

Etude Expérimentale de la Combustion de PMMA en Atmosphères Normalement Oxygénée et Sous-Oxygénée – Effet d’Echelle.

David ALIBERT^{1*}, Mickaël COUTIN², Maxime MENSE², Yannick PIZZO¹ et Bernard PORTERIE¹

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

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

* (auteur correspondant : david.alibert@univ-amu.fr)

Résumé

L’intérêt de cette étude est de collecter des données sur la combustion de plaques horizontales de poly(méthyl méthacrylate) (PMMA) en atmosphères normalement oxygénée et sous-oxygénée, données utiles à la validation des outils de simulation numérique. Les essais ont été menés sur le calorimètre à atmosphère contrôlée CADUCEE de l’IRSN à des concentrations en oxygène variant de 21 à 18%. Trois tailles d’échantillons ont été utilisées, de 0.04 à 0.36 m². Les résultats obtenus montrent une diminution linéaire des paramètres de la combustion, tels que le débit de pyrolyse et les flux totaux et radiatifs au centre de la plaque, avec la concentration en oxygène. Ils permettent d’établir une corrélation entre le débit de pyrolyse et la teneur en oxygène. Si les flux radiatif et total diminuent linéairement avec la teneur en oxygène, les contributions radiative et convective au flux total sont pratiquement constantes, de l’ordre de 70% et 30%, indépendamment de la taille de l’échantillon.

Nomenclature

<i>B</i>	Nombre de transfert de masse de Spalding	<i>Indices et exposants</i>
<i>D</i>	Diamètre, <i>m</i>	<i>z_l</i> 21% d’oxygène
<i>k</i>	Coefficient d’extinction, <i>m⁻¹</i>	<i>∞</i> Infini
<i>L</i>	Longueur de la plaque, <i>m</i>	<i>eq</i> Equivalent en surface
<i>ṁ</i>	Débit de perte de masse, <i>kg.m⁻².s⁻¹</i>	<i>F</i> Combustible
<i>X</i>	Fraction molaire	<i>o₂</i> Oxygène

Symboles grecs

<i>β</i>	Coefficient correcteur de libre parcours moyen
----------	--

1. Introduction et contexte

L’apport d’oxygène est un paramètre de première importance dans la compréhension du 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 gaz et leur composition, ainsi que les flux échangés. Cette étude a pour but d’étudier l’effet de l’oxygène sur la combustion de plaques horizontales de polymère, ici du PMMA. Alors que

beaucoup d'études ont été menées sur la combustion de PMMA en position verticale ou sur un plan incliné (Pizzo *et al.* [1], Chen *et al.* [2] et Drysdale et Macmillan [3]), très peu l'ont été dans des configurations horizontales et encore moins en atmosphère sous-oxygénée. Rhodes et Quintiere [4] 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.* [5] 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^{-2} . Beaulieu *et al.* [6] 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.* [7] ont réalisé des essais en atmosphère libre sur des plaques de PMMA de 0.1, 0.2 et 0.4 m de côté. Le Tableau 1 résume les configurations trouvées dans la littérature sur la combustion d'échantillons de PMMA en position horizontale. 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 al.* [8] 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. Une étude expérimentale a été menée par Peatross et Beyler [9] 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 *et al.* [10] et Santo et Tamanini [11], 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. Cette corrélation montre un bon accord avec les résultats expérimentaux à petite échelle (de 0.007 à 0.07 m^2) et à échelle réelle (de 0.3 à 0.55 m^2) de diesel, heptane et PMMA. Enfin, des études théoriques ont été réalisées afin de mettre en évidence la dépendance du débit de pyrolyse à la concentration d'oxygène. Utiskul *et al.* [12] 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 [13] et quelques hypothèses simplificatrices. En supposant un faible nombre de transfert de masse de Spalding B et en négligeant les effets radiatifs de la flamme, Utiskul *et al.* ont obtenu une relation linéaire entre le débit de pyrolyse et la concentration en oxygène. Plus récemment, Nasr *et al.* [14] 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.

