante pour des flux incidents élevés. Leur étude expérimentale leur a permis de montrer que le coefficient d'absorption du PMMA est pratiquement indépendant de l'intensité de la source radiative (3-30 kW.m⁻²), avec une valeur approchée de 960 m⁻¹, ce qui, d'après les auteurs, confère au PMMA utilisé un comportement de type corps gris dans la gamme de flux incidents considérée.

2.2.2. Couplage phases gazeuse et solide

Le traitement du couplage entre les phases solide et gazeuse est un vrai défi pour la modélisation et le calcul scientifique. Il nécessite une bonne représentation de la phase gazeuse incluant la turbulence, la combustion et le rayonnement, et de la phase solide incluant la conduction, le rayonnement et la dégradation thermique, mais aussi un traitement approprié de leur couplage à l'interface mobile gaz/solide. De plus, le domaine de calcul doit être finement résolu, en particulier au niveau de l'interface et du solide, ce qui nécessite des ressources informatiques considérables. Parmi les études qui ont abordé cette problématique, on peut citer celles de Jia et al. [31], Snegirev [23], Linteris et al. [18], Consalvi et al. [32], Xie et Desjardin [33], Singh et Gollner [15] et Leventon et al. [24].

En 1999, Jia et al. [31] ont implémenté un modèle d'ablation pour les combustibles solides non-charbonneux dans le code commercial CFDS-FLOW3D afin de simuler le développement du feu dans un petit compartiment de 0,05 m³ de volume. Les auteurs ont montré que, durant la phase de combustion stationnaire de plaques de PMMA noir, les taux de pyrolyse moyens prédits par le modèle couplé étaient en bon accord avec les résultats expérimentaux. Une procédure de calibration du modèle a été préalablement réalisée par les auteurs afin d'estimer la température d'inflammation, l'inertie thermique et la chaleur de gazéification, donnant des valeurs effectives qui sont, pour certaines, très éloignées des valeurs trouvées dans la littérature.

Snegirev [23] a utilisé le logiciel Fire3D afin de simuler des flammes de brûleur et des flammes d'hydrocarbures auto-entretenues avec des taux de pyrolyse couplés au rayonnement de la flamme. Il a réalisé une étude détaillée des transferts thermiques radiatifs dans la flamme en utilisant la méthode statistique de Monte Carlo, tout en prenant en considération l'interaction entre la turbulence et le rayonnement. Il a utilisé le bilan d'énergie à la surface du combustible impliquant les flux radiatifs et convectifs net reçus par la surface et l'enthalpie de vaporisation à la température initiale du combustible afin de calculer le taux de pyrolyse. Les valeurs prédites par le modèle sont en bon accord avec les valeurs expérimentales.

On rappelle que dans [18], Linteris et al. ont étudié, numériquement et expérimentalement, la combustion sous cône calorimètre de plaques horizontales de PMMA dans des configurations verticales et horizontales. Les valeurs des flux de chaleur imposés par le cône variaient de 0 à 75 kW.m⁻². La taille de la flamme, le taux de dégagement de chaleur, le taux de perte de masse et la topographie du combustible brûlé ont été enregistrés au cours du temps. Par ailleurs, ils ont utilisé le logiciel Fire Dynamics Simulator (FDS) du NIST (National Institute of Standards and Technology) pour réaliser des simulations LES (Large Eddy Simulation) et DNS (Direct Numerical Simulation) afin de simuler les expériences et étudier la sensibilité de la solution numérique vis-à-vis des variations de certains paramètres comme la chaleur de combustion, la chaleur de vaporisation ou les paramètres cinétiques. Le monomère MMA, issu de la dégradation chimique du PMMA, est supposé être libéré à la surface du matériau lorsque la température y est proche de la température d'inflammation (loi

d'Arrhenius). Le taux de pyrolyse est alors déterminé à partir de l'équation de bilan d'énergie à l'interface, la somme des flux incidents nets contribuant à la génération de MMA, via une chaleur latente de vaporisation (modèle à chaleur latente). Les simulations ont bien reproduit les variations du taux de pyrolyse moyen avec le flux de chaleur externe. Néanmoins, lorsque le flux externe diminue, le code surestime ce taux moyen comparé aux résultats expérimentaux. En absence de flux externe, des écarts ont été observés pour le MLR moyen et le flux de chaleur de la flamme au centre et aux bords de l'échantillon. Selon les auteurs, ces écarts peuvent être attribués aux changements de la géométrie du combustible solide pendant sa combustion (et par la suite aux changements locaux du coefficient d'échange convectif) qui n'ont pas été pris en compte dans FDS.

Consalvi et al. [32] ont étudié le taux de pyrolyse en phase stationnaire de plaques de PMMA en position verticale. Ils ont utilisé la formulation RANS (Reynolds-averaged Navier-Stokes) dans un modèle numérique instationnaire 2D afin de simuler les évolutions des phases gazeuse et solide au cours du temps. La modélisation des processus relatifs à la phase condensée est basée sur une équation de transfert thermique unidimensionnelle et la pyrolyse est traitée à l'aide d'un modèle à chaleur latente. Les résultats du modèle en termes d'évolution du taux de pyrolyse en fonction du nombre de Grashoff ont été comparés à ceux obtenus par la théorie de la couche limite réactive et aux mesures. L'accord modèle/expérience est très satisfaisant.

Xie et DesJardin [33] ont développé une approche DNS bidimensionnelle couplée (fluide/solide) afin de simuler la propagation d'une flamme sur des plaques de PMMA d'inclinaison variable. La conduction thermique dans la phase solide a été modélisée par la loi de Fourier en imposant le flux de chaleur net reçu par l'interface solide/gaz, sans prendre en compte la régression de celle-ci. Une température de pyrolyse critique constante a été imposée dans la zone de pyrolyse et le taux de perte de masse a été déterminé en utilisant le modèle de chaleur latente. La DNS a montré l'importance de la dépendance au temps du flux de chaleur tout au long de la paroi. Par ailleurs, ils ont proposé un modèle simplifié de flamme utilisant une approche basée sur la variable d'avancement de la réaction. Cette approche fournit une formulation locale, pertinente en termes de coût de calcul, afin de déterminer le flux de chaleur provenant de la

flamme. Ces résultats sont en accord avec les prédictions de la DNS et les résultats expérimentaux. Comme suggéré par les auteurs, une telle approche pourrait être utilisée dans la construction de modèles proche-paroi pour des simulations LES et RANS.

Dans leur étude expérimentale et numérique, Singh et Gollner [15] ont réalisé des simulations numériques bidimensionnelles instationnaires de flammes de diffusion laminaires en utilisant le code CFD commercial FLUENT. Ils ont supposé que le taux local de pyrolyse était proportionnel au gradient adimensionné de température à la surface du matériau. Une fonction définie par l'utilisateur est alors utilisée afin de représenter la source de masse due à la pyrolyse. Les résultats numériques et expérimentaux obtenus confirment l'existence d'une constante de proportionnalité dépendant du nombre de transfert de masse et des propriétés thermo-physiques de la phase gazeuse.

Plus récemment, Leventon et al. [24] ont combiné un modèle empirique de calcul du transfert thermique de la flamme vers le combustible avec le solveur de pyrolyse Thermakin2D afin de simuler les premières phases du processus de propagation de flamme sur une plaque de PMMA en position verticale. L'évolution du flux de chaleur provenant de la flamme en fonction du taux de pyrolyse est décrite. La calibration et la validation du modèle ont été réalisées à l'aide d'expérimentations sur des échantillons de PMMA de tailles pouvant varier de quatre ordres de grandeur, allant de plaques thermiquement fines à des plaques thermiquement épaisses.

2.3. Effet de la concentration en oxygène du milieu ambiant

Pour des conditions particulières de ventilation, la composition du milieu oxydant dans un local où un combustible brûle varie au cours du temps. L'oxygène y est consommé et remplacé par des produits de combustion. C'est le cas par exemple dans les installations nucléaires où les locaux sont confinés et ventilés mécaniquement. Lorsque le taux de renouvellement n'est pas suffisant, le foyer n'est plus suffisamment ventilé, ce qui conduit à une viciation de l'air et à une diminution de la concentration

en oxygène du milieu réactionnel. La combustion devient incomplète et la richesse du milieu réactionnel augmente.

En étudiant l'influence de la teneur en oxygène sur les propriétés radiatives de flammes de PMMA de 30 cm de diamètre, Santo et Tamanini ont montré que le débit de pyrolyse, l'émittance (ou pouvoir émissif) de la flamme et le rayonnement total diminuent avec la concentration en oxygène. Ils ont attribué cela à une diminution significative de la concentration en suies. Cela a été également observé par Brohez et al. [34] qui ont étudié expérimentalement l'évolution de la concentration de suies dans la flamme issue de la combustion de pyridine en diluant l'air avec un gaz inerte (CO_2 ou N_2). Ils ont montré qu'en augmentant la proportion de diluant (et donc en diminuant la teneur en oxygène), la hauteur de flamme diminue et que, proche de la limite d'extinction, la flamme devient presque transparente (absence de suies) et se déstructure en petites flammelles se déplaçant à la surface du combustible. D'après les auteurs, l'absence de production de suies peut être due à une baisse importante de la température de flamme. L'analyse des mesures obtenues (Figure 3) nous conduit à une conclusion plus nuancée. En utilisant du CO_2 comme diluant, la fraction massique de suies augmente légèrement de 21 % à 18 % d'oxygène, puis décroît rapidement en deçà. Avec du N_2 comme diluant, elle reste pratiquement constante entre 21 % et 18 % d'oxygène, augmente entre 18 % et 17 %, pour finalement décroître de 17 % à 13,5 %. Cette différence de comportement s'explique par une chaleur spécifique plus élevée du monoxyde de carbone, conduisant à une température de flamme plus basse.

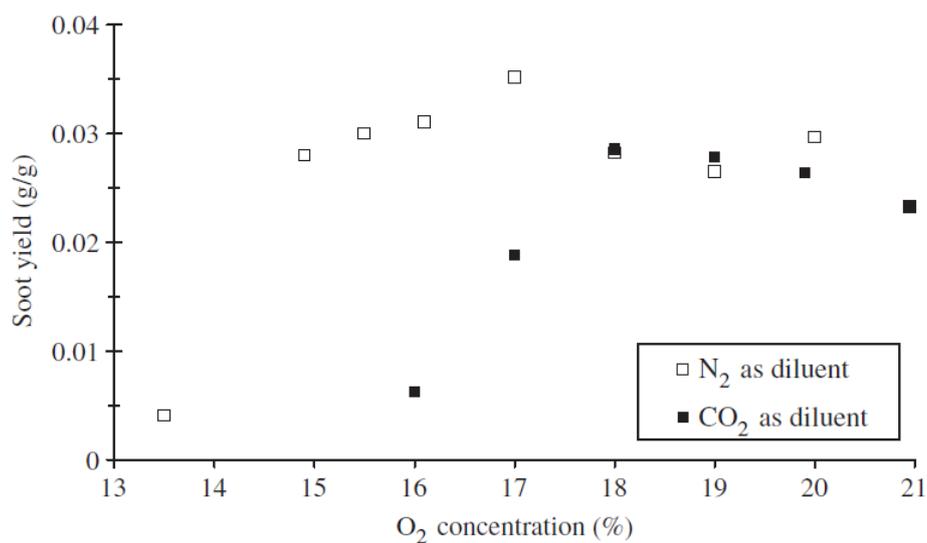


Figure 3. Evolution de la fraction de suies dans la flamme en fonction de la concentration en O₂ du milieu ambiant [34]

Les suies contribuent de façon significative au rayonnement de la flamme vers le combustible et donc au débit de pyrolyse. Hebert et al. [35], [36] ont montré, en utilisant la technique d'Incandescence Induite par Laser, que l'on pouvait même déduire le débit de pyrolyse de plaques verticales de PMMA des profils transversaux de concentration en suies. L'effet des suies sur le flux radiatif à la surface du combustible résulte en fait de plusieurs phénomènes en compétition. En effet, d'une part, la combustion incomplète favorise la production d'imbrûlés (+), comme le monoxyde de carbone ou les suies, mais entraîne, d'autre part, une diminution de la température de la phase gazeuse (-), ce qui réduit la production de suies (-) et, combiné avec une teneur en oxygène moindre, limite leur oxydation (-). La compétition entre ces différents phénomènes aboutit, pour des flammes de PMMA de 30 cm [37], à une diminution du rayonnement de la flamme vers la surface du combustible et donc du taux de pyrolyse. La température de flamme diminuant, on peut penser que le flux convectif diminue également avec la teneur en oxygène. Tewarson et al. [38] ont montré que le flux radiatif augmente avec la concentration en oxygène du milieu et que la contribution du flux convectif diminue (à l'exception de certains matériaux combustibles comme le polyoxyméthylène pour lequel la production de suies est moins importante).

L'effet d'une diminution de la teneur en oxygène sur l'évolution du taux de pyrolyse évoqué ci-dessus apparaît clairement dans les résultats obtenus lors de la campagne expérimentale PRISME de l'IRSN, pour différents niveaux de concentration d'oxygène dans le compartiment [39], ou dans l'étude du flux de chaleur reçu à la surface d'une nappe d'hydrocarbure dans le dispositif DIVA de l'IRSN [40]. Les premières données issues d'essais dans le dispositif à atmosphère contrôlée CADUCEE de l'IRSN [41] sur des flammes d'hydrocarbures montrent également une diminution de la puissance du feu, une réduction de la hauteur de flamme et de son pouvoir émissif (flammes bleutées), avec la concentration en oxygène du milieu réactionnel.

On peut citer enfin les travaux de Kashiwagi et Ohlemiller [42] sur les effets de la concentration en oxygène sur le processus de pyrolyse sans flamme de plaques verticales de PMMA exposées à une source radiative. Les auteurs ont réalisé des expérimentations de pyrolyse pure (avant inflammation) sous des atmosphères à 0 %, 5 %, 10 %, 20 % et 40 % de O₂. Ils ont observé que le débit massique de pyrolyse augmentait avec la concentration en O₂ et qu'à l'inverse, la température de surface diminuait légèrement. Par ailleurs, il a été observé que la présence de l'oxygène dans le gaz ambiant diminuait la viscosité de la couche proche-surface du PMMA. Les bulles qui éclatent à la surface du combustible engendrent un grand vide (jusqu'à ~1 mm de diamètre) qui permet à l'oxygène de mieux diffuser vers la surface du combustible. Ceci implique que l'oxygène affecte une couche plus épaisse à la surface de l'échantillon, ce qui favorise le processus de pyrolyse oxydative.

La viciation de l'air diminue à la fois le débit de pyrolyse \dot{m}_s (en kg.s⁻¹) et la chaleur libérée par la combustion, et par conséquent la puissance du feu (en W), définie par:

$$\dot{Q} = \dot{m}_s \Delta H_c^{eff} \quad (1)$$

où ΔH_c^{eff} est la chaleur effective de combustion (en J.kg⁻¹), chaleur de combustion attendue lorsque la combustion est incomplète. Elle est donc inférieure à la chaleur de combustion théorique ΔH_c , obtenue, par exemple, en bombe calorimétrique.

La relation ci-dessus est souvent reformulée en utilisant l'efficacité de combustion, $\chi = \Delta H_c^{eff} / \Delta H_c$; de sorte que :

$$\dot{Q} = \chi \dot{m}_s \Delta H_c \quad (2)$$

Des modèles globaux et prédictifs ont, par ailleurs, été développés par Nasr et al. [40], [43], [44] et Suard et al. [45] afin de déterminer les contributions radiative et convective au flux total en provenance de la flamme ainsi que le taux de pyrolyse, dans le dispositif DIVA. Leurs résultats montrent un bon accord avec les données expérimentales sur des feux de nappes [46] ainsi qu'avec la corrélation empirique de Peatross et Beyler [47], très utilisée dans la communauté incendie. Cette corrélation permet de relier le débit surfacique du combustible \dot{m}_s'' (en $\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) à celui obtenu à 21 % d'oxygène \dot{m}_{21}'' (en $\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) en fonction de la concentration volumique en O_2 mesurée à la base de la flamme, $\text{O}_2[\%]$:

$$\frac{\dot{m}_s''}{\dot{m}_{21}''} = 0.1 \text{O}_2[\%] - 1.1 \quad (3)$$

Cette corrélation a été établie en régime de combustion stationnaire dans des compartiments de grande taille. Elle néglige les flux de chaleur externes, limitant son domaine de validité à des scénarios pour lesquels les niveaux de température des gaz et des parois sont faibles.

Une autre corrélation empirique est souvent utilisée. Il s'agit de la corrélation d'Utiskul [48]:

$$\dot{m}_s'' = \dot{m}_{21}'' A_{F,b} \frac{Y_{\text{O}_2,\infty}}{Y_{\text{O}_2,21}} + \frac{\dot{q}_{e,r}}{L_v} \quad (4)$$

où $A_{F,b}$ est la surface de combustible recouverte par la flamme, $Y_{\text{O}_2,\infty}$ la fraction massique d'oxygène au voisinage du foyer, $Y_{\text{O}_2,21}$ la fraction massique d'oxygène en milieu ouvert, $\dot{q}_{e,r}$ le flux radiatif externe et L_v la chaleur latente de vaporisation.

Si cette corrélation inclut les contributions des fumées chaudes et des parois de confinement au débit de pyrolyse en milieu vicié, elle néglige l'effet du rayonnement de la flamme sur le débit de pyrolyse, ce qui limite son utilisation à des feux de petite taille [44].

Chapitre 3

MODELISATION DE LA PYROLYSE

3.1 • Rayonnement et propriétés radiatives du MST non gris

3.2 • Modélisation de la pyrolyse en surface et en volume

3.1.1. Pyrolyse en surface

3.1.2. Pyrolyse en volume

3.1.3. Résolution numérique

3.3 • Expérimentations

3.4 • Détermination des coefficients cinétiques par algorithme génétique

3.5 • Comparaison pyrolyse en volume/en surface

3.5.1. Pyrolyse pure (sans flamme)

3.5.2. Pyrolyse avec flamme

3.5.3. Quantification des écarts modèles/expérience

3.6 • Comportement gris/non gris

3.6 • Détermination de l'épaisseur de la zone bullée

Dans les cas de pyrolyse pure (sans flamme), la plaque horizontale de PMMA est exposée sous un cône calorimètre (Figure 4) à un flux calibré inférieur au flux critique d'inflammation spontanée (pour le PMMA translucide, ce flux critique est de 20 kW.m^{-2}). Dans les cas de pyrolyse avec flamme, le PMMA se dégrade et brûle sous l'action des flux radiatif et convectif provenant de la flamme qu'il génère (Figure 5).

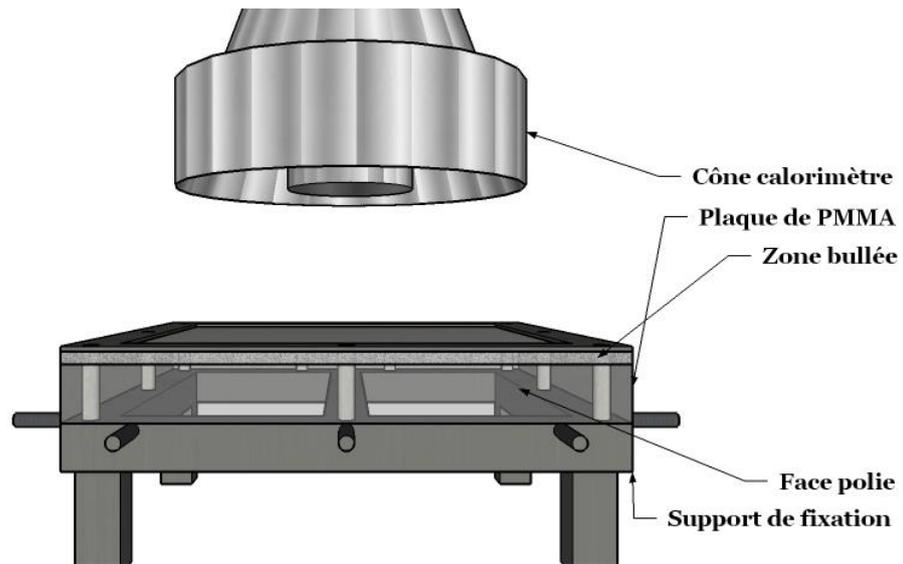


Figure 4. Pyrolyse sans flamme : plaque de PMMA exposée au rayonnement calibré du cône calorimètre

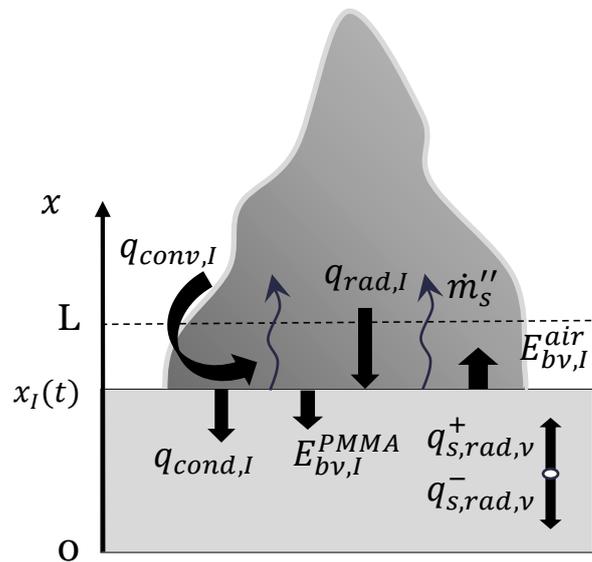


Figure 5. Pyrolyse avec flamme : modèle physique montrant les différentes composantes de transfert de masse et de chaleur impliquées à la surface en pyrolyse de la plaque de PMMA translucide

Au plan phénoménologique, le PMMA, exposé à une source de chaleur, subit une transition vitreuse entre 90 et 105 °C. Au fur et à mesure que sa température augmente, le polymère se ramollit et subit une dépolymérisation.

La cinétique de dégradation du PMMA implique un grand nombre de réactions chimiques et génère une multitude d'espèces gazeuses [49]. Les produits formés sont principalement du MMA, mais aussi du CO₂, du CO, du CH₃OH, du CH₄ et des résidus carbonés [50]. Quelques études proposent un schéma réactionnel détaillé [51], mais l'approche la plus couramment utilisée repose sur un schéma à une ou quelques réactions (voir, par exemple, [49], [52]–[54]) correspondant à la dépolymérisation et à la formation du MMA.

L'approche utilisée dans la présente étude se veut particulièrement simple puisqu'elle repose sur un schéma à une seule réaction, le polymère PMMA donnant le monomère MMA.

La cinétique chimique est pilotée par une loi d'Arrhenius de la forme $A \exp(-E/RT)$. Cette loi repose sur la connaissance de deux paramètres, à savoir la constante pré-exponentielle A et l'énergie d'activation E .

La pyrolyse du matériau s'accompagne de la formation sous l'interface exposée d'une zone bullée, matrice solide contenant des bulles de gaz combustibles. Les bulles se forment en profondeur, grossissent et coalescent à l'approche du front de pyrolyse, migrent et éclatent à la surface du matériau, générant quelques fois des petits jets de flamme [55]. Olson et Tien [56], puis plus récemment Beaulieu [57], montrent que la taille des bulles et l'épaisseur de la zone bullée changent avec l'intensité du flux incident. A bas flux, les bulles sont plus grosses et la zone bullée plus épaisse. A très haut flux, l'épaisseur de la zone bullée est du même ordre de grandeur que le diamètre des bulles.

On observe également à la surface du PMMA la formation d'une phase liquide (essentiellement des goudrons). Cette phase liquide noircit très rapidement et se couvre de suies, ce qui confère à l'interface un comportement radiatif proche de celui d'un corps noir [58].

Pour simuler la pyrolyse du PMMA translucide avec ou sans flamme, nous avons développé deux modèles, l'un surfacique, l'autre volumique, ainsi que différentes

variantes pour chacun d'eux selon que le milieu est opaque (MO) ou semi-transparent (MST), gris ou non gris. Certaines de ces variantes seront comparées par la suite.

Les hypothèses communes à chacun de ces modèles sont les suivantes :

- H1 : la conduction thermique dans le solide est unidimensionnelle, dans la direction normale à la surface ;
- H2 : la pyrolyse du PMMA conduit à la seule formation du monomère MMA ;
- H3 : le monomère gazeux MMA est libéré à la surface du solide aussitôt qu'il est produit au sein du solide ;
- H4 : la surface exposée de la plaque de combustible se comporte radiativement comme un parfait absorbeur et émetteur (interface noire);
- H5 : le solide se sublime parfaitement ;
- H6 : la phase liquide à l'interface et la phase gazeuse au sein du matériau, mais aussi la pyrolyse oxydative, ne sont pris en compte qu'au travers des paramètres cinétiques liés à la dégradation thermique du PMMA ;
- H7 : les propriétés thermo-physiques du PMMA sont constantes.

De plus, si le matériau est considéré comme semi-transparent, la diffusion du rayonnement au sein du matériau est négligée (H8).

Compte tenu de ces hypothèses, l'équation de bilan de l'énergie régissant l'évolution de la température du solide $T_s(x, t)$ dans la direction x , normale à l'interface gaz/solide, s'écrit :

$$\rho_s c_{ps} \frac{\partial T_s}{\partial t} - \lambda_s \frac{\partial^2 T_s}{\partial x^2} = \dot{Q}_s''' \quad (5)$$

où ρ_s est la masse volumique du solide, c_{ps} sa chaleur spécifique, λ_s sa conductivité thermique et \dot{Q}_s''' le terme source qui dépend du modèle de pyrolyse retenu, surfacique ou volumique, et de la nature du matériau, semi-transparent (MST) ou opaque (MO) :

$$\dot{Q}_s''' = \begin{cases} \dot{Q}_{s,ch}''' + \dot{Q}_{s,rad}''' & \text{MST et pyrolyse volumique} \\ \dot{Q}_{s,ch}''' & \text{MO et pyrolyse volumique} \\ \dot{Q}_{s,rad}''' & \text{MST et pyrolyse en surface} \\ 0 & \text{MO et pyrolyse en surface} \end{cases} \quad (6)$$

Si la pyrolyse se fait uniquement à l'interface supposée noire au plan radiatif, aucun terme source lié à la pyrolyse n'apparaît pas dans l'équation de l'énergie, la dégradation thermique étant prise en compte dans la condition de saut à l'interface.

3.1. Rayonnement et propriétés radiatives du MST non gris

Les travaux de Boulet et al. [58] ont montré que le PMMA translucide a un comportement non-gris marqué. Il est pratiquement transparent aux grands nombres d'onde et devient opaque dans l'infrarouge moyen. Le PMMA absorbe le rayonnement avec de grandes variations spectrales, ce qui *a priori* peut nécessiter une connaissance fine de l'évolution spectrale de l'absorption.

Lorsque le PMMA est considéré comme un milieu semi-transparent non gris, le terme source de rayonnement s'écrit :

$$\dot{Q}_{s,rad}''' = - \int_0^{\infty} \nabla \cdot \mathbf{q}_{s,rad,\nu} d\nu \quad (7)$$

où $\mathbf{q}_{s,rad,\nu}$ est le rayonnement incident et ν la fréquence [Hz].

La divergence du flux radiatif spectral, $\nabla \cdot \mathbf{q}_{s,rad,\nu}$ pour un milieu émettant, absorbant et non diffusant, peut être calculée simplement à l'aide de l'approximation de Schuster-Schwarzschild (ou S2 non symétrique) [59], [60] :

$$\nabla \cdot \mathbf{q}_{s,rad,\nu} = \frac{dq_{s,rad,\nu}^+}{dx} - \frac{dq_{s,rad,\nu}^-}{dx} \quad (8)$$

Les demi-flux radiatifs spectraux dans les hémisphères avant et arrière $q_{s,rad,v}^+$ et $q_{s,rad,v}^-$ sont solutions des équations suivantes :

$$+ \frac{dq_{s,rad,v}^+}{dx} = 2\kappa_v [E_{bv}^{PMMA}(T_s) - q_{s,rad,v}^+] \quad (9)$$

$$- \frac{dq_{s,rad,v}^-}{dx} = 2\kappa_v [E_{bv}^{PMMA}(T_s) - q_{s,rad,v}^-] \quad (10)$$

où, compte tenu de l'hypothèse d'interface noire, le terme $E_{bv,I}^{PMMA}$ représente l'émission spectrale de type corps-noir au sein du PMMA.

Pour le PMMA ayant un indice de réfraction n [61] :

$$E_{bv}^{PMMA}(T_s) = \frac{C_1 \nu^3 n^2}{c_0^4 (e^{C_2 \nu / c_0 T_s} - 1)} \quad (11)$$

avec $c_0 = 2,998 \times 10^8$ m.s⁻¹, $C_1 = 3,7419 \times 10^{-16}$ W.m² et $C_2 = 0,01438769$ m.K [61].

En utilisant les conditions aux limites en face avant et arrière, $q_{\eta}^+(s)$ et $q_{\eta}^-(L)$, les équations (9) et (10) peuvent être intégrées analytiquement par rapport à x pour donner :

$$q_{s,rad,v}^+(x) = q_{s,rad,v}^+(0)e^{-2\kappa_v x} + 2\kappa_v e^{-2\kappa_v x} \int_0^x E_{bv}^{PMMA}(T_s) e^{2\kappa_v x^*} dx^* \quad (12)$$

$$q_{s,rad,v}^-(x) = q_{s,rad,v}^-(x_I) e^{+2\kappa_v (x-x_I)} + 2\kappa_v e^{+2\kappa_v x} \int_x^{x_I} E_{bv}^{PMMA}(T_s) e^{-2\kappa_v x^*} dx \quad (13)$$

La méthode de Simpson est utilisée pour calculer les intégrales, tandis que l'équation de bilan de l'énergie est discrétisée sur un maillage cartésien non-uniforme en utilisant la méthode des volumes finis de second ordre.

Le coefficient d'absorption spectral κ_v a été déterminé par Boulet et al. [58] à partir des données FTIR (Fourier Transform Infra-Red) spectrométriques pour le PMMA translucide à une très haute précision, avec pas moins de 7668 bandes spectrales (Figure 6).

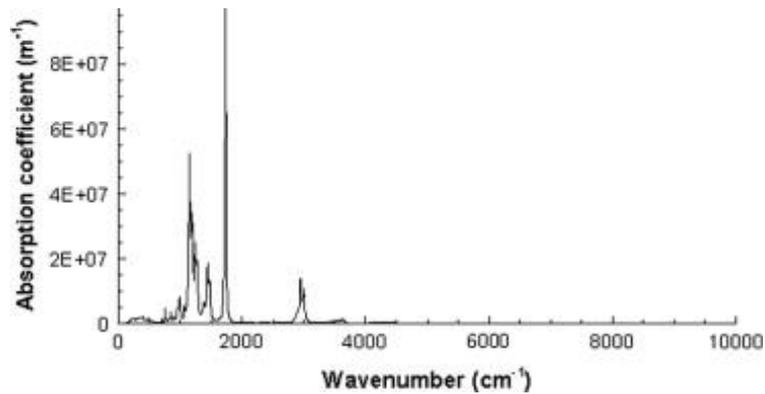


Figure 6. Coefficient d'absorption spectral en fonction du nombre d'onde (figure extraite de [17])

Un modèle à 46 bandes de largeur variable a été déduit du modèle à 7668 bandes. Le modèle à 46 bandes permet de diminuer le temps de calcul, sans altérer la solution obtenue avec le modèle plus résolu.

3.2. Modélisations de la pyrolyse en surface et en volume

3.2.1. Pyrolyse en surface

Si l'on suppose que la pyrolyse a lieu uniquement à l'interface gaz/solide, aucun terme source lié à la pyrolyse n'apparaît dans l'équation de bilan de l'énergie dans le solide qui se réduit alors à :

$$\rho_s c_{ps} \frac{\partial(T_s)}{\partial t} = \lambda_s \frac{\partial^2 T_s}{\partial x^2} - \int_0^\infty \nabla \cdot \mathbf{q}_{s,rad,\nu} d\nu \quad (14)$$

En exprimant la divergence du flux radiatif à l'aide des équations (8) à (10), il vient :

$$\rho_s c_{ps} \frac{\partial(T_s)}{\partial t} = \lambda_s \frac{\partial^2 T_s}{\partial x^2} + \int_0^\infty [2\kappa_\nu (q_{s,rad,\nu}^+ + q_{s,rad,\nu}^-) - 4\kappa_\nu E_{bv}^{PMA}(T_s)] d\nu \quad (15)$$

Les conditions initiales et aux limites associées sont données par :

- Condition initiale : $T_s(x, 0) = T_{s,0}$
- Condition aux limites sur la face supérieure ($x = x_I(t)$) :

$$\lambda_s \frac{\partial T_s}{\partial x} \Big|_{x=x_I(t)} = q_{rad,I} + q_{conv,I} - \dot{m}'' H_g + \int_0^\infty [q_{s,rad,v}^+(x_I) - q_{s,rad,v}^-(x_I) - E_{bv,I}^{air}] dv \quad (16)$$

- Conditions aux limites sur la face inférieure ($x = 0$) :

$$-\lambda_s \frac{\partial T_s}{\partial x} \Big|_{x=0} = q_{conv,0} + \int_0^\infty [q_{s,rad,v}^-(0) - q_{s,rad,v}^+(0)] dv \quad (17)$$

$$q_{s,rad,v}^+(0) = \varepsilon_0 E_{bv,0}^{PMMA} + (1 - \varepsilon_0) q_{s,rad,v}^-(0) \quad (18)$$

où $q_{s,rad,v}^-(x_I) = E_{bv,I}^{PMMA}$ et $E_{bv,I}^{air} = C_1 v^3 / c_0^4 (e^{C_2 v / c_0 T_{sI}} - 1)$, $E_{bv,0}^{PMMA} = E_{bv}^{PMMA}(T_{s0})$,
 $q_{conv,0} = h_{conv,0}(T_\infty - T_{s0})$ et $q_{conv,I} = h_{conv,I}(T_{ext} - T_{sI})$, avec $T_{sI} = T_s(x_I, t)$ et
 $T_{s0} = T_s(0, t)$.

