

Evaluation des flux de chaleur mis en jeu lors de la combustion stationnaire de plaques thermiquement épaisses de PMMA

Y. Pizzo^{a,e}, Y. Billaud^{a,e}, N. Giraud^{a,e}, C. Lallemand^b, A. Kaiss^{a,e}, B. Kadoch^{a,e}, A. Kacem^{c,e}, S. Suard^{c,e}, P. Boulet^d, B. Porterie^{a,e}

^aAix-Marseille Université, CNRS, IUSTI UMR 7343, 13453 Marseille, France

^bDGA Techniques Navales, avenue de la Tour Royale, BP 40195, 83050 Toulon cedex, France

^cIRSN, Centre de Cadarache, BP3, 13115 Saint-Paul-lez-Durance Cedex

^dNancy-Université, LEMTA/UMR CNRS 7563, BP 70239, 54506 Vandœuvre, France

^eETiC (IRSN/AMU/CNRS), 13453 Marseille, France

yannick.pizzo@polytech.univ-mrs.fr, yann.billaud@polytech.univ-mrs.fr, nathalie.giraud@polytech.univ-mrs.fr, christine.lallemand@dga.defense.gouv.fr, ahmed.kaiss@polytech.univ-mrs.fr, benjamin.kadoch@polytech.univ-mrs.fr, ahmed.kacem@irs.fr, sylvain.suard@irs.fr, pascal.boulet@univ-lorraine.fr, bernard.porterie@polytech.univ-mrs.fr

Résumé :

Dans le domaine de la sécurité incendie, la modélisation de la source combustible en termes de puissance et donc de débit de pyrolyse reste une question très ouverte. Les modèles de pyrolyse existants reposent le plus souvent sur des hypothèses simplificatrices qui consistent à négliger une partie des flux thermiques auxquels la surface du matériau est exposée. En outre, les études expérimentales dédiées à ce problème montrent une grande dispersion des résultats. L'objectif de la présente étude est double : améliorer notre connaissance des mécanismes impliqués dans le processus de dégradation thermique des matériaux solides et acquérir des données utiles à la validation des modèles de pyrolyse. Pour cela, des expérimentations ont été conduites pour quantifier l'ensemble des flux de chaleur mis en jeu lors de la combustion stationnaire d'une plaque verticale de PMMA (Poly-méthyl méthacrylate) thermiquement épaisse. Les résultats obtenus montrent une décroissance du flux total (convection et rayonnement) en fonction de la hauteur de pyrolyse. La réémission de la plaque a été estimée en utilisant une procédure de retournement, de la configuration verticale à une configuration dite « en plafond », pour laquelle on observe l'extinction naturelle de la flamme. A mi-hauteur, le flux réémis par la plaque est de 11.5 kW/m². Les débits massiques surfaciques sont déduits du bilan d'énergie à l'interface de combustion stationnaire. La comparaison avec des mesures directes montre un bon accord. L'extension du modèle à la phase de combustion instationnaire a nécessité l'étude détaillée des pertes internes au matériau solide. Pour ce faire, des expérimentations spécifiques de pyrolyse sans flamme, sous cône calorimètre ont été développées. Les évolutions temporelles des flux radiatifs et températures à l'arrière de la plaque combustible ont été mesurées. Ces données ont permis la validation de la modélisation du problème de transferts couplés faisant intervenir le rayonnement (approximation de Schuster-Schwarzschild) et la conduction dans le matériau semi-transparent solide.

Mots clés : Combustion stationnaire, pyrolyse, flux de chaleur, bilan thermique, pertes internes, PMMA.