Le dispositif expérimental CADUCEE (Controlled Atmosphere Device for Unburnt and Carbon Emission Evaluation) [15] a été utilisé pour réaliser des essais où la concentration ambiante en oxygène est inférieure ou égale à 21%. 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 échelle et à échelle intermédiaire. Le combustible étudié ici est le PMMA transparent. Ce polymère non carbonneux, dont les propriétés thermophysiques sont relativement bien connues, est souvent utilisé comme panneau de confinement ou de protection des boîtes à gants dans les installations nucléaires. Le but de cette étude est de collecter des données sur la combustion d'échantillons de PMMA

de différentes tailles en position horizontale en atmosphère sous-oxygénée pour la validation des codes de calcul incendie.

	<i>Combustible</i>	<i>Surface</i> m ²	<i>D_{eq}</i> m	<i>X_{O₂}</i> % vol.
Tewarson <i>et al.</i> [10]	PMMA clair	0.0068 – 0.073	0.09 – 0.3	De 16.6 à 46.5
Santo <i>et al.</i> [11]	PMMA clair	0.071	0.3	De 18 à 21
Kacem <i>et al.</i> [7]	PMMA clair	0.01 – 0.04 – 0.16	0.11 – 0.23 – 0.45	21
Linteris <i>et al.</i> [5]	PMMA noir	0.01	0.11	21
Rhodes <i>et al.</i> [4]	PMMA noir	0.01	0.11	21
Beaulieu <i>et al.</i> [6]	PMMA noir	De 0.009 à 1.17	De 0.11 à 1.22	De 21 à 40

Tableau 1 : *Etudes portant sur la combustion de plaques de PMMA orientées horizontalement.*

2. Dispositif expérimental

2.1. CADUCEE

La présente étude porte sur des essais réalisés dans le calorimètre CADUCEE (voir Figure 1). Ce dispositif permet d'étudier la combustion de matériaux en atmosphère contrôlée à petite échelle et à échelle intermédiaire. Le mélange d'air et d'azote est injecté depuis la partie basse du calorimètre dans une chambre de combustion de 22 m³ et permet d'obtenir des concentrations en oxygène comprises entre 0 et 21%. Le dispositif expérimental CADUCEE, et notamment sa métrologie et les incertitudes associées, sont décrits en détail dans [15].

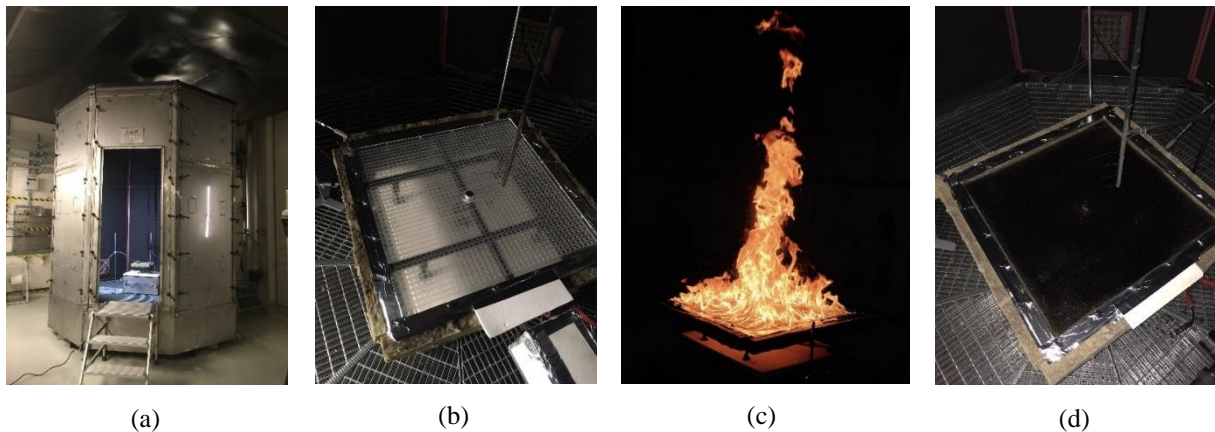


Figure 1 : (a) *Le calorimètre à atmosphère contrôlée CADUCEE, plaque de PMMA de 0.36 m²*
(b) *avant allumage, (c) pendant l'essai et (d) après l'extinction*