Dans ces équations, ε_0 est l'émissivité de la face inférieure, $q_{rad,I}$ le flux radiatif incident, T_{ext} et T_∞ sont les températures extérieure et ambiante, $h_{conv,0}$ et $h_{conv,I}$ les coefficients de transfert convectif aux faces inférieure et supérieure.

La dégradation thermique est gouvernée par la loi d'Arrhenius suivante :

$$\dot{m}_s'' = A_p \exp\left(-\frac{E_p}{RT_{sI}}\right) \quad (19)$$

et la vitesse de régression de la surface u_{reg} est proportionnelle au taux de pyrolyse selon :

$$u_{reg} = \frac{dx_I}{dt} = \frac{\dot{m}_s''}{\rho_s} \quad (20)$$

où $x_I(t)$ représente la position de l'interface au cours du temps.

3.2.2. Pyrolyse en volume

Dans le cas d'une pyrolyse en volume, il est supposé que la décomposition thermique du combustible est gouvernée par une loi d'Arrhenius du premier ordre qui dépend de la température locale instantanée dans le solide T_s . Le taux de génération de produits de pyrolyse par unité de volume du combustible est donc donné par

$$\dot{m}_s''' = \rho_s A_s e^{-\left(\frac{E_s}{RT_s}\right)} \quad (21)$$

où E_s et A_s représentent l'énergie d'activation et le facteur pré-exponentiel et ρ_s est la masse volumique intrinsèque du PMMA.

La vitesse de régression de la surface est liée au taux de génération de produits de pyrolyse par unité de volume \dot{m}_s''' comme suit :

$$\rho_s u_{reg} = \int_0^{x_I(t)} -\dot{m}_s''' dx \quad (22)$$

Dans le présent travail, il est supposé que les produits de pyrolyse (i.e. le MMA) sont libérés directement à la surface du combustible dès qu'ils sont produits, ce qui signifie que les gaz de pyrolyse ne restent pas piégés au sein du solide. Le flux massique local des produits de pyrolyse est donc relié à la vitesse d'éjection des produits de pyrolyse à l'interface gaz/solide, u_x , par :

$$\dot{m}_s'' = \rho u_x = -(\rho_s - \rho)u_{reg} \approx -\rho_s u_{reg} \quad (23)$$

L'équation de chaleur unidimensionnelle au sein du solide semi-transparent ($0 \leq x \leq x_I(t)$) peut s'écrire comme suit :

$$\rho_s c_{ps} \frac{\partial T_s}{\partial t} = \lambda_s \frac{\partial^2 T_s}{\partial x^2} + \dot{Q}_{s,ch}''' + \dot{Q}_{s,rad}''' \quad (24)$$

où le terme source chimique $\dot{Q}_{s,ch}'''$ est relié au taux de dégradation volumétrique par la relation suivante :

$$\dot{Q}_{s,ch}''' = -H_g \dot{m}_s''' \quad (25)$$

La chaleur de gazéification H_g inclut les chaleurs latentes de vaporisation, de pyrolyse et de fusion du PMMA [17], [62].

En exprimant la divergence du flux radiatif à l'aide des équations (8) à (10), l'équation (24) devient alors

$$\frac{\partial(\rho_s c_{ps} T_s)}{\partial t} = \lambda_s \frac{\partial^2 T_s}{\partial x^2} - H_g \dot{m}_s''' + \int_0^\infty [2\kappa_\nu (q_{s,rad,\nu}^+ + q_{s,rad,\nu}^-) - 4\kappa_\nu E_{bv}^{PMMA}(T_s)] d\nu \quad (26)$$

Les conditions initiales et aux limites sont les mêmes que dans le cas du modèle de pyrolyse surfacique, à l'exception du terme $\dot{m}'' H_p$. Ce terme apparaît dans l'équation de bilan d'énergie du modèle volumique, mais disparaît de la condition à la limite sur la face supérieure de la plaque ($x = x_I(t)$) qui devient :

$$\lambda_s \frac{\partial T_s}{\partial x} \Big|_{x=x_I(t)} = q_{rad,I} + q_{conv,I} + \int_0^\infty [q_{s,rad,\nu}^+(x_I) - q_{s,rad,\nu}^-(x_I) - E_{bv,I}^{air}] d\nu \quad (27)$$

3.2.3. Résolution numérique

Le système des équations couplées (9), (10) et (15) pour la pyrolyse surfacique, ou des équations couplées (9), (10) et (26) pour la pyrolyse volumique, est résolu par la méthode des volumes finis en utilisant un schéma d'ordre un en temps et un schéma centré d'ordre deux pour le terme de diffusion. Le maillage est cartésien non-uniforme. La régression de la surface est prise en compte en utilisant une formulation ALE (Arbitrary Lagrangian Eulerian) [63], [64].

3.3. Expérimentations

La méthodologie utilisée pour déterminer les paramètres cinétiques du PMMA est basée sur l'identification des résultats prédits par le modèle de pyrolyse aux données expérimentales d'une expérience de pyrolyse sans flamme sous cône calorimètre via un algorithme d'optimisation de type algorithme génétique [65], [66].

Les expériences de pyrolyse pure ont été réalisées par Pizzo et al. [17], en utilisant des plaques de PMMA translucide de 10cm×10cm×3cm. Le dispositif expérimental est présenté sur la Figure 7. Les plaques ont été soumises à un flux radiatif incident de 18 kW.m⁻², légèrement inférieur au flux critique d'inflammation spontanée. Les faces latérales ont été polies afin de pouvoir suivre l'évolution au cours du temps de la position de l'interface gaz/solide au moyen d'une caméra CCD. Deux thermocouples ont été introduits dans la plaque à 5 mm (TC5) et 25 mm (TC25) à partir de la face inférieure. Le dispositif expérimental a été placé sur une balance électronique afin de mesurer l'évolution de la perte totale de masse avec le temps. La dérivée temporelle de cette perte de masse divisée par la surface de pyrolyse donne le taux de pyrolyse total (MLR). Les incertitudes sur les mesures sont de l'ordre de ± 5 °C pour la température, ± 3 % sur la perte de masse, ± 1 kW.m⁻² pour le flux et $\pm 0,5$ mm sur la position de l'interface. L'incertitude sur la position de l'interface correspond au diamètre des plus grosses bulles.

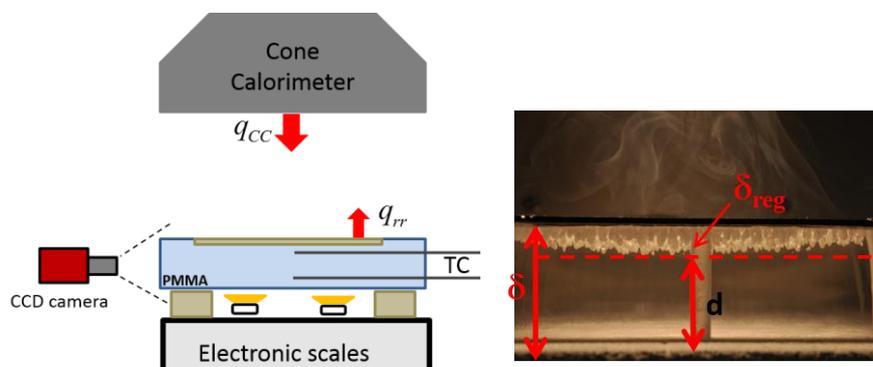


Figure 7. Dispositif expérimental sous cône calorimètre (reproduit à partir de [17])

3.4. Détermination des coefficients cinétiques par algorithme génétique (AG)

L'approche utilisée dans la présente étude se veut particulièrement simple puisqu'elle repose sur une loi d'Arrhenius de la forme $A \exp(-E/RT)$ où A est la constante pré-exponentielle et E l'énergie d'activation.

Ces paramètres cinétiques sont généralement obtenus à partir de données d'expérimentations en cône calorimètre ou FPA (Fire Propagation Apparatus). Le problème lié à l'utilisation de valeurs issues de la littérature est double : la littérature montre une grande dispersion de ces paramètres cinétiques et les paramètres sont étroitement liés au procédé de polymérisation du PMMA utilisé. Pour pallier ce problème, nous avons ici déterminé le meilleur jeu de paramètres cinétiques, incluant la chaleur de gazéification du PMMA, H_g , en combinant le modèle de pyrolyse, surfacique ou volumique, avec un algorithme génétique. Ce jeu optimal de paramètres est celui qui conduit au meilleur accord entre les résultats de simulation et les résultats expérimentaux.

L'algorithme génétique (AG) est un algorithme d'optimisation qui s'inspire des lois d'évolution. Il permet d'approcher efficacement les valeurs recherchées en manipulant des populations (ici, une population est constituée d'individus, chaque individu étant constitué du triplet de paramètres ou gènes $\{A, E, H_g\}$) et en les faisant évoluer à l'aide d'opérateurs de sélection, de croisement et de mutation.

L'intérêt de cette méthode est que seule la connaissance des valeurs de la fonction à optimiser aux points d'échantillonnages est nécessaire (méthode stochastique d'ordre 0). D'autre part, les opérations d'évolution mises en œuvre produisent, statistiquement, des individus de plus en plus proches de la solution recherchée. Par ailleurs, l'AG est un procédé d'optimisation multi-objectif et multicritères, ainsi on peut l'utiliser pour déterminer plusieurs variables selon plusieurs critères de convergence.

L'utilisation de l'AG (Figure 8) dans la détermination du jeu de paramètre adéquat pour notre problème se présente comme suit :

1. Génération d'une population initiale de N individus (X_1, X_2, \dots, X_N) . Chaque individu est composé de trois paramètres ou gènes : $X_j = \{E_j, A_j, H_{gj}\}$,
2. Simulation de la dégradation thermique pour chaque individu de la population,
3. Evaluation de l'erreur absolue entre les résultats du modèle et les mesures expérimentales du taux de pyrolyse (MLR) et des températures au sein du solide, et l'attribution d'un score (fitness) pour chaque individu,
4. Classement des individus de la population par leurs scores,
5. Conservation des meilleurs individus (ici, 75 %) de la population,
6. Génération aléatoire de la part restante de la population (ici, 25 %),
7. Mutation et croisements des individus,
8. Redémarrage de la boucle à partir de l'étape 2 pour la génération suivante,
9. Arrêt après N_{gen} générations.

La fonction « fitness » de l'individu X_j a été évaluée à des temps discrets n par

$$f^n(X_j) = w_{MLR} |MLR_{cal}^n - MLR_{exp}^n| + w_{TC5} |TC5_{cal}^n - TC5_{exp}^n| + w_{TC25} |TC25_{cal}^n - TC25_{exp}^n| \quad (28)$$

L'indice *exp* correspond aux données expérimentales et l'indice *cal* correspond aux résultats de simulation obtenus avec le modèle de pyrolyse. Les facteurs de pondération w_i sont des constantes définies par l'utilisateur qui déterminent l'importance relative de chacune des composantes de la fonction fitness, et qui vérifient la condition $\sum w_i = 1$. Le score final de chaque individu est calculé en moyennant ses scores sur le temps :

$$f(X_j) = \frac{1}{N_{data}} \sum_{n=1}^{N_{data}} f^n(X_j) \quad (29)$$

où N_{data} est le nombre d'instantanés sur lesquels les données expérimentales ont été recueillies.

Les données d'entrée du modèle de pyrolyse, surfacique ou volumique, sont présentées dans le Tableau 2.

Tableau 2. Données d'entrée du modèle de pyrolyse

Paramètre	Valeur
Densité, ρ_s (kg.m ⁻³)	1150 [17]
Conductivité thermique, λ_s (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	0,185 [17]
Chaleur spécifique, c_{ps} (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹)	2400 [22]
Indice de réfraction, n (-)	1,5 [17]
Emissivité de la face inférieure, ε_0 (-)	0,9 [17]
Température extérieure, T_{ext} (K)	330
Température ambiante, T_∞ (K)	300
Flux radiatif externe, $q_{rad,I}$ (kW.m ⁻²)	18
Coefficient d'échanges convectifs à la face supérieure, $h_{conv,I}$ (W.m ⁻² .K ⁻¹)	6
Coefficient d'échanges convectifs à la face inférieure, $h_{conv,0}$ (W.m ⁻² .K ⁻¹)	3 ^d

Le meilleur accord entre les résultats des simulations obtenues avec le modèle de pyrolyse surfacique et les données expérimentales sur le taux de pyrolyse et les températures internes (Figure 9) a été obtenu en utilisant le jeu de paramètres cinétiques donné dans le Tableau 3. Après avoir étudié la sensibilité de la solution aux variations des coefficients de pondération, les valeurs retenues sont : $w_{MLR} = 0,5$, $w_{TC5} = 0,4$ et $w_{TC25} = 0,1$. Afin de ne pas forcer la solution, la distance de régression de l'interface n'a pas été prise en compte dans le calcul du score de « fitness ». Comme le montrent la Figure 9a, un excellent accord a été observé entre les évolutions temporelles de cette distance prédite par le modèle et celle mesurée expérimentalement.

^d La valeur du coefficient de transfert convectif à la surface inférieure de la plaque chauffée a été déterminée à partir de la corrélation impliquant le nombre de Nusselt [67]: $Nu = 0,27Ra^{1/4}$, avec $Ra = \frac{g\beta\Delta TL^3}{\nu\alpha}$. Utilisant $g = 9,81$ m/s², $\beta = 0,0033$ K⁻¹, $\nu = 16,2 \times 10^{-6}$ m²/s, $\alpha = 22,9 \times 10^{-6}$ m²/s, $\Delta T = 40$ K, $L = 0,1$ m, on a : $Nu = 11,7$ et donc $h_{conv,0} = 3,1$ W/m²/K.

La même procédure a été appliquée au modèle volumique. Les paramètres cinétiques obtenus par l'AG sont rassemblés dans le Tableau 4. Là encore, la position de l'interface au cours du temps est bien reproduite par le modèle (Figure 10a).

Dans le Tableau 4, les valeurs obtenues en couplant l'AG avec le modèle de pyrolyse volumique sont comparées à des valeurs de la littérature. Les valeurs obtenues concernant le facteur pré-exponentiel et l'énergie d'activation sont relativement proches de celles trouvées dans Vovelle et al. [22]. Quant à la chaleur de gazéification, la valeur de $2,08 \text{ MJ.kg}^{-1}$ que nous avons trouvée est en cohérence avec les valeurs calculées et mesurées de Vovelle et al. et de Wilde [62] pour différents modes de chauffe.

Les valeurs obtenues des paramètres cinétiques pour le modèle de pyrolyse surfacique apparaissent plutôt comme des paramètres effectifs liés à la formulation du modèle.

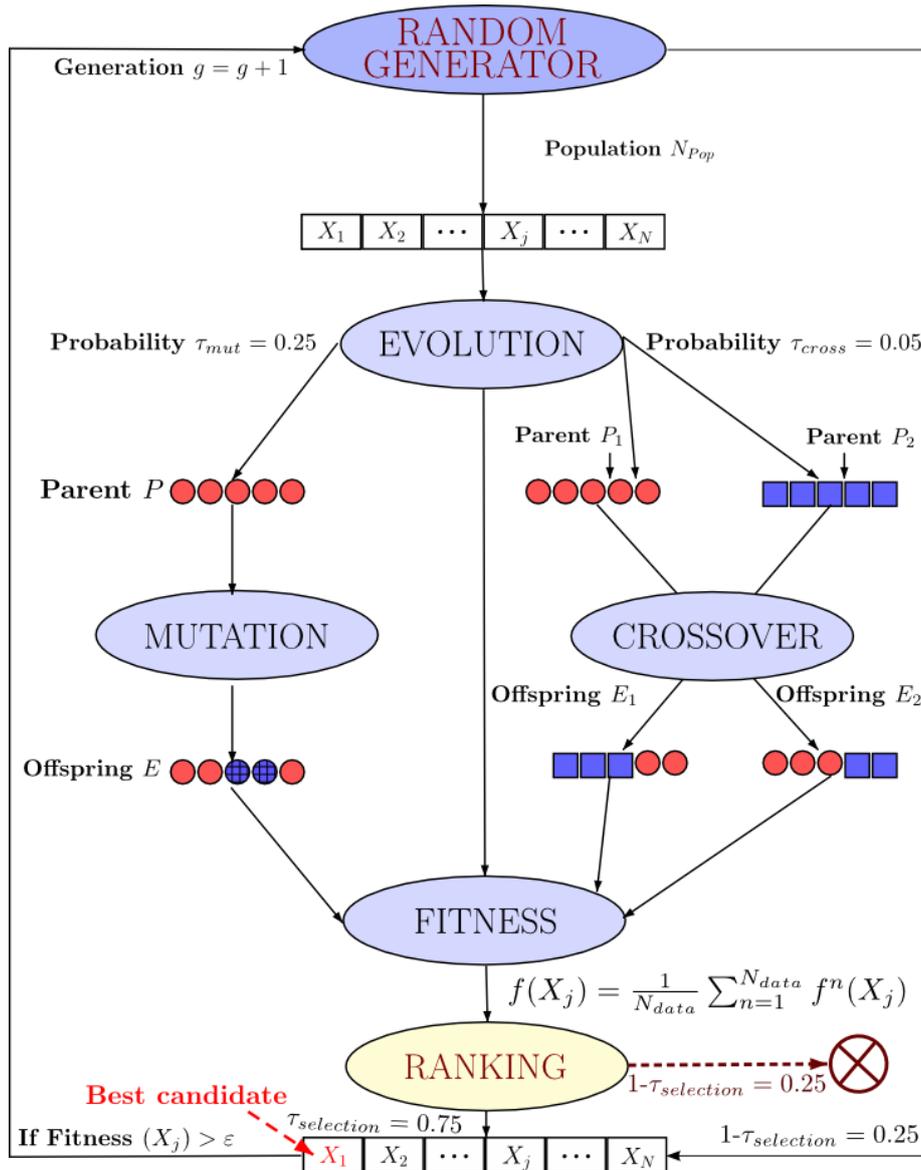


Figure 8. Principe de fonctionnement d'un algorithme génétique

Tableau 3. Valeurs des paramètres cinétiques obtenues par AG pour le modèle de pyrolyse surfactive

Chaleur de pyrolyse, H_g (J.kg ⁻¹)	$9,10 \times 10^5$
Facteur pré-exponentiel, A_p (kg.m ⁻² .s ⁻¹)	$4,07 \times 10^{11}$
Energie d'activation, E_p (J.mol ⁻¹)	$1,59 \times 10^5$

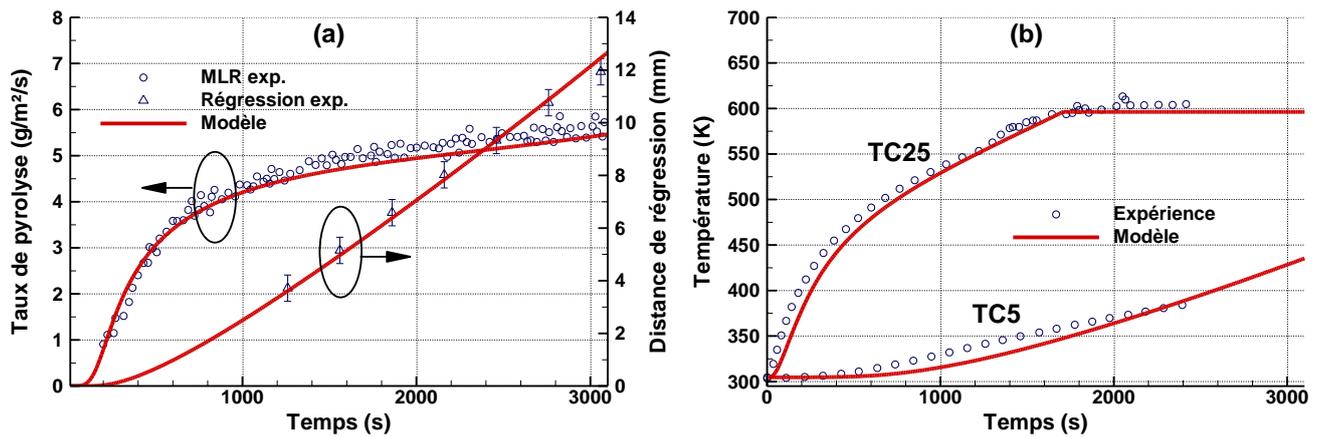


Figure 9. Modèle surfacique à 18 kW.m^{-2} : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et distance de régression de l'interface au centre de la plaque et (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5 \text{ mm}$ et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles

Tableau 4. Valeurs des paramètres cinétiques obtenues par AG pour le modèle de pyrolyse volumique et comparaison avec les valeurs issues de Vovelle et al. [22] et de Wilde [62]

	Ce travail	Vovelle et al. [22]	de Wilde [62]
Chaleur de gazéification, H_g (MJ.kg^{-1})	2,08	1,73 ^a 1,70 ^b	2,15 ^a 1,30-1,70 ^b 2,00-2,70 ^c
Facteur pré-exponentiel, A_s (s^{-1})	$3,92 \times 10^9$	$3,20 \times 10^9$	-
Energie d'activation, E_s (J.mol^{-1})	$1,36 \times 10^5$	$1,42 \times 10^5$	-

^a Calculé

^b mesures réalisées sur des échantillons verticaux de PMMA exposés à un flux radiatif

^c mesures réalisées sur des échantillons verticaux de PMMA exposés à un flux convectif

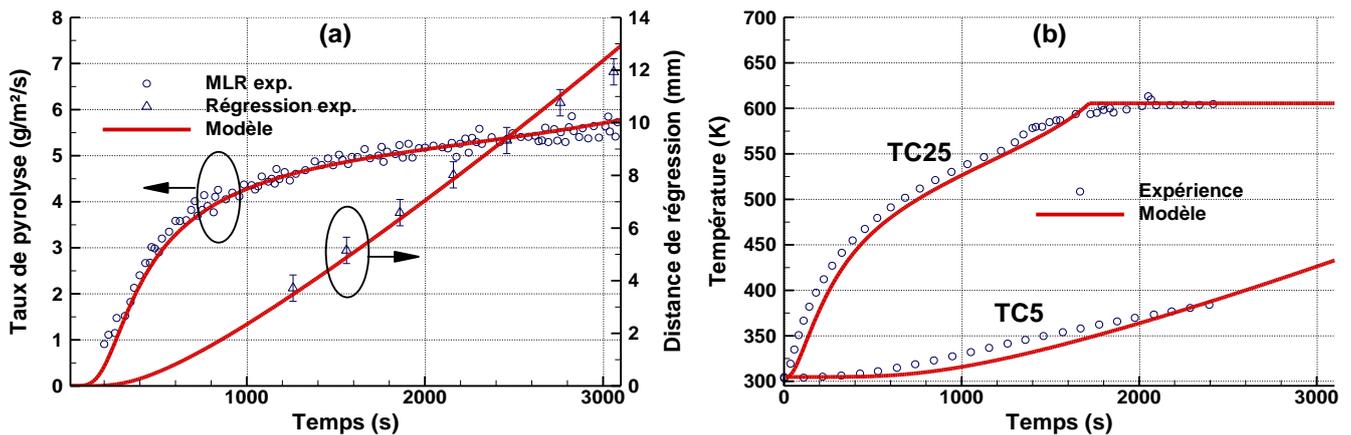


Figure 10. Modèle volumique à 18 kW.m^{-2} : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et distance de régression de l'interface au centre de la plaque et (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5 \text{ mm}$ et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles

3.5. Comparaison pyrolyse en volume/ en surface

Dans ce paragraphe, nous comparons les modèles de pyrolyse en surface et en volume, en utilisant les données du Tableau 2 et les valeurs des paramètres cinétiques rassemblées dans les Tableau 3 et Tableau 4. Les simulations ont été réalisées dans le cas d'un matériau non gris (prise en compte des variations spectrales du coefficient d'absorption du PMMA).

La validation et la comparaison des modèles de pyrolyse portent sur les configurations expérimentales étudiées par Pizzo et al. [17]:

- Pyrolyse pure (sans flamme) : une plaque horizontale de PMMA de $10 \times 10 \times 3 \text{ cm}^3$ a été exposée à un flux radiatif incident de 14 ou 18 kW.m^{-2} , inférieur au flux critique d'inflammation spontanée, sous cône calorimètre (Figure 7).

Deux thermocouples ont été positionnés à 5 mm (TC5) et 25 mm (TC25) de la face inférieure de la plaque. Une caméra CCD a permis de suivre la régression de la surface.

Les mesures ont porté sur les évolutions temporelles du débit de pyrolyse, de la position de l'interface et des températures internes TC5 et TC25.

- Pyrolyse avec flamme : une plaque verticale de PMMA de $5 \times 10 \times 3 \text{ cm}^3$ a été exposée à la flamme issue de la combustion stationnaire d'une plaque de PMMA verticale de $10 \times 10 \times 3 \text{ cm}^3$, placée en-dessous. La combustion stationnaire a été obtenue après 1000 s, temps à partir duquel l'exposition à la flamme de la petite plaque a débuté. La petite plaque a été alors exposée à un flux incident d'environ $24,5 \text{ kW.m}^{-2}$ (i.e. un flux radiatif de 7 kW.m^{-2} et un flux convectif de $17,5 \text{ kW.m}^{-2}$) [17] et à une température de flamme de l'ordre de 1300 K (Figure 11).

Les mesures ont porté sur les évolutions temporelles de la position de l'interface et des températures à l'intérieur du solide. Comme précédemment, deux thermocouples ont été placés à 5 (TC5) et 25 mm (TC25) de la face non exposée à la flamme.

On rappelle, au plan numérique, que les paramètres cinétiques ont été obtenus par algorithme génétique dans le cas de pyrolyse pure pour un flux radiatif incident de 18 kW.m^{-2} et qu'ils ont été utilisés pour toutes les autres configurations (sans flamme à $\Phi = 14 \text{ kW.m}^{-2}$ et avec flamme).

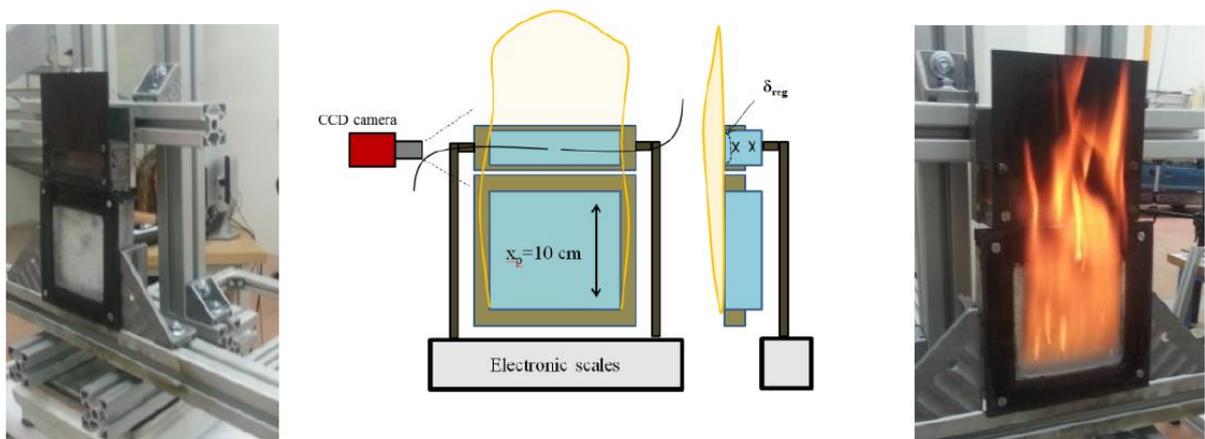


Figure 11. Configuration de pyrolyse avec flamme

3.5.1. Pyrolyse pure (sans flamme)

La Figure 12 représente les évolutions au cours du temps du débit de pyrolyse, de la position de l'interface et des deux températures internes TC₅ et TC₂₅, calculées avec chacun des modèles et mesurées [17], sur une durée de 3000 s. Le flux radiatif incident est ici de 18 kW.m⁻², flux pour lequel le jeu optimal de paramètres cinétiques a été obtenu.

Ces mêmes évolutions sont tracées sur la Figure 13 pour un flux radiatif incident de 14 kW.m⁻² et sur une durée de 4000 s.

Les résultats obtenus avec le modèle volumique sont dans l'ensemble en meilleur accord avec l'expérience, en particulier pour le débit de pyrolyse.

A 18 kW.m⁻², valeur pour laquelle les paramètres cinétiques des modèles surfacique et volumique ont été obtenus avec l'AG, on observe une légère sous-estimation du débit de pyrolyse à partir de 700 s avec le modèle surfacique. Cela est dû à une grande sensibilité du modèle surfacique à la valeur de la température à l'interface. Le modèle volumique donne, quant à lui, un excellent accord avec l'expérience. La régression de surface et les températures internes sont bien calculées avec les deux modèles, avec une meilleure estimation de TC₂₅ avec le modèle volumique au moment où l'interface arrive sur ce thermocouple, aux environs de 1650 s. Les deux modèles conduisent à une sous-estimation de la montée en température TC₅, sans doute due à la non prise en compte de la dépendance en température des propriétés thermiques du matériau.

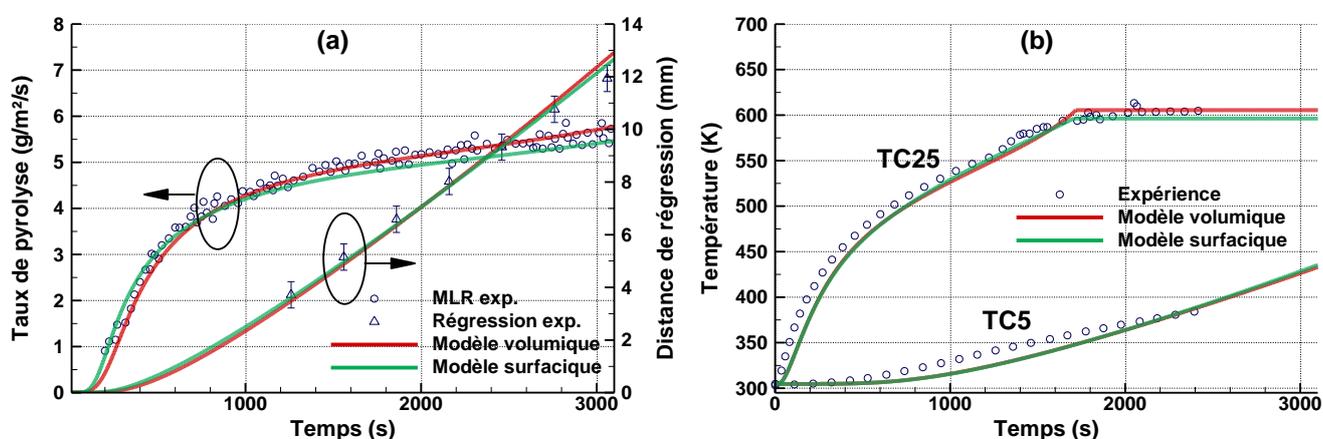


Figure 12. Pyrolyse pure à 18 kW.m⁻² - Comparaison des modèles de pyrolyse volumique et surfacique : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et distance de régression de l'interface au centre de la plaque et (b) températures TC₅ et TC₂₅. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5$ mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles

A 14 kW.m^{-2} , on observe des écarts avec l'expérience, notamment sur l'évolution temporelle de la régression de surface que les deux modèles sous-estiment (Figure 13a). Cependant, le modèle volumique donne un meilleur accord avec les résultats expérimentaux, notamment en ce qui concerne la pente de la courbe de régression. Les évolutions prédites des températures au sein du matériau au cours du temps sont similaires (Figure 13b), avec comme précédemment une sous-estimation chronique de TC5 sur les premières 3000 s.

Le bon accord modèles/expérience observé à 18 kW.m^{-2} se dégrade à plus bas flux, en particulier avec le modèle surfacique. Comme on pouvait s'y attendre, on se rapproche des limites de validité des modèles en raison d'un changement de comportement du matériau à bas flux. En effet, à bas flux, les observations montrent la présence d'une phase liquide très visqueuse qui limite le transport des produits de pyrolyse vers la surface et modifie le comportement thermique du matériau [20], ce que les modèles ne prennent pas en compte.

