



## Effet de la Sous-Oxygénation sur la Combustion de Matériaux Liquides et Solides dans le Dispositif Expérimental CADUCEE

David ALIBERT<sup>1</sup>, Mickaël COUTIN<sup>2</sup>, Maxime MENSE<sup>2</sup>, Yannick PIZZO<sup>1</sup> et Bernard PORTERIE<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Aix-Marseille Université (AMU), CNRS, IUSTI UMR 7343, Laboratoire commun ETiC, 13453 Marseille, France

<sup>2</sup>Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PSN-RES, SA2I, Laboratoire commun ETiC, Cadarache, 13115 Saint-Paul-Lez-Durance, France

*david.alibert@univ-amu.fr, mickael.coutin@irsn.fr, maxime.mense@irsn.fr, yannick.pizzo@univ-amu.fr, bernard.porterie@univ-amu.fr*

**Résumé :** La présente étude expérimentale a un double objectif : comprendre les effets d'une atmosphère appauvrie en oxygène sur la combustion de matériaux solides et liquides et fournir des données nécessaires à la validation des outils de simulation numérique d'un incendie. Les essais expérimentaux ont été menés dans le calorimètre à atmosphère contrôlée CADUCEE de l'IRSN dans des atmosphères allant de 21% d'oxygène jusqu'à la concentration limite en oxygène. Les combustibles utilisés sont le poly-méthacrylate de méthyle et l'heptane, et pour chacun d'eux, différentes tailles de foyer ont été considérées. L'analyse des résultats obtenus montre une diminution linéaire du débit de pyrolyse, des flux thermiques et des températures de gaz avec la fraction molaire d'oxygène pour les deux combustibles. Pour le matériau solide, les proportions radiative et convective au flux total ont été trouvées constantes, respectivement 0.65 et 0.35, quelles que soient la taille de l'échantillon et la concentration en oxygène considérées. Une mesure de la température dans le liquide a permis de mettre en évidence une diminution des flux thermiques incidents à la surface du combustible avec la fraction molaire d'oxygène.

**Mots clés :** pyrolyse, PMMA, heptane, sous-oxygénation, CADUCEE

### 1. Introduction et contexte

L'apport d'oxygène joue un rôle prépondérant dans le développement d'un incendie en milieu confiné. La quantité d'oxygène disponible pour la combustion va dépendre de sa consommation due au feu mais aussi du taux de renouvellement d'air par le système de ventilation et/ou les ouvertures. Une sous-oxygénation du milieu réactionnel va conduire à une diminution du flux de chaleur provenant de la flamme vers la surface du combustible, ce qui, en retour, va entraîner une diminution du débit de pyrolyse. Ces phénomènes s'accompagnent de changements notables d'autres propriétés, comme la vitesse de régression de la surface du combustible en feu, la température des produits de combustion et leur composition, ainsi que les flux de chaleur échangés.

Utiskul *et al.* [1] ont proposé un modèle pour exprimer la perte de masse en fonction de la fraction molaire d'oxygène. Ce modèle est basé sur l'approche de Quintiere et Rangwala [2] et quelques hypothèses simplificatrices. En supposant un faible nombre de transfert de Spalding B et en négligeant les effets radiatifs de la flamme, Utiskul *et al.* ont obtenu la relation suivante :

$$\dot{m}'' = \dot{m}''_{21} \frac{X_{O_2}}{0.21} + \frac{\dot{q}''_{ext,r}}{L_G} \quad (1)$$

Plus récemment, Nasr *et al.* [3] ont développé un modèle pour déterminer la perte de masse du combustible dans un compartiment confiné et ventilé mécaniquement en utilisant une méthode globale. Ce modèle est basé sur un bilan d'énergie à la surface du combustible en prenant en compte le flux radiatif issu de la flamme et en considérant que le nombre de transfert de masse B est non négligeable. L'expression de la perte de masse selon leur modèle peut s'exprimer comme :

$$\dot{m}'' = \frac{h_{conv}}{L_G c_p} \frac{\ln(1+B)}{B} \left[ Y_{O_2} \frac{\Delta h_c}{r} (1 - \chi_r) - c_p (T_s - T_a) \right] + \frac{\sigma}{L_G} \left[ \varepsilon_f (\alpha Y_{O_2} + \eta)^4 + (1 - \varepsilon_f) (T_g^4 - T_s^4) - (T_s^4 - T_a^4) \right] \quad (2)$$

Quelques corrélations ont été établies pour exprimer la perte de masse en fonction de la concentration en oxygène à partir de résultats expérimentaux. Tewarson et Pion [4] ont déterminé la perte de masse de plusieurs échantillons de plastiques en atmosphères normalement oxygénée et sous-oxygénée à petite échelle. Pour une large gamme de valeurs de la concentration en oxygène, ils expriment la perte de masse comme une fonction linéaire de la concentration en oxygène pour tous les combustibles étudiés :

$$\dot{m}'' = \frac{\xi}{L_G} X_{O_2} + \frac{\dot{q}_{ext,r}'' - \dot{q}_l''}{L_G} \quad (3)$$

Une étude expérimentale a été menée par Peatross et Beyler [5] sur des feux compartimentés utilisant une ventilation naturelle ou mécanique. Les combustibles étudiés étaient le diesel, le bois et le polyuréthane. Les résultats ont montré une concentration en oxygène homogène dans tout le compartiment quel que soit le taux de renouvellement d'air, ainsi qu'une variation de la température, linéaire ou en deux couches, selon le scénario. A partir de ces résultats et de ceux de Tewarson [6] et de Santo et Tamanini [7], Peatross et Beyler ont développé une corrélation linéaire entre la perte de masse normalisée par sa valeur en atmosphère normalement oxygénée et la concentration en oxygène :

$$\frac{\dot{m}''}{\dot{m}_{21}''} = 10 X_{O_2} - 1.1 \quad (4)$$

Cette corrélation montre un bon accord avec les résultats expérimentaux à petite échelle (de 0.007 à 0.07 m<sup>2</sup>) et à échelle réelle (de 0.3 à 0.55 m<sup>2</sup>) pour le diesel, l'heptane et le PMMA.

Cette étude a pour but d'étudier l'effet d'un appauvrissement en oxygène du milieu sur la combustion de plaques horizontales de PMMA et de nappes d'heptane. Alors que beaucoup d'études ont été menées sur la combustion de PMMA en position verticale ou sur un plan incliné (Pizzo *et al.* [8], Chen *et al.* [9] et Drysdale et Macmillan [10]), très peu l'ont été sur des configurations horizontales et encore moins en atmosphère sous-oxygénée. Rhodes et Quintiere [11] ont réalisé des essais sous cône calorimètre pour l'étude de la perte de masse et du flux de chaleur issu de la flamme pour des feux de PMMA noir en position horizontale. Linteris *et al.* [12] ont eux aussi étudié la combustion de PMMA noir à petite échelle, sous cône calorimètre. Leurs expériences ont été réalisées en position horizontale et verticale en atmosphère libre avec un flux radiatif imposé allant jusqu'à 75 kW.m<sup>-2</sup>. Beaulieu et Dembsey [13] ont mené des expériences sur l'effet de la suroxygénation sur le flux thermique issu de la flamme pour du PMMA noir, du propylène et du polyoxyméthylène (POM) noir dans des atmosphères enrichies en oxygène de 21 à 40%. Kacem *et al.* [14] ont réalisé des essais en atmosphère libre sur des plaques carrées de PMMA de 0.1, 0.2 et 0.4 m de côté. En ce qui concerne la combustion d'heptane, beaucoup d'études ont été menées sur le sujet ces dernières décennies. En effet, ce combustible est couramment utilisé en raison de sa chaleur de combustion élevée, de l'ordre de 45 MJ.kg<sup>-1</sup> [15]. Il permet ainsi de réaliser des essais à petite échelle de puissances relativement élevées. Plusieurs études expérimentales ont été menées sur des feux de nappes d'heptane pour différentes configurations (i.e. bacs de différentes tailles et matières, hauteur et température initiales du combustible) conduisant à une relative dispersion des données, notamment celles concernant le débit de pyrolyse. Selon Babrauskas [16], le débit surfacique de pyrolyse d'un combustible liquide  $\dot{m}''$  est relié à celui obtenu pour de grands foyers  $\dot{m}_{D_\infty}''$  par un coefficient  $k\beta$  :