2.2. Montage expérimental

Les essais réalisés ont mis en œuvre des plaques carrées de PMMA translucide de 200, 400 et 600 mm de côté et de 30 mm d'épaisseur disposées horizontalement. Les plaques sont 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 [4], Beaulieu *et al.* [6] et Pizzo *et al.* [16]. Les plaques sont montées sur des supports en acier afin d'éviter les déformations thermo-mécaniques et sont recouvertes d'un masque en métal afin de délimiter précisément la surface de pyrolyse (voir Figure 2). Une des quatre faces latérales des échantillons a été polie afin de suivre la surface de régression. Pour éviter d'éventuelles inflammations latérales de la plaque, les autres faces ont été isolées avec de la laine minérale.

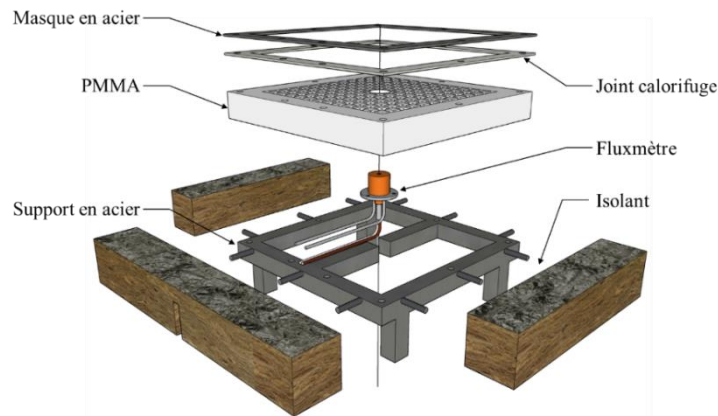


Figure 2 : *Montage expérimental*

2.3. Métrologie associée

Le montage expérimental (support et plaque) est placé sur une balance Sartorius de précision (± 0.1 g) pour mesurer la masse de l'échantillon au cours du temps. Le flux total et le flux radiatif sont 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. Ces deux fluxmètres sont refroidis avec de l'eau à température ambiante durant l'essai et un faible débit d'azote (de l'ordre de $2 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$) est utilisé afin d'éviter l'entrée de particules de suies dans la cavité ellipsoïdale du fluxmètre radiatif. Comme il a été observé, l'oxydant a une distribution parfaitement homogène tout autour de la flamme dans le dispositif [15]. Durant ces essais, la concentration en oxygène de l'écoulement oxydant correspond à la moyenne de valeurs mesurées en quatre positions différentes par des analyseurs Servomex MiniMP 500. Un point de prélèvement est situé dans la gaine d'admission du comburant, deux autres points sont placés à quelques centimètres au-dessus du niveau de la plaque et de part et d'autre de celle-ci à environ 5 cm, le dernier point est situé à hauteur de la plaque dans l'écoulement oxydant, à mi-distance entre le centre du dispositif et la paroi. Ces mesures permettent de s'assurer que les concentrations en oxygène dans la zone à atmosphère contrôlée et à proximité de la flamme sont bien homogènes et que le débit d'admission de comburant est suffisant. La masse de l'échantillon, les flux total et radiatif, et les concentrations locales en oxygène sont mesurés et enregistrés en continu grâce à un système d'acquisition en ligne avec une fréquence de 2 Hz.