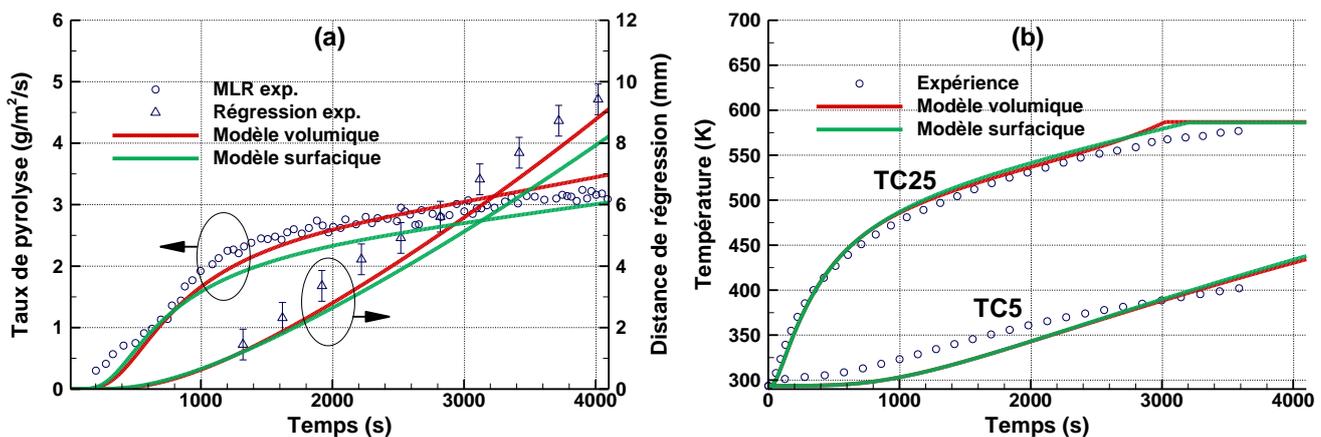


Figure 13. Pyrolyse pure à 14 kW.m^{-2} - Comparaison des modèles de pyrolyse volumique et surfacique : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et distance de régression de l'interface au centre de la plaque et (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5 \text{ mm}$ et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles

3.5.2. Pyrolyse avec flamme

Comme on peut le voir sur la Figure 14 correspondant au cas de pyrolyse avec flamme, la régression de l'interface en fonction du temps mesurée expérimentalement est mieux reproduite avec le modèle de pyrolyse en volume. Compte tenu de l'incertitude liée à la mesure de la position de la surface qui pyrolyse (on rappelle qu'elle correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles, $\pm 0,5$ mm), l'accord est satisfaisant. C'est le cas également pour la température interne TC25. La valeur TC25 prédite avec le modèle volumique atteint 625 K au moment où l'interface arrive au niveau du thermocouple. Elle sature ensuite, alors que la température mesurée continue à croître, en raison du fait que le thermocouple commence à « voir » la flamme. Aux environs de 1300 s, au moment où l'interface arrive sur le thermocouple, la température mesurée est d'environ 620 K, très proche de la valeur prédite.

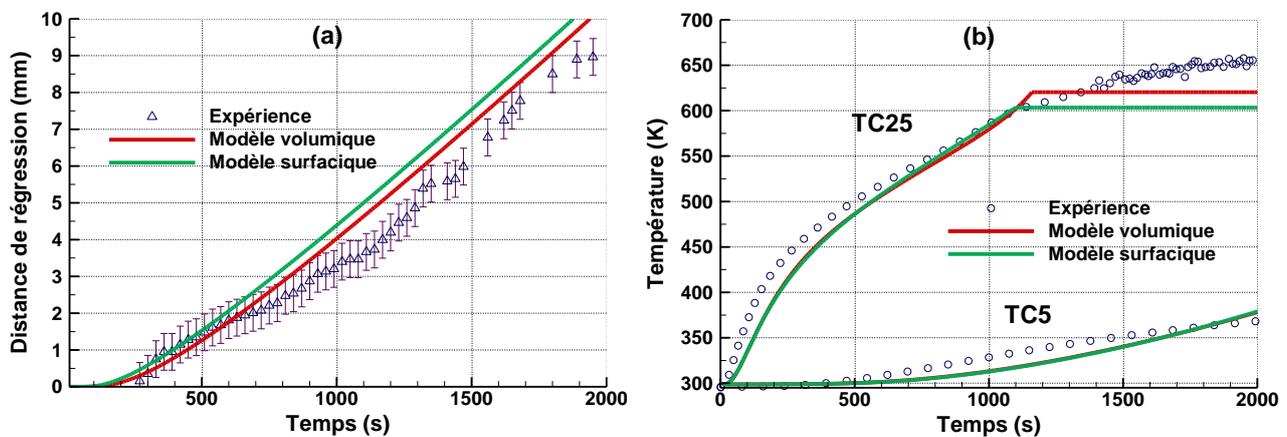


Figure 14. Pyrolyse avec flamme - Comparaison des modèles de pyrolyse volumique et surfacique : évolutions temporelles de : (a) la distance de régression de l'interface au centre de la plaque et des (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5$ mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles

3.5.3. Quantification des écarts modèles/expérience

Le Tableau 5 présente les erreurs relatives en normes $L1^e$ et $L2^f$ sur le taux de pyrolyse pour les deux modèles de pyrolyse dans les cas de pyrolyse pure à 14 et 18 kW.m⁻² et sur la distance de régression de l'interface dans le cas de pyrolyse avec flamme. Logiquement, les erreurs les plus faibles sont obtenues dans le cas à 18 kW.m⁻² pour lequel les paramètres cinétiques ont été calibrés. Dans les autres cas, les erreurs relatives restent acceptables, avec des erreurs toujours plus faibles lorsque la modélisation de la pyrolyse est volumique.

Compte tenu de ces résultats et de la pertinence physique des paramètres cinétiques obtenus (voir Tableau 3 et Tableau 4), nous avons retenu le modèle de pyrolyse en volume pour la suite de l'étude.

Tableau 5. Erreurs relatives en norme L1 et L2 sur le taux de pyrolyse dans les cas de pyrolyse pure et sur la distance de régression de l'interface dans le cas de pyrolyse avec flamme

Erreur relative	Modèle volumique		Modèle surfacique	
	L ₁	L ₂	L ₁	L ₂
Pyrolyse pure à 18 kW.m ⁻²	3,79%	3,59%	4,49%	4,53%
Pyrolyse pure à 14 kW.m ⁻²	12,55%	8,26%	16,10%	13,18%
Pyrolyse avec flamme	18,90%	15,58%	27,37%	22,61%

^e Erreur relative en norme $L1$: $e = 1/n \sum_{i=1}^n |X_{cal}^i - X_{exp}^i| / |X_{exp}^i|$, n étant le nombre de points de mesures de la grandeur X .

^f Erreur relative en norme $L2$: $e = \sqrt{\sum_{i=1}^n (X_{cal}^i - X_{exp}^i)^2 / \sum_{i=1}^n X_{exp}^i{}^2}$

3.6. Comportement gris/non gris

Les courbes des Figure 15 à Figure 17 représentent les résultats des simulations dans le cas d'une pyrolyse volumique en considérant le PMMA comme un milieu non gris à 46 bandes ou gris, avec un coefficient d'absorption moyen de 1677 m^{-1} , comme préconisé par Manohar [68] pour le PMMA translucide.

On observe des écarts relativement faibles, notamment en ce qui concerne les évolutions temporelles des températures internes, mais toujours en faveur du modèle non gris. Le Tableau 6, donnant les erreurs relatives en normes L1 et L2 sur le taux de pyrolyse dans les cas de pyrolyse pure et sur la distance de régression de l'interface dans le cas de pyrolyse avec flamme pour un milieu gris ou non-gris, confirme cette observation.

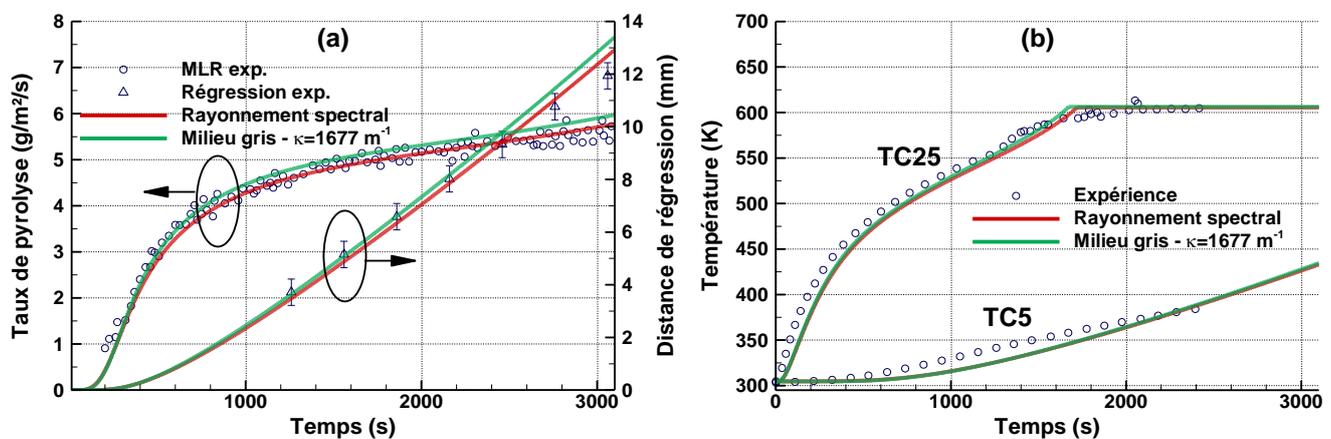


Figure 15. Pyrolyse pure à 18 kW.m^{-2} - Comparaison du modèle gris utilisant un coefficient d'absorption de 1677 m^{-1} avec le modèle non gris : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et distance de régression de l'interface au centre de la plaque et (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5 \text{ mm}$ et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles

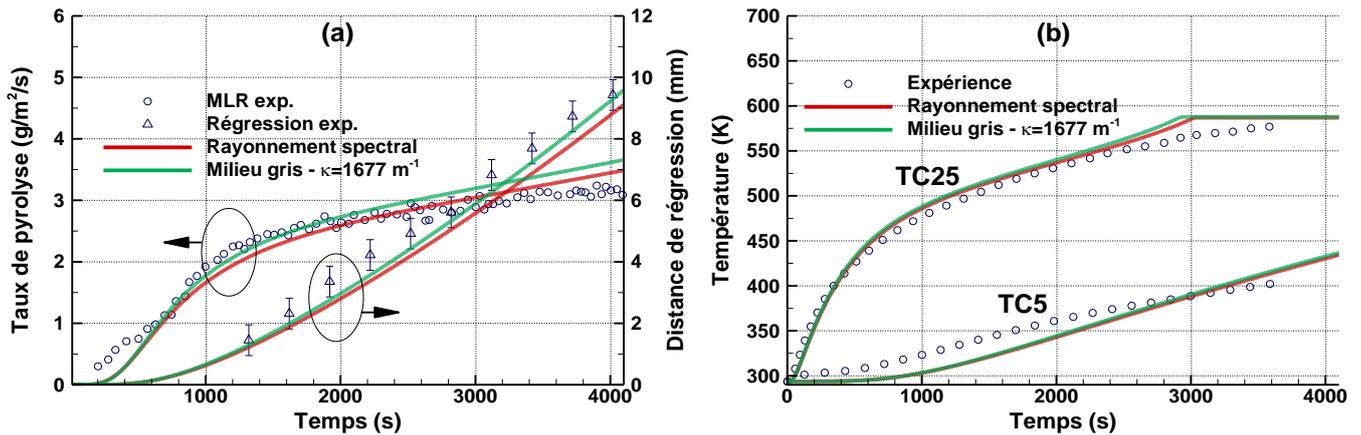


Figure 16. Pyrolyse pure à 14 kW.m^{-2} - Comparaison du modèle gris utilisant un coefficient d'absorption de 1677 m^{-1} avec le modèle non gris : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et distance de régression de l'interface au centre de la plaque et (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5 \text{ mm}$ et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles.

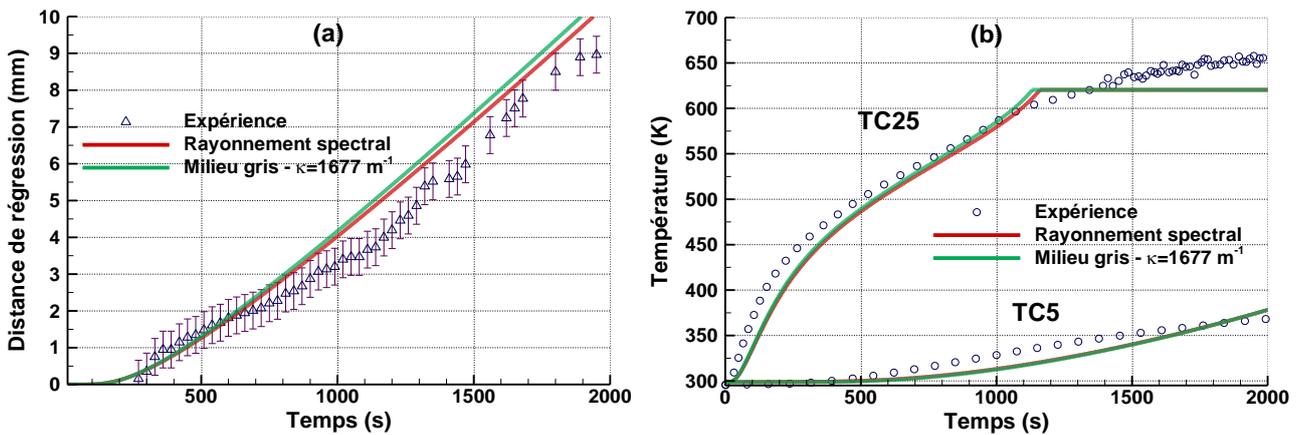


Figure 17. Pyrolyse avec flamme - Comparaison du modèle gris utilisant un coefficient d'absorption de 1677 m^{-1} avec le modèle non gris : évolutions temporelles de : (a) la distance de régression de l'interface au centre de la plaque et des (b) températures TC5 et TC25. La barre d'erreur sur le diagramme (a) est de $\pm 0,5 \text{ mm}$ et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles

Tableau 6. Erreurs relatives en norme L1 et L2 sur le taux de pyrolyse dans les cas de pyrolyse pure et sur la distance de régression de l'interface dans le cas de pyrolyse avec flamme pour un milieu gris ou non-gris

Erreur relative	Milieu non-gris		Milieu gris	
	L ₁	L ₂	L ₁	L ₂
Pyrolyse pure à 18 kW.m ⁻²	3,79%	3,59%	4,90%	4,88%
Pyrolyse pure à 14 kW.m ⁻²	12,55%	8,26%	12,83%	8,29%
Pyrolyse avec flamme	18,90%	15,58%	21,47%	19,06%

La Figure 18 montre une comparaison des résultats obtenus avec le modèle gris utilisant différents coefficients d'absorption moyens κ et avec le modèle non gris à 46 bandes. Ces résultats concernent les évolutions temporelles du débit total de pyrolyse et de la distance de régression pour la pyrolyse pure à 18 kW.m⁻².

Pour $\kappa = 500 \text{ m}^{-1}$, le modèle gris sous-estime les données expérimentales en début d'essai, puis les surestime ensuite. Pour les autres cas étudiés, les résultats sont assez proches des résultats expérimentaux, mais là encore toujours en faveur du modèle non gris. Au-delà de $\kappa = 10000 \text{ m}^{-1}$, le matériau peut être considéré comme opaque. Même si les résultats obtenus dans ce cas sont assez satisfaisants, le meilleur accord est néanmoins celui obtenu avec le modèle non gris. Ces conclusions sont renforcées par les résultats quantitatifs sur les erreurs relatives en normes L1 et L2 entre le modèle et l'expérience présentées dans le Tableau 7.

Remarque :

Une alternative au modèle non gris serait d'évaluer un coefficient d'absorption gris équivalent par une moyenne de Planck reposant sur une température de référence du milieu. Il s'agit d'une tâche délicate et source d'erreurs dans la mesure où la température du matériau varie de façon importante dans l'espace et dans le temps. De plus, un autre argument plaide en faveur du modèle non gris, à savoir que l'utilisation d'un modèle non gris à 46 bandes ne pénalise que très peu le temps de calcul du modèle couplé que nous présenterons plus loin. En effet, la part dédiée au calcul du rayonnement dans le milieu non gris représente moins de 1% du temps de calcul total.

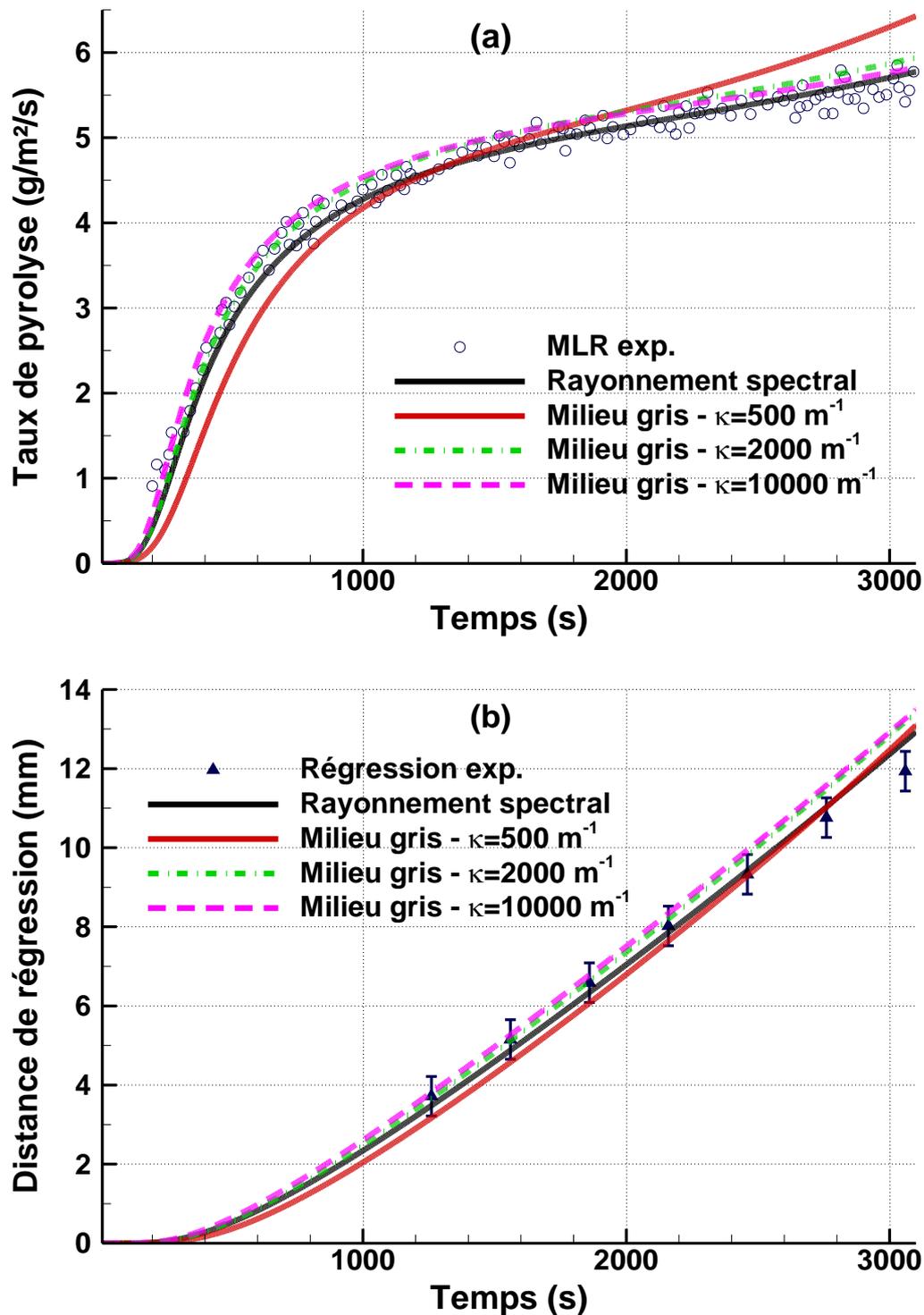


Figure 18. Pyrolyse pure à 18 kW.m⁻² - Comparaison des modèles gris, pour différents coefficients d'absorption, et non gris : évolutions temporelles de : (a) taux de pyrolyse total et (b) distance de régression de l'interface au centre de la plaque. La barre d'erreur sur le diagramme (b) est de $\pm 0,5$ mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles

Tableau 7. Pyrolyse pure à 18 kW.m^{-2} - Erreurs relatives en norme L1 et L2 sur le taux de pyrolyse pour un milieu gris, pour différents coefficients d'absorption, et non-gris

	L₁	L₂
Rayonnement spectral	3,79%	3,59%
$\kappa = 500 \text{ m}^{-1}$	10,36%	9,59%
$\kappa = 2000 \text{ m}^{-1}$	4,67%	4,69%
$\kappa = 10000 \text{ m}^{-1}$	4,69%	4,50%

3.7. Détermination de l'épaisseur de la zone bullée

Comme nous l'avons observé lors des expériences, une couche bullée se forme sous l'interface gaz/solide. Les caractéristiques de cette zone bullée dépendent du flux d'exposition. Son épaisseur et la taille des bulles qui la composent diminuent lorsque le flux augmente [20], [42], [56].

L'évolution de l'épaisseur de la zone bullée avec le temps est ici étudiée, à titre d'exemple, pour un flux radiatif incident de 18 kW.m^{-2} . Elle peut être aisément reproduite pour d'autres conditions d'exposition.

La procédure consiste tout d'abord à déterminer le moment précis t_{bl} où les premières bulles arrivent au niveau du thermocouple TC25, placé à 5 mm en-dessous de la face supérieure initiale de l'échantillon. On extrait ensuite des données expérimentales la température mesurée par TC25 au même moment. On suppose enfin que cette température est celle à laquelle les bulles se forment, $T_{bl} = TC25(t_{bl})$. À 18 kW.m^{-2} , on obtient $T_{bl} = 543 \text{ K}$, soit environ 170 K au-dessus de la température de transition vitreuse. On peut rapprocher la température de formation de la couche bullée, $T_{bl} = 543 \text{ K}$, à celle obtenue par Olson et Tien [56], soit 500 K.

La Figure 19 représente l'évolution avec le temps de l'épaisseur de la zone bullée définie comme la différence entre la position de l'isotherme 543 K et la position de l'interface. L'épaisseur de la zone bullée augmente rapidement avec le temps et après 2000 s montre un comportement quasi-stationnaire avec une valeur finale de 3 mm environ [42].

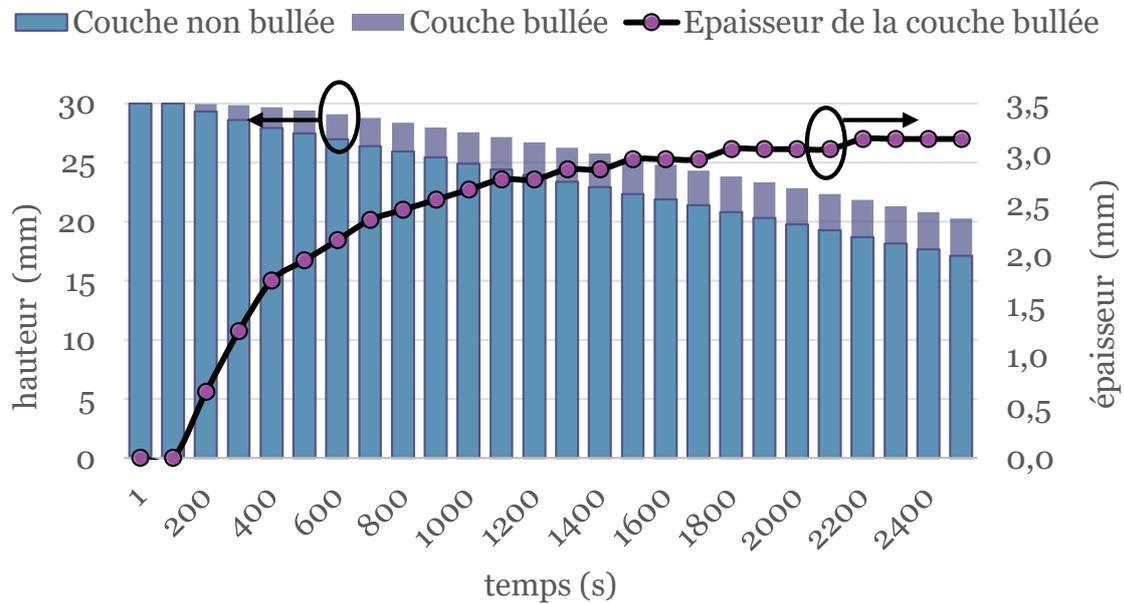


Figure 19. Evolution temporelle de l'épaisseur de la plaque et de la zone bullée. Le flux incident est ici de 18 kW.m^{-2}

Chapitre 4

MODELISATION DE LA PHASE GAZEUSE

4.1 • Présentation du code ISIS

4.2 • Equations générales

4.2.1. Sous-modèle de turbulence

4.2.2. Sous-modèle de combustion

4.2.3. Sous-modèle de rayonnement

4.3 • Résolution numérique

4.1. Présentation du code ISIS

Le modèle à champ ISIS est un code open source développé à l'IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire) afin de prédire le développement du feu dans les compartiments confinés et ventilés mécaniquement ou à l'air libre [69]–[71]. Le code ISIS est basé sur une formulation à bas nombre de Mach et nombre de Lewis unitaire[§] des équations de Navier-Stokes. Les équations générales sur lesquelles il repose sont brièvement rappelées ci-dessous (cf. le guide [69] pour plus de détails). La turbulence de l'écoulement, incluant les effets de la gravité, est modélisée en utilisant un formalisme de Favre. Par souci de clarté, les symboles de moyenne sont omis.

[§] Le nombre de Lewis est défini comme le rapport des coefficients de diffusivité thermique et massique, est pris égal à 1 (flamme équidiffusive).

4.2. Equations générales

Les équations régissant l'hydrodynamique de l'écoulement turbulent peuvent être écrites de la manière suivante :

- Conservation de la masse

$$\partial_t(\rho) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) = 0 \quad (30)$$

- Conservation de la quantité de mouvement

$$\partial_t(\rho \mathbf{v}) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v} \otimes \mathbf{v}) = -\nabla p + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} + (\rho - \rho_0) \mathbf{g} \quad (31)$$

- Enthalpie

$$\partial_t(\rho h) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v} h) = \nabla \cdot \left(\frac{\mu_e}{\sigma_t} \nabla h - \mathbf{q}_{rad} \right) \quad (32)$$

où ρ , T et \mathbf{v} sont, respectivement, la masse volumique, la température et la vitesse de la phase gazeuse, p est la pression, \mathbf{g} le champ de gravité, q_{rad} la divergence du flux radiatif, σ_t le nombre de Prandtl/Schmidt turbulent.

Le gaz est supposé être un mélange de cinq gaz parfaits (k =combustible, O₂, CO₂, H₂O et N₂) :

$$p = \rho R_u T \sum_k \frac{Y_k}{W_k} \quad (33)$$

et l'enthalpie statique du mélange est définie par

$$h = \sum_k Y_k \left[\Delta h_{fk}^0 + \int_{T_0}^T C_{pk} dT \right] \quad (34)$$

où W_k est la masse molaire de l'espèce k et la chaleur spécifique est donnée par :

$$c_p = \sum_k Y_k C_{pk}$$

La viscosité dynamique du mélange gazeux est supposée être constante. Pour les espèces pures, les chaleurs spécifiques, C_{pk} et les chaleurs standards de formation à T_0 , Δh_{fk}^0 ont été obtenues à partir des tables thermodynamique JANAF [72].

La viscosité effective est définie par $\mu_e = \mu_t + \mu$. Le tenseur des contraintes de Reynolds τ est défini par

$$\tau = \mu_e \left[\nabla \mathbf{v} + \nabla^t \mathbf{v} - \frac{2}{3} (\nabla \cdot \mathbf{v}) \mathbf{I} \right] - \frac{2}{3} \rho k \mathbf{I} \quad (35)$$

4.2.1. Sous-modèle de turbulence

Le modèle de turbulence $k - \varepsilon$ standard est utilisé pour la fermeture des équations de Navier-Stokes. Ce modèle décrit le transport de l'énergie cinétique turbulente k (TKE) et de son taux de dissipation ε :

$$\partial_t(\rho k) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v} k) = \nabla \cdot \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \nabla k \right] + P_k + P_{kb} - \rho \varepsilon \quad (36)$$

$$\partial_t(\rho \varepsilon) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v} \varepsilon) = \nabla \cdot \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \nabla \varepsilon \right] + \frac{\varepsilon}{k} (C_{\varepsilon_1} P_k + C_{\varepsilon_3} P_{\varepsilon b} - C_{\varepsilon_2} \rho \varepsilon) \quad (37)$$

où σ_k et σ_ε sont les nombres de Prandtl/Schmidt turbulents relatifs à k et ε .

La viscosité turbulente est déterminée grâce à la relation algébrique :

$$\mu_t = \rho C_\mu k^2 / \varepsilon$$

La turbulence est produite par cisaillement, P_k et par les effets de la flottabilité P_{kb} . Cette dernière production est modélisée à l'aide du modèle GGDH (Generalized Gradient Diffusion Hypothesis) [73].

Les termes de production sont définis de la façon suivante :

$$P_k = \mu_t(\nabla \mathbf{v} + \nabla^t \mathbf{v}) : \nabla \mathbf{v} - \frac{2}{3}(\mu_t \nabla \cdot \mathbf{v} + \rho k) \nabla \cdot \mathbf{v} \quad (38)$$

$$P_{kb} = -\frac{3}{2} \frac{\mu_t}{k \rho^2 \sigma_t} g \left[\mu_t(\nabla \mathbf{v} + \nabla^t \mathbf{v}) - \frac{2}{3}(\rho k + \mu_t \nabla \cdot \mathbf{v}) \mathbf{I} \right] : \nabla \rho \quad (39)$$

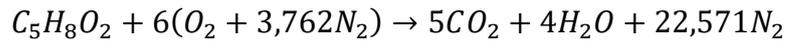
$P_{\varepsilon b}$ est supposé proportionnel à P_{kb} et doit être positif ; il est donc modélisé par :

$$P_{\varepsilon b} = \max(P_{kb}, 0).$$

Les constantes du modèle de turbulence ont pour valeurs : $C_\mu = 0,09$, $C_{\varepsilon_1} = 1,44$, $C_{\varepsilon_2} = 1,92$, $C_{\varepsilon_3} = 0,864$, $\sigma_k = 1$, $\sigma_\varepsilon = 1,3$, et $\sigma_t = 0,85$.

4.2.2. Sous-modèle de combustion

La modélisation de la combustion turbulente est basée sur une hypothèse de chimie rapide à une étape :



et utilise le modèle EDC (Eddy Dissipation Concept) [74].

La chimie est donc rapide, mais la combustion est contrôlée par le mélange turbulent. Dans l'hypothèse de chimie rapide, on utilise généralement la fraction de mélange définie par :

$$Z = \frac{sY_F - (Y_{O_2} - Y_{O_2}^\infty)}{sY_F^I - Y_{O_2}^\infty} \quad (40)$$

où $s = 6W_{O_2}/W_F = 1,92$ ($F = C_5H_8O_2$) est le rapport massique stœchiométrique de l'oxygène et du combustible, Y_F la fraction massique du combustible, Y_{O_2} la fraction massique de l'oxygène, $Y_{O_2}^\infty$ la fraction massique ambiante de l'oxygène et Y_F^I la fraction massique du combustible au niveau de l'interface combustible/gaz.

La composition du mélange est déterminée en résolvant les équations de transport de la fraction massique de combustible Y_F et de la fraction de mélange Z :

$$\partial_t(\rho Y_F) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v} Y_F) = \nabla \cdot \left(\frac{\mu_e}{\sigma_t} \nabla Y_F \right) + \dot{\omega}_F \quad (41)$$

$$\partial_t(\rho Z) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v} Z) = \nabla \cdot \left(\frac{\mu_e}{\sigma_t} \nabla Z \right) \quad (42)$$

avec [74] :

$$\dot{\omega}_F = -C_{EDC} \rho \frac{\varepsilon}{k} \min \left(Y_F, \frac{Y_O}{s} \right) \quad (43)$$

où C_{EDC} est une constante prise égale à 4 [74].

Les espèces composant le mélange gazeux se déduisent de Y_F et Z :

$$Y_{O_2} = Y_{O_2}^\infty (1 - Z) + s(Y_F - ZY_F^I)$$

$$Y_{CO_2} = \frac{5W_{CO_2}}{W_F} (ZY_F^I - Y_F)$$

$$Y_{H_2O} = \frac{4W_{H_2O}}{W_F} (ZY_F^I - Y_F)$$

$$Y_{N_2} = 1 - Y_F - Y_{O_2} - Y_{CO_2} - Y_{H_2O}$$

4.2.3. Sous-modèle de rayonnement

Le rayonnement thermique est modélisé par l'équation de transfert radiatif dans un milieu gris émettant, absorbant, mais non diffusant, en prenant en compte la contribution des suies et des produits de la combustion au coefficient d'absorption :

$$\boldsymbol{\Omega} \cdot \nabla I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}) + \kappa I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}) = \kappa I_b(\mathbf{r}) \quad (44)$$

où $I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega})$ est la luminance, qui est fonction de la position \mathbf{r} et de la direction $\boldsymbol{\Omega}$, κ le coefficient d'absorption et I_b la luminance du corps noir à la température au point considéré.