1. Introduction et contexte

Pour un matériau semi-transparent (dans le cas présent, du PMMA), l'équation de bilan d'énergie à la surface du matériau solide permet de relier le débit massique surfacique \dot{m} aux différents flux de chaleur [1] :

$$\underbrace{q_{fl}^{conv}}_{\text{convection de la flamme}} + \underbrace{q_{fl}^{rad}}_{\text{rayonnement de la flamme}} + \underbrace{\dot{m}h_g}_{\text{énergie apportée à la surface par le PMMA solide}} = \underbrace{q_{rr}}_{\text{réémission par la surface}} + \underbrace{q_{id}^{cond}}_{\text{pertes internes par conduction}} + \underbrace{q_{id}^{rad}}_{\text{pertes internes par rayonnement}} + \underbrace{\dot{m}h_g}_{\text{énergie évacuée par les vapeurs de PMMA loin de la surface}} + \underbrace{q_{fl}^{reflection}}_{\text{réflexion du rayonnement de la flamme}} \quad (1)$$

Les termes du membre de gauche de l'équation (1) représentent les flux de chaleur issus de la flamme et l'énergie apportée à la surface par le polymère solide. Les termes du membre de droite représentent le flux réémis par la surface, les pertes internes, l'énergie transférée par les vapeurs de PMMA (perdue par la surface) et la fraction rayonnée par la flamme qui est réfléchiée par la surface. L'énergie nécessaire pour pyrolyser une unité de masse de polymère est définie par $h_{ng} = h_{mel} + \int_{T_{\infty}}^{T_p} c_p(T) dT$ ou h_{mel} est la chaleur de fusion. Le terme h_g est la chaleur de gazéification au sens de De Wilde [2], $h_g = h_{ng} + h_{vap} + h_{pyr}$. Comme expliqué par Orloff et

al. [1], dans le cas de la combustion stationnaire d'une plaque de solide infiniment épaisse, l'énergie apportée par la phase condensée à la surface du matériau est exactement égale à la somme de la conduction et du rayonnement net dans le matériau solide. Ce qui conduit à :

$$\dot{m}h_{ng} = q_{id}^{cond} + q_{id}^{rad} \quad (2)$$

Et l'équation (1) devient alors :

$$q_{fl}^{conv} + (1 - r)q_{fl}^{rad} = q_{rr} + \dot{m}h_g \quad (3)$$

ou r est la réflectivité de la surface. Ce qui conduit au fait que pour un calcul de dégradation stationnaire, il n'est pas nécessaire de calculer les pertes thermiques dans la phase solide.

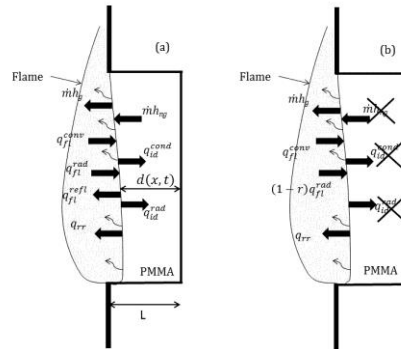


Figure 1 : Problème physique a) instationnaire et b) dégradation stationnaire d'une plaque de PMMA thermiquement épaisse.

La plupart des modèles de pyrolyse existants négligent une partie des pertes thermiques dans la phase condensée. Certains négligent la conduction, d'autres le rayonnement. Ces hypothèses simplificatrices conduisent le plus souvent à des écarts notables avec l'expérience. A la suite des travaux d'Emmons [3], un grand nombre de chercheurs ont développé des modèles basés sur la théorie de la couche limite laminaire réactive (CLR) [4-6]. Cette approche, basée sur le fait que la convection est considérée comme l'unique mode de transfert de chaleur entre la flamme et le combustible solide, a montré ses limites. D'autres études, comme celles de Torero et al. [7] et Rangwala et al. [8] ont proposé de modifier la théorie de la CLR en introduisant les pertes dans le matériau solide ainsi que le rayonnement de la flamme. De nombreuses études expérimentales ont été conduites dans le but d'estimer les différents flux de chaleur mis en jeu lors de la dégradation de matériaux solides et plus particulièrement celle du PMMA. L'ensemble des résultats collectés dans la littérature montre la difficulté de déterminer et surtout de différencier les différentes contributions de chacun des flux de chaleur à la surface d'une plaque combustible lors sa dégradation.