2.4. Phases d'allumage et de combustion

A la différence des essais réalisés sous cône calorimètre où l'inflammation est assurée par une résistance chauffante conique, la phase d'allumage dans CADUCEE consiste à rainurer préalablement la surface supérieure des plaques de PMMA, à remplir ces rainures de 2 mm de profondeur avec de l'éthanol, puis à enflammer ce dernier afin d'obtenir une inflammation homogène sur toute la surface de l'échantillon. Pour les trois tailles de plaques étudiées, la combustion de l'éthanol dure environ 120 s. 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 mm, et 1000 s pour celles de 600 mm). Ce temps permet de s'assurer que la totalité de l'éthanol a été consommée, mais aussi que la régression a atteint les 2 mm de profondeur des rainures. L'extinction des plaques est assurée par une diminution soudaine de la quantité d'oxygène dans CADUCEE en augmentant la proportion d'azote dans l'oxydant avant que la surface de régression ait atteint la face inférieure de la plaque. La valeur limite de la concentration en oxygène obtenue pour l'extinction du PMMA est de l'ordre de 17.5%.

3. Résultats et discussion

3.1. Débit de pyrolyse

Le débit de pyrolyse est calculé par dérivation temporelle de la masse de l'échantillon entre deux enregistrements séparés d'une seconde. Une valeur moyenne est calculée sur une période d'étude où le débit de pyrolyse augmente linéairement avec le temps indépendamment de la taille de l'échantillon (ici, 1200-1600 s). A partir d'essais de répétabilité, l'incertitude statistique, définie comme deux fois l'écart type, a été estimée à moins de 8%. La Figure 3 montre un comportement linéaire du débit de pyrolyse en fonction de la concentration en oxygène pour les trois tailles de plaques étudiées. La Figure 4 représente l'évolution du débit de pyrolyse en fonction de la surface initiale de combustion pour des concentrations en oxygène de 21, 20, 19 et 18%. Comme attendu, on constate 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 vers la surface du combustible plus important. Comme le montre la Figure 5, le débit surfacique de pyrolyse augmente avec la taille de l'échantillon jusqu'à une valeur asymptotique dépendant de la concentration en oxygène. La Figure 6 permet de définir une relation linéaire entre le débit de pyrolyse normalisé par sa valeur en atmosphère normalement oxygénée et la concentration en oxygène pour les trois tailles de plaques étudiées. Le débit surfacique de pyrolyse peut donc être exprimé en fonction de la concentration en oxygène et d'un diamètre équivalent en surface par combinaison de deux relations de la littérature : celle de Babrauskas [18] obtenue pour des feux de nappe de liquides en atmosphère normalement oxygénée pour des diamètres de bac supérieurs à 200 mm, et exprimant le débit surfacique de pyrolyse en fonction du diamètre du bac, et la loi linéaire définie grâce à la Figure 6, semblable à celle trouvée par Peatross et Beyler [9], qui définit le débit surfacique de pyrolyse comme une fonction linéaire de la concentration en oxygène. Cette relation s'exprime de la façon suivante :

$$\dot{m}_{F,Deq,X_{O_2}}'' = \dot{m}_{F,Deq,21}'' \left(1 - e^{-k\beta D_{eq}}\right) (11X_{O_2} - 1.4) \quad (1)$$

où $k\beta$ est pris égal à 3.3 pour le PMMA [17] et D_{eq} à $2L/\sqrt{\pi}$.

