



HAL
open science

Etude de la combustion des matériaux solides, application à la sécurité incendie

Damien Hébert

► To cite this version:

Damien Hébert. Etude de la combustion des matériaux solides, application à la sécurité incendie. Autre [cond-mat.other]. INSA de Rouen, 2012. Français. ⟨NNT : 2012ISAM0018⟩. ⟨tel-00795236⟩

HAL Id: tel-00795236

<https://theses.hal.science/tel-00795236v1>

Submitted on 27 Feb 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire HAL, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



HAL Authorization

THESE

Présentée à :

L'INSA DE ROUEN

En vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSA DE ROUEN

Discipline : Physique

Spécialité : Energétique

Par :

Damien Hébert

Etude de la combustion des matériaux solides, application à la sécurité incendie

Soutenue le 12 décembre 2012

Directeur : M. Alexis Coppalle Professeur à l'INSA de Rouen

Co-Encadrante : Mme. Martine Talbaut Maître de Conférences à l'INSA de Rouen

Commission d'Examen :

Rapporteur : Mme. Pascale Desgroux Directrice de recherche CNRS, PC2A, Lille

Rapporteur : M. Pascal Boulet Professeur à l'Université de Lorraine

Examineur : M. Jean Michel Most Directeur de recherche CNRS, PPrime, Poitiers

Examineur : M. Bernard Porterie Professeur à l'Université d'Aix-Marseille

Examineur : M. Laurent Audouin Responsable du LEF, IRSN, Cadarache

Examineur : M. Jérôme Yon Maître de Conférences à l'INSA de Rouen

*« La science restera toujours la satisfaction du plus haut désir de notre nature, la
curiosité »*

Ernest Renan

à Amélie

à ma mère, mon père

et mes deux frères

Remerciements

Ce travail de thèse a été effectué au sein du laboratoire UMR 6614 CORIA d'octobre 2009 à décembre 2012. Je tiens donc tout d'abord à remercier M. Boukhalfa, directeur du laboratoire, pour m'avoir accueilli et permis de mener à bien ce projet.

Je remercie la région Haute Normandie pour avoir financé cette thèse ainsi que le GRR SER - MRT (Grands Réseaux de Recherche Sciences de l'Environnement, analyse et gestion des Risques - Maîtrise des Risques Technologiques) pour avoir en partie financé ces travaux.

Je remercie ensuite plus particulièrement M. Alexis Coppalle, professeur à l'INSA de Rouen, et Mme Martine Talbaut, maître de conférence à l'INSA de Rouen, pour avoir respectivement dirigé et co-encadré cette thèse. Merci pour leur encadrement scientifique et technique ainsi que pour la confiance qu'ils m'ont accordé.

Je remercie également M. Jérôme Yon, maître de conférence à l'INSA de Rouen, pour ses conseils et son aide précieuse qui ont contribué à l'aboutissement de ce projet.

Merci aussi à Mme Pascale Desgroux, directrice de recherche CNRS à Lille (PC2A), pour ses précieux conseils sur la mise en place de la méthode de LII.

Je tiens ensuite à remercier de nouveau Mme Pascale Desgroux, directrice de recherche CNRS à Lille (PC2A), ainsi que M. Pascal Boulet, professeur à l'Université de Lorraine, d'avoir accepté d'être rapporteur de mon manuscrit, et d'avoir effectué cette tâche avec soin.

Merci également à M. Jean Michel Most, directeur de recherche CNRS à Poitiers (LCD), M. Bernard Porterie, professeur à l'Université d'Aix-Marseille, M. Laurent Audoin, chef du LEF, IRSN, à Cadarache et M. Jérôme Yon, maître de conférence à l'INSA

de Rouen, de m'avoir fait l'honneur de juger ce travail.

Je remercie aussi le personnel de l'atelier, pour son savoir-faire, sa disponibilité et sa sympathie, ainsi que toutes les personnes des différents services du laboratoire (informatique, électronique, administratif, ...) qui ont participé au quotidien, à leur façon, au bon déroulement de cette thèse.

Je remercie de façon générale toutes les personnes travaillant au CORIA, qui contribuent à faire de ce laboratoire un endroit convivial, où il a été agréable de travailler durant ces trois années.