L'objectif de cette étude est d'évaluer séparément l'ensemble des transferts d'énergie mis en jeu lors de la combustion stationnaire à petite échelle de plaques de PMMA thermiquement épaisses. Le débit local de pyrolyse le long de la plaque combustible est ensuite déterminé par le biais d'une équation de bilan d'énergie à la surface du solide, puis comparé à des mesures directes obtenues lors de précédentes mesures [9]. Une analyse détaillée des pertes conductives et radiatives dans le solide est menée.

2. Dispositif expérimental

Les mesures ont été réalisées le long d'une plaque de PMMA verticale de 20 cm de haut, de 10 cm de large et de 3 cm d'épaisseur. Une description rapide du dispositif est donnée ci-après. Le lecteur peut se référer à [9] pour plus de détails. Les plaques sont recouvertes d'un masque en métal permettant de délimiter précisément la zone de pyrolyse et sont montées sur un support en aluminium qui permet une rotation de la plaque de la position verticale à la position horizontale. Le dispositif complet est placé sur une balance de précision (0.01g). Les faces latérales de l'échantillon ont été polies afin de suivre l'évolution de la surface de régression et d'observer la présence de bulles. Une camera CCD monochrome est utilisée pour obtenir une vue latérale de l'échantillon avec une résolution de 1392×1040 pixels, ce qui conduit à une taille réelle du pixel inférieure à 0.1 mm. La fréquence d'acquisition du système vidéo est fixée à 10 Hz. Un système d'éclairage à lumière froide de la face arrière permet d'augmenter le contraste entre le PMMA vierge et la zone bullée, conduisant à une détermination plus précise de la position de l'interface combustible/gaz. La lumière traverse la plaque avant que la pyrolyse commence et est ensuite diffusée par la zone bullée. Un traitement d'image spécifique a été développé de façon à déterminer systématiquement la position la plus profonde de la zone bullée. Une fois que la position de la régression a été déterminée le long de l'axe de symétrie de la plaque, le débit local de pyrolyse est calculé par dérivation temporelle entre deux positions successives : $\dot{m}(x, t) \approx \rho_s [s(x, t + \Delta t) - s(x, t)] / \Delta t$. Le débit est calculé avec un intervalle de temps de 50 s, suffisamment long pour que la régression soit significative. Chacun des essais est répété au moins 4 fois dans le but de s'assurer de la reproductibilité.

3. Résultats expérimentaux

Comme observé par Kulkarni et Kim [10] et par Pizzo et al. [9], 30 minutes environ après l'allumage, la régression de la plaque de combustible se fait à vitesse constante, ce qui indique que la combustion est stationnaire. C'est lors de cette phase que l'ensemble des mesures ont été réalisées.

3.1 Flux total

Le flux total provenant de la flamme le long de l'axe de symétrie de la plaque combustible peut être reconstruit à partir des mesures obtenues pour des expérimentations distinctes utilisant des échantillons de hauteurs différentes. La technique consiste à placer un fluxmètre total (de la marque Captec) sur le masque en métal 2 mm au-dessus de la zone de pyrolyse comme montré sur la FIG. 2. Les hauteurs de plaque considérées sont 2.5, 5, 10 et 20 cm. Les valeurs obtenues sont données dans le TAB 1.

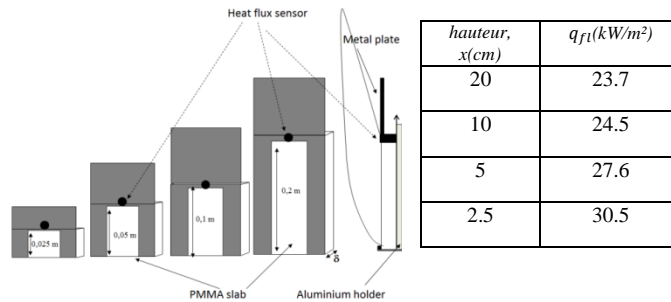


Figure 2 : Dispositif expérimental et Flux total mesuré à la surface de la plaque combustible en fonction de la hauteur.