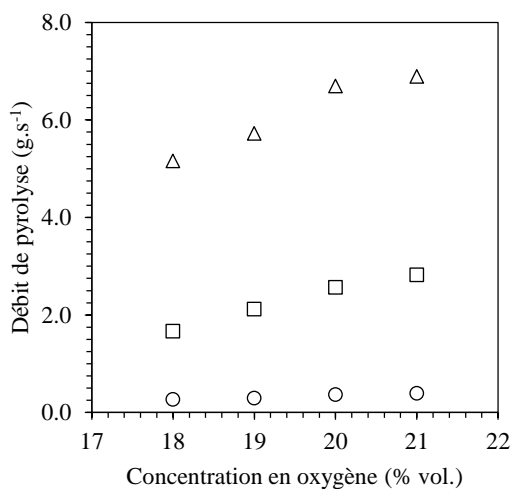


Figure 3 : Débit de pyrolyse en fonction de la concentration en oxygène (○ 0.04 m², □ 0.16 m², △ 0.36 m²)

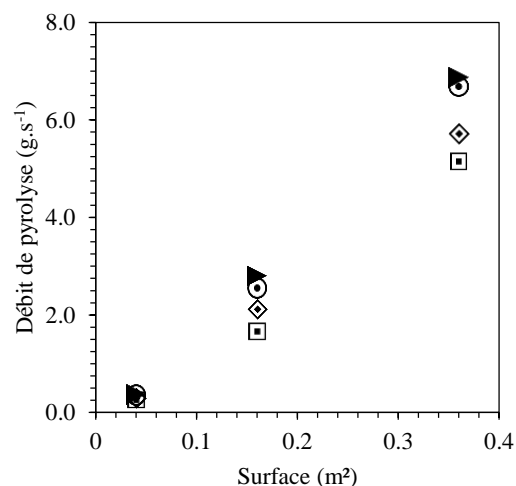


Figure 4 : Débit de pyrolyse en fonction de la surface initiale de combustion (▶ 21%, ● 20%, ◆ 19%, ◻ 18%)

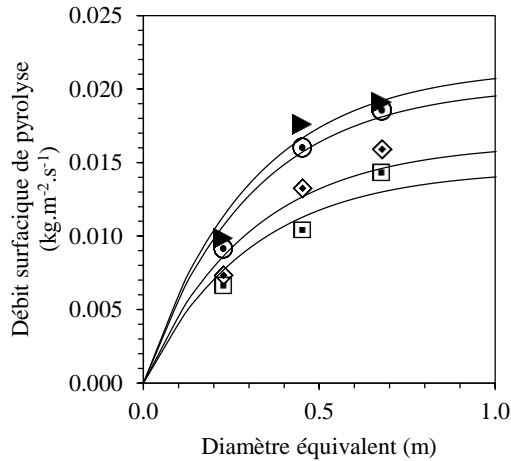


Figure 5 : Débit surfacique de pyrolyse en fonction de la surface initiale de combustion (► 21%, ● 20%, ◆ 19%, ◻ 18%)

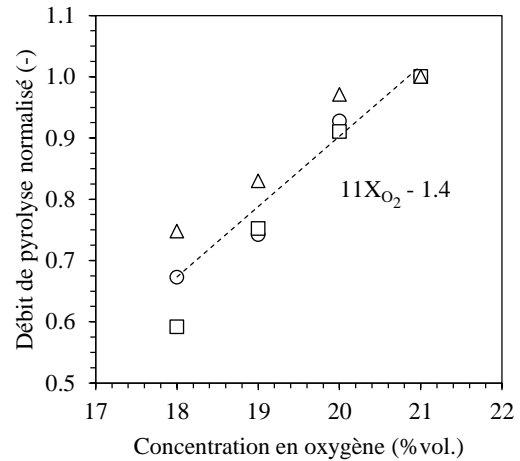


Figure 6 : Débit de pyrolyse normalisé par sa valeur en atmosphère normalement oxygénée en fonction de la concentration en oxygène (○ 0.04 m², ◻ 0.16 m², △ 0.36 m²)