$$\dot{m}'' = \dot{m}_{D_\infty}'' \left( 1 - e^{-k\beta D} \right) \quad (5)$$

Les deux paramètres  $\dot{m}_{D_\infty}''$  et  $k\beta$  ont été définis expérimentalement pour une large gamme de combustibles liquides grâce aux données de la littérature. Pour l'heptane, la détermination de ces deux paramètres repose sur les essais expérimentaux de Kung et Stavrianidis [17] et Tarifa [18]. Cette relation est valable uniquement en régime radiatif dominant, c'est-à-dire, pour des foyers d'un diamètre supérieur à 0.2 m. Comme indiqué précédemment, Tewarson *et al.* [6] ont étudié expérimentalement l'effet de l'oxygène sur le débit de pyrolyse. Leur essais ont porté notamment sur des feux de nappe d'heptane de 0.1 m de diamètre et pour des concentrations en oxygène variant de 27.3 à 15.7%.

L'objectif de la présente étude est double : mieux comprendre les effets d'une atmosphère appauvrie en oxygène sur la combustion de matériaux solides et liquides et fournir des données nécessaires à la validation des outils de simulation numérique d'un incendie. Pour cela, le calorimètre à atmosphère contrôlée CADUCEE (Controlled Atmosphere Device for Unburnt and Carbon Emission Evaluation) [19] a été utilisé. Ce calorimètre, conçu et mis au point par l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), permet de mener des expériences sur des combustibles solides, liquides ou gazeux à petite et moyenne échelles. Cet article est organisé comme suit. Le dispositif expérimental est présenté, ainsi que la métrologie qui lui est associée. La procédure d'inflammation du combustible est ensuite détaillée. Les résultats obtenus concernant l'influence de la

sous-oxygénation du milieu sur la combustion de plaques horizontales de PMMA et de nappes d'heptane sont enfin analysés et comparés à ceux de la littérature.

## 2. Dispositif expérimental

### 2.1. CADUCEE

Le calorimètre à atmosphère contrôlée CADUCEE (Figure 1(a)) est composé d'une chambre de combustion de 22 m<sup>3</sup> (3.1 m de hauteur et 2.9 m de diamètre). Le mélange d'air et d'azote, dont on maîtrise parfaitement la concentration molaire en oxygène (entre 0 et 21%), est injecté depuis la partie basse du calorimètre. L'extraction des gaz de combustion est assurée par une hotte carrée de 25 m<sup>2</sup> reliée à un ventilateur d'extraction. Le dispositif expérimental CADUCEE, et notamment la métrologie et les incertitudes associées, sont décrites en détails dans [19].

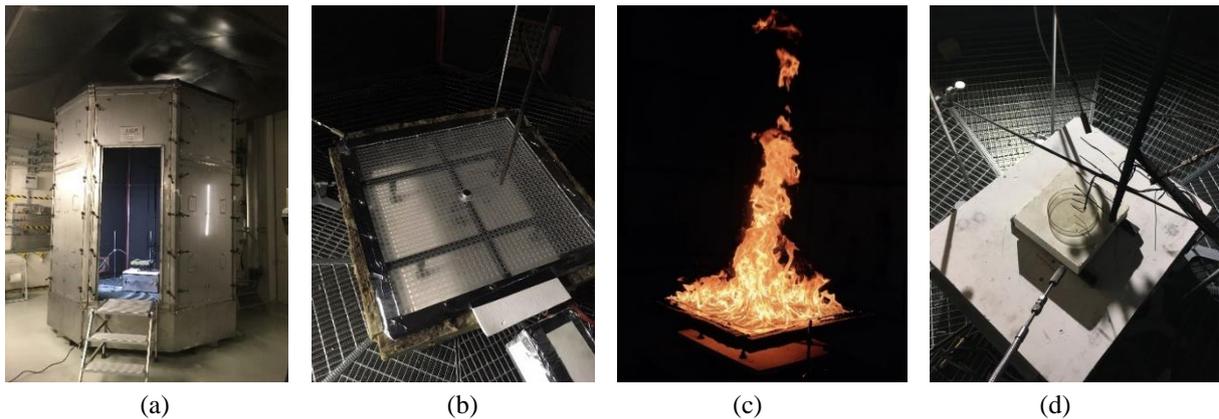


Figure 1 : (a) Le calorimètre à atmosphère contrôlée CADUCEE, plaque de PMMA de 0.36 m<sup>2</sup> (b) avant allumage, (c) pendant l'essai et (d) bac de 0.116 m de diamètre.

### 2.2. Combustibles étudiés

La présente étude porte sur la combustion de plaques d'un polymère solide translucide, le PMMA (de marque Policril®), et d'un hydrocarbure liquide, l'heptane, de qualité « technique ». Le PMMA est souvent utilisé comme panneau de confinement ou de protection des boîtes à gants dans les installations nucléaires. Ce matériau ne produit pas de résidu charbonneux et ses propriétés thermo-physiques sont relativement bien connues. Les échantillons de PMMA se présentaient sous la forme de plaques carrées de 200, 400 et 600 mm de côté et de 30 mm d'épaisseur, disposées horizontalement. L'heptane a été utilisé comme combustible liquide. Cet hydrocarbure est couramment utilisé dans l'industrie en raison de sa chaleur de combustion importante.

### 2.3. Configuration expérimentale

#### 2.3.1. Combustible solide

La plaque de PMMA a été montée sur un support en acier rigide afin d'éviter les déformations thermo-mécaniques. Elle a été également recouverte d'un masque en métal afin de délimiter précisément la surface de pyrolyse (Figure 2). Une de ses faces latérales a été préalablement polie afin de suivre en temps réel la position de la surface de régression. Pour éviter d'éventuelles inflammations latérales de la plaque, les autres faces ont été isolées avec de la laine minérale. Les plaques ont été percées en leur centre pour y insérer, soit un fluxmètre total pour la mesure du flux total, soit un fluxmètre ellipsoïdal pour la mesure du flux radiatif. Cette technique a également été utilisée par Rhodes et Quintiere [11], Beaulieu et Dembsey [13] et Pizzo *et al.* [20].

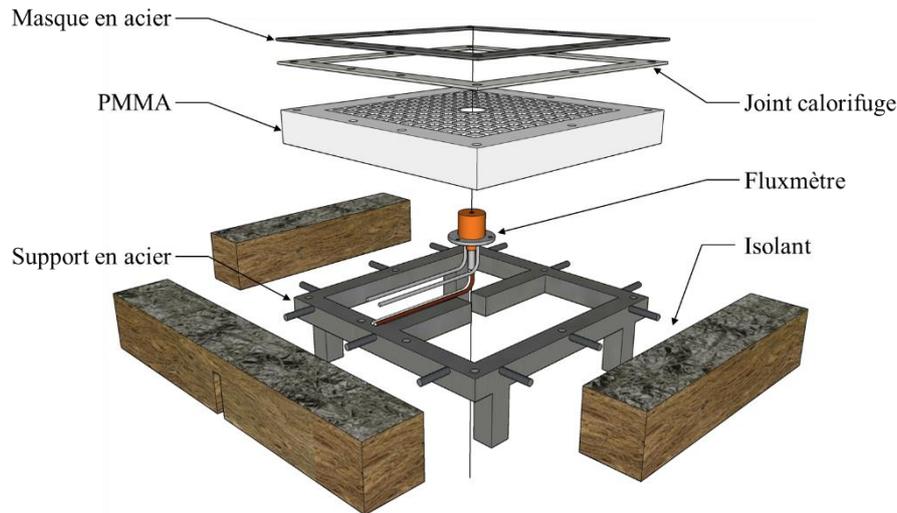


Figure 2 : Schéma du montage expérimental pour les plaques de PMMA.