Je tiens également à remercier le laboratoire PBS, notamment M. Nicolas Désilles et M. Fabrice Burel, pour m'avoir accueilli dans leur locaux et permis de concevoir une plaque de PMMA ensemencé en Alumine, grâce à leur savoir-faire et leurs équipements.

Je remercie ensuite plus particulièrement les membres du PMU, l'ère Grout, l'ère Gazon, NicoV, Junior, Carlos, Marie, Alex, Pauline, Carlita et la Brayonne. Merci pour ces agréables moments passés ensemble et pour ces nombreux fous rires.

Je dédie ce manuscrit à ma famille et notamment à ma mère, mon père et mes deux frères, sans qui je n'en serais pas là aujourd'hui.

Enfin, j'adresse un énorme merci à Amélie pour son soutien, sa présence au quotidien et pour sa capacité à me redonner le sourire dans les moments les plus difficiles ...

Table des matières

I	Introduction	25
II	Contexte de l'étude	29
II.1	La combustion d'un matériau solide	30
II.1.1	L'ignition et la pyrolyse	30
II.1.2	Propagation de la flamme	31
II.2	La combustion du PMMA	35
II.2.1	Propriétés physiques et processus de dégradation	35
II.2.2	Les travaux existants	37
II.3	Les particules de suie	38
II.3.1	Formation et morphologie des suies	38
II.3.2	Les suies et les incendies	42
II.4	L'Incandescence Induite par Laser (LII)	46
II.4.1	Absorption de l'énergie laser	46
II.4.2	Mise en équation	47
II.5	Conclusion sur le contexte de l'étude	51
III	Description des dispositifs expérimentaux	53
III.1	Dispositif pour la combustion du PMMA	54
III.1.1	Description du support et des plaques de PMMA	54
III.1.2	Allumage et extinction	56
III.2	Brûleur gaz	58
III.2.1	Débitmètres	58

III.2.2	Description du brûleur	59
III.3	Diagnostics optiques in-situ	61
III.3.1	Mesure de la fraction volumique de suie par LII	61
III.3.2	Mesure spectrale d'extinction in-situ.	65
III.4	Mesures ex-situ	67
III.4.1	Système de prélèvement des suies (FPS)	67
III.4.2	Mesure du diamètre de mobilité (DMS)	68
III.4.3	Mesure de la concentration massique (TEOM)	70
III.4.4	Mesure spectrale d'extinction ex-situ	71
III.4.5	Diamètre de giration et dimension fractale (MET)	72
III.5	Conclusion sur les dispositifs expérimentaux et les méthodes de mesure. . .	74
IV Enregistrement et traitement des signaux LII		77
IV.1	Caractéristiques du faisceau laser et courbes de fluence.	77
IV.2	Caractéristiques d'enregistrement du signal	81
IV.3	Correction des inhomogénéités	85
IV.4	Calibration du signal LII.	90
IV.5	Conclusion sur l'enregistrement et le traitement des signaux LII.	93
V Résultats sur les propriétés optiques des suies		97
V.1	Etude morphologique.	97
V.1.1	Morphologie et tailles des particules de suie.	98
V.1.2	Diamètre de mobilité	104
V.1.3	Comparaison entre les suies de cette étude et celles de la littérature . . .	107
V.2	Mesures d'extinction in-situ et ex-situ	112
V.2.1	Extinction spectrale in-situ	112
V.2.2	Extinction spectrale ex-situ.	120
V.3	Extinction spécifique et fonction d'indice $E(m)$	129
V.3.1	Concentration massique.	130
V.3.2	Extinction spécifique	131