3.2. Flux thermiques au centre des plaques

Comme mentionné précédemment, les flux totaux et radiatifs reçus au centre des plaques sont 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. Une valeur moyenne de ces flux, sur la période d'étude (1200-1600 s), est calculée. La Figure 7 et la Figure 8 donnent les valeurs moyennes des flux thermiques (total, radiatif et convectif) en fonction de la concentration en oxygène pour des plaques de 0.2 et 0.4 m de côté. Ce système métrologique n'a pas permis de mesurer les flux incidents sur des plaques de 0.6 m de côté en raison d'un dépôt de suies récurrent sur la partie sensible des fluxmètres. 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 0.2 m de côté sont respectivement de 37 et 27 kW.m⁻² vs. 52 et 38 kW.m⁻² pour un échantillon de 0.4 m de côté. Ces valeurs peuvent être comparées à celles obtenues par Kacem *et al.* [7], respectivement de 36.5 et 28.7 kW.m⁻² pour un échantillon de 0.2 m de côté. Une diminution importante du flux radiatif, et donc du flux total, avec celle de la concentration en oxygène peut également être observée. En effet, une diminution de l'oxygène de 21 à 18% entraîne une diminution de l'ordre de 13 kW.m⁻² pour le flux total et de 12 kW.m⁻² pour le flux radiatif quelle que soit la taille de la plaque. Comme le montre la Figure 9, les fractions radiative et convective du flux total sont du même ordre de grandeur pour les deux tailles de plaques étudiées, respectivement 0.7 et 0.3.

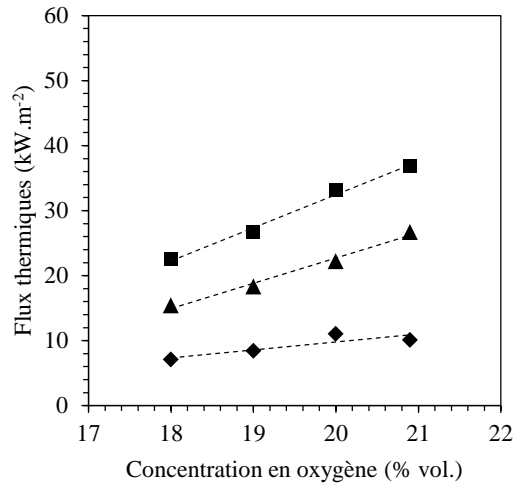


Figure 7 : Flux thermiques en fonction de la concentration en oxygène pour un échantillon de 0.04 m^2 (■ Total, ▲ Radiatif, ◆ Convectif)

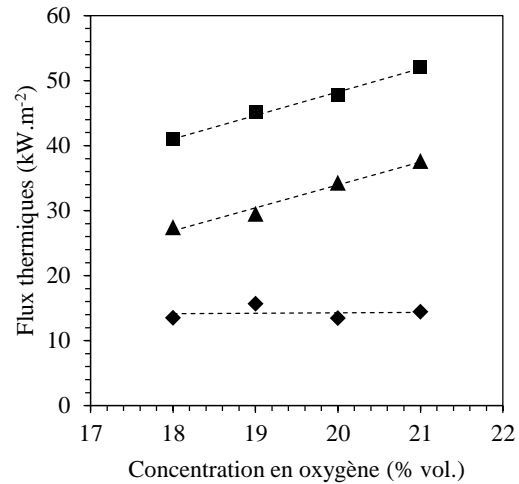


Figure 8 : Flux thermiques en fonction de la concentration en oxygène pour un échantillon de 0.16 m^2 (■ Total, ▲ Radiatif, ◆ Convectif)