La divergence du flux radiatif impliquée dans l'équation (32) est exprimée comme

$$-\nabla \cdot \mathbf{q}_{rad} = \kappa(G - 4\sigma T^4) \quad (45)$$

où le rayonnement incident G est défini par

$$G = \int_{4\pi} I(\mathbf{r}, \boldsymbol{\Omega}) d\Omega \quad (46)$$

Le coefficient d'absorption de la phase gazeuse est la somme des contributions des gaz et des suies. La première est déterminée à l'aide du modèle WSGGM (Weighted-Sum-of-Gray-Gases Model) en utilisant trois gaz fictifs gris pour le mélange CO₂-H₂O [75], tandis que la deuxième est calculée à l'aide d'une corrélation en fonction de la température et de la fraction volumique de suies [76].

La fraction massique de suie est régie par l'équation de transport suivante :

$$\partial_t(\rho Y_{soot}) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v} Y_{soot}) = \nabla \cdot \left(\frac{\mu_e}{\sigma_t} \nabla Y_{soot} \right) + \dot{\omega}_{soot,f} - \dot{\omega}_{soot,c} \quad (47)$$

Les termes source de production et d'oxydation des suies qui apparaissent dans cette équation sont donnés respectivement par le modèle de Khan et Greeves [77] et le modèle de Magnussen et Hjertager [74]:

$$\dot{\omega}_{soot,f} = \begin{cases} C_{soot} p_F \Phi^m \exp\left(-\frac{E_A}{R_u T}\right), & \Phi \leq \Phi_{max} \\ 0, & \text{sinon} \end{cases} \quad (48)$$

$$\dot{\omega}_{soot,c} = -C_{EDC} \rho \frac{\varepsilon}{k} Y_{soot} \min\left(1, \frac{Y_O}{s_{soot} Y_{soot} + s Y_F}\right)$$

où C_{soot} est une constante, p_F est la pression partielle du combustible, $\Phi = s Y_F / Y_O$ est le rapport d'équivalence et Φ_{max} sa valeur à l'entrée d'air, m est l'exposant du rapport d'équivalence et E_A est l'énergie d'activation. Les valeurs utilisées dans le présent travail sont : $C_{soot} = 3 \text{ kg.N}^{-1}.\text{m}^{-1}.\text{s}^{-1}$, $m = 2$ et $E_A = 1,66 \times 10^5 \text{ J.mol}^{-1}$.

Dans l'hypothèse où la suie est composée de carbone pur ($\text{C} + \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2$), le rapport stœchiométrique de la réaction d'oxydation des suies est $s_{soot} = 2,67$.

4.3. Résolution numérique

Toutes les équations sont résolues séquentiellement en utilisant la Méthode des Volumes Finis (FVM). L'intégration temporelle est traitée en utilisant un schéma du premier ordre tandis que la discrétisation spatiale est réalisée à l'aide du schéma des différences hybrides. Le couplage pression-vitesse est basé sur la méthode itérative de projection.

L'équation de transfert radiatif est résolue en utilisant la Méthode des Volumes Finis (FVM) [78], [79] avec un maillage angulaire de 8×8 .

Chapitre 5

COUPLAGE ENTRE LES PHASES GAZEUSE ET SOLIDE

5.1 • Méthodologie

5.2 • Expérimentations

5.3 • Validation du modèle couplé

5.3.1. Flux de chaleur locaux

5.3.2. Régression locale de la surface

5.3.3. Débit total de pyrolyse (MLR)

5.3.4. Champs de température dans la phase gazeuse

5.1. Méthodologie

Les équations décrivant le modèle de pyrolyse volumique dans un milieu semi-transparent non gris, incluant un modèle spectral à 46 bandes pour le coefficient d'absorption du PMMA, ont été implémentées dans le code ISIS. Les interactions entre la combustion en phase gazeuse et la pyrolyse du matériau solide sont représentées par les conditions aux limites à l'interface solide/gaz.

En ce qui concerne la pyrolyse, il est important de rappeler que les produits de pyrolyse, constitués de MMA, sont supposés être libérés directement à l'interface gaz/solide dès qu'ils sont produits, ce qui nous donne l'équation (23) :

$$\rho \mathbf{u} \cdot \mathbf{x} = \rho u_x = -(\rho_s - \rho) u_{reg}$$

Comme mentionné précédemment, la technique de maillage adaptatif ALE [63], [64] est utilisée pour le traitement de l'interface mobile solide/gaz en permettant au maillage de se déplacer indépendamment du matériau.

Comme le montre la Figure 20 le taux de pyrolyse et la régression sont calculés localement. Par chaque élément de surface de l'interface sont libérés les produits de pyrolyse des cellules de la zone bullée qui se trouvent en dessous. Le taux de pyrolyse total (MLR) correspond à la somme des contributions de tous les éléments de surface de l'interface.

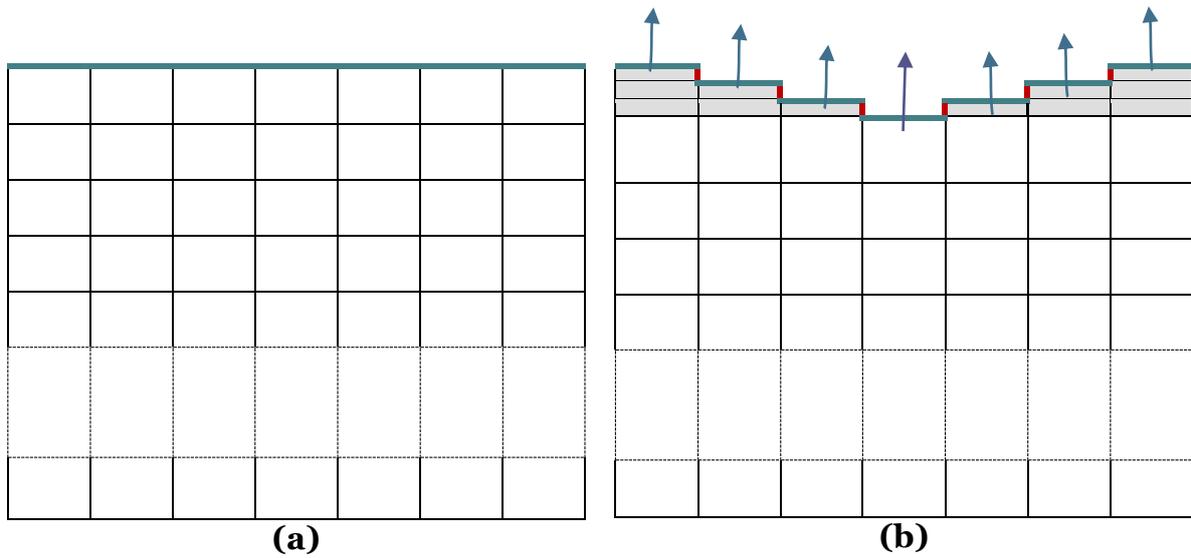


Figure 20. Régression de la surface en pyrolyse de la plaque (représentation schématique approximative, zone bullée en gris). (a) interface à l'état initial, (b) interface en cours de régression

Les fractions massiques des espèces, la fraction de mélange et l'enthalpie à l'interface gaz/solide sont obtenues itérativement à partir des équations suivantes :

$$-\rho D \nabla \phi \cdot \mathbf{x} + \rho \phi u_x = -\dot{m}_s'' \phi_{inflow} \quad \text{for } \phi = Y_k \text{ or } Z \quad (49)$$

$$-\rho D \nabla h \cdot \mathbf{x} + \rho h u_x = q_{conv,l} + \int_{\Omega, x < 0} I |\Omega \cdot \mathbf{x}| d\Omega - \int_0^\infty E_{bv,l}^{air} dv - \dot{m}_s'' h_l \quad (50)$$

où ϕ_{inflow} est égal à 1 pour Z et Y_F et 0 pour les autres espèces.

Le flux convectif qui apparaît dans l'équation (50) est défini par $q_{conv,I} = h_{conv,I}\Delta T$ où $\Delta T = T_f - T_I$. La détermination du coefficient d'échanges convectifs $h_{conv,I}$ est basée sur une combinaison de corrélations de convection naturelle et forcée [80]:

$$h_{conv,I} = \max\left(1.52 |\Delta T|^{1/3}; 0,037 \frac{\lambda}{L} Re^{0,8} Pr^{1/3}\right) \quad (51)$$

où λ est la conductivité thermique du gaz, L est une longueur caractéristique (ici, prise égale au diamètre équivalent de la plaque), $Re = \rho|\mathbf{u}|L/\mu$ est le nombre de Reynolds, $Pr = \mu/c_p\lambda$ est le nombre de Prandtl (ici, $Pr = 0,71$) et $|\Delta T| = |T_f - T_I|$.

En ce qui concerne la température T_f , nous avons tout d'abord utilisé pour celle-ci la température du gaz au voisinage immédiat de l'interface. Mais cette température s'est avérée en fait très proche de la température de pyrolyse, ce qui a conduit à un flux convectif physiquement trop faible en comparaison de celui observé expérimentalement. Dans la mesure où les échanges convectifs résultent de mouvements de gaz à l'intérieur du cône de flamme, la température T_f est en fait assez proche de la température de flamme. Nous avons donc supposé que la température du gaz environnant T_f est légèrement inférieure à la température de flamme, précisément 200 degrés plus basse, comme cela est préconisé par Beaulieu et Dembsey [9]. Une piste d'amélioration de la modélisation du flux convectif à l'interface sera proposée en perspective.

Les conditions aux limites pour l'énergie cinétique turbulente et son taux de dissipation à la surface en pyrolyse sont données par $k = 1,5(v_m I_t)^2$ et $\varepsilon = C_\mu^{3/4} k^{3/2}/0,07L$, où v_m et I_t sont la vitesse d'injection moyenne et l'intensité turbulente, respectivement (ici, $I_t = 0,1$) [81].

5.2. Expérimentations

La Figure 21 montre le dispositif expérimental développé par Pizzo et al. [17] afin de collecter des données sur la combustion à l'air libre de plaques carrées de PMMA translucide en position horizontale. Les plaques de combustible ont 3 cm d'épaisseur et 10, 20 ou 40 cm de côté. Chaque essai a été répété au moins trois fois, montrant une excellente répétabilité des résultats. Une brève description des procédures expérimentales est donnée ci-après.

La plaque de PMMA a été placée sur un support en aluminium et l'ensemble du dispositif reposait sur une balance électronique afin de mesurer la perte de masse totale avec une précision de $\pm 0,01$ g. Un masque métallique a été positionné sur la face supérieure de la plaque afin de délimiter la surface exposée et d'éviter d'enflammer les faces latérales de l'échantillon. Ces faces latérales ont été préalablement polies afin de pouvoir observer l'évolution temporelle de l'interface et de la zone bullée en cours de combustion. Une caméra CCD monochrome a été utilisée afin d'obtenir une vue latérale des plaques avec une résolution de 1390×1040 pixels et des pixels carrés de moins de 0,2 mm. La fréquence de l'acquisition du système vidéo était de 10 Hz. Les images post-traitées permettaient de traquer la position de l'interface au centre de la plaque [19]. Des diodes de lumière froide éclairaient l'échantillon en face arrière, augmentant le contraste entre le PMMA vierge et la surface bullée. Quatre thermocouples Chromel/Alumel de 1 mm de diamètre ont été positionnés à différentes hauteurs dans la flamme. L'inflammation du PMMA a été obtenue en exposant l'échantillon au flux radiatif incident de 40 kW.m^{-2} délivré par un panneau radiant électrique. Dès l'inflammation de la plaque de PMMA, le panneau radiant a été retiré afin d'éviter un chauffage excessif de l'échantillon.

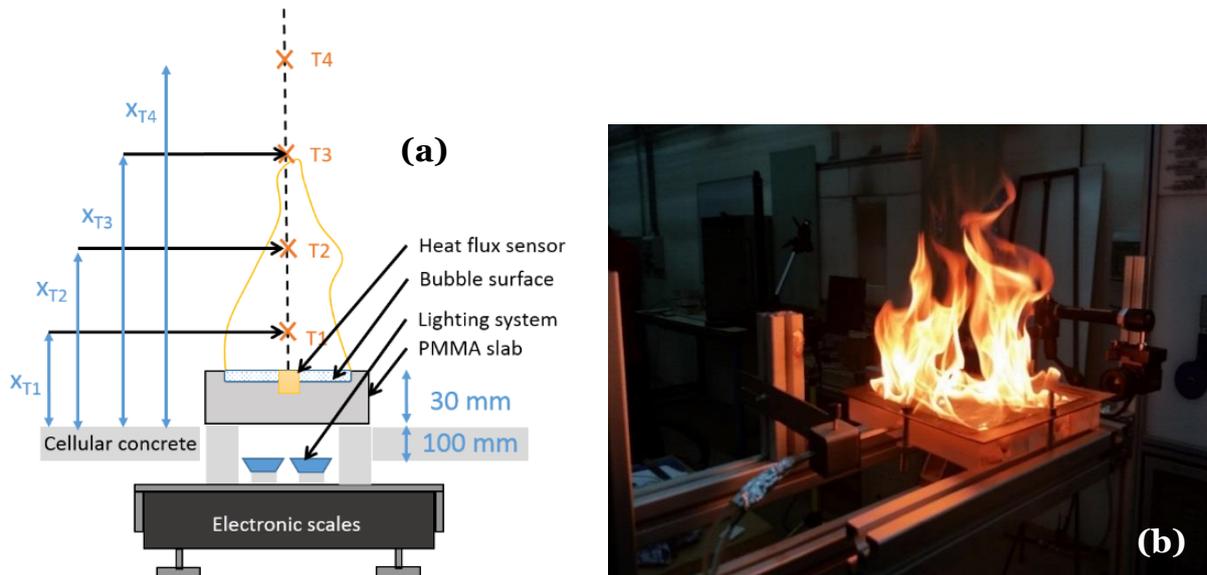


Figure 21. Représentation schématique et photographie du dispositif expérimental

Comme l'ont fait Beaulieu et Dembsey en 2008 [9] et plus récemment Mense et al. [82], un fluxmètre total refroidi, de marque Medtherm®, a été inséré dans un orifice percé au centre de la plaque. Le fluxmètre utilisé dans ce travail assure une mesure précise du flux total (égal à la somme des composantes radiative et convective) de la flamme grâce à son grand angle de vue de 160° .

Pour accéder à la contribution radiative seule, la face supérieure du fluxmètre total a été recouverte avec une pastille de zinc-sélénide (ZnSe) (Figure 22). Le ZnSe a été choisi car il se caractérise par une absorption quasi nulle du rayonnement sur une large plage de rayonnement (c.à.d. de $0,6$ à $15 \mu\text{m}$) [83]. Il transmet une grande partie du rayonnement et réfléchit le reste. Exposée à un corps noir, la transmission du rayonnement est de 65% et la réflexion de 35% [83].

En posant une pastille de ZnSe sur le fluxmètre, ce dernier est totalement protégé de la convection. La contribution convective est obtenue en soustrayant la contribution radiative au flux total.

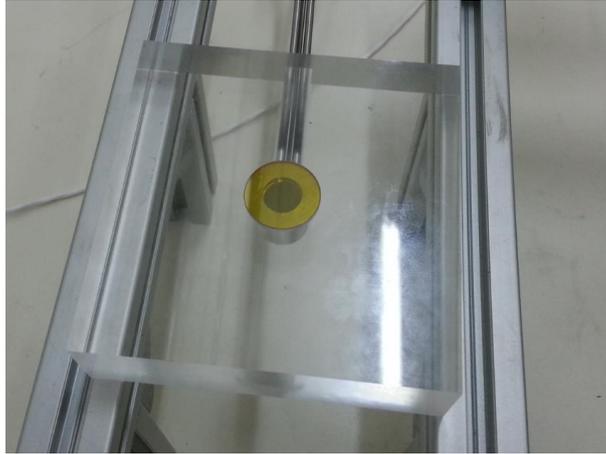


Figure 22. Une vue d'une plaque de PMMA montrant le fluxmètre total refroidi couvert d'une pastille jaune de ZnSe

5.3. Validation du modèle couplé

Le problème physique décrit dans la Figure 21a a été reproduit numériquement en utilisant le code CFD couplé au modèle de pyrolyse volumique pour un MST non gris. Afin de réduire le temps de calcul, le problème est supposé axisymétrique : la direction axiale est orientée le long de l'axe de la flamme et la direction radiale est perpendiculaire à l'axe de symétrie.

Le modèle couplé a été appliqué à l'étude de la combustion de plaques horizontales de 3 cm d'épaisseur et de 10, 20 et 40 cm de côté.

Les données d'entrées et les paramètres du modèle utilisés dans les simulations sont résumés dans le Tableau 8. Il convient de noter que le jeu de paramètres de pyrolyse utilisé dans les trois cas avec flamme est le même que celui déterminé précédemment à partir d'essai expérimental sans flamme.

Tableau 8. Données d'entrée et paramètres numériques utilisés dans les trois simulations (Cas A, B et C)

	Cas A	Cas B	Cas C
PMMA			
Dimensions de la plaque (cm×cm×cm)	10×10×3	20×20×3	40×40×3
Masse volumique, ρ_s (kg.m ⁻³)		1150 [17]	
Conductivité thermique, λ_s (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)		0,185 [17]	
Chaleur spécifique, c_{ps} (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹)		2400 [22]	
Indice de réfraction, n (-)		1,5 [17]	
Chaleur de pyrolyse, H_g (J.kg ⁻¹)		$2,08 \times 10^6$	
Facteur pré-exponentiel, A_s (s ⁻¹)		$3,92 \times 10^9$	
Energie d'activation, E_s (J.mol ⁻¹)		$1,36 \times 10^5$	
Emissivité de la face inférieure ε_0 (-)		0,9	
Coefficient de transfert convectif sur la face inférieure, $h_{conv,0}$ (W.m ⁻² .K ⁻¹)		3	
Conditions initiales			
Température, T_0 (K)		300	
Pression p_0 (Pa)		101325	
Intensité radiative, I_0 (W.m ⁻²)		$\sigma T_0^4 / \pi$	
Composition : $\{Y_F, Y_{O_2}, Y_{CO_2}, Y_{H_2O}, Y_{N_2}, Y_{soot}\}_0$ (-)		{0; 0,232; 0; 0; 0,768; 0}	
Fraction de mélange, Z_0 (-)		0	
Energie cinétique turbulente, k_0 (m ² .s ⁻²)		10^{-5}	
Taux de dissipation de TKE, ε_0 (m ² .s ⁻³)		10^{-9}	
Paramètres numériques			
Pas de temps (s)	0,05	0,05	0,05
Dimensions du domaine de calcul axi. (m×m)	0,35×0,5	0,55×0,8	1,25×1,4
Maillage du domaine numérique	58×406	76×564	86×697
Dimensions de la plaque axisymétrique (cm×cm)	5,6×3	11,3×3	22,6×3
Maillage du solide	20×300	28×300	35×300
Positions des thermocouples (Figure 21)			
x_{T1} (cm)	8,5	12,0	15,0
x_{T2} (cm)	13,0	18,2	43,0
x_{T3} (cm)	17,5	24,5	66,0
x_{T4} (cm)	28,0	32,8	98,0

Les maillages des domaines fluide et solide ont été réalisés séparément. Une étude de convergence au maillage a été préalablement réalisée afin d'obtenir des résultats indépendants de la taille du maillage pour les deux phases.

Pour le domaine fluide, le maillage est structuré et dépend du cas étudié. Un raffinement a été appliqué dans les deux directions afin d'augmenter la densité de maillage près de l'interface gaz/solide et le long de l'axe de la flamme.

Le maillage de la plaque de PMMA est uniforme et structuré. Dans la direction axiale, 300 éléments ont été utilisés, donnant une taille de maille de 0,1 mm. Le nombre d'éléments dans la direction radiale dépend de la taille de l'échantillon, avec 20, 28 et 35 éléments pour les plaques de 10, 20 et 40 cm de côté respectivement.

Les limites libres du domaine de calcul ont été placées suffisamment loin de la flamme afin de ne pas affecter la solution.

Les conditions appliquées aux limites du domaine physique sont classiques : les conditions de symétrie sur l'axe (gradient normal nul pour toutes les variables, composante normale de la vitesse nulle) et une condition de Neumann (gradient normal nul) pour toutes les variables de l'écoulement sauf pour la pression aux limites libres du domaine. Des conditions aux limites adiabatiques sans glissement sont appliquées à la limite basse du domaine de part et d'autre de la plaque et à la surface du masque.

5.3.1. Flux de chaleur locaux

La Figure 23 montre l'évolution avec le temps du flux total et de sa composante radiative au centre de la plaque de 10 cm de côté (Cas A) depuis le début de l'exposition au panneau radiant. Différentes étapes sont observées : une étape de préchauffage avant inflammation, une période d'exposition concomitante à la flamme et au flux de chaleur externe (en grisée sur la Figure 23), une période de chauffage transitoire après le retrait de la source externe de chaleur suivie par une étape de combustion quasi-stationnaire, 400 s après. La phase de combustion quasi-stationnaire correspond à une vitesse de régression quasi-constante (NB : cela ne veut pas dire que les autres grandeurs, comme les flux thermiques ou la conduction sont stationnaires).

Les oscillations observées dans les résultats expérimentaux (dus à l'intermittence de flamme et aux mouvements turbulents) ne peuvent être reproduites par une modélisation de type RANS. Néanmoins, les résultats moyennés dans le temps dans la période de combustion quasi-stationnaire peuvent être comparés.

Des conclusions similaires sont observées quelle que soit la taille de l'échantillon.

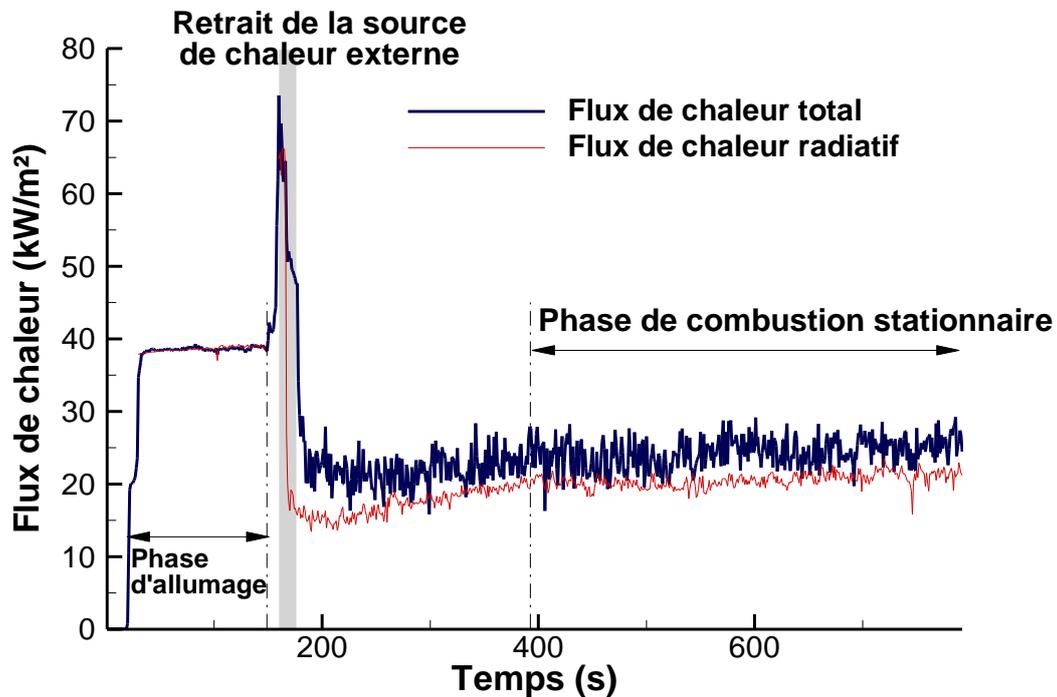


Figure 23. Evolutions avec le temps du flux total et radiatif pour la plaque de $10 \times 10 \times 3 \text{ cm}^3$ (Cas A). La région grisée correspond approximativement au retrait de la source de chaleur externe

Les flux totaux et radiatifs obtenus expérimentalement et par le modèle couplé dans la phase quasi-stationnaire sont rassemblés dans le Tableau 9. Le flux convectif est défini comme la différence entre le flux total et le flux radiatif. Les plages d'erreur données représentent l'étendue des valeurs obtenues (i.e. du minimum au maximum) durant les 400 s premières secondes de la phase de combustion stationnaire.

Tableau 9. Flux de chaleur de la flamme dans les trois cas simulés. Les flux de chaleur sont moyennés sur les 400 s premières secondes de la phase de combustion stationnaire. Le flux convectif est la différence entre le flux total et le flux radiatif. La plage d'erreur donnée correspond à la plage la plus large de valeurs obtenues (c.à.d. du minimum au maximum)

Plaque de 10×10×3 cm ³		
	Mesuré	Calculé
Radiatif (kW.m ⁻²)	20,0±2,0	20,0±1
Convectif (kW.m ⁻²)	4,0	6,6
Total (kW.m ⁻²)	24,0±4,5	26,6±1
Radiatif/Total	0,83	0,75
Plaque de 20×20×3 cm ³		
	Mesuré	Calculé
Radiatif (kW.m ⁻²)	28,7±7,0	28,8±1
Convectif (kW.m ⁻²)	7,7	7,5
Total (kW.m ⁻²)	36,5±5,5	36,3±1
Radiatif/Total	0,79	0,79
Plaque de 40×40×3 cm ³		
	Mesuré	Calculé
Radiatif (kW.m ⁻²)	50,5±6,0	56,0±1
Convectif (kW.m ⁻²)	12,5	9,0
Total (kW.m ⁻²)	63,0±4,5	65,0±1
Radiatif/Total	0,80	0,86

Des valeurs de flux total et radiatif de 24,0±4,5 et 20±2,0 kW.m⁻², respectivement, ont été mesurées pour la plus petite plaque. Ces valeurs peuvent être rapprochées de celles trouvées par Beaulieu et Dembsey [9] pour des plaques de PMMA noir de 102 mm de diamètre et 25 mm d'épaisseur, à savoir 20±3 kW.m⁻² et 12±3 kW.m⁻². La même comparaison peut être faite entre la mesure du flux total pour la plaque de 20×20×3 cm³, soit 36,5±5,5 kW.m⁻², et celle extraite de [9] pour une plaque de PMMA noir de 178 mm de diamètre et de 25 mm d'épaisseur, i.e. 31±3 kW.m⁻².

Beaulieu et Dembsey ont souligné l'existence d'une zone sans flamme au centre de l'échantillon de PMMA noir en combustion. Ce comportement n'a pas été observé lors de nos essais, montrant une flamme continue à la surface du PMMA translucide^h, ce qui peut expliquer, en partie, les différences entre les deux études.

Comme le montre le Tableau 9, quand la taille de l'échantillon augmente de 10 à 40 cm, le flux total mesuré augmente de 39,5 kW.m⁻² et le flux radiatif de 30,5 kW.m⁻².

^h voir, par exemple, les vidéos suivantes :

<https://goo.gl/IMHJGB>, <https://goo.gl/tsm9Gj> et <https://goo.gl/q6YQOg>

Il est important de noter que bien que le flux radiatif et le flux total augmentent significativement avec la taille de l'échantillon, la contribution radiative au flux total demeure quasiment constante (~80%).

L'analyse comparative des résultats du modèle et des mesures expérimentales montre un bon accord compte tenu des incertitudes sur les données. Cependant, quelques différences sont observées. En effet, même si le flux convectif semble être bien prédit par le modèle pour la plaque de 20 cm de côté, l'utilisation de l'équation (51) conduit à une estimation grossière de la convection à la surface de l'échantillon pour les deux tailles de plaque. Le flux convectif déterminé en utilisant l'équation (51) est surestimé pour la plus petite plaque, tandis qu'il est sous-estimé pour la plaque la plus grande. Ceci explique que le rapport entre le flux radiatif et le flux total déduit des résultats du modèle augmente avec la taille de l'échantillon contrairement aux observations expérimentales. Un travail supplémentaire est donc nécessaire afin d'améliorer la qualité de la prédiction du flux convectif à l'interface solide/gaz. Nous y reviendrons dans les perspectives proposées à l'issue de ce travail.

Enfin, il est intéressant de noter qu'une augmentation de la taille de l'échantillon par un facteur de 2 entraîne pratiquement la même augmentation du flux net reçu à la surface, défini comme le flux total reçu par l'interface diminué de l'émission de l'interface noire à la température de pyrolyse. En effet, en utilisant les températures de pyrolyse calculées, à savoir 642, 653 et 670 K pour les plaques de taille croissante, les flux de chaleur nets sont alors de 13,9, 26,2 et 51,6 kW.m⁻² en utilisant les flux totaux mesurés et de 16,9, 26,0 et 53,6 kW.m⁻² en utilisant les flux totaux calculés.

5.3.2. Régression locale de la surface

Sur la Figure 24 nous avons tracé l'évolution avec le temps de la distance de régression au centre de la plaque pour les trois dimensions d'échantillon étudiées. Ici, comme par la suite, le temps est compté à partir de l'inflammation de la plaque.

La position de l'interface est bien reproduite par le modèle pour la plus petite plaque. La vitesse de régression moyenne calculée est comparable à celle déduite des mesures, 6,5 vs. 5,8 $\mu\text{m.s}^{-1}$. Pour les plaques de plus grande taille, l'accord se dégrade légèrement, le calcul conduisant à des sous-estimations de la position de l'interface dans un premier temps, alors qu'il la surestime ensuite. Les vitesses de régression

moyennes prédites sont cependant proches de celles déduites des mesures : 10,7 vs. 8,6 $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour la plaque de 20 cm de côté et 13,9 vs. 10,9 $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour la plaque de 40 cm de côté.

Compte tenu des incertitudes liées au traitement vidéo qui dépendent du diamètre moyen des plus grosses bulles de MMA au sein du solide (ici pris égal à $\pm 0,5$ mm), l'accord est plutôt satisfaisant puisque les écarts modèle/expérience pour la position de l'interface n'excèdent pas 1,5 mm.

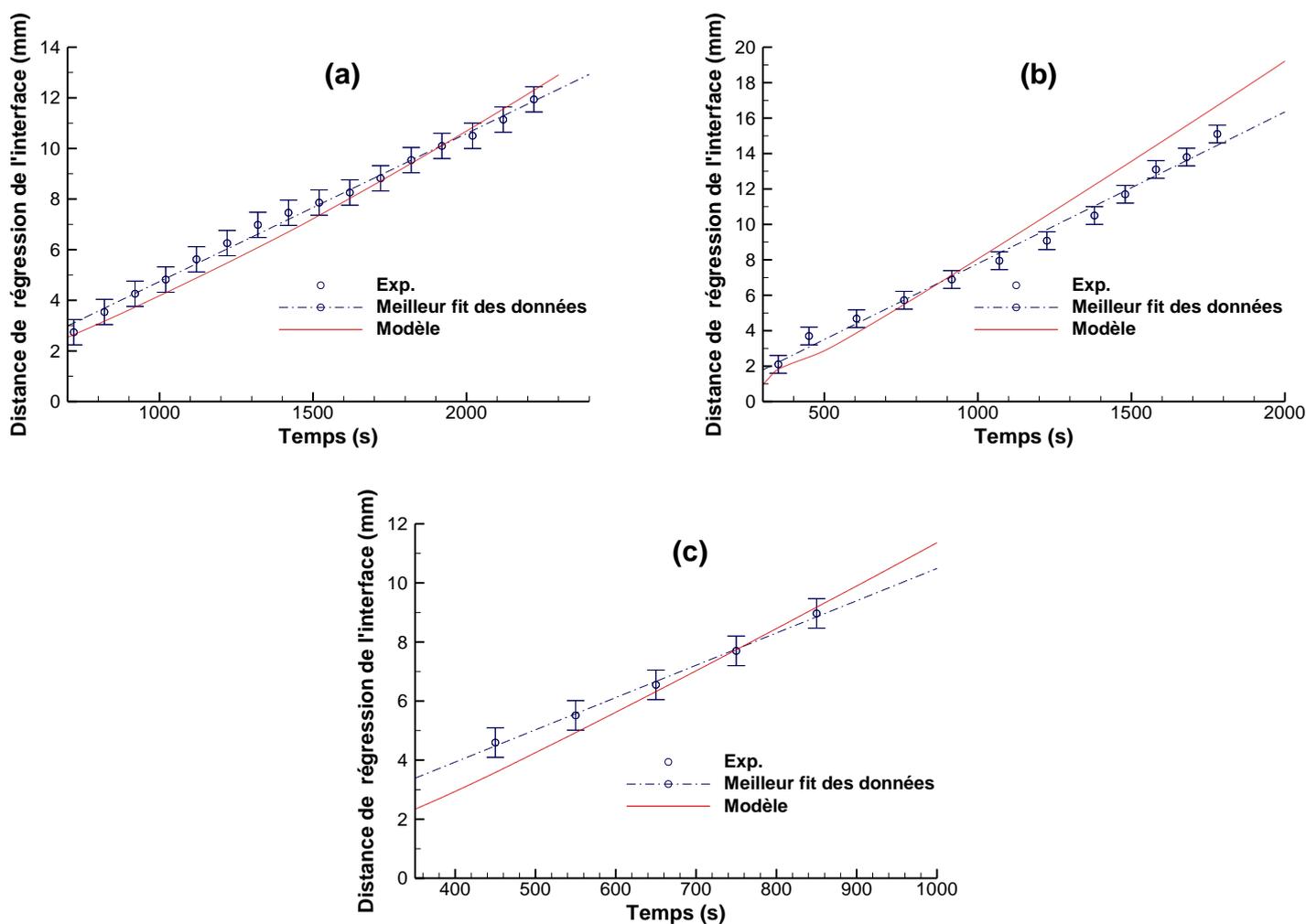


Figure 24. Evolution avec le temps de la distance de régression de l'interface au centre de la plaque pour les trois échantillons de dimensions : (a) $10 \times 10 \times 3$ cm³, (b) $20 \times 20 \times 3$ cm³, et (c) $40 \times 40 \times 3$ cm³. Les lignes en pointillés représentent le meilleur fit linéaire des données expérimentales. $t=0$ correspond à l'allumage. La barre d'erreur est de $\pm 0,5$ mm et correspond au diamètre moyen des plus grosses bulles

5.3.3. Débit total de pyrolyse (MLR)

Comme attendu (Figure 25), le débit total de pyrolyse augmente avec la taille de la plaque, ce que le modèle reproduit correctement. En revanche, pour une taille de plaque donnée, on observe une augmentation du taux de pyrolyse total au cours du temps. Cette tendance n'est pas correctement représentée par le modèle. En effet, on observe une surestimation du MLR en début d'essai, puis une sous-estimation de celui-ci en fin de combustion.