V.3.3	Fonction d'indice $E(m)$ et coefficient d'extinction adimensionné	134
V.4	Conclusion sur les propriétés optiques des suies	136
VI Résultats sur la combustion PMMA		139
VI.1	Propagation de la flamme	139
VI.1.1	Les phases de propagation	139
VI.1.2	Similitudes temporelles entre l'extinction et la perte de masse	142
VI.2	Résultats avec la mesure LII	143
VI.2.1	Signal LII instantané	143
VI.2.2	Champs 2D moyen du signal LII	144
VI.2.3	Champs 2D et profils de la fraction volumique	149
VI.3	Taux de combustion et HRR.	153
VI.3.1	Vitesse de déplacement du front de flamme	153
VI.3.2	Calcul du taux de combustion dans la phase stationnaire	154
VI.3.3	Calcul du HRR par différentes méthodes	158
VI.4	Conclusion sur les résultats sur la combustion du PMMA	160
VII Conclusion et perspectives		163
A Champs 2D du signal LII pour la flamme de PMMA		167
B Profils de la fraction volumique de suie pour le PMMA		169
C Combustion d'une plaque de PMMA ensemençée		187
C.1	Fabrication de la plaque	187
C.1.1	Réaction de polymérisation	187
C.1.2	Produits et quantités utilisées	188
C.1.3	Protocole pour la réalisation de la plaque	189
C.2	Combustion de la plaque	189
C.2.1	Protocole expérimental	189
C.2.2	Combustion des deux plaques	189

C.2.3	Comparaison de la hauteur de flamme.	191
C.2.4	Diffusion sur les particules d'Alumine	191
D	Publication de l'auteur	195
	Bibliographie	205

Table des figures

I.1	Détermination des composantes radiative et convective par LES.	27
II.1	Schéma synthétique de la propagation d'une flamme	32
II.2	Schéma des mécanismes de la combustion d'une paroi verticale	34
II.3	Structure chimique du PMMA.	35
II.4	Modes de formation des produits de la combustion d'un polymère.	36
II.5	Processus de formation des particules de suie dans une flamme	39
II.6	Exemple de cliché MET de particules de suie ($\times 140000$)	41
II.7	Représentation des diamètres caractéristiques d'un agrégat.	42
II.8	Effets de l'envoi d'un pulse laser sur une particule de suie	46
II.9	Allure générale caractéristique de la décroissance temporelle du signal LII .	47
III.1	Dimensions de la plaque de PMMA	54
III.2	Dimensions des plaques en acier servant à maintenir la plaque de PMMA .	55
III.3	Disposition de la plaque de PMMA sur un double déplacement motorisé . .	56
III.4	Photo du barreau chauffant utilisé pour l'allumage de la plaque de PMMA	57
III.5	Système de confinement pour l'extinction de la plaque de PMMA	57
III.6	Débitmètries utilisées pour l'alimentation du brûleur gaz et de la rampe . .	59
III.7	Etalonnage des cols soniques en cuivre suivant le gaz utilisé	59
III.8	Schéma du poreux en bronze et de la chambre de tranquillisation	60
III.9	Photo et schéma du brûleur gaz.	60
III.10	Dispositif expérimental pour la mesure LII.	62
III.11	Photo du laser Nd : Yag	62

III.12	Puissance du faisceau en sortie du laser	63
III.13	Photo de la caméra et efficacité en fonction de longueur d'onde	64
III.14	Dispositif expérimental pour la mesure spectrale d'extinction in-situ	65
III.15	Spectre d'émission du laser blanc	66
III.16	Schéma de la sonde de prélèvement et du système de dilution	68
III.17	Photo du DMS et schéma du principe de fonctionnement du DMA	69
III.18	Photo et schéma de principe du TEOM	70
III.19	Banc de turbidimétrie pour la mesure de l'extinction spectrale ex-situ	71
III.20	Dispositif de prélèvement thermophorétique	73
IV.1	Visualisation de la nappe laser à l'aide d'un analyseur de faisceau	78
IV.2	Profils normalisés de la nappe laser suivant y et suivant x	79
IV.3	Zones d'étude pour la détermination des courbes de fluence	80
IV.4	Courbes de fluence obtenues avec le brûleur gaz	81
IV.5	Comparaison des profils de signaux LII en utilisant deux fluences	82
IV.6	Position du filtre à 410 nm comparée au spectre d'émission de la LII	83
IV.7	Comparaison des profils de signaux LII en utilisant deux gate width	84
IV.8	Schéma de la synchronisation utilisée pour régler l'ouverture de la caméra	84
IV.9	Image enregistrée par la caméra pour la source quasi homogène	85
IV.10	Profils suivant z de l'image de correction faite avec le papier calque lissé	87
IV.11	Effet de la correction sur un profil de signal LII suivant y	88
IV.12	Effet de la correction sur un profil de signal LII suivant z	88
IV.13	Courbes d'absorption et de fluorescence de la rhodamine 6G	89
IV.14	Profils normalisés du signal de fluorescence de la rhodamine 6G suivant y	90
IV.15	Profils normalisés du signal de fluorescence de la rhodamine 6G suivant z	91
IV.16	Coefficient d'étalonnage pour calibrer le signal LII avec $K_e = 6,4$	92
IV.17	Coefficients d'étalonnage obtenus sur la flamme de PMMA	94
V.1	Exemples de clichés MET obtenus sur les suies issues du brûleur gaz	98
V.2	Exemples de clichés MET obtenus sur les suies issues du PMMA	99