### 2.3.2. Combustible liquide

Deux bacs d'heptane, en verre borosilicate et de diamètres intérieurs 0.196 et 0.116 m, ont été utilisés. Le Tableau 1 rassemble les propriétés géométriques des bacs de combustible ainsi que l'épaisseur initiale de la nappe d'hydrocarbure. La température initiale du combustible était d'environ 20°C pour l'ensemble des essais.

Tableau 1 : Dimensions des bacs utilisés.

Diamètre interne du bac (mm)	Épaisseur (mm)	Hauteur du bac (mm)	Hauteur de combustible (mm)
196	3	20	17
116	2	14	12

## 2.4. Métrologie associée

La répartition de l'oxydant tout autour de la flamme a été contrôlée en mesurant la concentration en oxygène en trois positions différentes : deux au plus près de la partie basse de la flamme de part et d'autre du foyer, à 10 cm du centre du bac pour le bac de 0.116 m de diamètre et à 15 cm pour celui de 0.196 m, et un à hauteur du foyer dans l'écoulement oxydant à 0.75 m du centre du bac.

En ce qui concerne le PMMA, le montage expérimental, incluant le support et la plaque, a été placé sur une balance Sartorius de précision ( $\pm 0.1$  g) afin de mesurer l'évolution temporelle de la masse de l'échantillon. Les flux total et radiatif ont été mesurés respectivement à l'aide d'un fluxmètre total Medtherm 64-2-20T et d'un fluxmètre ellipsoïdal Medtherm 64EP-2-21495T positionnés à fleur de la surface supérieure initiale. Chaque configuration d'essai a été reproduite deux fois, l'une pour la mesure du flux radiatif, l'autre pour la mesure du flux total. Ces deux fluxmètres sont refroidis avec de l'eau à température ambiante durant les essais. La cavité du fluxmètre ellipsoïdal est parcourue par un écoulement d'azote à faible débit (de l'ordre de 2 l.min<sup>-1</sup>), permettant d'éviter le dépôt de particules de suies sans pour autant perturber la mesure. La température des gaz a été mesurée à l'aide d'un arbre de onze thermocouples de type K de 1 mm de diamètre, positionnés à 0.05, 0.1, 0.15, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, et 2.5 m de la surface supérieure du combustible le long de l'axe de la flamme.

Pour les feux de nappes d'heptane, la masse de combustible liquide a été mesurée au cours du temps par une balance Sartorius de grande précision ( $\pm 0.01$  g). Comme pour le PMMA, onze thermocouples de type K de 1 mm de diamètre ont été positionnés dans l'axe de flamme à 0.10, 0.15, 0.20, 0.25, 0.35, 0.45, 0.55, 1.05, 1.55, 2.05, et 2.55 m du niveau initial du liquide. De plus, pour les essais menés sur le bac de plus grand diamètre, 2 thermocouples ont été mis en place à l'intérieur et au-dessus de la nappe d'hydrocarbure afin de mesurer l'évolution temporelle de la température du combustible et des gaz de pyrolyse, soit à 0.01 m du fond du bac et à 0.05 m de la surface initiale de la nappe d'heptane.

## 2.5. Phases d'allumage et de combustion

### 2.5.1. Combustible solide

L'une des principales difficultés expérimentales a été d'assurer une inflammation la plus homogène possible sur la surface du combustible solide dans le dispositif CADUCEE. La solution retenue a consisté à rainurer préalablement la surface supérieure des plaques de PMMA, de remplir ces rainures, d'environ 2 mm de profondeur, avec de l'éthanol puis à enflammer ce dernier. Pour l'ensemble des essais réalisés, une concentration de 21% d'oxygène a été conservée durant la phase d'allumage et jusqu'à un temps variable selon la taille de la plaque (500 s pour les plaques de 200 mm de côté, 900 s pour celles de 400, et 1000 s pour celles de 600). Ce laps de temps permet à l'éthanol de brûler complètement en atmosphère normalement oxygénée (environ 120 s pour les trois tailles de plaques considérées) et d'avoir une régression de la surface du PMMA suffisante pour faire disparaître les rainures et avoir une surface de pyrolyse plane et homogène. L'extinction des plaques a été provoquée par une diminution soudaine de la quantité d'oxygène dans CADUCEE en augmentant la proportion d'azote dans le milieu oxydant.

Des essais de qualification ont permis de mettre en évidence une concentration limite en oxygène en deçà de laquelle l'extinction de la flamme se produit. Cette concentration est de l'ordre de 17.5% pour le PMMA quelle que soit la taille de l'échantillon étudié. Cette valeur est proche de celles trouvées dans la littérature à d'autres échelles : 17.3% [21], 17.2% [22], 18.0% [23], 17.5% [24], 17.8% [25], 17.3% [26] ou 17.8% [27].

### 2.5.2. Combustible liquide

Pour les feux d'heptane, l'inflammation a été réalisée à l'aide d'un brûleur à propane monté sur un bras articulé automatisé permettant son contrôle depuis l'extérieur du dispositif. Pour chaque essai, une concentration de 21% d'oxygène a été maintenue durant 180 s permettant d'obtenir une combustion stationnaire. Les essais de qualification ont permis de déterminer une concentration limite en oxygène de l'ordre de 14.5%. Cette valeur est proche de celles trouvées dans la littérature de 14% [28] et 13-14% [29].

## 3. Résultats et discussion

### 3.1. Combustible solide

Le Tableau 2 récapitule les données expérimentales obtenues pour l'ensemble des essais et précise la durée sur laquelle ces données ont été moyennées.

Tableau 2 : Données expérimentales sur la combustion de PMMA en milieu normalement oxygéné et sous-oxygéné.

	Surface (m <sup>2</sup> )	X <sub>O<sub>2</sub></sub> (% vol.)	Injection d'azote dans l'oxydant (s)	Période d'étude (s)	$\dot{m}$ (g.s <sup>-1</sup> )	$\dot{q}''_{tot}$ (kW.m <sup>-2</sup> )	$\dot{q}''_{rad}$ (kW.m <sup>-2</sup> )	$\dot{q}''_{conv}$ (kW.m <sup>-2</sup> )	$\dot{q}''_{rad}/\dot{q}''_{tot}$	$\dot{q}''_{conv}/\dot{q}''_{tot}$
PMMA	0.040	21	-	2000-2200	0.491	40.9	25.9	15.0	0.63	0.37
	0.040	20	500	2000-2200	0.450	36.9	23.7	13.2	0.64	0.36
	0.040	19	500	2000-2200	0.350	28.7	19.1	9.6	0.66	0.34
	0.040	18	500	2000-2200	0.297	24.4	15.9	8.5	0.65	0.35
	0.160	21	-	1800-2000	3.395	59.5	39.1	20.4	0.66	0.34
	0.160	20	900	1800-2000	2.842	52.7	36.8	15.9	0.70	0.30
	0.160	19	900	1800-2000	2.445	47.9	29.8	18.2	0.62	0.38
	0.160	18	900	1800-2000	1.943	42.9	28.5	14.4	0.66	0.34
	0.360	21	-	1200-1600	7.273	-	-	-	-	-
	0.360	20	1000	1200-1600	6.898	-	-	-	-	-
	0.360	19	1000	1200-1600	5.887	-	-	-	-	-
	0.360	18	1000	1200-1600	5.370	-	-	-	-	-