Le flux total décroît de 30.5 kW/m² à 23.7 kW/m² quand la hauteur le long de la plaque combustible augmente de 2.5 à 20 cm. Ces valeurs sont à rapprocher des valeurs de la littérature. Par exemple, Beaulieu et Demsey [11] ont mesuré un flux total de 33 kW/m² lors la combustion d'une plaque de 9 cm de haut de PMMA noir, en utilisant un capteur commercial de la marque Schmidt-Boelter positionné sur l'axe de symétrie de la plaque, juste au-dessus de la zone de pyrolyse. Tsai et Wan [12] ont estimé un flux total dans une gamme de 23.58 à 30.21 kW/m² pour des plaques de PMMA transparent d'une hauteur de 100 cm et de 10 à 70 cm de large.

3.2 Surface réémission

Des expérimentations spécifiques ont été conduites pour déterminer la réémission de la surface. La procédure spécifique est présentée en fig. 3 a). Le porte échantillon est d'abord maintenu en position verticale jusqu'à atteindre la phase de combustion stationnaire et est ensuite retourné de 90°. Dans cette dernière configuration, après environ 30 s, on observe l'extinction naturelle de la flamme, suivie d'une rapide décroissance en température de la surface de la plaque combustible.

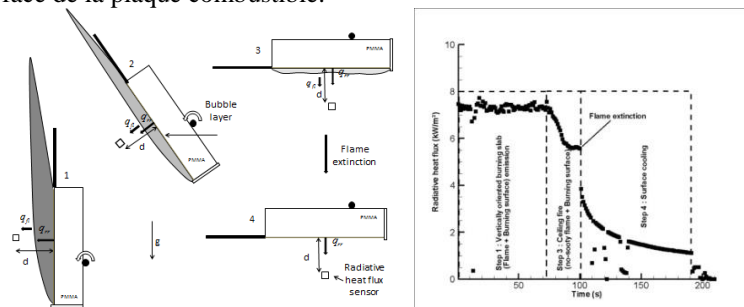


Figure 3 : Dispositif expérimental et procédure, b) évolution temporelle du flux radiatif issu de la flamme mesuré par le capteur localisé face à l'échantillon à la distance de 10 cm.

Un fluxmètre radiatif de la marque Captec a été positionné à mi-hauteur, à 10 cm de la plaque combustible. En position verticale il mesure le flux radiatif de la flamme vers l'environnement, ainsi que le flux réémis par la surface alors que dans la configuration en plafond, juste après l'extinction de la flamme, le fluxmètre mesure seulement le rayonnement issu de la surface. L'évolution temporelle du flux radiatif mesuré par le capteur est donnée en FIG. 3b). En utilisant le facteur de forme entre le capteur et la surface du PMMA, le flux issu de la surface qui pyrolyse est estimé à 11,5 kW/m².

3.1 Débit massique surfacique de pyrolyse

Les débits locaux de pyrolyse peuvent être calculés grâce à l'éq. 3) en utilisant les contributions individuelles mesurées au cours de cette étude. Le flux réémis par la surface est supposé constant et égal à celui mesuré à mi-hauteur. En utilisant une valeur de la réflectivité de 0.05 et de la chaleur de gazéification de 2.5×10^6 J/kg, comme recommandé par De Wilde [2] pour des échanges à la fois radiatif et convectif, le débit de pyrolyse est déterminé en fonction de la hauteur. Dans le TAB 2, nous avons rassemblé les valeurs obtenues et nous les avons comparées à celles mesurées lors d'une étude précédente [9]. On observe un bon accord, avec une erreur relative sensiblement inférieure à 10%. On peut noter également une sous-estimation du débit calculé pour des hauteurs de 5 à 20 cm, alors qu'il est sous-estimé en partie basse de la plaque.

x (cm)	\dot{m} déduit de Eq. (3)	\dot{m} mesuré [9]	Erreur relative (%)
20	4.74	5.10	-7.06
10	5.06	5.50	-8.00
5	6.30	6.90	-8.70
2.5	7.46	7.00	+6.57

Tableau 2 : Problème physique.