V.3	Distribution en diamètre des sphérules pour les suies du brûleur gaz	99
V.4	Distribution en diamètre de giration pour les suies du brûleur gaz.	101
V.5	Détermination de la dimension fractale pour les suies du brûleur gaz	102
V.6	Dimension fractale pour les suies du brûleur gaz avec $N_p \geq 10$	103
V.7	Distribution en diamètre des sphérules primaires pour les suies du PMMA .	103
V.8	Distribution en diamètre de giration pour les suies du PMMA	104
V.9	Détermination de la dimension fractale pour les suies du PMMA	105
V.10	Dimension fractale pour les suies du PMMA avec $N_p \geq 10$	105
V.11	Distribution en diamètre de mobilité pour les suies du brûleur gaz	106
V.12	Exemple de distribution en diamètre de mobilité pour les suies du PMMA .	108
V.13	Effet du temps sur le diamètre de mobilité des suies du PMMA	108
V.14	Spectres enregistrés pour le calcul du K_{ext} in-situ avec le brûleur gaz	114
V.15	Coefficient d'extinction spectral mesuré in-situ sur le brûleur gaz	115
V.16	Spectres enregistrés pour le calcul du K_{ext} in-situ avec le PMMA	116
V.17	Spectre de l'émission de la flamme pour le PMMA à $z = 34$ cm	116
V.18	Spectre de l'émission de la flamme de PMMA pour trois hauteurs.	117
V.19	Coefficient d'extinction spectral in-situ pour le PMMA à $z = 34$ cm	118
V.20	Coefficient d'extinction spectral in-situ pour le PMMA à trois hauteurs . .	119
V.21	Coefficient d'extinction in-situ avec $\lambda = 1000$ nm pour le PMMA	120
V.22	Paramètre de puissance x avec les mesures in-situ pour le PMMA.	121
V.23	Coefficient d'extinction spectral ex-situ pour la flamme du brûleur gaz . . .	122
V.24	Coefficient d'extinction spectral ex-situ pour le PMMA à $z = 34$ cm	123
V.25	Coefficient d'extinction spectral ex-situ pour le PMMA à trois hauteurs . .	123
V.26	Coefficient d'extinction ex-situ avec $\lambda = 1000$ nm pour le PMMA	124
V.27	Décroissance en λ^{-x} des mesures ex-situ pour la flamme du PMMA.	124
V.28	Comparaison entre in-situ et ex-situ pour la flamme du brûleur gaz.	126
V.29	Comparaison entre in-situ et ex-situ pour le PMMA à $z = 34$ cm	127
V.30	Comparaison entre in-situ et ex-situ pour la phase stationnaire du PMMA. .	127
V.31	Comparaison ex-situ et in-situ avec $\lambda = 1000$ nm pour le PMMA	128