#### 3.1.1. Débit de pyrolyse

Le débit de pyrolyse a été calculé par dérivation temporelle de la masse de l'échantillon entre deux enregistrements (c'est-à-dire 1 s) et application d'une moyenne centrée mobile de 10 s. La Figure 3 (a) montre les évolutions temporelles des débits de pyrolyse pour les trois tailles de plaque et les quatre concentrations en oxygène étudiées. On peut observer quatre périodes différentes. La première, de 0 à 120 s, correspond à la combustion de l'éthanol, situé dans les rainures. La deuxième période, de 120 à 500 s, correspond à la montée en puissance du feu et au temps que met le feu pour enflammer la totalité de la face supérieure de la plaque. Ce

temps est comparable à celui déterminé par Pizzo *et al.* [20]. La troisième période, de 500 s jusqu'à l'extinction, correspond à la combustion du PMMA. Durant cette phase, une augmentation du débit de pyrolyse est observée. L'éclatement des bulles, produites par la combustion, conduit à la formation de cavités qui augmentent l'aire spécifique de la surface de combustion et donc le débit de pyrolyse et le flux reçu à la surface. De plus, l'augmentation de ce flux thermique entraîne un accroissement du nombre de bulles tout en réduisant leur taille contribuant d'autant plus à l'augmentation de l'aire spécifique de la surface de combustion [30],[31],[32]. Enfin, la quatrième période correspond à l'extinction de la plaque provoquée par une augmentation soudaine de la proportion d'azote dans le mélange oxydant jusqu'à atteindre une concentration en oxygène inférieure à 10%. Il peut être constaté que le débit de pyrolyse est d'autant plus grand que la surface en feu est grande. Ceci s'explique par le fait, qu'une plaque de taille plus importante génère un feu d'une plus grande puissance et donc un flux thermique incident plus important. Une valeur moyenne peut être calculée sur une période d'étude dont la durée dépend de la taille de l'échantillon (Tableau 2). Cette période correspond à une phase du feu où le débit de pyrolyse augmente linéairement avec le temps. La Figure 3 (b) montre un comportement linéaire du débit de pyrolyse normalisé par sa valeur en atmosphère normalement oxygénée en fonction de la concentration en oxygène pour les trois tailles de plaques étudiées.

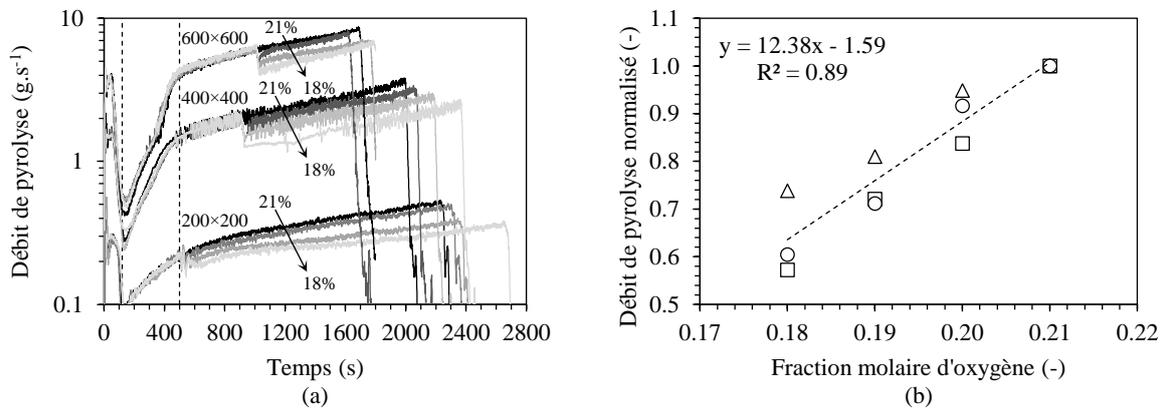


Figure 3 : (a) Evolution temporelle du débit de pyrolyse et (b) débit de pyrolyse normalisé par sa valeur en atmosphère normalement oxygénée en fonction de la fraction molaire d'oxygène (○ 0.04 m<sup>2</sup>, □ 0.16 m<sup>2</sup>, △ 0.36 m<sup>2</sup>).

### 3.1.2. Température des gaz

La Figure 4 (a) montre les profils des températures de gaz moyennées sur la période d'étude en fonction de la hauteur pour les trois tailles d'échantillons étudiés en atmosphère normalement oxygénée. Les trois régions observées par McCaffrey [33] sont clairement identifiables. Par exemple, pour l'échantillon de 0.16 m<sup>2</sup>, on distingue la zone de flamme continue jusqu'à 0.2 m, la zone de flamme intermittente de 0.2 m à 1.1 m et enfin une zone de panache au-delà de 1.1 m de hauteur. On observe, d'une part, que la température maximale et que la hauteur à laquelle ce maximum est obtenu, diminuent avec la taille de la plaque, et que, d'autre part, la température décroît plus rapidement. La température maximale est comprise entre 1080-1180 K. Cette valeur est très proche de celles obtenues pour des plaques de 0.01 m<sup>2</sup> par Kacem *et al.* [14] (~1190 K) et pour des plaques de 0.011 m<sup>2</sup> par Beaulieu et Dembsey [13] (1184 ± 100 K).

Lorsque l'on diminue la concentration en oxygène du milieu oxydant, la température maximale de flamme, mesurée dans la zone de flamme persistante, diminue et ce, quelle que soit la taille de l'échantillon (Figure 4 (b)). Ce phénomène a été également observé par Santo et Tamanini [7]. Comme le montre la Figure 4 (b), la température maximale des gaz diminue de façon quasi-linéaire avec la concentration en oxygène.

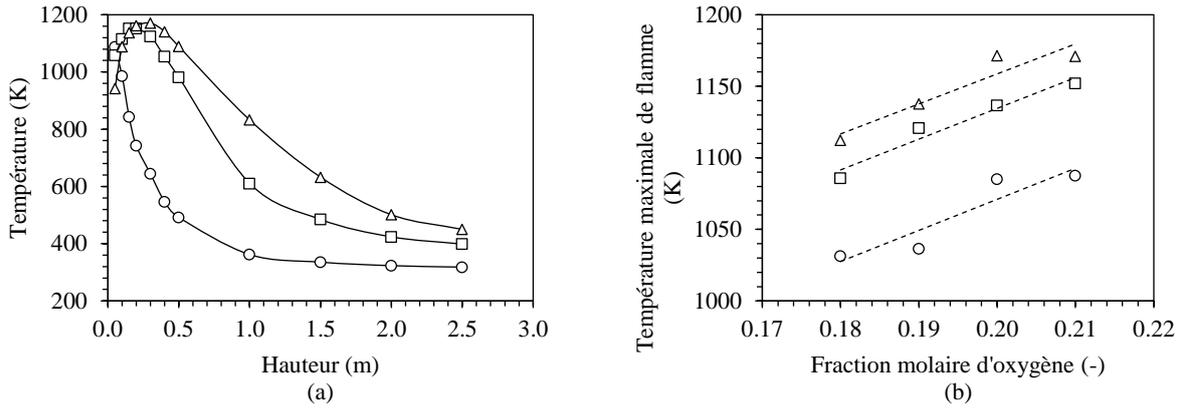


Figure 4 : (a) Température des gaz en fonction de la hauteur en atmosphère normalement oxygénée et (b) température maximale des gaz en fonction de la concentration en oxygène (○ 0.04 m<sup>2</sup>, □ 0.16 m<sup>2</sup>, △ 0.36 m<sup>2</sup>).

### 3.1.3. Flux thermiques au centre des plaques

Comme mentionné précédemment, les flux incidents totaux et radiatifs reçus au centre de la plaque de PMMA ont été mesurés respectivement à l'aide d'un fluxmètre total et d'un fluxmètre ellipsoïdal. Le flux convectif est calculé comme la différence entre le flux total et le flux radiatif. Le Tableau 2 donne les valeurs moyennes des flux thermiques (total, radiatif et convectif) en fonction de la concentration en oxygène pour des plaques de 200 et 400 mm de côté. On observe une augmentation significative du flux total avec la taille de l'échantillon, dominé principalement par le rayonnement. Ainsi, en atmosphère normalement oxygénée, les flux total et radiatif au centre d'un échantillon de 200 mm de côté sont respectivement de 40.9 et 25.9 kW.m<sup>-2</sup> vs. 59.5 et 39.1 kW.m<sup>-2</sup> pour un échantillon de 400 mm de côté. Ces valeurs peuvent être comparées à celles obtenues par Kacem *et al.* [14], respectivement de  $36.5 \pm 5.5$  et  $28.7 \pm 7.0$  kW.m<sup>-2</sup> pour un échantillon de 200 mm de côté et de  $63.0 \pm 4.5$  et  $50.5 \pm 6.0$  kW.m<sup>-2</sup> pour un échantillon de 400 mm de côté.