4. Pertes internes dans le solide : modèle et validation

L'extension du modèle à la phase de combustion instationnaire nécessite l'étude détaillée des pertes internes au matériau solide. Pour ce faire, des expérimentations spécifiques de pyrolyse sans flamme, sous cône calorimètre ont été développées. Les évolutions temporelles des flux radiatifs et températures à l'arrière de la plaque combustible ont été mesurées. Ces données ont permis la validation de la modélisation du problème de transferts couplés faisant intervenir le rayonnement (approximation de Schuster-Schwarzschild [13]) et la conduction dans le matériau semi-transparent solide.

4.1 Modèle

Le modèle consiste à résoudre l'équation de la chaleur 1D dans le cas de transferts couplés conduction rayonnement (avec source interne). Dans le cas d'un milieu semi-transparent comme le PMMA, le rayonnement pénètre dans la phase solide. L'équation de la chaleur prend la forme :

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} - \vec{\nabla} \cdot \vec{q} \quad (4)$$

Dans cette équation, $T(y, t)$ est la température du combustible solide, avec $s(t) \leq y \leq L$.

L'approximation de Schuster-Schwarzschild [13] pour un milieu gris, absorbant, non diffusant est utilisée pour calculer la divergence du flux radiatif :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{q} = \frac{dq^+}{dy} - \frac{dq^-}{dy} \quad (5)$$

où $q^+(y)$ et $q^-(y)$, sont obtenus par le biais des équations différentielles suivantes:

$$+ \frac{dq^+}{dy} = 2\kappa(\sigma T^4 - q^+) \quad (6)$$

$$- \frac{dq^-}{dy} = 2\kappa(\sigma T^4 - q^-) \quad (7)$$

L'équation de la chaleur, prend donc la forme :

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + 2\kappa(q^+ + q^-) - 4\kappa\sigma T^4 \quad (8)$$

En utilisant les conditions aux limites en face avant et face arrière de la plaque combustible, $q^+(s)$ et $q^-(L)$, eqs. (6) et (7) peuvent être intégrées analytiquement.

Les conditions initiales et aux limites retenues sont :

- Condition initiale: $T(y, 0) = T_0$
- Conditions à la limite au niveau de la face avant "noire" ($y = s(t)$):

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial y}(s, t) = q_{fl}^{rad} + q_{fl}^{conv} - 2E_b(T_s) + q^-(s) - \dot{m}(h_{vap} + h_{pyr})$$

$$q^+(s) = E_b(T_s) = \sigma T_s^4$$

avec $T_s = T(s, t)$.

- Condition à la limite face arrière "claire" ($y = L$):

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial y}(L, t) = q_{\infty}^{conv}$$

$$q^-(L) = \varepsilon E_b(T_{\infty}) = \varepsilon \sigma T_{\infty}^4$$

4.2 Validation

Le modèle a été validé pour une configuration de référence de pyrolyse sans flamme (flux imposé de 18 kW/m²), sous cône calorimètre. La validation a porté sur la perte de masse (m), la position de l'interface combustible / gaz (s(t)), le flux radiatif en face arrière et la température à 5 mm de la face arrière dans le matériau solide.