V.32	Décroissance en λ entre ex-situ et in-situ pour le PMMA.	128
V.33	Concentration massique pour les suies du brûleur gaz.	130
V.34	Concentration massique pour les suies du PMMA en fonction du temps . .	131
V.35	Extinction spécifique spectrale pour le brûleur gaz à $z = 34$ cm	132
V.36	Extinction spécifique spectrale pour le PMMA.	133
V.37	Comparaison des valeurs de l'extinction spécifique	133
V.38	Fonction d'indice spectrale $E(m)$ pour le brûleur gaz à $z = 34$ cm	134
V.39	Fonction d'indice spectrale pour la flamme de PMMA	135
V.40	K_e pour la flamme du brûleur gaz à $z = 34$ cm	137
V.41	K_e pour la flamme de PMMA en fonction de la hauteur de mesure	137
VI.1	Photos de l'évolution de la flamme de PMMA au cours du temps	140
VI.2	Mesure de la perte de masse au cours du temps	141
VI.3	Comparaison de l'évolution temporelle du MLR avec l'extinction	143
VI.4	Exemple d'images instantanées de LII	144
VI.5	Images instantanées et moyennes des signaux LII	145
VI.6	Champs 2D du signal LII en fonction du temps pour la flamme de PMMA. .	147
VI.7	Champs 2D du signal LII en haut dans la flamme du brûleur gaz	148
VI.8	Coefficients d'étalonnage obtenu sur le brûleur gaz en utilisant $K_e = 11,5$.	149
VI.9	Champs 2D de la fraction volumique de suie pour la flamme de PMMA . .	150
VI.10	Champs 2D de la fraction volumique de suie pour le brûleur gaz	150
VI.11	Profils de la fraction volumique à $z = 36$ cm pour 3 temps et 3 séries. . . .	152
VI.12	Profils de la fraction volumique à $z = 27$ cm pour 3 temps et 5 séries. . . .	152
VI.13	Profils de la fraction volumique à $z = 16$ cm pour 3 temps et 3 séries. . . .	152
VI.14	Profils de la fraction volumique pour la flamme du brûleur gaz	153
VI.15	Décalage temporelle suivant y des profils du signal LII à $z = 36$ cm.	154
VI.16	Vitesse de déplacement du front de flamme	155
VI.17	Comparaison du taux de combustion avec S_{LII} égal à 3000 et 4000	156
VI.18	Taux de combustion en fonction de la hauteur.	157
VI.19	Comparaison du taux de combustion avec des valeurs de la littérature	157

VI.20	Hauteur de flamme en fonction du temps pour la flamme de PMMA	159
A.1	Champs 2D du signal LII pour la série 1	167
A.2	Champs 2D du signal LII pour la série 2	167
A.3	Champs 2D du signal LII pour la série 3	168
A.4	Champs 2D du signal LII pour la série 4	168
A.5	Champs 2D du signal LII pour la série 5	168
A.6	Champs 2D du signal LII pour la série 6	168
B.1	Profils pour $z = 38$ cm (séries 1, 2 et 3)	170
B.2	Profils pour $z = 36$ cm (séries 1, 2 et 3)	171
B.3	Profils pour $z = 34$ cm (séries 1, 2 et 3)	172
B.4	Profils pour $z = 32$ cm (séries 1, 2 et 3)	173
B.5	Profils pour $z = 30$ cm (séries 1, 2 et 3)	174
B.6	Profils pour $z = 28$ cm (séries 1, 2 et 3)	175
B.7	Profils pour $z = 27$ cm (séries 1, 2, 3, 4 et 5)	176
B.8	Profils pour $z = 26$ cm (séries 4 et 5)	177
B.9	Profils pour $z = 24$ cm (séries 4 et 5)	178
B.10	Profils pour $z = 22$ cm (séries 4 et 5)	179
B.11	Profils pour $z = 20$ cm (séries 4 et 5)	180
B.12	Profils pour $z = 18$ cm (séries 4 et 5)	181
B.13	Profils pour $z = 16$ cm (séries 4, 5 et 6)	182
B.14	Profils pour $z = 14$ cm (séries 6)	183
B.15	Profils pour $z = 12$ cm (séries 6)	184
B.16	Profils pour $z = 10$ cm (séries 6)	185
C.1	Schéma réactionnel de la décomposition du POB avec le DmpT	188
C.2	Comparaison des flammes obtenues avec les deux types de plaque	190
C.3	Comparaison de l'état de surface des deux types de plaque	190
C.4	Comparaison des hauteurs de flamme pour les deux types de plaque	191
C.5	Comparaison du signal instantané pour les deux types de plaque	192

C.6	Comparaison des signaux moyens au cours du temps	193
C.7	Comparaison des profils pour les deux types de plaque	193

Liste des tableaux

II.1	Propriétés chimiques et physiques du PMMA	35
IV.1	Filtres passe bande utilisés en LII dans la littérature	83
V.1	Caractéristiques morphologiques et tailles des suies	109
V.2	Comparaison des valeurs de D_p avec la littérature.	110
V.3	Comparaison des valeurs de d_f et k_f avec la littérature.	111
C.1	Quantité des produits utilisés pour le remplissage d'un pot.	188