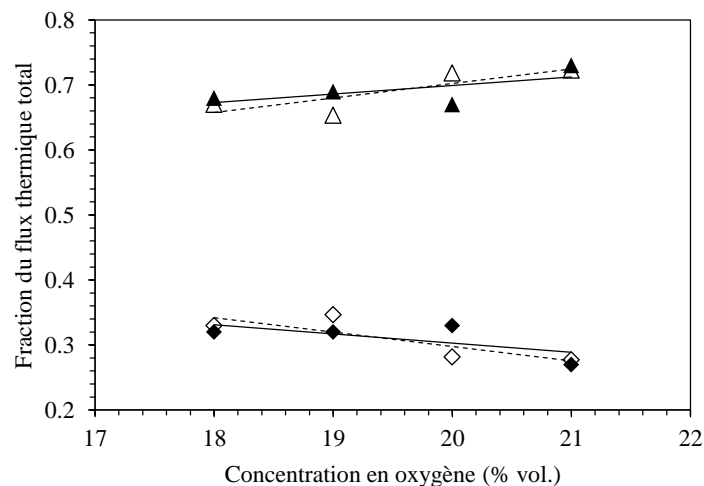


Figure 9 : Fraction du flux thermique total en fonction de la concentration en oxygène pour des échantillons de 0.04 m^2 (▲— Fraction radiative, ◆— Fraction convective) et de 0.16 m^2 (△--- Fraction radiative, ◇--- Fraction convective)

4. Conclusion

Des essais ont été réalisés dans le dispositif CADUCEE de l'IRSN afin d'étudier l'influence de la concentration en oxygène sur la pyrolyse et la combustion de plaques de PMMA disposées horizontalement. Une analyse de l'effet d'échelle sur les paramètres de combustion a été également menée sur des échantillons carrés de 0.2, 0.4 et 0.6 m de côté. Sur une période d'étude où le débit de pyrolyse augmente linéairement, il a été observé que les moyennes des différentes grandeurs physiques, telles que le débit massique de pyrolyse et les flux reçus au centre de la plaque, diminuent significativement avec la concentration en oxygène. D'un point de vue phénoménologique, la diminution de la quantité d'oxygène au niveau du foyer va entraîner une atténuation des flux thermiques provenant de la flamme et reçus à la surface du combustible et donc du débit de pyrolyse. Les résultats obtenus ont permis de corréler le débit surfacique de pyrolyse à la concentration en oxygène et de mettre

en évidence la décroissance linéaire du flux radiatif au centre de la plaque avec celle de la concentration en oxygène ambiante. Il a toutefois été remarqué que les contributions radiative et convective au flux total, bien que variant légèrement avec la teneur en oxygène, restent respectivement de l'ordre de 70 et 30% pour des plaques de 0.04 et 0.16 m².

Références

- [1] 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.
- [2] 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.
- [3] D.D. Drysdale, A.J.R. Macmillan, Flame spread on inclined surfaces, *Fire Safety Journal*, Volume 18, Pages 245–254, 1992.
- [4] 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.
- [5] G. Linteris, L. Gewuerz, K. Mcgrattan, G. Forney, Modeling Solid Sample Burning, *Fire Safety Science*, Volume 8, Pages 625–636, 2005.
- [6] 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.
- [7] 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.
- [8] A. Tewarson, R.F. Pion, Flammability of plastics—I Burning intensity, *Combustion and Flame*, Volume 26, Pages 85–103, 1976.
- [9] M. Peatross, C. Beyler, Ventilation Effects On Compartment Fire Characterization, *Fire Safety Science*, Volume 5, Pages 403–414, 1997.
- [10] 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.
- [11] 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.
- [12] 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.
- [13] J.G. Quintiere, An approach to modeling wall fire spread in a room, *Fire Safety Journal*, Volume 3, Pages 201–214, 1981.
- [14] 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.
- [15] M. Coutin, D. Alibert, B. Porterie, Intermediate-scale controlled-atmosphere calorimeter CADUCEE, *14th International Conference on Fire Science, INTERFLAM*, Pages 1433–1444, 2016.
- [16] 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.
- [17] B. Karlsson, J.G. Quintiere, Enclosure fire dynamics, *CRC Press*, Boca Raton, FL, 2000.
- [18] V. Babrauskas, Estimating large pool fire burning rates, *Fire Technology*, Volume 19, Pages 251–261, 1983.