Les diagrammes (a) et (b) de la Figure 5 représentent les flux totaux et radiatifs normalisés par leur valeur en atmosphère normalement oxygénée en fonction de la fraction molaire d'oxygène. Comme pour le débit de pyrolyse, une diminution linéaire de ces flux normalisés avec la fraction molaire d'oxygène est observée, avec un impact moindre pour la plaque de 400 mm de côté. En effet, une diminution de la fraction molaire d'oxygène de 0.21 à 0.18 entraîne une diminution de l'ordre de 40% des flux totaux et radiatifs pour la plaque de 200 mm de côté contre 30% pour celle de 400 mm. Comme le montre la Figure 6, les fractions radiative et convective du flux total sont du même ordre de grandeur pour les deux tailles de plaques, respectivement 0.65 et 0.35, et varient peu avec la fraction molaire d'oxygène.

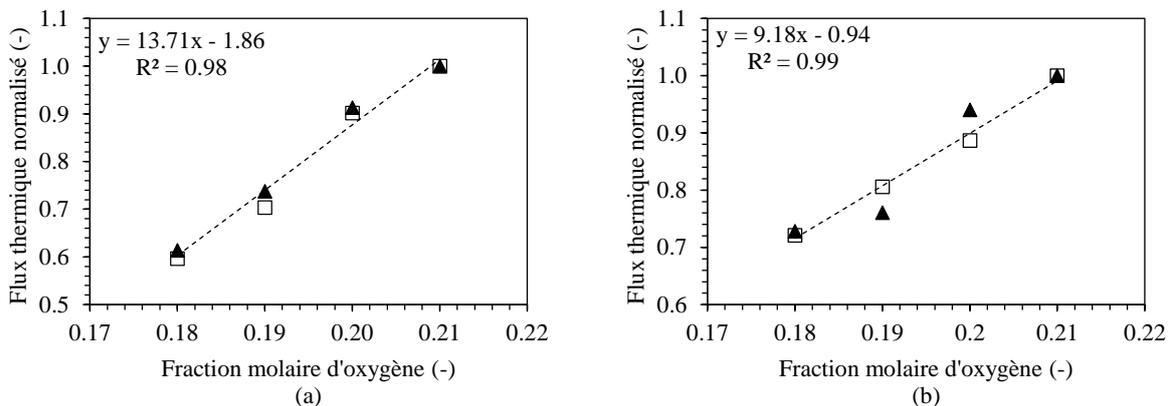


Figure 5 : Flux thermiques normalisés en fonction de la fraction molaire d'oxygène pour un échantillon (a) de 0.04 m<sup>2</sup> et (b) de 0.16 m<sup>2</sup> (□ Total, ▲ Radiatif).

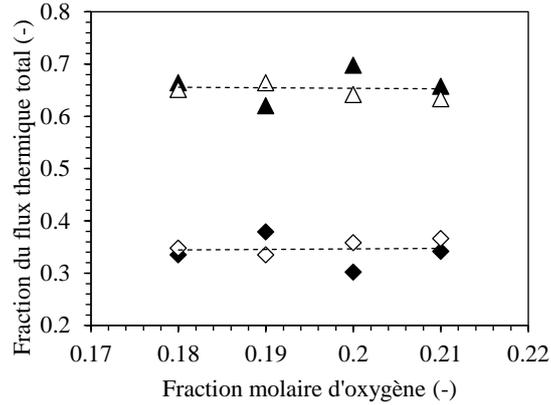


Figure 6 : Proportions radiative et convective du flux total en fonction de la fraction molaire d'oxygène pour des échantillons de 0.04 m<sup>2</sup> (▲ Fraction radiative, ◆ Fraction convective) et de 0.16 m<sup>2</sup> (△ Fraction radiative, ◇ Fraction convective).

### 3.2. Combustible liquide

Le Tableau 3 rassemble les données obtenues pour l'ensemble des feux de nappe d'heptane et précise la durée sur laquelle ces données ont été moyennées.

Tableau 3 : Données expérimentales sur la combustion d'heptane en milieu normalement oxygéné et sous-oxygéné.

	Surface (m <sup>2</sup> )	X <sub>o<sub>2</sub></sub> (% vol.)	Injection d'azote dans l'oxydant (s)	Période d'étude (s)	$\dot{m}$ (g.s <sup>-1</sup> )
Heptane	0.011	21	-	300-590	0.156
	0.011	19	180	300-590	0.130
	0.011	17	180	300-590	0.108
	0.011	15	180	800-1000	0.079
	0.030	21	-	300-730	0.495
	0.030	19	180	300-730	0.401
	0.030	17	180	300-730	0.323
	0.030	15	180	300-730	0.271

#### 3.2.1. Débit de pyrolyse

Le débit de pyrolyse est calculé à partir de la mesure de la perte de masse au cours du temps, comme pour le PMMA. La Figure 7 (a) montre les évolutions temporelles des débits de pyrolyse pour les deux tailles de bacs étudiées pour différentes concentrations en oxygène. Trois périodes peuvent être observées : une première période de 0 à 180 s qui correspond à la montée en puissance du feu après l'allumage, suivie par une période de combustion stationnaire et par une phase d'extinction par épuisement du combustible.

Les valeurs moyennes des débits de pyrolyse peuvent être calculées sur les périodes de combustion stationnaire (Tableau 3) et normalisées par leur valeur en atmosphère normalement oxygénée. Ces valeurs sont données sur la Figure 7 (b). Là encore, comme pour le PMMA, on observe une décroissance linéaire du débit de pyrolyse normalisé avec la concentration en oxygène. Pour ces dimensions de bacs, il est possible d'établir la corrélation suivante :

$$\frac{\dot{m}''}{\dot{m}''_{21}} = 7.9X_{O_2} - 0.7 \quad (6)$$

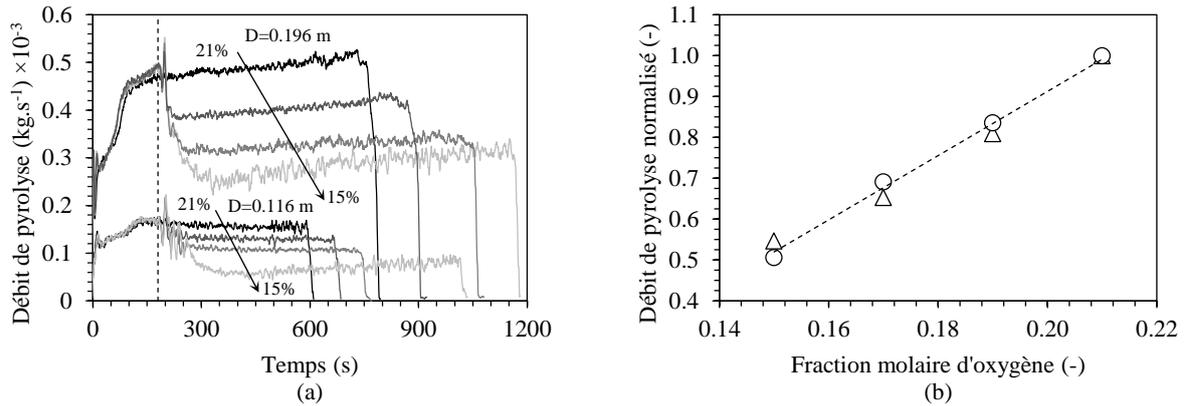


Figure 7 : (a) Evolution temporelle des débits de pyrolyse et (b) débit de pyrolyse normalisé en fonction de la fraction molaire d'oxygène ( $\circ$   $D = 0.116\text{ m}$ ,  $\triangle$   $D = 0.196\text{ m}$ ).