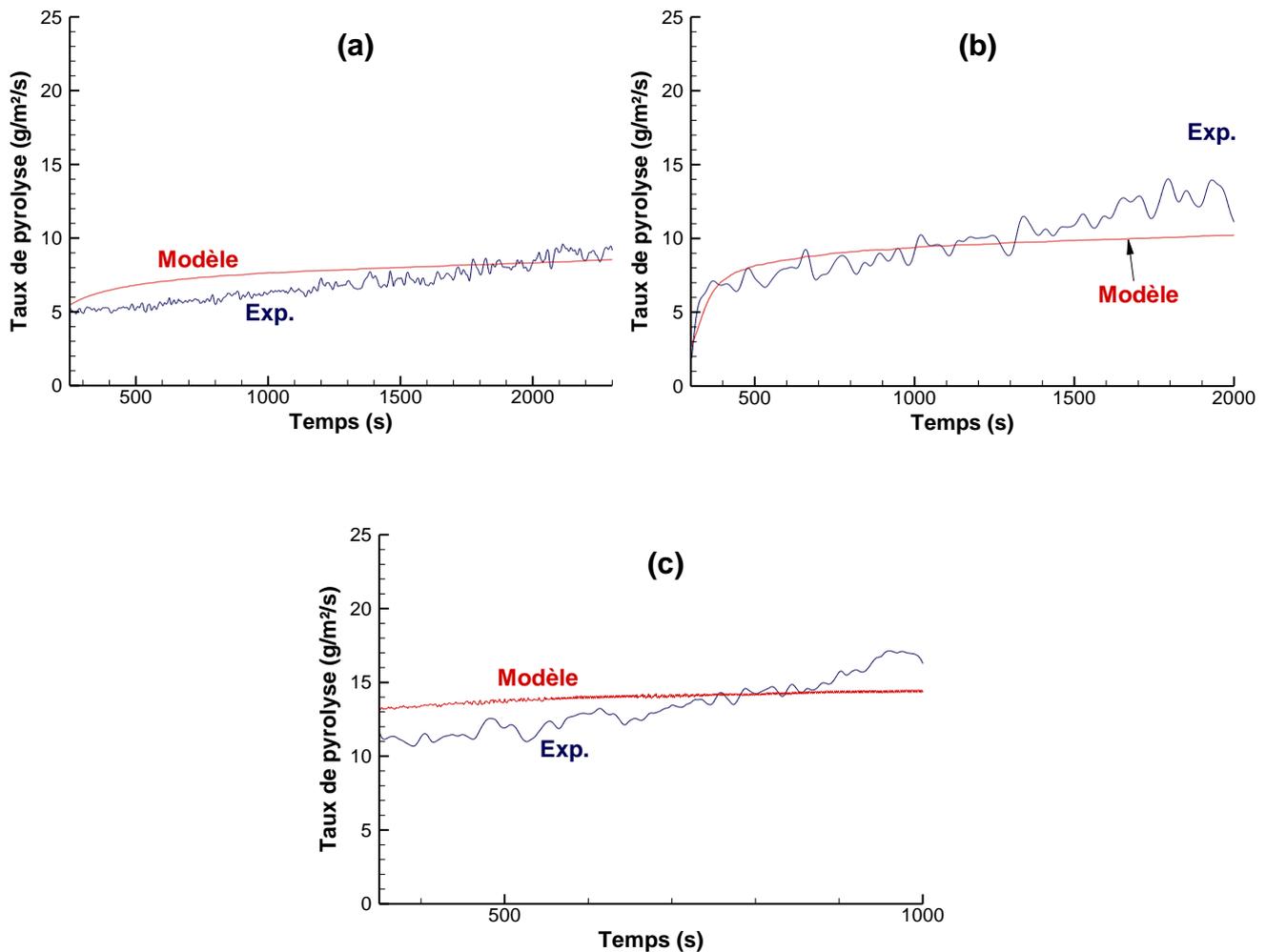


Figure 25. Evolution avec le temps du taux de pyrolyse total pour les trois échantillons de dimensions : (a) $10 \times 10 \times 3 \text{ cm}^3$, (b) $20 \times 20 \times 3 \text{ cm}^3$, and (c) $40 \times 40 \times 3 \text{ cm}^3$. $t=0$ correspond à l'allumage

Afin d'identifier l'origine de cette sous-estimation du modèle, des expériences supplémentaires ont été conduites sur des échantillons de 20 cm de côté, après avoir enchâssé un fluxmètre total refroidi dans un des angles de la plaque, à 9 cm du centre de celle-ci. Comme le montre la Figure 26, le flux total dans l'angle est en moyenne 8 kW.m² plus faible qu'au centre, ce qui traduit la non-uniformité du flux total à la surface de l'échantillon. Cette variation a déjà été observée par Linteris et al. [18] et Beaulieu et Dembsey [9] pour du PMMA noir. La topographie de l'échantillon brûlé confirme ce comportement, montrant une érosion de la surface plus prononcée dans la partie centrale de la plaque. Si l'on compare les topographies prédite et mesurée de l'échantillon brûlé (Figure 27), des différences apparaissent montrant que le modèle sous-estime le transfert de chaleur aux bords de la plaque, et donc l'érosion de la surface dans cette zone et le débit total de pyrolyse.

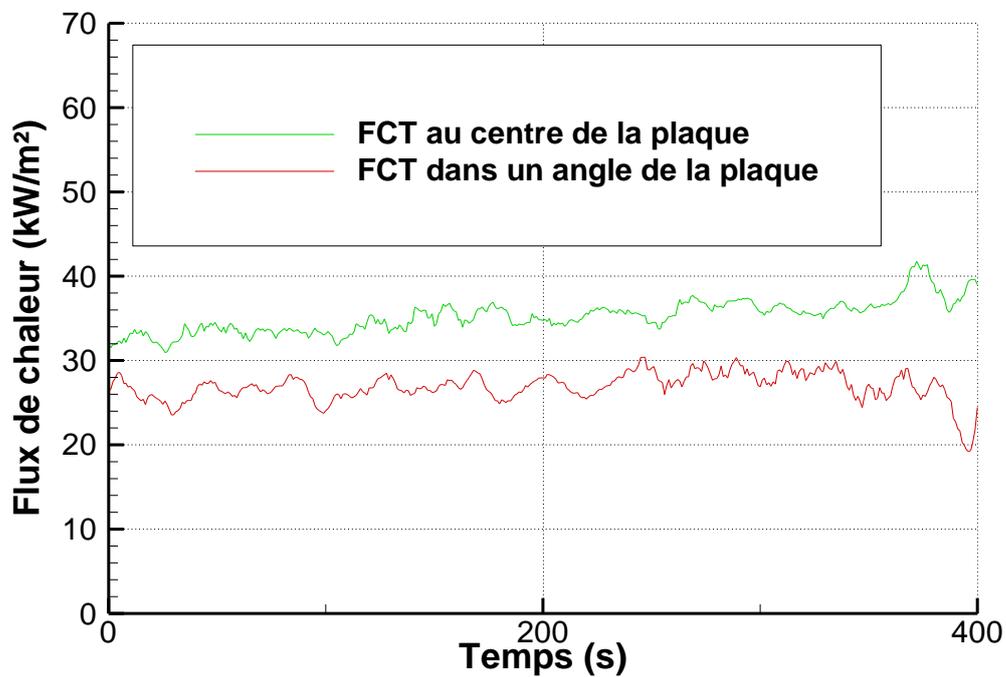


Figure 26. Flux de chaleur total (FCT) au centre et dans l'angle d'une plaque de PMMA de 20 cm de côté en combustion

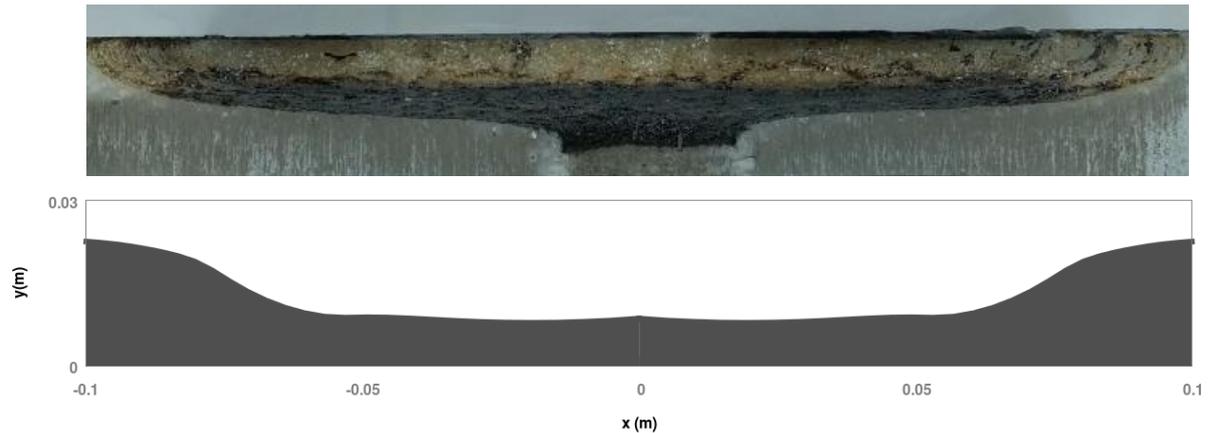


Figure 27. Topographies mesurée (en haut) et calculée (en bas) de l'échantillon brûlé de 20 cm de côté

5.3.4. Champs de température dans la phase gazeuse

Les profils de la température du gaz le long de l'axe de symétrie qui ont été calculés par le modèle couplé pour les plaques de 10, 20 et 40 cm de côté sont donnés sur la Figure 28. Sur cette même figure, nous avons reporté les moyennes temporelles des température T1 à T4 collectées par les thermocouples placés le long de l'axe de la flamme (voir Tableau 8 pour la position des thermocouples). Ces mesures de température par thermocouple ont été corrigées afin de prendre en compte le rayonnement des thermocouples Chromel-Alumel de type K de 1 mm de diamètre [16]ⁱ.

Comme le montre la Figure 28, les résultats du modèle sont en bon accord avec les données expérimentales, avec une légère sous-estimation des températures T3 et T4, situés au-dessus de la zone de flamme persistante, pour les cas A et B. La température du gaz croît le long de l'axe de la plaque, d'une température très proche de la température de pyrolyse du PMMA [33], [84] à environ 1200 K. Elle décroît ensuite avec la hauteur. Les résultats numériques indiquent que la température maximale de la phase gazeuse est obtenue à une hauteur qui correspond à environ une fois le rayon

ⁱ Des mesures ont été également effectuées avec des thermocouples plus fins (0,25 et 0,5 mm, voir Annexe B). Réduire le diamètre du thermocouple minimise le temps de réponse et les transferts de chaleur. Nous l'avons observé, mais cela n'a pas modifié significativement la valeur de la température moyennée dans le temps. Les thermocouples de 1 mm, moins fragiles, ont été retenus pour les mesures de température.

de la plaque pour les trois tailles d'échantillon. Il est intéressant de noter que la température prédite par le modèle pour la plus petite plaque est très proche de celle obtenue par Beaulieu and Dembsey [9] pour un échantillon de PMMA noir de 10,2 cm de diamètre, 1184 ± 100 K vs. 1190 ± 40 K.

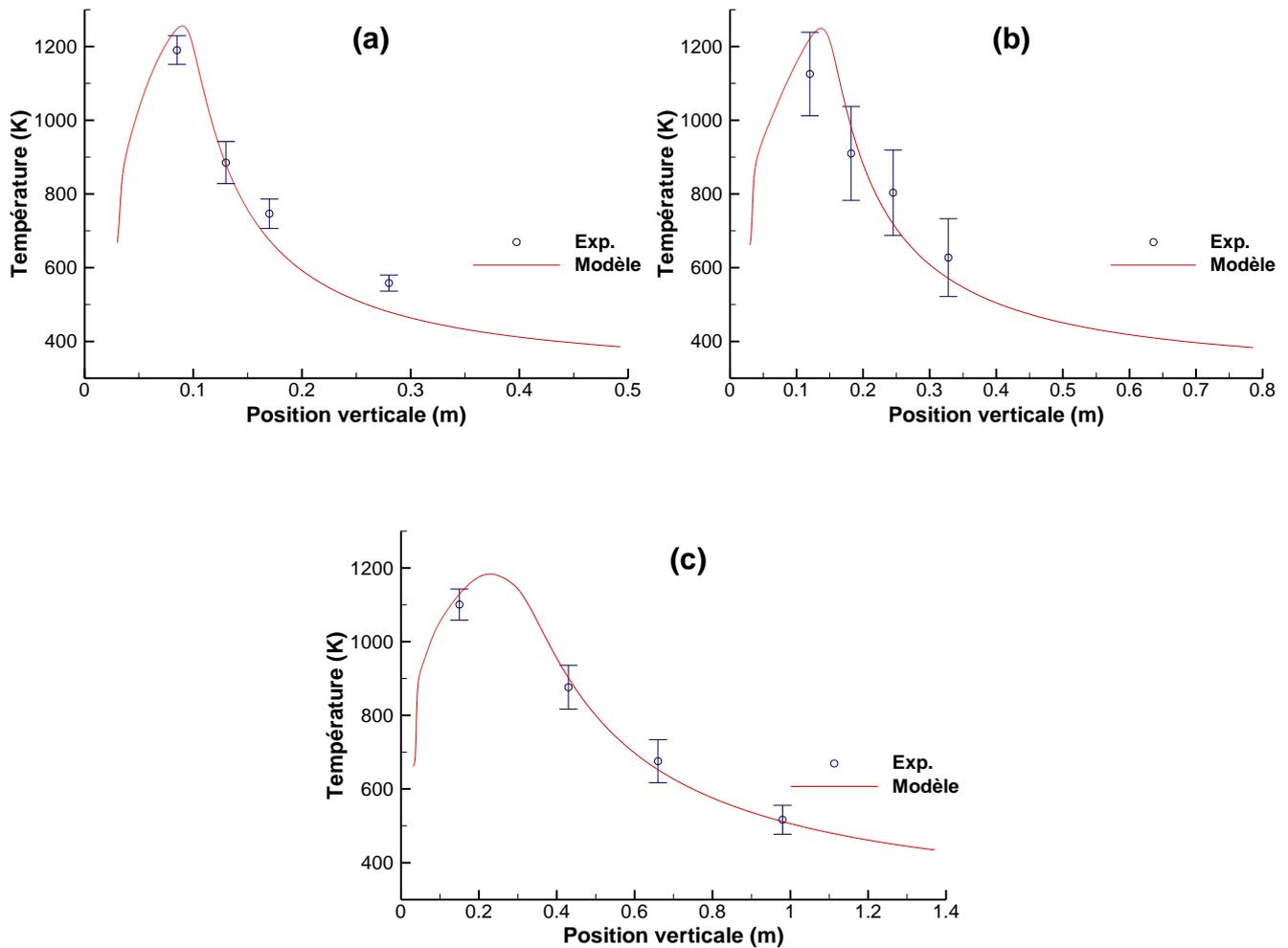


Figure 28. Evolutions des températures expérimentales et numériques moyennées sur le temps le long de l'axe de symétrie pour les trois tailles d'échantillon : (a) $10 \times 10 \times 3$ cm³, (b) $20 \times 20 \times 3$ cm³, and (c) $40 \times 40 \times 3$ cm³

Nous nous sommes aussi intéressés à la hauteur des flammes de diffusion turbulente générées par la combustion des plaques de PMMA de 10, 20 et 40 cm de côté. La hauteur de flamme peut être déterminée visuellement en observant l'altitude maximale de la flamme lumineuse et dépend donc de la composition et de la température de la phase gazeuse dans la flamme. Zukoski ([85], voir [86]) a proposé une méthode plus objective en mesurant l'intermittence de flamme près de son sommet. Cox et Chitty [87], Audouin et al. [88] et Zukoski et al. [85] ont corrélié la hauteur de flamme visible à la température du gaz et ont observé que l'altitude maximale de l'isotherme 600 K était assez représentative de la hauteur de flamme visible en atmosphère libre. Dans cet esprit, nous avons extrait des champs de température calculés (Figure 29), l'altitude maximale de l'isotherme 600 K et nous l'avons moyennée dans le temps sur la période de combustion quasi-stationnaire. Les hauteurs de flamme basées sur ce critère de température pour les trois cas simulés sont données dans le Tableau 10.

Tableau 10. Hauteurs de flamme (en m) déterminées à partir de la corrélation de Heskestad et du modèle couplé en utilisant des critères de température de 500, 600 et 700 K

Dimensions de la plaque (cm ³)	Corrélation de Heskestad	Résultats numériques (500K-600K-700K)
10 × 10 × 3	0,19	0,25-0,19-0,16
20 × 20 × 3	0,34	0,40-0,30-0,25
40 × 40 × 3	0,72	1,02-0,75-0,62

Elles peuvent être comparées à celles déduites de la corrélation d'Heskestad [86], $H_f = -1.02D + 0.235\dot{Q}^{0.4}$, où \dot{Q} (en kW) est le taux de dégagement de chaleur (HRR) de la flamme et D est le diamètre équivalent de la surface en combustion. Le HRR est calculé en utilisant la valeur moyenne du taux de pyrolyse : $\dot{Q} = A_b \dot{m}_s'' \Delta h_c$, où A_b est la surface en combustion, \dot{m}_s'' est le taux de pyrolyse par unité de surface et Δh_c est la chaleur de combustion effective. En utilisant $\Delta h_c \sim 24,8 \times 10^6 \text{ J.kg}^{-1}$ [89] et les valeurs du taux de pyrolyse total à $t = 1000 \text{ s}$ (Figure 25), des hauteurs de flamme de 0,19, 0,34 et 0,72 sont obtenues pour les trois tailles de plaques de combustible. La comparaison entre les valeurs calculées par le modèle couplé et la corrélation

d'Heskestad montre un très bon accord. Cet accord se dégrade si l'on utilise une température seuil de 500 K ou 700 K pour définir la hauteur de flamme (Tableau 10). A noter un bon accord entre la hauteur de flamme calculée pour l'échantillon de 10 cm de côté et celle évaluée visuellement à $17,8 \pm 0,64$ cm par Beaulieu et Dembsey [9] pour un échantillon de PMMA noir de 10,2 cm de diamètre.

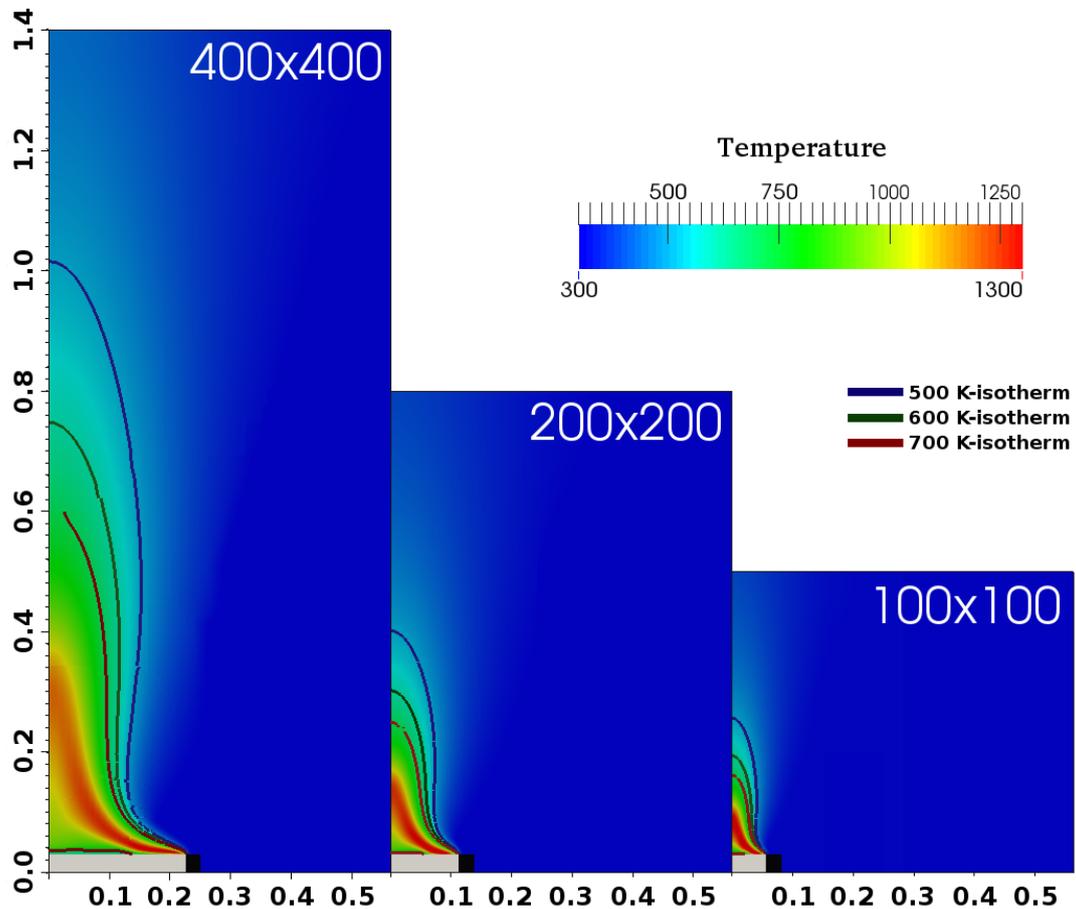


Figure 29. Champs de température (en K) et les isothermes à 500, 600 et 700 K pour les trois cas simulés à $t = 1000$ s. Le rectangle gris représente la plaque de PMMA et le rectangle noir correspond à la partie de la plaque sous le masque métallique

Chapitre 6

MODELISATION DU FEU EN ATMOSPHERE SOUS-OXYGENEE

6.1 • Traitement de la phase gazeuse

5.3.1. Cinétique chimique à deux étapes

5.3.2. Limite d'inflammabilité

6.2 • Expérimentations dans le dispositif CADUCEE

6.3 • Validation du modèle

Dans le domaine de la sécurité incendie dans les installations nucléaires et industrielles, les conditions de ventilation peuvent conduire à des feux en régime sous-oxygéné. Dans ce contexte, la viciation de l'air ambiant implique généralement une diminution de la production de suie et des températures de la phase gazeuse. Le rayonnement reçu par la surface du combustible en provenance de la flamme en est diminué, et par conséquent le débit de pyrolyse du combustible puis la puissance du feu. Si la diminution de la teneur en oxygène devient importante, l'extinction du feu peut se produire [39], [44], [45], [48], [84], [90], [91].

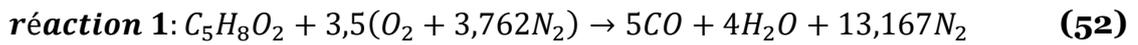
6.1. Traitement de la phase gazeuse

Dans tout ce qui précède, nous avons considéré que la chimie pouvait être représentée par une réaction à une seule étape sans limite inférieure d'inflammabilité (LII). Cela convient pour la plupart des scénarios de combustion en atmosphère libre. En revanche, en milieu sous-oxygéné, ces simplifications ne peuvent plus être faites. La prise en compte de l'effet de sous-oxygénation sur le développement d'un feu confiné,

mais aussi l'extinction ou la ré-inflammation locale, requiert donc une chimie plus détaillée. Dans le cas présent, nous avons retenu un mécanisme réactionnel à deux étapes impliquant la formation et l'oxydation du monoxyde de carbone avec LII.

6.1.1. Cinétique chimique à deux étapes

Les deux réactions impliquées s'écrivent :



- **Equations de transport des espèces**

En supposant un nombre de Lewis unitaire ($Le = \lambda/(\rho C_p D) = 1$), les équations de transports des espèces, décrivant le schéma réactionnel (équations (52) et (53)), deviennent :

$$\mathcal{L}(Y_F) = \dot{\omega}_F^1 \quad (54)$$

$$\mathcal{L}(Y_{O_2}) = \dot{\omega}_{O_2}^1 + \dot{\omega}_{O_2}^2 \quad (55)$$

$$\mathcal{L}(Y_{CO}) = \dot{\omega}_{CO}^1 + \dot{\omega}_{CO}^2 \quad (56)$$

$$\mathcal{L}(Y_{H_2O}) = \dot{\omega}_{H_2O}^1 \quad (57)$$

$$\mathcal{L}(Y_{CO_2}) = \dot{\omega}_{CO_2}^2 \quad (58)$$

où $\mathcal{L}(\phi) = \partial(\rho\phi)/\partial t + \nabla \cdot (\rho\mathbf{v}\phi) - \nabla \cdot (\rho D \nabla \phi)$ et $Y_F, Y_{O_2}, Y_{CO}, Y_{H_2O}$ et Y_{CO_2} sont les fractions massiques respectives du combustible, du O_2 , du CO , du H_2O et du CO_2 . Les termes de production et de destruction des espèces sont représentés par les termes sources $\dot{\omega}_\phi^j$, l'exposant j ($j = 1$ ou 2) désignant le numéro de la réaction chimique.

Ce système nécessite donc la résolution de 5 équations de transport, de type advection-diffusion-réaction, si toutes les fractions massiques des différentes espèces sont considérées comme des variables principales. La fraction massique d'azote est

déterminée en utilisant le fait que la somme des fractions massiques du mélange vaut 1 :

$$\sum_k Y_k = 1 \rightarrow Y_{N_2} = 1 - \sum_{k \neq N_2} Y_k \quad (59)$$

- **Fractions de mélange**

Il est possible de réduire le nombre d'équations de transport à résoudre en généralisant le concept de fraction de mélange au schéma réactionnel à deux étapes.

Les différents taux de réaction $\dot{\omega}_k^j$ avec $k = O_2, CO, H_2O, CO_2$ et $j = 1,2$ peuvent être exprimés en fonction des taux de réaction du combustible et du monoxyde de carbone :

$$\dot{\omega}_{O_2}^1 = \frac{3,5W_{O_2}}{W_F} \dot{\omega}_F^1 = s_{O_2}^1 \dot{\omega}_F^1 \quad (60)$$

$$\dot{\omega}_{O_2}^2 = \frac{W_{O_2}}{2W_{CO}} \dot{\omega}_{CO}^2 = s_{O_2}^2 \dot{\omega}_{CO}^2 \quad (61)$$

$$\dot{\omega}_{CO}^1 = -\frac{5W_{CO}}{W_F} \dot{\omega}_F^1 = -s_{CO}^1 \dot{\omega}_F^1 \quad (62)$$

$$\dot{\omega}_{H_2O}^1 = -\frac{4W_{H_2O}}{W_F} \dot{\omega}_F^1 = -s_{H_2O}^1 \dot{\omega}_F^1 \quad (63)$$

$$\dot{\omega}_{CO_2}^2 = -\frac{W_{CO_2}}{W_{CO}} \dot{\omega}_{CO}^2 = -s_{CO_2}^2 \dot{\omega}_{CO}^2 \quad (64)$$

A l'aide de ces équations, le système d'équations (54) à (58) s'écrit :

$$\mathcal{L}(Y_F) = \dot{\omega}_F^1 \quad (65)$$

$$\mathcal{L}(Y_{O_2}) = s_{O_2}^1 \dot{\omega}_F^1 + s_{O_2}^2 \dot{\omega}_{CO}^2 \quad (66)$$

$$\mathcal{L}(Y_{CO}) = -s_{CO}^1 \dot{\omega}_F^1 + \dot{\omega}_{CO}^2 \quad (67)$$

$$\mathcal{L}(Y_{H_2O}) = -s_{H_2O}^1 \dot{\omega}_F^1 \quad (68)$$

$$\mathcal{L}(Y_{CO_2}) = -s_{CO_2}^2 \dot{\omega}_{CO}^2 \quad (69)$$

En multipliant les équations (67) et (69) par $(s_{CO}^1)^{-1}$ et $(s_{CO}^1 s_{CO_2}^2)^{-1}$, il vient :

$$\mathcal{L} \left(Y_F + \frac{Y_{CO}}{s_{CO}^1} + \frac{Y_{CO_2}}{s_{CO}^1 s_{CO_2}^2} \right) = 0 \quad (70)$$

Cette relation permet de définir la fraction de mélange Z décrivant la conservation des atomes de carbone ainsi que les trois autres fractions de mélange intermédiaires Z_1 , Z_2 et Z_3 associées aux fractions massiques de combustible, de monoxyde de carbone et dioxyde de carbone [92] :

$$Z_1 = \frac{Y_F}{Y_F^I} \quad (71)$$

$$Z_2 = \frac{Y_{CO}}{s_{CO}^1 Y_F^I} \quad (72)$$

$$Z_3 = \frac{Y_{CO_2}}{s_{CO}^1 s_{CO_2}^2 Y_F^I} \quad (73)$$

avec :

$$Z = Z_1 + Z_2 + Z_3 \quad (74)$$

où Y_F^I est la valeur de la fraction massique de combustible au niveau de l'injection de combustible^j. La relation (70), décrivant la conservation des atomes de carbone, devient :

$$\mathcal{L}(Z) = 0 \quad (75)$$

^j La normalisation par Y_F^I permet la condition $Z = Z^I = 1$ dans la zone d'injection du combustible tout en conservant $Z = Z^{ox} = 0$ dans la zone d'injection du comburant. D'après la relation (75) et parce que l'opérateur \mathcal{L} satisfait un principe du maximum, la variable Z est comprise entre 0 et 1.

La méthode de résolution des fractions de mélange est la suivante :

1. Résolution des équations de transport relatives à la fraction de mélange Z , à la fraction massique de combustible Y_F et à la fraction massique de monoxyde de carbone Y_{CO} .
2. Détermination des fractions de mélange Z_1 et Z_2 à l'aide des relations (71) et (72).
3. Détermination de Z_3 et de Y_{CO_2} , à l'aide des relations (73) et (74).

- **Fractions massiques de vapeur d'eau et d'oxygène**

Une combinaison linéaire entre la fraction massique de combustible Y_F et de vapeur d'eau H_2O conduit aux relations suivantes :

$$Z_4 = \frac{Y_F}{Y_F^I} + \frac{Y_{H_2O}}{s_{H_2O}^1 Y_F^I} \quad \text{et} \quad \mathcal{L}(Z_4) = 0 \quad (76)$$

Etant donné la similitude entre Z et Z_4 en termes d'équations et de conditions aux limites, on peut écrire :

$$\left. \begin{array}{l} \mathcal{L}(Z_4) = \mathcal{L}(Z) = 0 \\ Z_4^I = Z^I = 1 \\ Z_4^{ox} = Z^{ox} = 0 \end{array} \right\} Z_4 \equiv Z \quad (77)$$

où les exposants I et ox correspondent respectivement aux injections de combustible et de comburant.

En reportant ce résultat dans la relation (73), il vient :

$$Y_{H_2O} = (Z - Z_1) s_{H_2O}^1 Y_F^I = s_{H_2O}^1 (Z Y_F^I - Y_F) \quad (78)$$

où $s_{H_2O}^1 = 4W_{H_2O}/W_F$ est le coefficient stœchiométrique de la vapeur d'eau de la réaction 1.