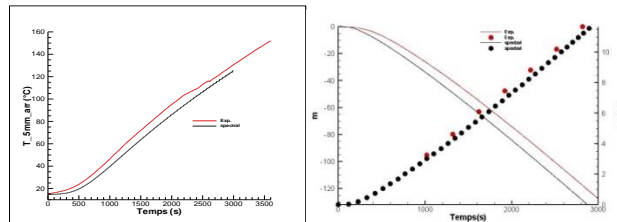


Figure 4 : Températures à 5 mm de la face arrière, perte de masse (m) et position de l'interface (s) calculées et mesurées.

Les températures, pertes de masse et positions de l'interfaces combustible / gaz calculées et mesurées présentent un bon accord. Un ajustement concernant les constantes d'Arrhenius peut être envisagé, ainsi qu'une amélioration de la condition à la limite au niveau de la face exposée du matériau. En effet, la surface de pyrolyse, considérée comme « noire » d'un point de vue radiatif dans le modèle, n'est réellement noire qu'une fois que la pyrolyse s'établit. Dans la phase de préchauffage, un modèle de surface « claire » semblerait mieux adapté.

5. Conclusion

Les flux de chaleur mis en jeu lors de la combustion stationnaire de plaques thermiquement épaisses de PMMA transparent ont été évalués séparément à partir d'expérimentations spécifiques. Conformément aux constatations d'Orloff et al. [1], les pertes thermiques internes à la phase condensée n'ont pas à être considérées en régime de combustion stationnaire. Les débits locaux de pyrolyse déduits de l'équation de bilan d'énergie à la surface du combustible sont en bon accord avec ceux déterminés expérimentalement. Le modèle radiatif développé permet une estimation des flux conduits et rayonnés dans la phase condensée, ce qui nous permettra à court terme de déterminer les pertes internes dans la phase solide et d'étendre notre étude à la phase instationnaire de combustion.

Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier l'Agence Nationale de la Recherche pour son soutien financier dans le cadre du projet ANR-12-ASRT-0002-01.

6. Références

- [1] L. Orloff, Upward turbulent fire spread and burning of fuel surface, Proc. Combust. Inst., 15, 183–192, 1974
- [2] P. De Wilde., The heat of gasification of Polyethylene and Polymethylmethacrylate, Memorandum M-596, Report PML, SFCC Publication, 53, 1988-C42.
- [3] H.W. Emmons, The film combustion of liquid fuel, ZAMM-Zeitschrift fur Angewandte Mathematik und Mechanik, 36, 60-71,
- [4] F.J. Kosdon, Combustion of vertical cellulosic cylinders, Twelfth Symposium (International) on Combustion, 20, 253-64, 1969.
- [5] P.J. Pagni, Excess Pyrolyzate, Sixteenth Symposium (International) on Combustion, 16, 1329-1343, 1977.
- [6] K. Annamalai, Flame spread over combustible surfaces for laminar flow systems part I : excess fuel and heat flux, Combustion Science and Technology, 19-5, 167-183, 1979.
- [7] J.L. Torero, Estimation of a total mass transfer number from the standoff distance of a spreading flame, Combustion Science and Technology, 174-11, 187-203, 2002.
- [8] A.S. Rangwala, Upward flame spread on a vertically oriented fuel Surface : The effect of finite width , Proc. Combust. Inst. 31, 2607–2615, 2007.
- [9] Y. Pizzo, Experimental observations on the steady-state burning rate of a vertically oriented PMMA slab, Combust. Flame, 156, 1856-1859, 2009.
- [10] A.K. Kulkarni, Heat loss to the interior of a free burning vertical wall and its influence on estimation of effective heat of gasification, Combust Sci Technol, 73, 493-504, 1990.
- [11] P.A. Beaulieu, Effect of oxygen on flame heat flux in horizontal and vertical orientations, Fire Safety J., 43, 410–428, 2008.
- [12] K.C. Tsai, Upward Flame Spread : The Width Effect, Proc. 8th Symp IAFSS, 409–419, 2005.
- [13] M.F. Modest, Radiative Heat Transfer, Mc Graw-Hill, NY, 1993.