### 3.2.2. Températures des gaz

La Figure 8 (a) montre l'évolution en fonction de la hauteur des températures de gaz brutes (sans correction au rayonnement) moyennées sur la période d'étude en atmosphère normalement oxygénée. Les trois régions observées par McCaffrey [33] sont là encore parfaitement identifiables. La température maximale dans la zone de flamme persistante est de l'ordre de 1035 K en atmosphère normalement oxygénée. Si elle varie peu d'un essai à l'autre, la hauteur à laquelle ce maximum est obtenu diminue avec la taille de la nappe d'hydrocarbure. A noter que la valeur de 1035 K pour la température maximale des gaz est proche de celle obtenue par Chen *et al.* [34] de 973 K pour une feu de nappe d'heptane de 0.2 m de diamètre. Comme on peut le voir sur la Figure 9 et comme on pouvait s'y attendre, la hauteur de flamme visible augmente lorsque le diamètre du bac augmente. Lorsque l'on diminue la concentration en oxygène du milieu oxydant, la température maximale des gaz diminue de façon quasi linéaire pour les deux diamètres de bac étudiés Figure 8 (b). De plus, cette diminution est plus prononcée pour le bac de plus petit diamètre.

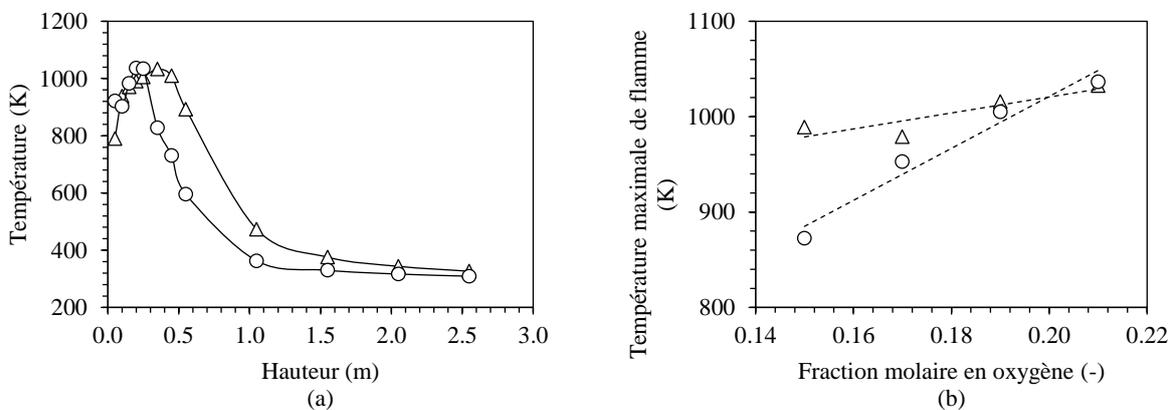


Figure 8 : (a) Température des gaz en fonction de la hauteur en atmosphère normalement oxygénée et (b) température maximale des gaz en fonction de la fraction molaire d'oxygène ( $\circ$   $D=0.116\text{ m}$ ,  $\triangle$   $D=0.196\text{ m}$ )

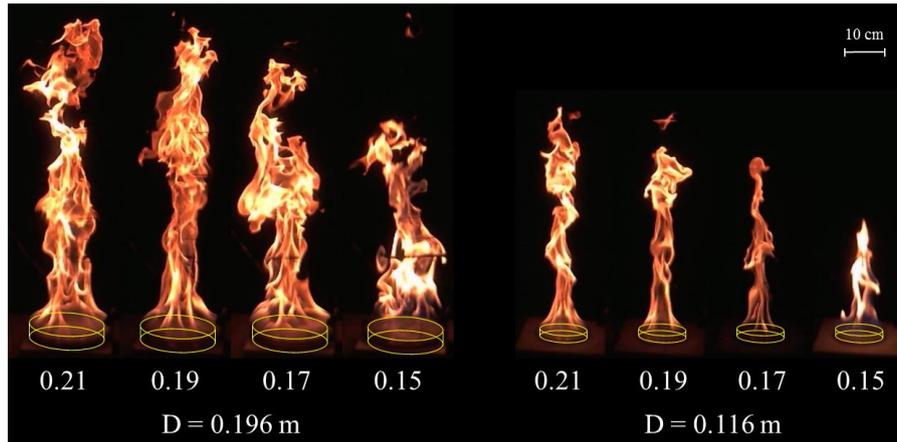


Figure 9 : Images instantanées de la flamme durant la période d'étude pour les différents essais.

### 3.2.3. Température du combustible

La Figure 10 représente l'évolution temporelle de la température de l'heptane à 1 cm du fond du bac pour une nappe de 0.196 m de diamètre et les quatre concentrations en oxygène étudiées. A 21% d'oxygène, on observe une augmentation de la température du combustible pour atteindre une température proche de la température d'ébullition de l'heptane, soit 371.3 K, puis un plateau de température suivi par une première augmentation brutale de la température, jusqu'à environ 415-425 K, lorsque le thermocouple se retrouve dans les gaz chauds au-dessus de la surface du combustible qui régresse, et enfin une deuxième augmentation lorsque le thermocouple se retrouve dans la flamme. Ces valeurs expérimentales, en milieu normalement oxygéné, sont comparables à celles trouvées par Chen *et al.* [34] qui mesure successivement une température de 371.8 K et une température des gaz chauds de l'ordre de 403 – 418 K.

Quand la concentration en oxygène diminue, on constate la même évolution mais avec des niveaux de température d'autant plus faibles. On note en particulier une diminution de la température du plateau, avec une température de 361.2 K à 15% d'oxygène. Ce comportement général peut s'expliquer par une diminution des transferts thermiques à la surface et au sein du liquide dont l'évaluation fera l'objet d'une prochaine étude.

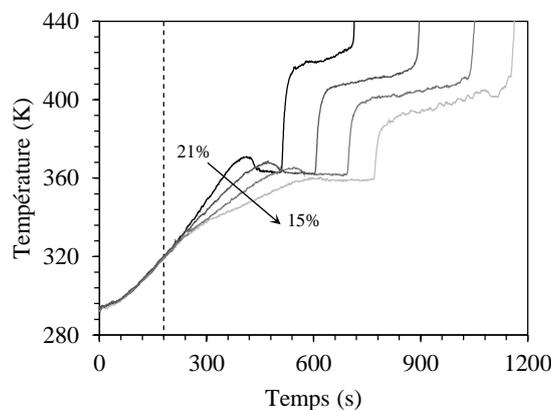


Figure 10 : Evolution temporelle de la température du combustible à 1 cm du fond du bac de diamètre 0.196 m pour différentes fractions molaires d'oxygène.

## 4. Comparaison avec les résultats de la littérature

### 4.1. Débit de pyrolyse en atmosphère normalement oxygénée : cas des liquides

La Figure 11 représente les différents résultats de la littérature obtenus pour des feux d'heptane en milieu normalement oxygéné en fonction du diamètre de bac utilisé. Une dispersion assez importante des débits surfaciques de pyrolyse peut être observée et attribuée à différents facteurs, comme la géométrie et la nature du matériau composant le bac (acier, inox, verre borosilicate, ...), la qualité de l'heptane utilisé (technique ou pur) [35], les conditions environnementales (température ambiante, ventilation, ...) ou encore la hauteur de liquide dans le bac. Malgré cela, les résultats obtenus dans la présente étude sont en bon accord avec ceux de la littérature.