Soit la variable Z_5 telle que :

$$Z_5 = -\frac{Y_F s_{O_2}^1}{Y_F^I} + \frac{Y_{O_2}}{Y_F^I} + \frac{s_{O_2}^2}{s_{CO_2}^2} \frac{Y_{CO_2}}{Y_F^I} \quad (79)$$

Les conditions aux limites pour Z_5 sont :

$$Z_5^I = -s_{O_2}^1 \quad \text{et} \quad Z_5^{ox} = \frac{Y_{O_2}^{ox}}{Y_F^I} \quad (80)$$

Soit la variable Z_6 adimensionnée de la manière suivante :

$$Z_6 = \frac{Z_5 - Z_5^{ox}}{Z_5^I - Z_5^{ox}} = \frac{Z_5 - Y_{O_2}^{ox}/Y_F^I}{-s_{O_2}^1 - Y_{O_2}^{ox}/Y_F^I} \quad (81)$$

Les propriétés suivantes sont donc obtenues :

$$\left. \begin{aligned} \mathcal{L}(Z_6) &= \mathcal{L}(Z) = 0 \\ Z_6^I &= Z^I = 1 \\ Z_6^{ox} &= Z^{ox} = 0 \end{aligned} \right\} Z_6 \equiv Z \quad (82)$$

Et Y_{O_2} devient alors une fonction de Z :

$$\begin{aligned} Z(Y_F^I s_{O_2}^1 + Y_{O_2}^{ox}) &= Y_{O_2}^{ox} - Z_5 Y_F^I \\ &= Y_{O_2}^{ox} - \left(\frac{Y_F}{Y_F^I} s_{O_2}^1 + \frac{Y_{O_2}}{Y_F^I} + \frac{s_{O_2}^2}{s_{CO_2}^2} \frac{Y_{CO_2}}{Y_F^I} \right) Y_F^I \\ &= Y_{O_2}^{ox} + Y_F^I Z_1 s_{O_2}^1 - Y_{O_2} - \frac{s_{O_2}^2}{s_{CO_2}^2} s_{CO}^1 s_{CO_2}^2 Y_F^I Z_3 \\ &= Y_{O_2}^{ox} + Y_F^I Z_1 s_{O_2}^1 - Y_{O_2} - s_{O_2}^2 s_{CO}^1 Y_F^I Z_3 \end{aligned} \quad (83)$$

Soit :

$$\begin{aligned}
 Y_{O_2} &= Y_{O_2}^{ox} - (Y_{O_2}^{ox} + Y_F^l s_{O_2}^1)Z + Y_F^l s_{O_2}^1 Z_1 - Y_F^l s_{O_2}^2 s_{CO}^1 Z_3 \\
 &= Y_{O_2}^{ox} - (Y_{O_2}^{ox} + Y_F^l s_{O_2}^1)Z + Y_F^l s_{O_2}^1 Z_1 - Y_F^l s_{O_2}^2 s_{CO}^1 (Z - Z_1 - Z_2) \\
 &= Y_{O_2}^{ox} + [Y_{O_2}^{ox} + Y_F^l (s_{O_2}^1 + s_{O_2}^2 s_{CO}^1)]Z + (Y_F^l s_{O_2}^1 + Y_F^l s_{O_2}^2 s_{CO}^1)Z_1 + Y_F^l s_{O_2}^2 s_{CO}^1 Z_2 \\
 &= Y_{O_2}^{ox} + [Y_{O_2}^{ox} + Y_F^l (s_{O_2}^1 + s_{O_2}^2 s_{CO}^1)]Z + (s_{O_2}^1 + s_{O_2}^2 s_{CO}^1)Y_F + s_{O_2}^2 Y_{CO}
 \end{aligned} \tag{84}$$

où $s_{CO}^1 = 5W_{CO}/W_F$ est le coefficient stœchiométrique du monoxyde de carbone de la réaction 1 et $s_{O_2}^1 = 3,5W_{O_2}/W_F$ et $s_{O_2}^2 = W_{O_2}/2W_{CO}$ sont les coefficients stœchiométriques de l'oxygène dans les réactions 1 et 2.

- **Taux de réaction**

Les taux de réaction pour les réactions 1 et 2 sont donnés en utilisant l'approche EDC (Eddy Dissipation Concept) :

$$\dot{\omega}_F^1 = C_{EDC} \frac{\varepsilon}{k} \min\left(Y_F, \frac{Y_{O_2}}{s_{O_2}^1}\right) \tag{85}$$

$$\dot{\omega}_{CO}^2 = C_{EDC} \frac{\varepsilon}{k} \min\left(Y_{CO}, \frac{Y_{CO}}{s_{O_2}^2}\right) \tag{86}$$

6.1.2. Limite d'inflammabilité

Afin de prendre compte les effets de la sous-oxygénation de l'air sur la combustion, un modèle d'extinction local de flamme [93] est ajouté à la formulation EDC. Ainsi, l'équation de bilan de masse pour la fraction massique de combustible est réécrite comme suit :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho Y_F) + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v} Y_F) = \nabla \cdot \left(\frac{\mu_e}{\sigma_\phi} \nabla Y_F \right) + (1 - FEF) \dot{\omega}_F^1 \tag{87}$$

où FEF est le Facteur d'Extinction locale de Flamme qui est égal à 0 pour un scénario de combustion bien ventilée et à 1 pour un scénario d'extinction de flamme. Ce coefficient est défini par une fonction d'Heaviside H comme suit :

$$FEF = H\left(\frac{T_c - T}{T_c - T_\infty} - \frac{Y_{O_2}}{Y_{O_2,c}}\right) \quad (88)$$

où T_c et $Y_{O_2,c}$ sont les températures et fraction massique d'oxygène critiques. Ainsi, $FEF = 1$ si $T_c - T/T_c - T_\infty \geq Y_{O_2}/Y_{O_2,c}$ (zone rouge de la Figure 30) et $FEF = 0$ dans le cas contraire (zone grise de la Figure 30).

La droite en trait pointillé de la Figure 30 correspond à la limite d'inflammabilité et est définie par les deux grandeurs critiques empiriques T_c et $Y_{O_2,c}$. Dans le cas présent, $T_c = 1500 \text{ K}$ et $Y_{O_2,c} = 0,15$ [94]–[96].

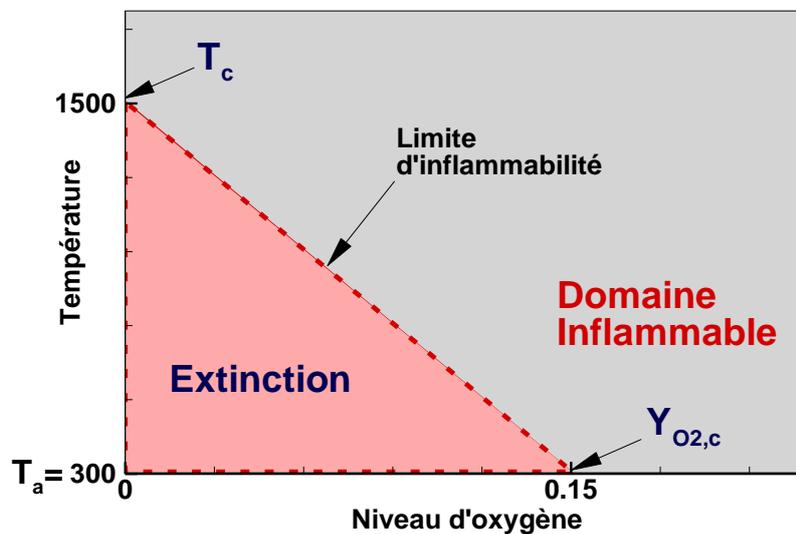


Figure 30. Diagramme d'inflammabilité d'une flamme de diffusion en fonction de la teneur en oxygène et de la température du milieu réactionnel

La Figure 31 présente une comparaison des champs de température de la phase gazeuse et de la fraction massique d'oxygène prédits par le modèle couplé en utilisant une chimie à une étape sans LII et une chimie à deux étapes avec LII pour une plaque de

PMMA de 20 cm de côté en combustion dans une atmosphère normalement oxygénée (21 % de O_2).

Comme attendu, l'épaisseur de la zone de réaction du côté riche de la flamme diminue, l'oxygène présent dans le cône de flamme n'étant pas totalement consommé. Dans le cône de flamme, la température de la phase gazeuse est moins élevée et se rapproche de la valeur mesurée (Figure 32). Au-dessus de la zone de réaction, les champs de température de la phase gazeuse et de fraction massique d'oxygène ne sont pas affectés (Figure 31).

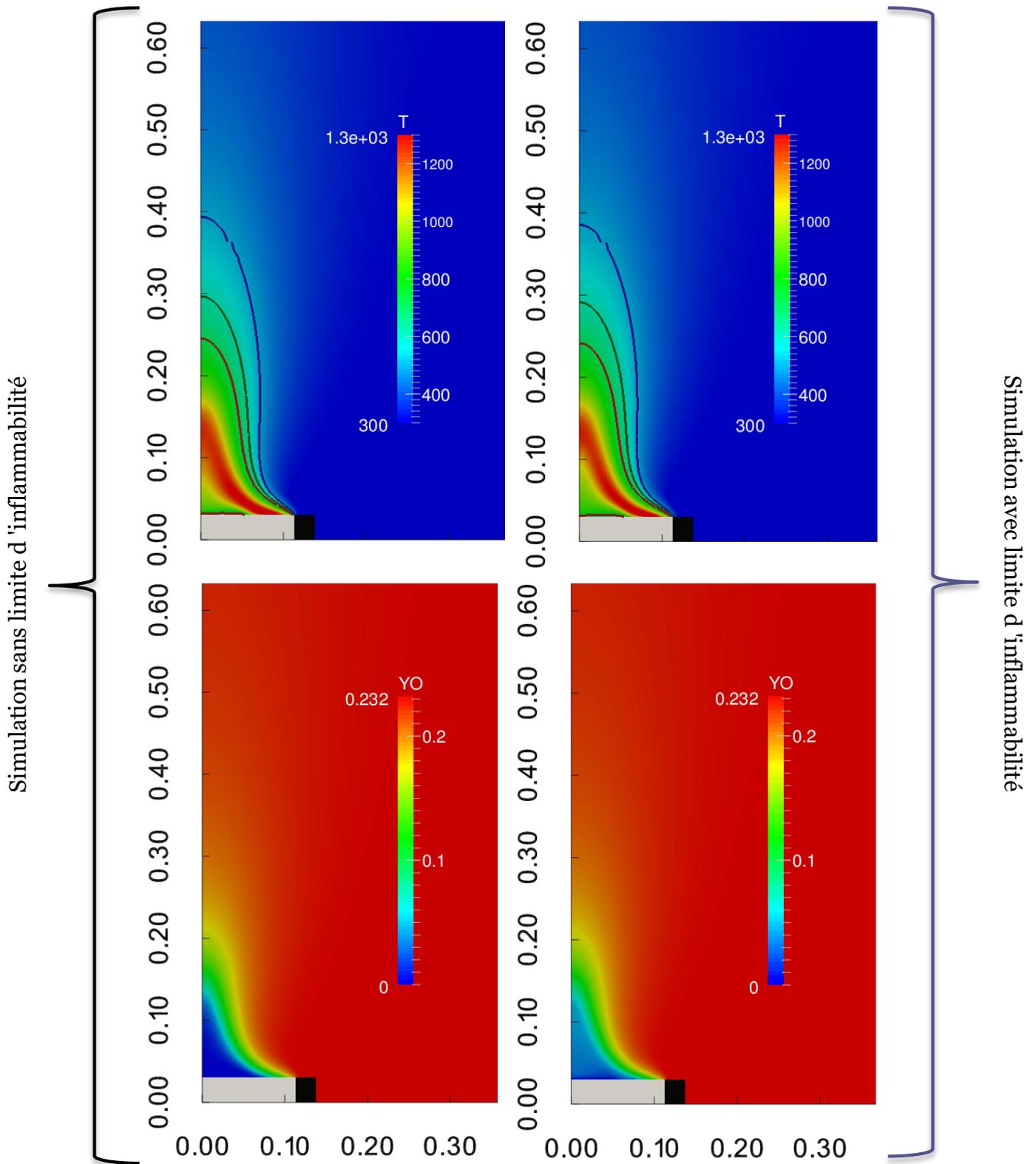


Figure 31. Comparaison des modèles à une étape sans LII et à deux étapes avec LII : champs de température (haut) et de fraction massique d'oxygène (bas). Ces champs correspondent à la phase de combustion quasi-stationnaire en atmosphère normalement oxygénée d'une plaque de PMMA de $20 \times 20 \times 3 \text{ cm}^3$

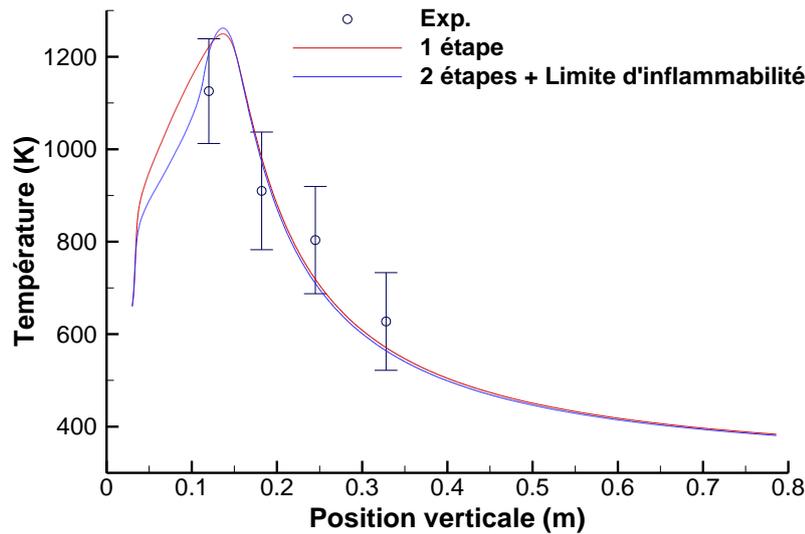


Figure 32. Comparaison des modèles à une étape sans LII et à deux étapes avec LII : températures de la phase gazeuse moyennées dans le temps le long de l'axe de symétrie

L'effet d'une chimie à deux étapes avec LII sur le débit de pyrolyse et la position de l'interface au cours du temps est illustré sur la Figure 33. Comme nous l'avons mentionné précédemment, la zone de réaction est plus mince et plus éloignée de la surface de la plaque, ce qui entraîne une diminution du flux radiatif reçu à l'interface, et par conséquent du débit de pyrolyse et de la vitesse de régression de l'interface. Les écarts entre les deux modèles restent faibles, l'accord avec l'expérience étant légèrement meilleur pour la vitesse de régression en fin de combustion et un peu moins bon pour le débit de pyrolyse tout au long de l'essai. Pour ce dernier, les écarts sont là encore sans doute dus à la non-uniformité du flux de chaleur à l'interface, ce que le modèle a du mal à reproduire.

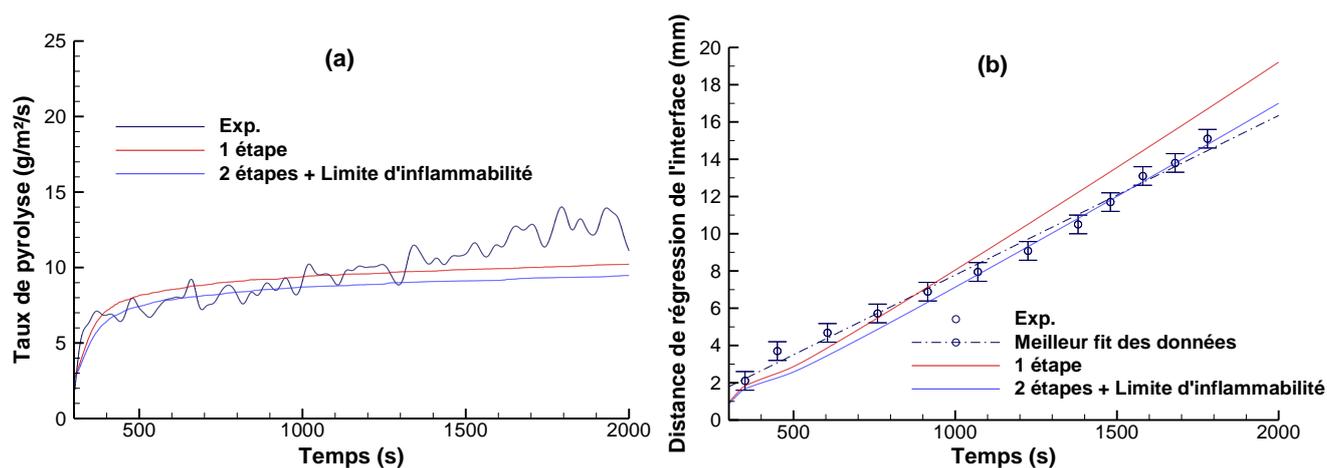


Figure 33. Comparaison des modèles à une étape sans LII et à deux étapes avec LII : évolutions temporelles (a) du taux de pyrolyse total et (b) de la distance de régression de l'interface au centre de la plaque

6.2. Expérimentations dans le dispositif CADUCEE

Dans le cadre de la thèse de David Alibert, des expérimentations en atmosphère sous-oxygénée dans un milieu ouvert ont été réalisées dans le calorimètre à atmosphère contrôlée CADUCÉE (Controlled Atmosphere Device for Unburnt and Carbon Emission) de l'IRSN (Figure 34). Ce dispositif expérimental de 3 mètres de diamètre permet de simuler des feux dans un environnement sous-oxygéné par ajout d'azote dans l'air atmosphérique. Le comburant ($0 \leq X_{O_2} \leq 0,21$) passe par la grille d'admission en partie basse du dispositif et s'écoule vers le haut entourant la flamme de diffusion générée lors de la combustion. L'écoulement est forcé, ce qui ne permet pas une comparaison avec les résultats précédents obtenus en atmosphère libre où la convection est naturelle. CADUCEE est dimensionné pour des feux dont la puissance est inférieure à 250 kW (sa hotte d'aspiration assure un débit d'extraction maximum de 15000 m³.h⁻¹). Des combustibles de différentes natures (gazeuse, liquide et solide) peuvent y être étudiés.

Dans le cas présent, une plaque de PMMA est positionnée au centre du dispositif sur une balance électronique de précision (à 0,1 g près) permettant de mesurer l'évolution de la perte de masse de l'échantillon au cours du temps. Un masque en acier est posé sur la face supérieure de la plaque de PMMA afin de réduire la zone de pyrolyse à un carré de 20 cm de côté. Un fluxmètre total refroidi est posé au centre de la plaque (voir

paragraphe 5.2) afin de mesurer le flux total à la surface de la plaque en provenance de la flamme^k. Quatre thermocouples Chromel-Alumel de type K sont positionnés le long de l'axe de symétrie au-dessus de l'échantillon à des hauteurs de 8, 18, 33 et 53 ($\pm 0,5$) cm. Un analyseur de gaz permet de mesurer en temps réel le niveau de O_2 dans l'enceinte. Une régulation du niveau d'injection de l'azote dans l'air atmosphérique permet de contrôler le niveau d'oxygène souhaité tout au long de l'essai.

Une technique originale d'inflammation de la plaque de PMMA a été développée par Y. Pizzo et M. Mense. Elle consiste à rainurer la face supérieure de la plaque comme le montrent les Figure 35 et Figure 36 et à remplir les rainures avec de l'éthanol. L'éthanol est, quant à lui, enflammé grâce à un générateur d'étincelles actionné à l'aide d'un bras mécanique. La quantité d'éthanol doit être suffisamment faible pour réduire la durée d'inflammation, mais suffisante pour générer au-dessus de l'échantillon une flamme auto-entretenu.

Des thermocouples sont positionnés sur les faces externes des parois de l'enceinte, ainsi que des fluxmètres radiatifs et totaux sur les faces internes, afin d'évaluer l'influence des parois sur le processus de combustion. Comme le montre le Tableau 11, les températures et les flux radiatifs relevés au niveau des parois, lors des essais, n'ont pas dépassé respectivement 37 °C et 0,24 kW.m⁻², le flux convectif étant quasi-nul. L'effet des parois est donc négligeable pour des feux impliquant des plaques de 20 cm de côté ou moins.

Par la suite, $t = 0$ s correspond à l'instant où la concentration de O_2 est établie à la valeur retenue, 18,2 ou 19,5 %.

Tableau 11. Températures et flux aux parois de CADUCEE

Niveau d'oxygène ambiant	21,0 %	19,5 %	18,2 %
Température des parois (°C)	35,17 \pm 1,9	32,2 \pm 2,9	33,6 \pm 1,3
Flux radiatif aux parois (W.m ⁻²)	189,7 \pm 29,7	138,4 \pm 24,7	76,8 \pm 14,3
Flux total aux parois (W.m ⁻²)	200,1 \pm 35,3	158,9 \pm 32,1	85,7 \pm 21,8

^k Des essais ont été réalisés en plaçant une pastille de ZnSe sur le capteur afin de mesurer la contribution radiative au flux total. Malheureusement, exposée trop longuement à la flamme de PMMA dans la phase d'établissement de la combustion auto-entretenu, la pastille se recouvrait totalement de suies, empêchant la mesure.

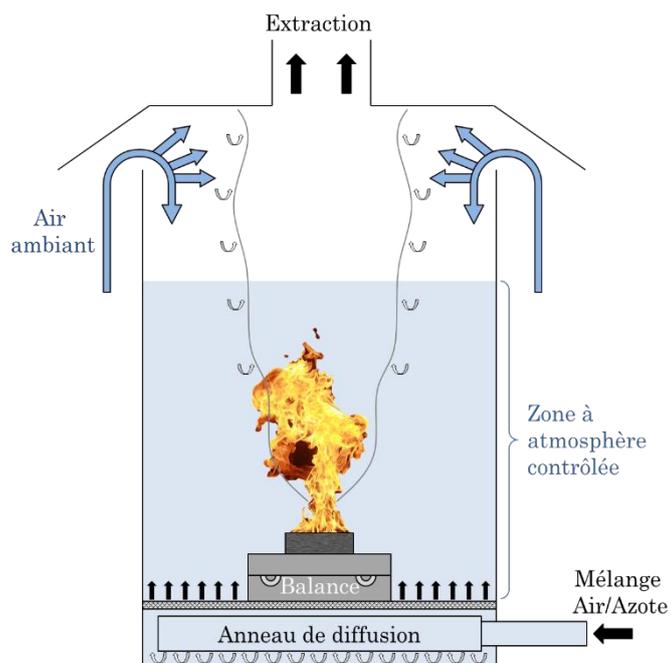
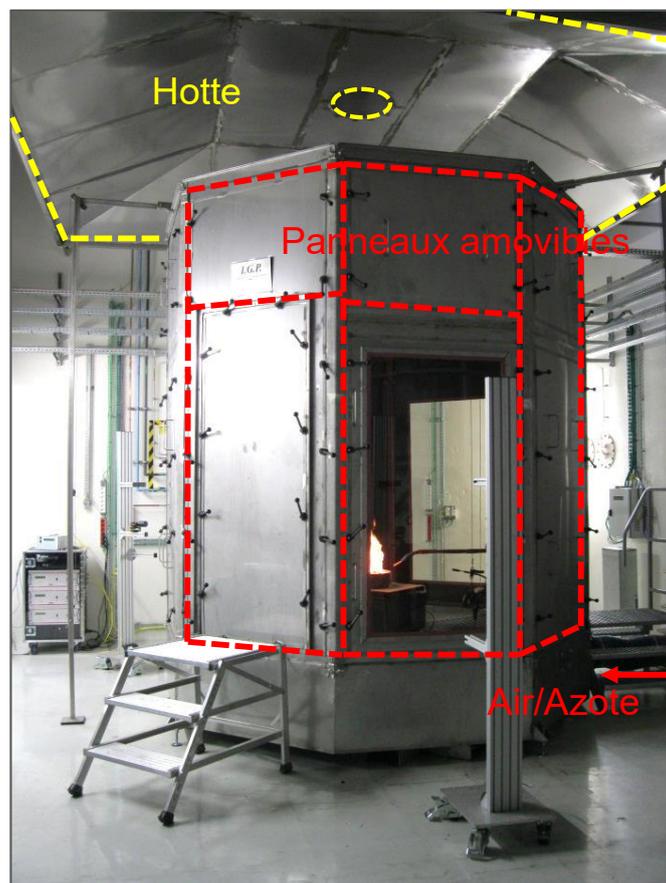


Figure 34. Le dispositif « CADUCEE » (crédit D. Alibert)

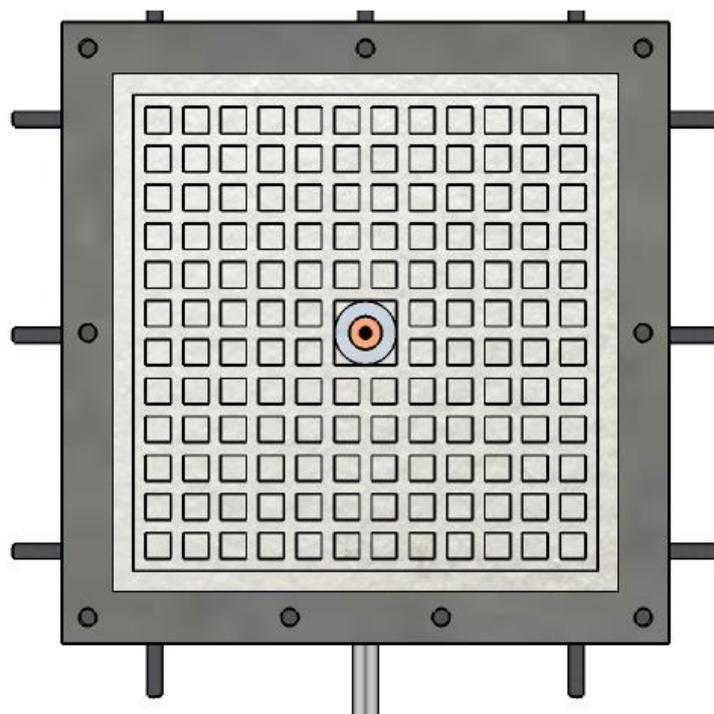


Figure 35. Plaque de PMMA rainurée avec fluxmètre total (crédit D. Alibert)

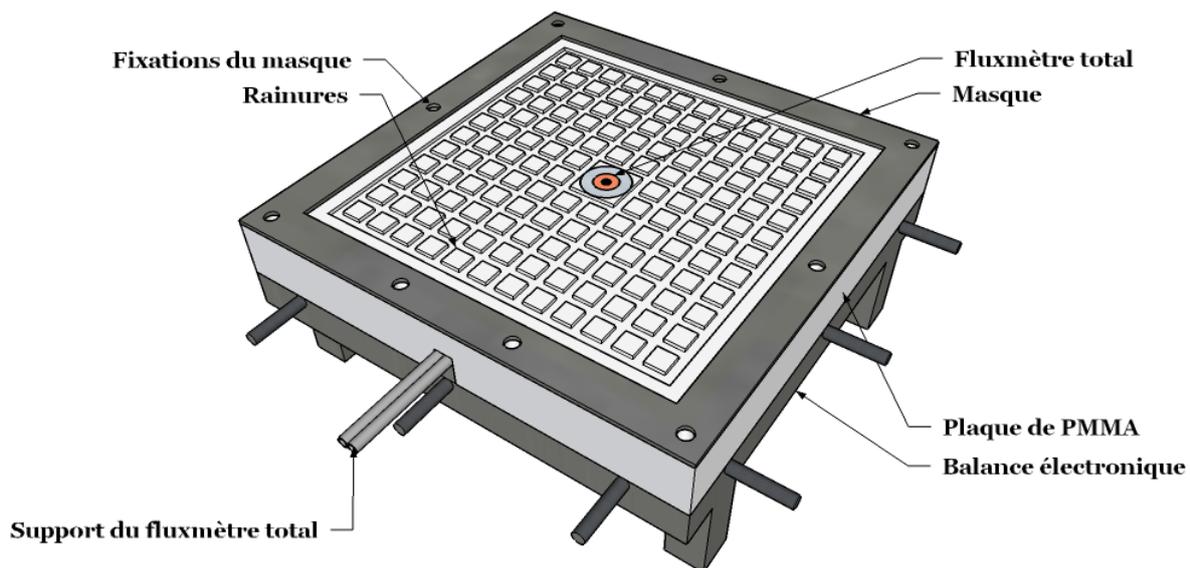


Figure 36. Dispositif utilisé au sein de l'enceinte de « CADUCEE » (crédit D. Alibert)

6.3. Validation du modèle

Le modèle couplé incluant une chimie à deux étapes avec LII a été appliqué à la combustion de plaques de PMMA de 20 cm de côté dans l'air atmosphérique (21 %) et sous-oxygéné, à 18,2 % et 19,5 % de O_2 . Les autres données d'entrée utilisées pour les simulations sont celles du Tableau 8.

Le Tableau 12 présente une comparaison des résultats numériques et expérimentaux concernant l'effet du niveau d'oxygénation de l'air d'admission sur les flux totaux provenant de la flamme et reçus à la surface de l'échantillon. Malgré de fortes variations observées, on observe une réduction significative du flux total moyen avec la teneur en O_2 , avec près de 30 % lorsque X_{O_2} passe de 21 à 18,2 %.

Le modèle reproduit de façon satisfaisante cette tendance et les valeurs prédites se trouvent bien dans le domaine d'incertitude des mesures.

Tableau 12. Flux de chaleur totaux moyens de la flamme vers l'interface gaz/solide en fonction de la teneur en oxygène de l'air d'admission. Les flux de chaleur sont moyennés sur les 400 premières secondes de la période de combustion stationnaire. La plage d'erreur donnée correspond à la plage la plus large de valeurs obtenues (c.à.d. du minimum au maximum)

Niveau d'oxygène	Flux total (kW.m ⁻²)	
	Mesuré	Calculé
21,0 %	31,9±4,3	32,1±1
19,5 %	27,9±3,2	28,5±1
18,2 %	23,5±2,4	25,9±1

Lorsque la teneur en oxygène du milieu réactionnel diminue, la flamme est moins puissante, sa température et sa concentration en suies diminuent. Le flux total s'en trouve diminué, ce qui conduit à un débit de pyrolyse moindre comme le confirme la Figure 37. Si l'on compare le diagramme (a) de la Figure 37 et celui de la Figure 33 qui correspond à une combustion en atmosphère libre, on remarque que le mode

d'alimentation d'air dans CADUCEE conduit à des variations moins importantes du taux de pyrolyse.

Les résultats numériques montrent une bonne concordance avec les mesures, en particulier à 18,2 % d'oxygène dans l'air d'admission. Cependant, le modèle ne reproduit pas correctement l'évolution du taux de pyrolyse avec le temps, pour les raisons évoquées au paragraphe 5.3.3.

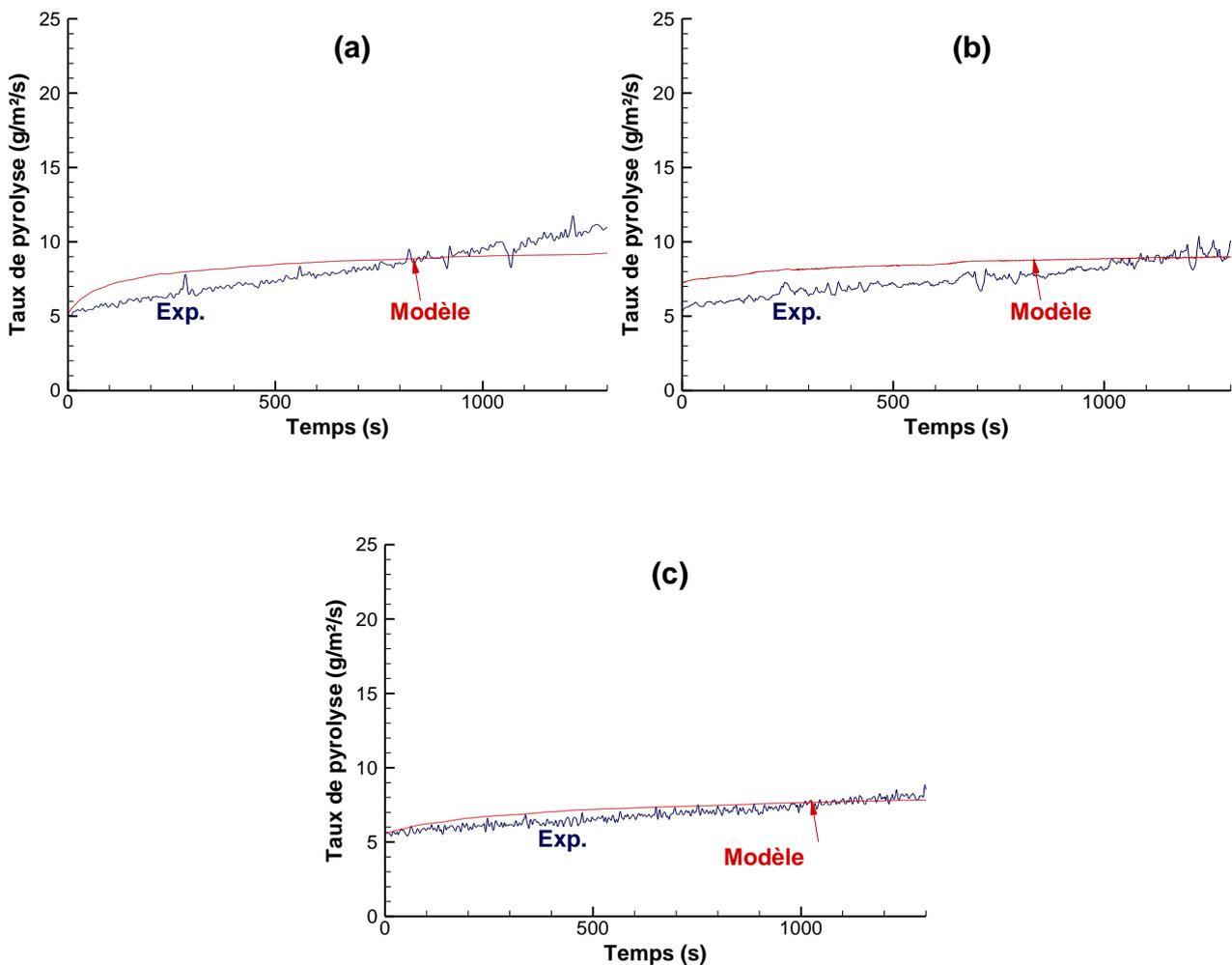


Figure 37. Evolutions temporelles des débits de pyrolyse prédits et mesurés pour des teneurs en oxygène de l'air d'admission de (a) 21 %, (b) 19,5 % et (c) 18,2 %

Sur la Figure 38, le profil de la température moyenne du gaz le long de l'axe de symétrie est comparé aux valeurs moyennes expérimentales mesurées à 8, 18, 33 et 53 cm de

hauteur (resp. T1, T2, T3 et T4) et corrigées radiativement selon la procédure donnée en Annexe B. Compte tenu des écarts type sur les mesures expérimentales, un bon accord général est trouvé entre l'expérience et les simulations. Cependant les données expérimentales sont sous-estimées dans le cas où la teneur en oxygène est égale à 19,5 %, en particulier au-dessus de la zone persistante de la flamme (Figure 38b).