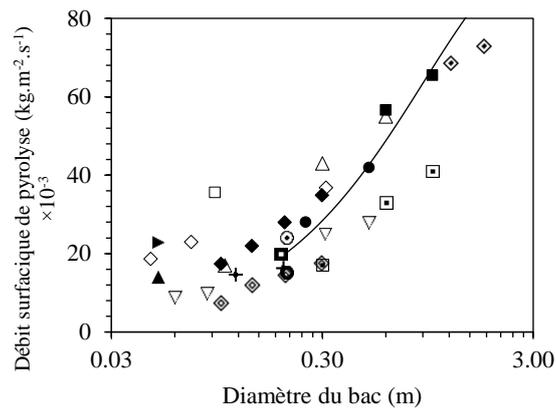


Figure 11 : Débit surfacique de pyrolyse en atmosphère normalement oxygénée en fonction du diamètre du bac (□ Tewartson [6], — Corrélation de Babrauskas [16], ◇ Kung [17], ● Tarifa [18], ● Chen – m<sub>1</sub> [34], ⊙ Chen – m<sub>2</sub> [34], ■ Loo [35], ▲ Hayasaka – m<sub>1</sub> [36], ► Hayasaka – m<sub>2</sub> [36], ▽ Mulholland [37], □ Koseki [38], ◇ Gore [39], △ Buch [40], ■ Klassen [41], ◇ Kang – m<sub>1</sub> [42], ◆ Kang – m<sub>2</sub> [42], + CADUCEE (présente étude))

#### 4.2. Débit de pyrolyse normalisé en atmosphère sous-oxygénée

Les résultats concernant l'influence de la sous-oxygénation sur le débit de pyrolyse normalisé par sa valeur en atmosphère normalement oxygénée montrent un très bon accord avec les résultats expérimentaux de la littérature tels que ceux de Tewartson *et al.* [6], Santo et Tamanini [7], Brohez *et al.* [43], Coutin *et al.* [19] et Peatross et Beyler [5] et plus particulièrement avec la corrélation de Peatross et Beyler (voir équation 4). L'ensemble de ces résultats expérimentaux ainsi que ceux de la présente l'étude sont retranscrits sur la Figure 12.

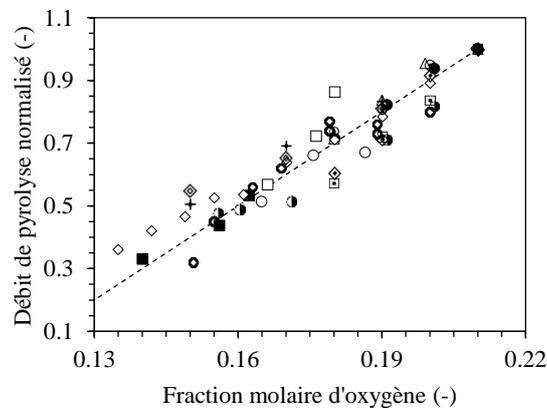


Figure 12 : Débit de pyrolyse normalisé en fonction de la concentration en oxygène – Comparaison entre les résultats de l'étude (+ Heptane – 0.01 m<sup>2</sup>, ◇ Heptane – 0.03 m<sup>2</sup>, ◇ PMMA – 0.04 m<sup>2</sup>, □ PMMA – 0.16 m<sup>2</sup>, ⊙ PMMA – 0.36 m<sup>2</sup>) et les résultats de la littérature (□ Peatross [5] – Diesel – 0.3 m<sup>2</sup>, ■ Peatross [5] – Diesel – 0.5 m<sup>2</sup>, --- Corrélation de Peatross et Beyler [5] – Eq. 4, ○ Tewartson [6] – PMMA – 0.073 m<sup>2</sup>, ● Tewartson [6] – PMMA – 0.068 m<sup>2</sup>, ● Tewartson [6] – Heptane – 0.0068 m<sup>2</sup>, △ Santo [7] – PMMA – 0.07 m<sup>2</sup>, ● Coutin [19] – Heptane – 0.07 m<sup>2</sup>, ◇ Brohez [43] – Pyridine – 0.0061 m<sup>2</sup>)

## 5. Conclusion

Des essais ont été menés dans le dispositif CADUCEE de l'IRSN dans le but d'étudier l'influence de la concentration en oxygène du milieu oxydant sur la combustion d'un solide et d'un liquide, en l'occurrence le PMMA et l'heptane. L'étude a porté sur la combustion de plaques carrées de PMMA de 0.2, 0.4 et 0.6 m de côté et de 30 mm d'épaisseur et de nappes d'heptane de 0.116 et 0.196 m de diamètre. L'analyse des résultats obtenus nous a permis de tirer les conclusions suivantes :

- Une diminution linéaire du débit de pyrolyse en fonction de la fraction molaire d'oxygène a été mise en évidence pour les deux combustibles et un bon accord entre les résultats du débit de pyrolyse normalisé par sa valeur en atmosphère normalement oxygénée et ceux de la littérature a été obtenu.
- Pour le PMMA, l'insertion d'un fluxmètre au centre de l'échantillon a permis de mesurer les évolutions temporelles des flux totaux et radiatifs incidents à la surface du combustible. Ces mesures ont révélé une diminution linéaire de ces flux avec la fraction molaire d'oxygène pour les plaques de 0.2 et 0.4 m de côté. Toutefois, les contributions radiatives et convectives au flux total restent pratiquement constantes, respectivement 0.65 et 0.35.
- Pour toutes les configurations, une diminution quasi linéaire des températures maximales de gaz avec la concentration en oxygène a été observée.
- Enfin, une mesure de température dans le combustible liquide a mis en évidence une diminution des transferts thermiques à la surface et au sein du combustible avec la fraction molaire d'oxygène.

Sur ce dernier point, de nouveaux essais seront conduits afin de mesurer les flux thermiques incidents à la surface du combustible liquide. A cette fin, des bacs en verre borosilicate seront spécialement usinés pour y insérer un fluxmètre total ou radiatif.

## Nomenclature

$B$	Nombre de transfert de masse de Spalding	$\sigma$	Constante de Stefan-Boltzmann, $W.m^{-2}.K^{-1}$
$c_p$	Chaleur spécifique à pression constante, $J.kg^{-1}.K^{-1}$	$\chi_r$	Fraction rayonnée de la flamme
$D$	Diamètre du bac, m		
$h_{conv}$	Coefficient de transfert convectif, $W.m^{-2}.K^{-1}$		Exposant, Indices
$k$	Coefficient d'extinction, $m^{-1}$	$2I$	Concentration en oxygène de 21%
$L_G$	Chaleur de gazéification, $J.kg^{-1}$	$\infty$	Infini
$\dot{m}''$	Débit de perte de masse, $kg.m^{-2}.s^{-1}$	$a$	Ambiant
$\dot{q}''$	Flux thermique par unité de surface, $W.m^{-2}$	$conv$	Convectif
$r$	Rapport stœchiométrique comburant/combustible	$cp$	Phase condensée
$T$	Température, K	$ext$	Externe
$X$	Fraction molaire	$f$	Flamme
$Y$	Fraction massique	$g$	Gaz
		$l$	Pertes
Symboles grecs		$O_2$	Oxygène
$\alpha$	Paramètre du modèle de Nasr	$rad$	Radiatif
$\beta$	Coefficient correcteur de libre parcours moyen	$s$	Surface
$\Delta h_c$	Chaleur de combustion, $J.kg^{-1}$	$tot$	Total
$\varepsilon$	Emissivité		
$\eta$	Paramètre du modèle de Nasr		
$\xi$	Paramètre empirique du modèle de Tewarson		

## Références

- [1] Y. Utiskul, J.G. Quintiere, A.S. Rangwala, B.A. Ringwelski, K. Wakatsuki, T. Naruse, Compartment fire phenomena under limited ventilation, *Fire Safety Journal*, Volume 40, Pages 367–390, 2005.
- [2] J.G. Quintiere, A.S. Rangwala, A theory for flame extinction based on flame temperature, *Fire and Materials*, Volume 28, Pages 387–402, 2004.
- [3] A. Nasr, S. Suard, H. El-Rabii, L. Gay, J.-P. Garo, Fuel Mass-Loss Rate Determination in a Confined and Mechanically Ventilated Compartment Fire Using a Global Approach, *Combustion Science and Technology*, Volume 183, Pages 1342–1359, 2011.
- [4] A. Tewarson, R.F. Pion, Flammability of plastics—I Burning intensity, *Combustion and Flame*, Volume 26, Pages 85–103, 1976.
- [5] M. Peatross, C. Beyler, Ventilation Effects On Compartment Fire Characterization, *Fire Safety Science*, Volume 5, Pages 403–414, 1997.
- [6] A. Tewarson, J.L. Lee, R.F. Pion, The influence of oxygen concentration on fuel parameters for fire modeling, *Symposium (International) on Combustion*, Volume 18, Pages 563–570, 1981.