Lorsque la teneur en oxygène baisse, les écarts-type sur la température des gaz sont plus faibles (tendance à la laminarisation de l'écoulement). La température maximale de flamme diminue de 1250 K à 1190 K entre 21 % et 19,5 % puis semble saturer entre 19,5 % et 18,2 %.

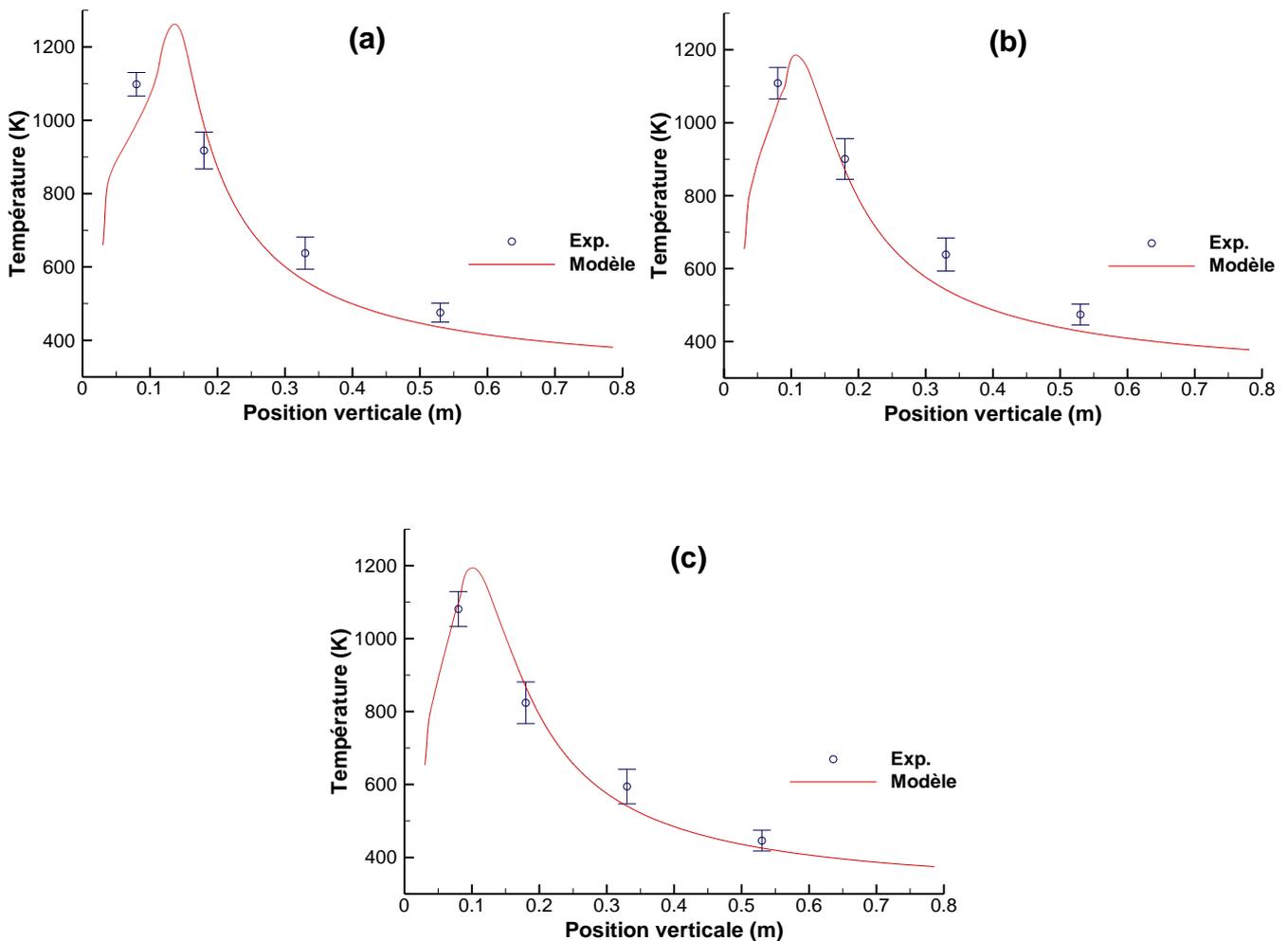


Figure 38. Evolution des températures prédites moyennées sur le temps le long de l'axe de symétrie et des températures expérimentales au niveau des 4 thermocouples pour trois niveaux d'oxygène ambiant : (a) 21 %, (b) 19,5 % et (c) 18,2 %

Chapitre 7

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

L'objectif principal de ce travail était de développer et valider un outil numérique prédictif de la combustion de plaques de PMMA en atmosphères normalement oxygénée et sous-oxygénée.

Dans le deuxième chapitre, après avoir dressé un état de l'art exhaustif sur les aspects expérimentaux et de simulation de la pyrolyse du PMMA, ainsi que du couplage entre les phases condensée et gazeuse, en atmosphères normalement oxygénée et sous-oxygénée, les approches de modélisation de la pyrolyse en surface et en volume ont été présentées et comparées, ainsi que différentes variantes radiatives du modèle volumique selon que le milieu est gris ou non gris, opaque ou semi-transparent.

Pour chacune des deux approches de modélisation, surfacique et volumique :

- Un jeu optimal de paramètres cinétiques de la pyrolyse a été déterminé en utilisant un algorithme génétique à partir d'une seule expérience de pyrolyse pure à 18 kW.m^{-2} . Les valeurs obtenues pour le modèle volumique sont en cohérence avec les mesures de la littérature, alors que celles obtenues pour le modèle de pyrolyse surfacique apparaissent plutôt comme des paramètres effectifs liés à la formulation du modèle.
- Un bon accord général a été trouvé avec les données expérimentales dans les cas de pyrolyse pure à 14 kW.m^{-2} et de pyrolyse avec flamme en utilisant le jeu de paramètres obtenu précédemment.

L'analyse comparative des résultats obtenus pour les deux modèles et les variantes du modèle de pyrolyse volumique a montré que, même si les résultats sont relativement proches les uns des autres, ils sont le plus souvent en faveur du modèle de pyrolyse volumique prenant en compte la nature spectrale du milieu semi-transparent. Si l'on ajoute à cela que les paramètres cinétiques du modèle de pyrolyse volumique ont un

vrai sens physique et que l'effort de calcul nécessaire au calcul du rayonnement dans le MST non gris (modèle à 46 bandes spectrales) est faible comparé à celui du calcul couplé avec la phase gazeuse, on comprend aisément pourquoi le modèle de pyrolyse le plus complet (pyrolyse volumique et milieu semi-transparent non gris) ait été retenu pour la suite de l'étude.

Le code de calcul ISIS a été ensuite présenté et les sous-modèles de la phase gazeuse utilisés dans les simulations du présent travail ont ensuite été décrits dans le chapitre 4. Un modèle de turbulence $k - \varepsilon$ standard avec prise en compte des effets de flottabilité et de l'hypothèse GGDH (Generalized Gradient Diffusion Hypothesis) a été utilisé. Le modèle de transfert radiatif qui a été adopté en phase gazeuse est le modèle FVM (Volumes Finis) et un modèle de chimie EDC (Eddy Dissipation Concept) à une étape a été utilisé. La prise en compte de la production et de l'oxydation des suies a été réalisée respectivement à l'aide des modèles de Khan et Greeves et de Magnussen et Hjertager.

Dans le cinquième chapitre, le modèle de pyrolyse volumique le plus complet a été couplé au code CFD ISIS et validé par confrontation avec des données d'expériences de combustion de plaques horizontales de PMMA de 10, 20 et 40 cm de côté. La contribution radiative au flux total de la flamme vers le combustible a été obtenue en recouvrant la face supérieure du fluxmètre total avec une pastille de zinc-selenide. Les principales conclusions de la comparaison modèle/expérience sont :

- Flux thermiques au centre de la plaque : le flux radiatif et le flux total augmentent avec la taille de l'échantillon, mais la contribution radiative au flux total demeure quasiment constante (~80 %).
Le flux net reçu à l'interface augmente environ d'un facteur 2 lorsque la taille de l'échantillon double.
- Régression de l'interface au centre de la plaque : Compte tenu des incertitudes liées au traitement vidéo ($\pm 0,5$ mm sur la position de l'interface), l'accord est satisfaisant puisque les écarts modèle/expérience pour la position de l'interface n'excèdent pas 1,5 mm.
- Débit total de pyrolyse : si le modèle reproduit l'augmentation du taux de pyrolyse total avec la taille de l'échantillon, celui-ci ne restitue pas correctement, pour une taille de plaque donnée, l'évolution temporelle du taux de pyrolyse.

L'analyse des topographies prédites et mesurée de l'échantillon brûlé a montré que le modèle sous-estime le flux total aux bords de l'échantillon, et donc la régression et la pyrolyse dans cette zone.

- Température du gaz dans la flamme : malgré une légère sous-estimation des températures de gaz au-dessus de la zone de flamme persistante, pour les plaques de 10 et 20 cm de côté, la comparaison avec les mesures par thermocouples est satisfaisante. Le calcul montre que la température maximale est obtenue à une hauteur d'environ une fois le rayon de la plaque pour les trois tailles d'échantillon.
- Hauteur de flamme : la hauteur de flamme définie comme l'altitude maximale de l'isotherme 600 K calculée par le modèle couplé est en bon accord avec celle déduite de la corrélation d'Heskestad.

Dans le sixième chapitre, une version du code ISIS incluant une chimie à deux étapes avec LII a été appliquée à la combustion d'une plaque de 20 cm de côté sous 18,2 et 19,5 % d'oxygène. Après s'être assurés d'une influence négligeable des parois du dispositif, la validation sur des expériences réalisées dans le dispositif CADUCEE nous a permis de dégager les conclusions suivantes :

- Comparée à une chimie à une étape, la chimie à deux étapes avec LII conduit, à 21 % d'oxygène, à un amincissement de la zone de réaction du côté riche de la flamme et à une température du gaz dans le cône de flamme légèrement plus faible. Au-dessus de la zone de réaction, le gaz n'est pas affecté. Il s'ensuit une légère diminution du débit de pyrolyse et de la vitesse de régression de l'interface, qui peut s'expliquer par une diminution du flux radiatif à l'interface.
- Lorsque la teneur en oxygène de l'air d'admission diminue, le flux total moyen diminue, de près de 30 % lorsque X_{O_2} passe de 21 à 18,2 %, et donc le débit de pyrolyse. Cette tendance est reproduite par le modèle à deux étapes avec LII et les valeurs prédites sont dans le domaine d'incertitude des mesures. Compte tenu des écarts type sur les mesures expérimentales, un bon accord général est trouvé entre l'expérience et les simulations concernant la température moyenne du gaz le long de l'axe de flamme, avec une légère sous-estimation du modèle à 19,5 % au-dessus de la zone persistante de la flamme. La température maximale

de flamme diminue de 1250 K à 1190 K entre 21 % et 19,5 % puis semble saturer entre 19,5 % et 18,2 %.

A l'issue de ce travail, un certain nombre de perspectives se dégagent.

- Au plan expérimental :
 - Les mesures concernant la régression de l'interface gaz/solide et les flux thermiques reçus par cette interface sont déterminés expérimentalement au centre de la plaque. Une seule mesure du flux total a été réalisée aux bords de l'échantillon et a montré un écart notable avec la mesure au centre. Il est donc nécessaire de les compléter par des mesures réalisées en plusieurs points de l'interface et de suivre la totalité de la surface en régression par traitement vidéo.
 - L'utilisation d'une pastille ZnSe placée sur un fluxmètre total enchâssé dans le PMMA n'a pas été possible dans CADUCEE. La mesure de la contribution radiative au flux total pourrait être réalisée à l'aide d'un fluxmètre ellipsoïdal.

- Au plan numérique :
 - Le calcul des flux thermiques à l'interface gaz/solide doit être amélioré afin de remédier aux écarts observés entre le modèle et l'expérience, notamment sur l'évolution temporelle de la perte de masse totale. Parmi les pistes d'amélioration, l'utilisation d'un modèle proche-paroi dérivé de la DNS semble prometteuse.
 - La chimie de la combustion peut être aussi améliorée en recourant à la thermodynamique pour la LII et en utilisant un combustible équivalent. Par exemple, le concept de combustible virtuel proposé par Lyon et Walters [97] pourrait être implémenté dans le code.
 - Le modèle de pyrolyse volumique utilise des propriétés thermo-physiques du PMMA constantes. A court terme, nous introduirons des propriétés dépendantes de la température du matériau.

ANNEXES

A. Optimisation de paramètres par un algorithme génétique

Les algorithmes d'optimisation sont largement utilisés dans les problèmes physiques qui nécessitent une connaissance fine de certains paramètres clés. Ils sont d'autant plus efficaces que le nombre de paramètres d'entrée et/ou de sortie est élevé. Les algorithmes génétiques font partie de cette famille d'algorithmes qui s'appuie sur des techniques inspirées de la génétique et de l'évolution naturelle. Les processus de cette dernière, décrits par Darwin en 1859, ont été appliqués pour la première fois dans ce type de problématiques d'optimisations par John Holland en 1962 [98] afin d'imiter les phénomènes d'adaptation des êtres vivants. Ils ont été ensuite vulgarisés et développés dans plusieurs ouvrages dont ceux de David Goldberg [99] et S. Sivanandam et Deepa [100]. Le principe général du fonctionnement d'un algorithme génétique (AG) ainsi que les mécanismes sur lesquels il repose (sélection, mutation, croisement, etc.) sont représentés sur la Figure 8.

Les AG servent à trouver un ou des extrema d'une fonction définie sur l'espace de recherche. En règle générale, ces extrema correspondent au minimum d'une fonction d'erreur entre les résultats numériques donnés par le code de calcul et les résultats expérimentaux qui servent de référence.

Les notations adoptées dans ce type d'algorithme sont inspirées de la théorie d'évolution. Ainsi, un individu représente un jeu de paramètres recherché, et est noté $A = \{\alpha_1, \alpha_2, \alpha_j, \dots, \alpha_n\}$ où n est le nombre de paramètres recherchés. Ces individus sont générés aléatoirement dans l'espace de données et sont renouvelés au cours de N_{gen} générations selon les règles inspirées par la théorie de l'évolution. Le nombre d'individus dans chaque génération correspond à la taille de la population considérée N_{pop} .

La première étape d'un algorithme génétique consiste à générer la population initiale qui devra évoluer tout au long des itérations sur les générations. Un générateur aléatoire d'individus est donc requis. On pourra faire en sorte que la population initiale

soit concentrée autour de valeurs qu'on estime être les bonnes pour que la convergence soit plus rapide. Dans le cas où les données sur le problème à résoudre sont insuffisantes et que l'on ne connaît pas les valeurs recherchées les plus probables, il est important que la population initiale soit répartie sur tout le domaine de recherche. Cette population pourra être générée en créant des individus aléatoires dont les paramètres sont des barycentres de bornes supérieures et inférieures choisies par l'utilisateur en fonction du problème traité.

Ainsi, si α_j est le paramètre à la position l de l'individu $A^l(g)$ de la génération courante g , et que $\alpha_{j,min}$ et $\alpha_{j,max}$ sont les bornes inférieure et supérieure de ce paramètre alors le paramètre $\alpha_j^l(g)$ pourra être calculé comme :

$$\alpha_j^l(g) = r_j^l \cdot \alpha_{j,min} + (1 - r_j^l) \alpha_{j,max} \quad (89)$$

où r_j^l est un nombre généré selon une distribution uniforme sur l'intervalle $[0; 1]$.

Par ailleurs, chaque individu de la population est muni d'une mesure d'adaptation (tas : fitness) qui est la fonction-objectif dans le cadre de cette étude d'optimisation. L'algorithme génétique choisit, généralement, des paires d'individus « parents » en favorisant les plus adaptés (ayant la meilleure fitness), et engendre de nouvelles solutions au problème (individus « enfants ») en appliquant des opérateurs de croisement (crossover) et de mutation. On espère ainsi que les bonnes solutions vont échanger leurs caractéristiques par croisement et engendrer des solutions encore meilleures. De plus, le travail en parallèle sur plusieurs solutions fournit un panel de bonnes solutions à l'utilisateur.

Des opérateurs permettent de diversifier la population au cours des générations et d'explorer l'espace des solutions. L'opérateur de croisement recompose les gènes d'individus existant dans la population et l'opérateur de mutation garantit l'exploration de l'espace des solutions. Ces opérateurs sont appliqués selon une probabilité (τ_{crois} et τ_{mut}) qui dépend du problème considéré.

- Opération de croisement

Le croisement consiste à engendrer des individus « enfants » ayant les meilleures propriétés des individus « parents ». C'est ce qui se passe dans la nature, par exemple l'enfant recevra les gènes de sa mère concernant la couleur des yeux et les gènes du père concernant la taille. Pour effectuer ce type de croisement sur des chromosomes, on tire aléatoirement une position dans le caryotype de chacun des parents. On échange ensuite les deux sous-chaînes terminales de chacun des parents. On échange ensuite les deux sous-chaînes terminales de chacun des deux chromosomes, ce qui produit deux enfants. Dans notre cas, on effectuera un croisement dit barycentrique. Ci-dessous le calcul permettant de définir le paramètre j des enfants qui vont occuper les places I et $I + 1$ à la génération $g + 1$ et qui sont issus du croisement entre les individus parents I et $I + 1$ de la génération g :

$$\alpha_j^I(g + 1) = r_j^I \cdot \alpha_j^I(g) + (1 - r_j^I) \alpha_j^{I+1}(g) \quad (90)$$

- Opération de mutation

Pour les problèmes discrets, l'opérateur de mutation consiste à tirer aléatoirement un gène dans le chromosome et à le remplacer par une valeur aléatoire. Dans le cas présent, on tire aléatoirement un gène dans le chromosome auquel on rajoute un bruit :

$$\alpha_j^I(g + 1) = \alpha_j^I(g) + (1 + r_j^I) \cdot \alpha_{j,0} \quad (91)$$

où r_j^I est un coefficient de pondération aléatoire distribué uniformément sur $[-0,5; 0,5]$ et $\alpha_{j,0}$ est l'amplitude maximum de la mutation. Ce paramètre dépend fortement de la sensibilité du modèle au paramètre dont il est question.

Un autre élément important des algorithmes génétiques est la sélection. Elle est basée sur le principe que les individus les mieux adaptés à l'environnement ont plus de chance de transmettre leurs gènes à travers la reproduction. Le classement qui en découle dépend clairement de la fonction d'évaluation qui peut se baser sur plusieurs

critères selon le problème traité. Par exemple, dans le cas d'un modèle dont les résultats issus de la simulation sont à confronter à N_{exp} résultats expérimentaux, nous calculons le résidu suivant :

$$R^I = \frac{1}{N_{exp}} \sum_{j=1}^{N_{exp}} \frac{(Y_{exp}^I(J) - Y_{mod}^I(J))^2}{(Y_{exp}^I(J))^2} \quad (92)$$

où N_{exp} est le nombre de points de mesure, $Y_{exp}^I(J)$ et $Y_{mod}^I(J)$ sont la mesure et l'estimation faite par le modèle au point J avec le jeu de paramètre correspondant à l'individu I . On pourrait également envisager de tenir compte de la dérivée de la valeur Y dans l'estimation de la qualité de l'individu I :

$$R_{derive}^I = \frac{1}{N_{exp} - 1} \sum_{j=1}^{N_{exp}} \frac{\left((Y_{exp}^I(J) - Y_{exp}^I(J+1)) - (Y_{mod}^I(J) - Y_{mod}^I(J+1)) \right)^2}{(Y_{exp}^I(J) - Y_{exp}^I(J+1))^2} \quad (93)$$

La fonction d'évaluation de l'individu I serait alors :

$$f^I = R^I + \gamma R_{derive}^I \quad (94)$$

où γ est un coefficient permettant de compenser la différence d'échelle intervenant entre les deux termes. Ce paramètre permet de faire varier l'influence relative de l'un par rapport à l'autre. Une grande partie de la difficulté du paramétrage réside dans la définition de cette fonction d'évaluation.

Finalement, la sélection des individus qui vont venir participer à la constitution de la population à la génération $g + 1$ va dépendre de la fonction d'évaluation. Cette sélection peut être totalement indépendante du hasard (sélection par rang : les x premiers individus sont conservés), totalement au hasard ou bien dont la probabilité est fonction de l'évaluation (roulette, tournoi, etc.). Nous adoptons une sélection par

rang, assortie d'un taux de sélection de τ_{selc} . Les $(1 - \tau_{selc})$ individus restants sont régénérés aléatoirement pour maintenir la diversité génétique.

B. Correction des mesures expérimentales des thermocouples

Afin de valider les modèles de combustion, il est souvent nécessaire de mesurer la température au sein de la phase gazeuse. En effet, la compréhension de la phénoménologie liée à la combustion requiert la détermination de sa thermique. Cependant, en dehors de la flamme, les températures peuvent nous donner très peu d'informations. En effet, pour des mesures à l'air libre, les températures hors de la flamme varient peu et sont souvent proches de la température ambiante. Ainsi, il s'avère judicieux de mesurer la variation des températures au sein même de la flamme. Ces températures peuvent être mesurées à l'aide de thermocouples fins qui résistent à des températures avoisinant les 1100 °C.

Un thermocouple (Figure 39) est un couple de matériaux conducteurs qui forment une jonction électrique. Le principe de fonctionnement des thermocouples repose sur la transformation d'un gradient de températures qui existe entre les deux fils fins en une différence de potentiel électrique mesurable par un tensiomètre. Ce principe est désigné par l'effet Seebeck.

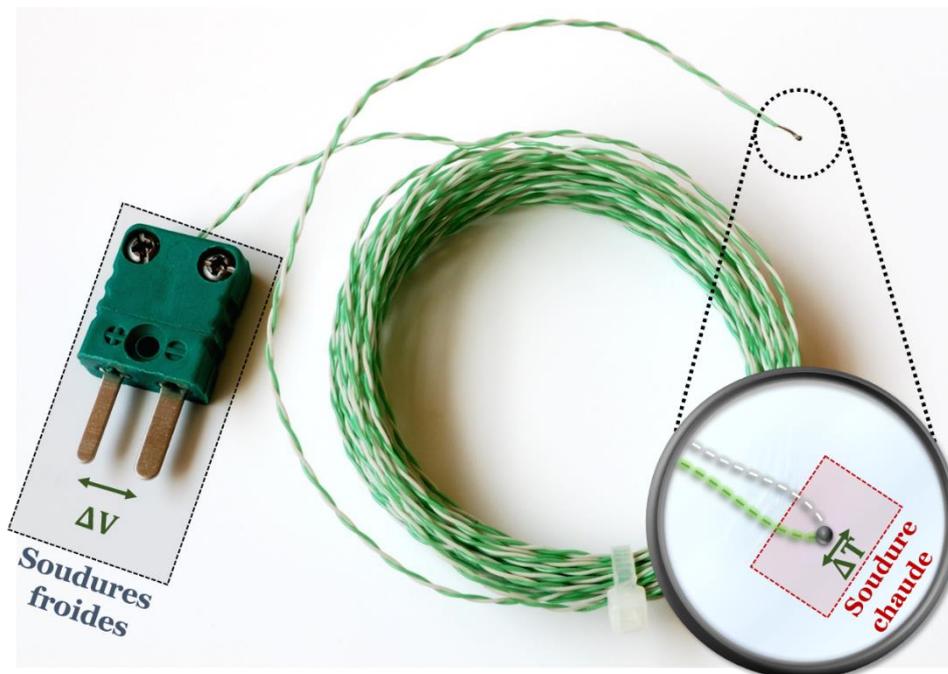


Figure 39. Thermocouple de type K – Effet Seebeck

Ainsi, la différence de potentiel ΔV au niveau des jonctions de référence (soudures froides) est reliée au gradient de température au niveau de la soudure chaude via une propriété physique du matériau qui dépend de la température nommée coefficient de Seebeck $S(T)$:

$$\Delta V = \int_{T_{ref}}^{T_{tc}} S(T) dT \quad (95)$$

où T_{ref} est la température de référence des soudures froides et T_{tc} est la température mesurée par le thermocouple (température de la soudure chaude).

La température T_{tc} peut être différente de la température réelle du gaz T_g qu'on cherche à déterminer à cause des échanges thermiques qui ont lieu au niveau du couple. Dans la flamme, il est nécessaire de corriger la température mesurée par le thermocouple afin de tenir compte des transferts thermiques par rayonnement.

Le bilan thermique sur un volume de contrôle du couple d'épaisseur Δx s'écrit de la façon suivante :

$$\pi r_{tc}^2 \Delta x \rho_{tc} c_{p,tc} \frac{\partial T_{tc}}{\partial t} = 2\pi r_{tc} \Delta x h (T_g - T_{tc}) + 2\pi r_{tc} \Delta x \varepsilon_{tc} \sigma (\varepsilon_g T_g^4 - T_{tc}^4) \quad (96)$$

où r_{tc} , ρ_{tc} et $c_{p,tc}$ sont le rayon, la masse volumique et la chaleur spécifique du couple, h est le coefficient de transfert convectif, ε est l'émissivité du milieu, σ est la constante de Stefan-Boltzmann et les indices g et tc représentent le gaz et le thermocouple, respectivement.

L'équation (96) peut être mise sous la forme :

$$T_g = T_{tc} + \tau_{tc} \frac{\partial T_{tc}}{\partial t} + \frac{\varepsilon_{tc} \sigma}{h} (T_{tc}^4 - \varepsilon_g T_g^4) \quad (97)$$

où τ_{tc} [101], [102] est la constante de temps convective du thermocouple τ_{tc} qui s'écrit :

$$\tau_{tc} = \frac{r_{tc} \rho_{tc} c_{p,tc}}{2h} \quad (98)$$

Etant donné que les mesures qu'on cherche à corriger sont faites à l'état stationnaire, l'équation (97) peut être simplifiée comme suit :

$$T_g = T_{tc} + \frac{\varepsilon_{tc}\sigma}{h} (T_{tc}^4 - \varepsilon_g T_g^4) \quad (99)$$

L'émissivité des gaz ε_g dans la zone de réaction dépend de la concentration locale en CO_2 et en H_2O puisque le N_2 participe peu aux échanges radiatifs [103]. Cette émissivité a été calculée dans le cadre de plusieurs études [104]–[106] qui ont conclu qu'elle était trop faible par rapport à celle du couple. Le rayonnement du gaz environnant vers le couple peut donc être négligé et on a :

$$T_g = T_{tc} + \frac{\varepsilon_{tc}\sigma}{h} T_{tc}^4 \quad (100)$$

L'émissivité du thermocouple devraient être comprise entre 0,60 et 0,85 (données fabricant) pour des températures comprises entre 500 et 1100 °C. Cependant, les particules de suies qui s'accumulent sur la surface du couple [105] modifient son émissivité qui devient quasiment égale à celle des suies. On fixe donc ε_{tc} à 0,95.

Par ailleurs l'équation (100) montre que la détermination du coefficient de transfert convectif h est importante pour la correction de la mesure du thermocouple. Le calcul de ce coefficient passe par la détermination du nombre de Nusselt puisque $h = \frac{\lambda Nu}{2r_{tc}}$ où λ est la conductivité thermique des gaz et Nu est le nombre de Nusselt. Pour calculer ce dernier, la corrélation de Collis et Williams [107] a été retenue, étant donné qu'elle est bien adaptée à la gamme expérimentale de Reynolds basé sur le diamètre de la jonction du thermocouple utilisé. Ainsi on a :

$$Nu = 0.24 + 0.56Re^{0.45} \quad (101)$$

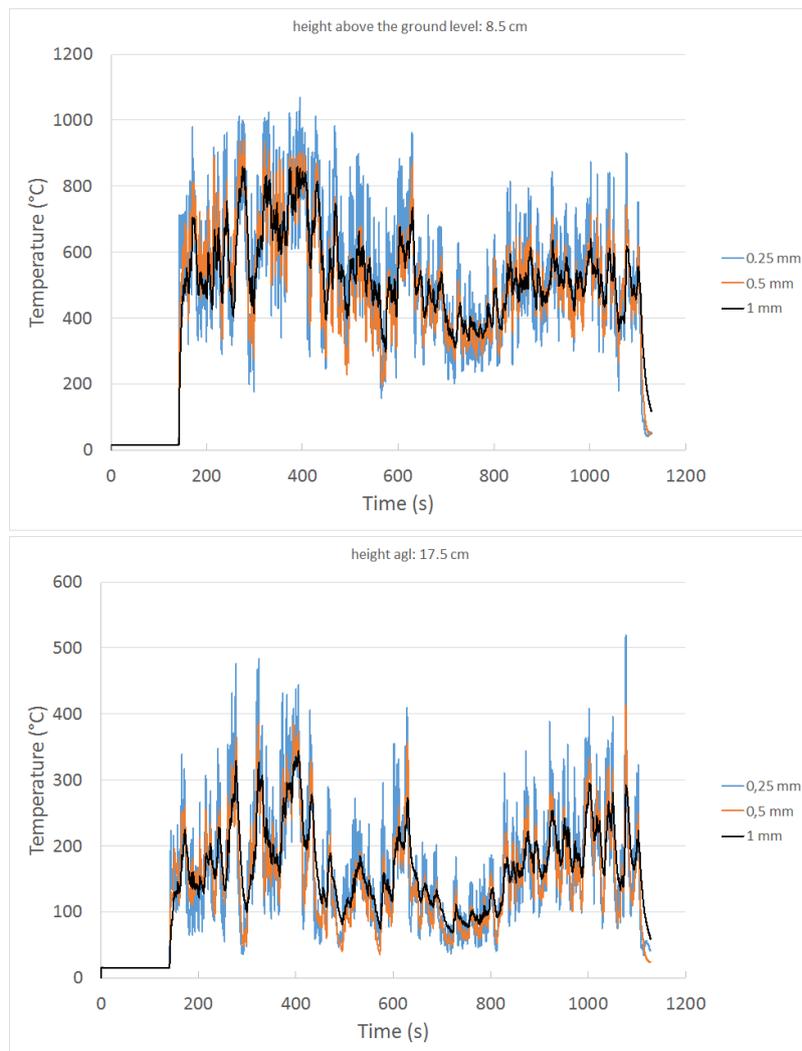
où Re est le nombre de Reynolds de l'écoulement local basé sur le diamètre du thermocouple.

Par ailleurs, des expériences ont été réalisées sur la plaque la plus petite (10 cm de côté) afin de connaître l'influence de la taille du thermocouple sur la précision des mesures.

Ainsi, 4 thermocouples de trois diamètres différents (0,25, 0,5 et 1 mm) ont été utilisés afin de mesurer l'erreur relative due à la taille de la jonction.

Comme le montre la Figure 40, la fluctuation des mesures augmente en diminuant le diamètre du thermocouple, mais les valeurs moyennes restent pratiquement les mêmes. Une fréquence d'échantillonnage de 5 Hz a été utilisée.

Les thermocouples de 1mm de diamètre ont été retenus compte tenu de la fragilité des thermocouples de diamètres plus petits.