- [7] G. Santo, F. Tamanini, Influence of oxygen depletion on the radiative properties of PMMA flames, *Symposium (International) on Combustion*, Volume 18, Pages 619–631, 1981.
- [8] Y. Pizzo, J.L. Consalvi, P. Querre, M. Coutin, B. Porterie, Width effects on the early stage of upward flame spread over PMMA slabs: Experimental observations, *Fire Safety Journal*, Volume 44, Pages 407–414, 2009.
- [9] X. Chen, J. Liu, Z. Zhou, P. Li, T. Zhou, D. Zhou, J. Wang, Experimental and theoretical analysis on lateral flame spread over inclined PMMA surface, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Volume 91, Pages 68–76, 2015.
- [10] D.D. Drysdale, A.J.R. Macmillan, Flame spread on inclined surfaces, *Fire Safety Journal*, Volume 18, Pages 245–254, 1992.
- [11] B.T. Rhodes, J.G. Quintiere, Burning rate and flame heat flux for PMMA in a cone calorimeter, *Fire Safety Journal*, Volume 26, Pages 221–240, 1996.
- [12] G. Linteris, L. Gewuerz, K. Mcgrattan, G. Forney, Modeling Solid Sample Burning, *Fire Safety Science*, Volume 8, Pages 625–636, 2005.
- [13] P.A. Beaulieu, N.A. Dembsey, Effect of oxygen on flame heat flux in horizontal and vertical orientations, *Fire Safety Journal*, Volume 43, Pages 410–428, 2008.
- [14] A. Kacem, M. Mense, Y. Pizzo, G. Boyer, S. Suard, P. Boulet, G. Parent, B. Porterie, A fully coupled fluid/solid model for open air combustion of horizontally-oriented PMMA samples, *Combustion and Flame*, Volume 170, Pages 135–147, 2016.
- [15] SFPE handbook of fire protection engineering, 3rd ed, 2002.
- [16] V. Babrauskas, Estimating large pool fire burning rates, *Fire Technology*, Volume 19, Pages 251–261, 1983.
- [17] H.-C. Kung, P. Stavrianiadis, Buoyant plumes of large-scale pool fires, *Symposium (International) on Combustion*, Volume 19, Pages 905–912, 1982.
- [18] C.S. Tarifa, Open fires, *Instituto Nacional de Tecnica Aeroespacial Esteban Terradas*, Madrid, 1967.
- [19] M. Coutin, D. Alibert, B. Porterie, Intermediate-scale controlled-atmosphere calorimeter CADUCEE, *14th International Conference on Fire Science, INTERFLAM*, Pages 1433–1444, 2016.
- [20] Y. Pizzo, C. Lallemand, A. Kacem, A. Kaiss, J. Gerardin, Z. Acem, P. Boulet, B. Porterie, Steady and transient pyrolysis of thick clear PMMA slabs, *Combustion and Flame*, Volume 162, Pages 226–236, 2015.
- [21] ISO 4589, Plastics - Determination of burning behaviour by oxygen index, *International Organization for Standardization*, Geneva, 1996.
- [22] J.R. Ebdon, B.J. Hunt, P. Joseph, C.S. Konkel, D. Price, K. Pyrah, T.R. Hull, G.J. Milnes, S.B. Hill, C.I. Lindsay, J. McCluskey, I. Robinson, Thermal degradation and flame retardance in copolymers of methyl methacrylate with diethyl(methacryloyloxymethyl)phosphonate, *Polymer Degradation and Stability*, Volume 70, Pages 425–436, 2000.
- [23] A. Laachachi, M. Cochez, M. Ferriol, J.M. Lopez-Cuesta, E. Leroy, Influence of TiO<sub>2</sub> and Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fillers on the thermal properties of poly(methyl methacrylate) (PMMA), *Materials Letters*, Volume 59, Pages 36–39, 2005.
- [24] F. Yang, G.L. Nelson, Polymer/silica nanocomposites prepared via extrusion, *Polymers for Advanced Technologies*, Volume 17, Pages 320–326, 2006.
- [25] T.B. Zhubanov, K.M. Gibov, Oxygen index and minimum limiting rates of polymer combustion, *Fire and Materials*, Volume 12, Pages 169–172, 1988.
- [26] J.R. Ebdon, D. Price, B.J. Hunt, P. Joseph, F. Gao, G.J. Milnes, L.K. Cunliffe, Flame retardance in some polystyrenes and poly(methyl methacrylate)s with covalently bound phosphorus-containing groups: initial screening experiments and some laser pyrolysis mechanistic studies, *Polymer Degradation and Stability*, Volume 69, Pages 267–277, 2000.
- [27] D. Price, K. Pyrah, T.R. Hull, G.J. Milnes, J.R. Ebdon, B.J. Hunt, P. Joseph, Flame retardance of poly(methyl methacrylate) modified with phosphorus-containing compounds, *Polymer Degradation and Stability*, Volume 77, Pages 227–233, 2002.

- [28] A.S.-X. Loo, A. Coppalle, P. Aîné, Flame Extinction in a Ventilation-controlled Compartment, *Procedia Engineering*, Volume 62, Pages 301–308, 2013.
- [29] C. Fourneau, Etude de feux de substances chimiques en conditions sous-ventilées à l'aide d'un cône calorimètre, PhD Thesis, Université de Mons, 2013.
- [30] T. Kashiwagi, T.J. Ohlemiller, A study of oxygen effects on nonflaming transient gasification of PMMA and PE during thermal irradiation, *Symposium (International) on Combustion*, Volume 19, Pages 815–823, 1982.
- [31] D. Marquis, E. Guillaume, A. Camillo, Effects of oxygen availability on the combustion behaviour of materials in a controlled atmosphere cone calorimeter, *Fire Safety Science*, Volume 11, Pages 138–151, 2014.
- [32] P. Beaulieu, Flammability characteristics at heat flux levels up to 200 kW.m<sup>-2</sup> and the effect of oxygen on flame heat flux, PhD Thesis, Worcester Polytechnic Institute, 2005.
- [33] B. McCaffrey, Purely buoyant diffusion flames: some experimental results, National Bureau of Standards, 1979.
- [34] B. Chen, S. Lu, C. Li, Q. Kang, M. Yuan, Unsteady burning of thin-layer pool fires, *Journal of Fire Sciences*, Volume 30, Pages 3–15, 2012.
- [35] A.S.-X. Loo, A. Coppalle, J. Yon, P. Aîné, Time-dependent smoke yield and mass loss of pool fires in a reduced-scale mechanically ventilated compartment, *Fire Safety Journal*, Volume 81, Pages 32–43, 2016.
- [36] H. Hayasaka, Unsteady Burning Rates Of Small Pool Fires, *Fire Safety Science*, Volume 5, Pages 499–510, 1997.
- [37] G. Mulholland, V. Henzel, V. Babrauskas, The Effect Of Scale On Smoke Emission, *Fire Safety Science*, Volume 2, Pages 347–357, 1989.
- [38] H. Koseki, T. Yumoto, Air entrainment and thermal radiation from heptane pool fires, *Fire Technology*, Volume 24, Pages 33–47, 1988
- [39] J. Gore, M. Klassen, A. Hamins, T. Kashiwagi, Fuel Property Effects On Burning Rate And Radiative Transfer From Liquid Pool Flames, *Fire Safety Science*, Volume 3, Pages 395–404, 1991.
- [40] R. Buch, A. Hamins, K. Konishi, D. Mattingly, T. Kashiwagi, Radiative emission fraction of pool fires burning silicone fluids, *Combustion and Flame*, Volume 108, Pages 118–126, 1997.
- [41] M. Klassen et J.P. Gore, Structure and radiation properties of pool fires, National Institute of Standards and Technology, 1992.
- [42] Q. Kang, S. Lu, B. Chen, Experimental study on burning rate of small scale heptane pool fires, *Chinese Science Bulletin*, Volume 55, Pages 973–979, 2010.
- [43] S. Brohez, G. Marlair, C. Delvosalle, The effect of oxygen concentration on CO and soot yields in fires, *Fire and Materials*, Volume 32, Pages 141–158, 2008.

**25-27 Octobre 2017**  
**Monastir - Tunisie**