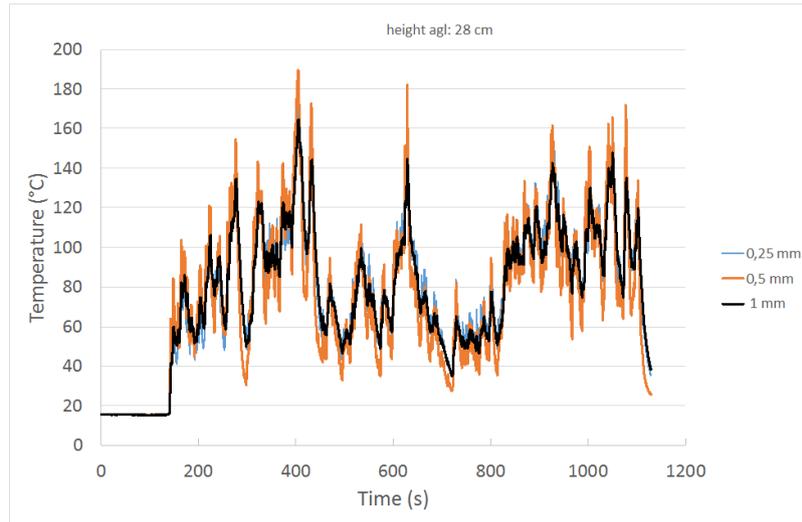


Figure 40. Comparaison des mesures de températures dans la phase gazeuse pour trois diamètres de thermocouple (0,25, 0,5 et 1mm)

C. Algorithme de Savitzky-Golay

Les données expérimentales mesurées dans le cadre d'études dans le domaine de l'incendie présentent souvent un bruit aléatoire relatif aux techniques des mesures ou aux conditions expérimentales. Cependant, les fluctuations locales associées à ces mesures sont importantes pour la validation des modèles numériques et corrélations (semi)-empiriques.

Des méthodes de filtrage numériques permettent de lisser les courbes expérimentales afin de réduire au mieux le bruit tout en évitant d'enlever les parties importantes des mesures. Parmi ces méthodes figure l'algorithme de Savitzky-Golay (SG) qui repose sur la minimisation de l'erreur au sens des moindres carrés.

Cet algorithme permet le lissage d'une série de données d'abscisses équidistantes en utilisant des convolutions dont les coefficients correspondent au degré du polynôme d'interpolation choisi, et ce pour chacune des fenêtres d'échantillonnage dont la largeur est prédéfinie. L'article de Savitzky et Golay [108] décrit la méthode qui permet en outre de déterminer les dérivées successives de la courbe lissée. Il est ainsi possible d'appliquer l'algorithme SG sur une courbe de perte de masse donnée par une balance électronique, et d'en déduire, à partir de sa dérivée première, la courbe du taux de pyrolyse en fonction du temps.

Dans le cas d'un pas d'échantillonnage constant (abscisses équidistantes), on peut déterminer les constantes de convolution (qui sont tabulées dans l'article de Savitzky et Golay [108]) de la manière suivante :

On considère que la fenêtre d'échantillonnage a une demi-largeur constante m . Ainsi, la fenêtre adoptée pour le lissage est de $2m + 1$. En un point p donné, les coordonnées du point expérimental appartenant à la courbe à lisser est (x_p, y_p) . Un changement de variable permet de ramener x_p à une abscisse centrée réduite z_p :

$$z_p = \frac{x_p - \bar{x}}{\sigma} \quad (102)$$

où σ est le pas de l'échantillonnage et \bar{x} est la moyenne des abscisses x sur l'intervalle correspondant à la fenêtre d'échantillonnage considérée :

$$\bar{x} = \sum_{i=p-m}^{i=p+m} \frac{x_i}{2m+1} \quad (103)$$

On obtient donc une abscisse centrée réduite z_p qui prend les valeurs suivantes :

$$(z_j)_{1 \leq j \leq 2m+1} = (-m; -m+1; \dots; 0; \dots; m-1; m) \quad (104)$$

On cherche un polynôme d'interpolation de degré donné $\delta \leq 2m+1$. On pose donc le polynôme P :

$$P(z_j) = \alpha_0 + \alpha_1 z_j + \alpha_2 z_j^2 + \dots + \alpha_\delta z_j^\delta \quad (105)$$

Ainsi, pour $j \in [1; 2m+1]$, et par définition de P on a :

$$P(z_j) = y_{p-(m+1)+j} \quad (106)$$

On pose la fonction :

$$\mathcal{F}: \begin{pmatrix} \alpha_1 \\ \alpha_2 \\ \vdots \\ \alpha_\delta \end{pmatrix} \mapsto \begin{pmatrix} P(z_1) \\ P(z_2) \\ \vdots \\ P(z_{2m+1}) \end{pmatrix} \quad (107)$$

En posant J la matrice jacobienne de cette fonction, on peut déterminer les coefficients α_i du polynôme P en résolvant les équations normales

$${}^t J J(\alpha_i) = {}^t J(y_i) \quad (108)$$

On a donc :

$$(\alpha_i) = \left(({}^t J J)^{-1} {}^t J \right) (y_i) \quad (109)$$

Ainsi la valeur de la courbe lissée au point considéré (x_p, y_p) est la valeur du polynôme P en 0 :

$$y_{SG,p} = P(0) = \alpha_0 \quad (110)$$

La valeur de sa dérivée lissée est :

$$y'_{SG,p} = \frac{\partial z}{\partial x}(0) \frac{\partial P}{\partial z}(0) = \frac{1}{\sigma} \alpha_1 \quad (111)$$

Le degré du polynôme doit être suffisamment supérieur à la largeur de la fenêtre d'échantillonnage choisie pour que le lissage soit réussi. Cependant, il ne faut pas trop augmenter la taille de la fenêtre pour ne pas lisser excessivement la courbe.

Staggs [109] a appliqué le filtre de Savitzky-Golay aux données expérimentales de perte de masse sous cône calorimètre. Il a comparé les résultats de l'algorithme pour différents degrés polynômes et différentes largeurs de fenêtre d'échantillonnage. Il a conclu que des filtres de degrés 2 ou 3 et des largeurs de fenêtres entre 11 et 21 points donnaient les meilleurs résultats. Il a ensuite utilisé la dérivée première de la courbe de perte de masse lissée pour déterminer le taux de pyrolyse filtré.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] E. Guillaume, « Modélisation de la décomposition thermique des matériaux en cas d'incendie », *Doss. Tech. Ing.*, vol. se2066, p. 1–17, 2013.
- [2] L. Orloff, J. L. D. Ris, et G. H. Markstein, « Upward turbulent fire spread and burning of fuel surface », in *Proceedings of the Combustion Institute*, 1974, vol. 15, p. 183–192.
- [3] L. Orloff, A. T. Modak, et R. L. Alpert, « Burning of large-scale vertical surfaces », in *Proceedings of the Combustion Institute*, 1976, vol. 16, p. 1345–1354.
- [4] J. Quintiere, M. Harkleroad, et Y. Hasemi, « Wall flames and implications for upward flame spread », *Combust. Sci. Technol.*, vol. 48, n° 3–4, p. 191–222, juill. 1986.
- [5] A. K. Kulkarni et C. I. Kim, « Heat loss to the interior of a free burning vertical wall and its influence on estimation of effective heat of gasification », *Combust. Sci. Technol.*, vol. 73, n° 4-6, p. 493–504, oct. 1990.
- [6] A. K. Kulkarni, E. Brehob, S. Manohar, et R. Nair, « Turbulent upward flame spread on a vertical wall under external radiation. », NIST, rapport NIST-GCR-94-638, juin 1994.
- [7] E. G. Brehob et A. K. Kulkarni, « Experimental measurements of upward flame spread on a vertical wall with external radiation », *Fire Saf. J.*, vol. 31, p. 181–200, 1998.
- [8] P. K. S. Wu et A. Tewarson, « Interflame96 », in *Seventh International Fire Science and Engineering Conference*, St. John's College, Cambridge UK, 1996, p. 159–168.
- [9] P. A. Beaulieu et N. A. Dembsey, « Effect of oxygen on flame heat flux in horizontal and vertical orientations », *Fire Saf. J.*, vol. 43, n° 6, p. 410–428, août 2008.
- [10] K. C. Tsai et F. S. Wan, « Upward flame spread: The width effect », in *International Symposium of Fire Safety Science*, 2005, vol. 8, p. 409–419.

- [11] K. C. Tsai, « Influence of sidewalls on width effects of upward flame spread », *Fire Saf. J.*, vol. 46, p. 294–304, 2011.
- [12] M. J. Gollner, X. Huang, F. A. Williams, et A. S. Rangwala, « Buoyancy-enhanced flame spread over continuous surfaces », in *7th US Combustion Meeting*, 2011.
- [13] M. J. Gollner, X. Huang, J. Cobian, A. S. Rangwala, et F. A. Williams, « Experimental study of upward flame spread of an inclined fuel surface », *Proc. Combust. Inst.*, vol. 34, n° 2, p. 2531–2538, 2013.
- [14] I. T. Leventon et S. I. Stoliarov, « Evolution of flame to surface heat flux during upward flame spread on poly(methyl methacrylate) », in *Proceedings of the Combustion Institute*, 2013, vol. 34, p. 2523–2530.
- [15] A. V. Singh et M. J. Gollner, « Estimation of local mass burning rates for steady laminar boundary layer diffusion flames », *Proc. Combust. Inst.*, vol. 35, n° 3, p. 2527-2534, 2015.
- [16] A. V. Singh et M. J. Gollner, « A methodology for estimation of local heat fluxes in steady laminar boundary layer diffusion flames », *Combust. Flame*, vol. 162, n° 5, p. 2214-2230, mai 2015.
- [17] Y. Pizzo, C. Lallemand, A. Kacem, A. Kaiss, J. Gerardin, Z. Acem, P. Boulet, et B. Porterie, « Steady and transient pyrolysis of thick clear PMMA slabs », *Combust. Flame*, vol. 162, n° 1, p. 226-236, janv. 2015.
- [18] G. Linteris, L. Gewuerz, K. Mcgrattan, et G. Forney, « Modeling solid sample burning », *Fire Saf. Sci.*, vol. 8, p. 625–636, 2005.
- [19] Y. Pizzo, J. L. Consalvi, P. Querre, M. Coutin, L. Audouin, B. Porterie, et J. L. Torero, « Experimental observations on the steady-state burning rate of a vertically oriented PMMA slab », *Combust. Flame*, vol. 152, n° 3, p. 451–460, févr. 2008.
- [20] K. Steckler, T. Kashiwagi, H. Baum, et K. Kanemaru, « Analytical model for transient gasification of noncharring thermoplastic materials », *Fire Saf. Sci.*, vol. 3, p. 895–904, 1991.

- [21] Y. Sohn, S. W. Baek, et T. Kashiwagi, « Transient modeling of thermal degradation in non-charring solids », *Combust. Sci. Technol.*, vol. 145, n° 1–6, p. 83–108, 1999.
- [22] C. Vovelle, J. L. Delfau, R. Marcelline, J. Bransier, et N. Laraqui, « Experimental and numerical study of the thermal degradation of PMMA », *Combust. Sci. Technol.*, vol. 53, n° 2–3, p. 187–201, juin 1987.
- [23] A. Y. Snegirev, « Statistical modeling of thermal radiation transfer in buoyant turbulent diffusion flames », *Combust. Flame*, vol. 136, n° 1-2, p. 51-71, janv. 2004.
- [24] I. T. Leventon, J. Li, et S. I. Stoliarov, « A flame spread simulation based on a comprehensive solid pyrolysis model coupled with a detailed empirical flame structure representation », *Combust. Flame*, vol. 162, n° 10, p. 3884-3895, oct. 2015.
- [25] J. E. J. Staggs, « A theoretical investigation into modelling thermal degradation of solids incorporating finite-rate kinetics », *Combust. Sci. Technol.*, vol. 123, n° 1–6, p. 261–285, 1997.
- [26] C. Qian, H. Ishida, et K. Saito, « Upward flame spread along the vertical corner walls », National Institute of Standards and Technology, Technical Report NBS-GCR-94-648, 1994.
- [27] S. W. Baek, T. Y. Kim, et C. R. Kaplan, « Ignition phenomenon of solid fuel in a confined rectangular enclosure », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 40, n° 1, p. 89–99, 1997.
- [28] P. D. Gandhi et A. M. Kanury, « Criterion for spontaneous ignition of radiantly heated organic solids », *Combust. Sci. Technol.*, vol. 50, n° 4-6, p. 233–254, 1986.
- [29] C. Vovelle et J. L. Delfau, « Combustion des plastiques », *Doss. Tech. Ing.*, vol. AM3170, 2000.
- [30] F. Jiang, J. L. D. Ris, et M. M. Khan, « Absorption of thermal energy in PMMA by in-depth radiation », *Fire Saf. J.*, vol. 44, p. 106–112, 2009.

- [31] F. Jia, E. R. Galea, et M. K. Patel, « The numerical simulation of the noncharring pyrolysis process and fire development within a compartment », *Appl. Math. Model.*, vol. 23, n° 8, p. 587-607, août 1999.
- [32] J. L. Consalvi, Y. Pizzo, A. Kaiss, J. L. Torero, et B. Porterie, « A theoretical and numerical evaluation of the steady-state burning rate of vertically oriented PMMA slabs », *Combust. Theory Model.*, vol. 12, n° 3, p. 451-475, juin 2008.
- [33] W. Xie et P. Desjardin, « An embedded upward flame spread model using 2D direct numerical simulations », *Combust. Flame*, vol. 156, n° 2, p. 522-530, févr. 2009.
- [34] S. Brohez, G. Marlair, et C. Delvosalle, « The effect of oxygen concentration on CO and soot yields in fires », *Fire Mater.*, vol. 32, p. 141–158, 2008.
- [35] D. Hébert, A. Coppalle, et M. Talbaut, « 2D soot concentration and burning rate of a vertical PMMA slab using Laser-Induced Incandescence », *Proc. Combust. Inst.*, vol. 34, n° 2, p. 2575–2582, janv. 2013.
- [36] D. Hébert, « Etude de la combustion des matériaux solides, application à la sécurité incendie », Thèse de l'INSA de Rouen, Rouen, 2012.
- [37] G. Santo et F. Tamanini, « Influence of oxygen depletion on the radiative properties of PMMA flames », in *Proceedings of the Combustion Institute*, 1981, vol. 18, p. 619–631.
- [38] A. Tewarson, J. L. Lee, et R. F. Pion, « The influence of oxygen concentration on fuel parameters for fire modeling », in *Proceedings of the Combustion Institute*, 1981, vol. 18, p. 563–570.
- [39] S. Melis et L. Audouin, « Effects of vitiation on the heat release rate in mechanically-ventilated compartment Fires », in *International Symposium of Fire Safety Science*, 2008, vol. 9, p. 931–942.
- [40] A. Nasr, S. Suard, H. El-Rabii, J. P. Garo, L. Gay, et L. Rigollet, « Heat feedback to the fuel surface of a pool fire in an enclosure », *Fire Saf. J.*, vol. 60, p. 56–63, 2013.

- [41] M. Coutin, D. Alibert, et B. Porterie, « Intermediate Scale Controlled Atmosphere Calorimeter CADUCEE », présenté à Interflam Conference, London, 2016.
- [42] T. Kashiwagi et T. J. Ohlemiller, « A study of oxygen effects on nonflaming transient gasification of PMMA and PE during thermal irradiation », *Proc. Combust. Inst.*, vol. 19, n° 1, p. 815–823, 1982.
- [43] A. Nasr, « Détermination par un code CFD de l'évolution de la puissance d'un feu en régime de sous-ventilation dans un milieu confiné et mécaniquement ventilé », Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique, 2012.
- [44] A. Nasr, S. Suard, H. El-Rabii, L. Gay, et J. P. Garo, « Fuel mass-loss rate determination in a confined and mechanically ventilated compartment fire using a global approach », *Combust. Sci. Technol.*, vol. 183, n° 12, p. 1342–1359, 2011.
- [45] S. Suard, A. Nasr, S. Melis, J. P. Garo, H. El-Rabii, L. Gay, L. Rigollet, et L. Audouin, « Analytical approach for predicting effects of vitiated air on the mass loss rate of large pool fire in confined compartments », in *International Symposium of Fire Safety Science*, 2011, vol. 10, p. 1513–1524.
- [46] S. Suard, M. Forestier, et S. Vaux, « Toward predictive simulations of pool fires in mechanically ventilated compartments », *Fire Saf. J.*, vol. 61, p. 54-64, oct. 2013.
- [47] M. J. Peatross et C. L. Beyler, « Ventilation effects on compartment fire characterization », in *International Symposium of Fire Safety Science*, 1997, vol. 5, p. 403–414.
- [48] Y. Utiskul, J. G. Quintiere, A. S. Rangwala, B. A. Ringwelski, K. Wakatsuki, et T. Naruse, « Compartment fire phenomena under limited ventilation », *Fire Saf. J.*, vol. 40, n° 4, p. 367–390, juin 2005.
- [49] J. Luche, T. Rogaume, F. Richard, et E. Guillaume, « Characterization of thermal properties and analysis of combustion behavior of PMMA in a cone calorimeter », *Fire Saf. J.*, vol. 46, n° 7, p. 451–461, oct. 2011.

- [50] H. Arisawa et T. B. Brill, « Kinetics and mechanisms of flash pyrolysis of poly(methyl methacrylate) (PMMA) », *Combust. Flame*, vol. 109, n° 3, p. 415–426, mai 1997.
- [51] W. D. Woolley et P. J. Fardell, « Basic aspects of combustion toxicology », *Fire Saf. J.*, vol. 5, n° 1, p. 29–48, janv. 1982.
- [52] C. Lautenberger, « A generalized pyrolysis model for combustible solids », PhD, University of California, Berkeley, 2007.
- [53] N. Bal et G. Rein, « Numerical investigation of the ignition delay time of a translucent solid at high radiant heat fluxes », *Combust. Flame*, vol. 158, n° 6, p. 1109–1116, juin 2011.
- [54] N. Bal et G. Rein, « Relevant model complexity for non-charring polymer pyrolysis », *Fire Saf. J.*, vol. 61, p. 36–44, 2013.
- [55] P. A. Beaulieu et N. A. Dembsey, « Flammability characteristics at applied heat flux levels up to 200 kW/m² », *Fire Mater.*, vol. 32, p. 61–86, 2008.
- [56] S. L. Olson et J. S. T'ien, « Near-surface vapour bubble layers in buoyant low stretch burning of polymethylmethacrylate », *Fire Mater.*, vol. 23, n° 5, p. 227–237, sept. 1999.
- [57] P. Beaulieu, « Flammability characteristics at heat flux levels up to 200 kW/m² and The effect of oxygen on flame heat flux », PhD, Worcester Polytechnic Institute, 2005.
- [58] P. Boulet, J. Gérardin, Z. Acem, G. Parent, A. Collin, Y. Pizzo, et B. Porterie, « Optical and radiative properties of clear PMMA samples exposed to a radiant heat flux », *Int. J. Therm. Sci.*, vol. 82, p. 1–8, août 2014.
- [59] A. Schuster, « Radiation through a foggy atmosphere », *Astrophys. J.*, vol. 21, p. 1–22, 1905.
- [60] K. Schwarzschild, « Equilibrium of the sun's atmo », *Akad Wiss Gottingen Math-Phys Kl Nachr*, vol. 195, p. 41–53, 1906.
- [61] M. F. Modest, *Radiative heat transfer*. New York: McGraw-Hill, 1993.

- [62] J. P. de Wilde, « The heat of gasification of polyethylene and polymethylmethacrylate », Memorandum M-593, Report PML 1988-C42, SFCC Publication, 1988.
- [63] L. Gaston, A. Kamara, et M. Bellet, « An arbitrary Lagrangian-Eulerian finite element approach to non-steady state turbulent fluid flow with application to mould filling in casting », *Int. J. Numer. Methods Fluids*, vol. 34, n° 4, p. 341-369, oct. 2000.
- [64] B. Maury, « Characteristics ALE Method for the Unsteady 3D Navier-Stokes Equations with a Free Surface », *Int. J. Comput. Fluid Dyn.*, vol. 6, n° 3, p. 175-188, mai 1996.
- [65] L. Elliott, D. B. Ingham, A. G. Kyne, N. S. Mera, M. Pourkashanian, et C. W. Wilson, « Genetic algorithms for optimisation of chemical kinetics reaction mechanisms », *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 30, n° 3, p. 297-328, janv. 2004.
- [66] C. Lautenberger, G. Rein, et C. Fernandez-Pello, « The application of a genetic algorithm to estimate material properties for fire modeling from bench-scale fire test data », *Fire Saf. J.*, vol. 41, n° 3, p. 204-214, avr. 2006.
- [67] F. P. Incropera, D. P. DeWitt, T. L. Bergman, et A. S. Lavine, Éd., *Principles of heat and mass transfer*, 7. ed., International student version. Singapore: Wiley, 2013.
- [68] S. S. Manohar, A. K. Kulkarni, et S. T. Thynell, « In-depth absorption of externally incident radiation in nongray media », *J. Heat Transf.*, vol. 117, n° 1, p. 146, 1995.
- [69] IRSN, « Physical modelling in ISIS », IRSN, 2013.
- [70] S. Suard, C. Lapuerta, F. Babik, et L. Rigollet, « Verification and validation of a CFD model for simulations of large-scale compartment fires », *Nucl. Eng. Des.*, vol. 241, n° 9, p. 3645-3657, sept. 2011.
- [71] S. Suard, A. Koched, H. Pretrel, et L. Audouin, « Numerical simulations of fire-induced doorway flows in a small scale enclosure », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 81, p. 578-590, févr. 2015.

- [72] D. . Stull et H. Prophet, « JANAF Thermochemical Tables, 2nd ed., U.S. Standard Reference Data System NSRDS-NBS 37 », 1971.
- [73] B. J. Daly, « Transport Equations in Turbulence », *Phys. Fluids*, vol. 13, n° 11, p. 2634, 1970.
- [74] B. F. Magnussen et B. H. Hjertager, « On mathematical modeling of turbulent combustion with special emphasis on soot formation and combustion », *Symp. Int. Combust.*, vol. 16, n° 1, p. 719-729, janv. 1977.
- [75] T. F. Smith, Z. F. Shen, et J. N. Friedman, « Evaluation of Coefficients for the Weighted Sum of Gray Gases Model », *J. Heat Transf.*, vol. 104, n° 4, p. 602, 1982.
- [76] V. Novozhilov, « Computational fluid dynamics modeling of compartment fires », *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 27, n° 6, p. 611-666, janv. 2001.
- [77] I. M. Khan et G. Greeves, « Method for calculating the formation and combustion of soot in diesel engines », in *Heat Transfer in Flames*, Washington, D.C.: Scripta, 1974.
- [78] J. C. Chai, H. S. Lee, et S. V. Patankar, « Finite volume method for radiation heat transfer », *J. Thermophys. Heat Transf.*, vol. 8, n° 3, p. 419-425, juill. 1994.
- [79] G. D. Raithby et E. H. Chui, « A Finite-Volume Method for Predicting a Radiant Heat Transfer in Enclosures With Participating Media », *J. Heat Transf.*, vol. 112, n° 2, p. 415, 1990.
- [80] J. P. Holman, *Heat transfer*, 10th ed. Boston: McGraw Hill Higher Education, 2010.
- [81] H. K. Versteeg et W. Malalasekera, *An introduction to computational fluid dynamics: the finite volume method*, 2nd ed. Harlow, England ; New York: Pearson Education Ltd, 2007.
- [82] M. Mense, Y. Pizzo, A. Kacem, C. Lallemand, G. Parent, P. Boulet, J.-C. Loraud, et B. Porterie, « Débit de pyrolyse et flux de chaleur à la surface de plaques de PMMA - effet d'échelle », in *Journées Internationales de Thermique*, Marseille, 2015.

- [83] D. Brissinger, G. Parent, et P. Boulet, « Experimental study on radiation attenuation by a water film », *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, vol. 145, p. 160-168, sept. 2014.
- [84] J. G. Quintiere, *Fundamentals of fire phenomena*. Chichester: John Wiley, 2006.
- [85] E. E. Zukoski, T. Kubota, et B. Cetegen, « Entrainment in fire plumes », *Fire Saf. J.*, vol. 3, n° 3, p. 107–121, févr. 1981.
- [86] G. Heskestad, « Luminous heights of turbulent diffusion flames », *Fire Saf. J.*, vol. 5, n° 2, p. 103-108, janv. 1983.
- [87] G. Cox et R. Chitty, « A study of the deterministic properties of unbounded fire plumes », *Combust. Flame*, vol. 39, n° 2, p. 191-209, oct. 1980.
- [88] L. Audouin, G. Kolb, J. L. Torero, et J. M. Most, « Average centreline temperatures of a buoyant pool fire obtained by image processing of video recordings », *Fire Saf. J.*, vol. 24, n° 2, p. 167-187, janv. 1995.
- [89] D. Drysdale, *An introduction to fire dynamics*, 3rd ed. Hoboken, NJ: Wiley, 2011.
- [90] William D. Walton et P. H. Thomas, « Estimating temperatures in compartment fires », in *SFPE Handbook of Fire Protection Engineering*, 3rd ed., Quincy, LA: P.J. DiNenno et al., 2002.
- [91] H. Pretrel, P. Querre, et M. Forestier, « Experimental study of burning rate behaviour in confined and ventilated fire compartments », in *International Symposium of Fire Safety Science*, 2005, vol. 8, p. 1217–1229.
- [92] J. E. Floyd et K. B. McGrattan, « Extending the mixture fraction concept to address under-ventilated fires », *Fire Saf. J.*, vol. 44, n° 3, p. 291–300, avr. 2009.
- [93] Z. Hu, Y. Utiskul, J. G. Quintiere, et A. Trouve, « Towards large eddy simulations of flame extinction and carbon monoxide emission in compartment fires », *Proc. Combust. Inst.*, vol. 31, n° 2, p. 2537–2545, janv. 2007.

- [94] F. A. Williams, « A review of flame extinction », *Fire Saf. J.*, vol. 3, n° 3, p. 163–175, févr. 1981.
- [95] K. Seshadri et F. A. Williams, « Structure and extinction of counterflow diffusion flames above condensed fuels: Comparison between poly(methyl methacrylate) and its liquid monomer, both burning in nitrogen–air mixtures », *J. Polym. Sci. Polym. Chem. Ed.*, vol. 16, n° 7, p. 1755–1778, juill. 1978.
- [96] J. G. Quintiere et A. S. Rangwala, « A theory for flame extinction based on flame temperature », *Fire Mater.*, vol. 28, n° 5, p. 387–402, sept. 2004.
- [97] R. E. Lyon et R. N. Walters, « Pyrolysis combustion flow calorimetry », *J. Anal. Appl. Pyrolysis*, vol. 71, n° 1, p. 27–46, mars 2004.
- [98] J. H. Holland, « Outline for a Logical Theory of Adaptive Systems », *JACM*, vol. 9, n° 3, p. 297–314, juill. 1962.
- [99] D. E. Goldberg, *Genetic Algorithms in Search, Optimization and Machine Learning*. Addison-Wesley Pub, 1989.
- [100] S. N. Sivanandam et S. N. Deepa, *Introduction to Genetic Algorithms*. Berlin Heidelberg New York: Springer, 2007.
- [101] A. V. Singh, A. Eshaghi, M. Yu, A. K. Gupta, et K. M. Bryden, « Simultaneous time-resolved fluctuating temperature and acoustic pressure field measurements in a premixed swirl flame », *Appl. Energy*, vol. 115, p. 116–127, févr. 2014.
- [102] F. C. Lockwood et A. O. O. Odidi, « Measurement of mean and fluctuating temperature and of ion concentration in round free-jet turbulent diffusion and premixed flames », *Proc. Combust. Inst.*, vol. 15, n° 1, p. 561–571, janv. 1975.
- [103] R. Siegel et J. R. Howell, *Thermal radiation heat transfer*. New York: McGraw-Hill, 1971.
- [104] F. Neveu, « Mesures simultanées de la température et de la vitesse dans une flamme turbulente non prémélangée méthane - air stabilisée par un brûleur de type Bluff-Body », Thèse de l'Université de Rouen, 1994.

- [105] P. Mandin, « Etude d'une flamme de diffusion soumise à un champ de force », Thèse de l'Université de Poitiers, 1997.
- [106] B. Poireault, « Mécanisme de combustion dans un brûleur méthane-air de type swirl (40 kW) : Influence de l'intensité de la rotation », Thèse de l'Université de Poitiers, 1997.
- [107] D. C. Collis et M. J. Williams, « Two-dimensional convection from heated wires at low Reynolds numbers », *J. Fluid Mech.*, vol. 6, n° 3, p. 357, oct. 1959.
- [108] A. Savitzky et M. J. E. Golay, « Smoothing and differentiation of data by simplified least squares procedures. », *Anal. Chem.*, vol. 36, n° 8, p. 1627–1639, juill. 1964.
- [109] J. E. J. Staggs, « Savitzky–Golay smoothing and numerical differentiation of cone calorimeter mass data », *Fire Saf. J.*, vol. 40, n° 6, p. 493–505, sept. 2005.

Résumé

Les capacités prédictives des modèles à champ ou CFD (computational fluid dynamics) d'incendie dépendent de la précision avec laquelle le terme source dû à la pyrolyse du combustible est déterminé. Le taux de pyrolyse est un paramètre clé du comportement et du développement ultérieur du feu qui, à son tour, contrôle le transfert de chaleur à la surface du combustible. Dans la présente étude, un modèle de pyrolyse volumique d'un combustible solide semi-transparent (ici, du poly(méthacrylate de méthyle) ou PMMA) prenant en compte le rayonnement au sein du solide et la régression de l'interface gaz/solide a été couplé au code ISIS de l'IRSN incluant la turbulence, la combustion (réaction à une étape) et le rayonnement pour la phase gazeuse. Un algorithme génétique a été associé au modèle de pyrolyse afin de déterminer un jeu unique et optimal de paramètres cinétiques pour la pyrolyse du PMMA à partir de données d'une expérience de pyrolyse pure sous cône calorimètre en atmosphère normalement oxygénée. Des expériences de pyrolyse avec flamme de plaques planes carrées de PMMA de 10, 20 et 40 cm de côté ont été réalisées afin de valider les résultats du modèle couplé. L'analyse des résultats expérimentaux obtenus au centre de l'échantillon montre que i) pour les trois tailles de plaque, la vitesse de régression de la surface devient quasiment constante en fonction du temps et que, ii) bien que les flux radiatif et total augmentent significativement avec la taille de l'échantillon, la contribution radiative au flux de chaleur total reste pratiquement constante (~80%). Les résultats du modèle couplé sont en bon accord avec la littérature et les mesures de la présente étude en termes de flux de chaleur, de température de gaz et de vitesse de régression de la surface au centre de la plaque. Néanmoins, des écarts sont observés entre les taux de pyrolyse totaux mesurés et calculés qui sont dus à une sous-estimation du flux de chaleur incident aux bords de l'échantillon, ce que confirme la comparaison des topographies de surface prédites et mesurées d'échantillons brûlés. Une bonne concordance est obtenue entre les hauteurs de flammes calculées avec le modèle et celles déduites de la corrélation de Heskestad. Enfin, pour simuler de façon prédictive la pyrolyse du PMMA en atmosphère sous-oxygénée, une chimie à deux étapes avec prise en compte du phénomène d'extinction de la flamme, basé sur un diagramme d'inflammabilité, a été utilisée. La validation du modèle couplé a consisté à confronter les résultats des simulations aux mesures réalisées dans le dispositif CADUCEE de l'IRSN sur des plaques de PMMA de 20 cm de côté pour des fractions volumiques d'oxygène de 18,5% et 19,5%. La tendance observée expérimentalement, à savoir une baisse du taux de pyrolyse total et, à un degré moindre, des températures de flamme avec la fraction volumique d'oxygène est bien reproduite par le modèle.

Mots clés : pyrolyse, combustion, PMMA, modèle CFD, atmosphère sous-oxygénée, feu.

Abstract

The predictive capability of computational fluid dynamics (CFD) fire models depends on the accuracy with which the source term due to fuel pyrolysis can be determined. The pyrolysis rate is a key parameter controlling fire behavior, which in turn drives the heat feedback from the flame to the fuel surface. In the present study an in-depth pyrolysis model of a semi-transparent solid fuel (here, clear polymethyl methacrylate or PMMA) with spectrally-resolved radiation and a moving gas/solid interface was coupled with the CFD code ISIS of the IRSN which included turbulence, combustion and radiation for the gas phase. A combined genetic algorithm/pyrolysis model was used with Cone Calorimeter data from a pure pyrolysis experiment to estimate a unique set of kinetic parameters for PMMA pyrolysis. In order to validate the coupled model, ambient air flaming experiments were conducted on square slabs of PMMA with side lengths of 10, 20 and 40 cm. From measurements at the center of the slab, it was found that i) for any sample size, the experimental regression rate becomes almost constant with time, and ii) although the radiative and total heat transfers increase significantly with the sample size, the radiative contribution to the total heat flux remains almost constant (~80%). Coupled model results show a fairly good agreement with the literature and with current measurements of the heat fluxes, gas temperature and regressing surface rate at the center of the slabs. Discrepancies between predicted and measured total pyrolysis rate are observed, which result from the underestimation of the flame heat flux feedback at the edges of the slab, as confirmed by the comparison between predicted and observed topography of burned samples. Predicted flame heights based on a threshold temperature criterion were found to be close to those deduced from the correlation of Heskestad. Finally, in order to predict the pyrolysis of PMMA under reduced ambient oxygen concentration, a two-step chemical reaction and a flammability diagram for flame extinction was used. Model results are compared with data obtained in the experimental facility CADUCEE of the IRSN using PMMA slabs with side length of 20cm for ambient oxygen concentrations of 18.2 and 19.5%. Data show that the total mass loss rate and, to a lesser extent flame temperature, decrease with the oxygen concentration, which is well reproduced by the model.

Keywords: pyrolysis, combustion, PMMA, CFD model, reduced ambient oxygen, fire.