Nomenclature

Acronymes

BAM Beam Attenuator Module

CCD Coupled Charge Device

DMA Differential Mobility Analyser

FL Flash Lampe

FPS Fine Particle Sampler

HAP Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques

HRR Heat Release Rate

W

LII Laser-Induced Incandescence

MET Microscope Electronique par Transmission

MLR Mass Loss Rate

$\text{g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$

MMA Methyl MethAcrylate

PCI puissance calorifique théorique

kWh.m^{-3}

PMMA PolyMethyl MethAcrylate

QS Q-Switch

RDG-FA Rayleigh-Debye-Gans for Fractal Aggregates

SNR Signal-to-Noise Ratio

TEOM Tapered Element Oscillating Microbalance

TTL Transistor-Transistor Logic

Constantes

σ	constante de Stéfán-Boltzmann	$= 5,67.10^8 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-4}$
c	célérité de la lumière	$= 3.10^8 \text{ m.s}^{-1}$
e	charge élémentaire	$= 1,6.10^{-19} \text{ C}$
g	constante gravitationnelle	$= 9,81 \text{ m.s}^{-2}$
h	constante de Planck	$= 6,63.10^{-34} \text{ J.s}$
k	constante de Boltzmann	$= 1,38.10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$

Lettres grecques

β	rapport entre le diamètre de giration et de mobilité	
χ	coefficient permettant de rendre compte d'une combustion incomplète	
Δh_c	chaleur de combustion	J.kg^{-1}
ΔH_f	enthalpie standard de formation	kJ.mol^{-1}
δ	épaisseur	m
$\Delta_s H$	chaleur latente	J.mol^{-1}
ϵ	émissivité	
λ	longueur d'onde	nm
λ_1	borne inférieur de la gamme spectrale de détection	nm
λ_2	borne supérieur de la gamme spectrale de détection	nm
λ_t	conductivité thermique	$\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$
μ	viscosité	$\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$
ρ	masse volumique	kg.m^{-3}

ρ_s	masse volumique des suies	kg.m^{-3}
σ_s	extinction spécifique	$\text{m}^2.\text{kg}^{-1}$

Indices

<i>air</i>	de l'air
<i>c</i>	de conduction
<i>cv</i>	de convection
<i>e</i>	d'ébullition
<i>f</i>	de la flamme
<i>I</i>	d'induction
<i>ig</i>	d'ignition
<i>L</i>	vers l'extérieur
<i>M</i>	de mélange
<i>moy</i>	moyen
<i>p</i>	de la particule
<i>PMMA</i>	du PMMA
<i>py</i>	de pyrolyse
<i>r</i>	de rayonnement
<i>s</i>	du solide

Lettres latines

A_a	surface projetée des agrégats entiers	m^2
A_p	surface projetée d'une sphérule	m^2
B	mobilité dynamique	$\text{m.N}^{-1}.\text{s}^{-1}$
$C_{\text{étal}}$	coefficient d'étalonnage	

C_c	facteur de correction de Cunningham	
C_s	concentration massique	kg.m^{-3}
C_p	capacité calorifique ou chaleur spécifique	$\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$
d_f	dimension fractale	
D_g	diamètre de giration	m
d_i	distance entre les particules primaires et le centre de masse	m
D_m	diamètre de mobilité	m
D_p	diamètre sphérule primaire	m
E	champ électrique	V
$E(m)$	fonction d'indice d'absorption	
f	focale d'une lentille	cm
$F(m)$	fonction d'indice de diffusion	
Fr_{ini}	nombre de Froude initial	
fv_{suie}	fraction volumique de suie	ppb
h	hauteur	m
H_{AC}	accumulation de chaleur interne	W
H_A	absorption du flux laser	W
H_C	conduction avec le milieu extérieur	W
H_R	échange d'énergie par rayonnement thermique	W
H_S	échange d'énergie par sublimation	W
I	intensité transmise	
I_0	intensité de référence	
$I_{fl}(\lambda)$	émission de la flamme	

k_f	préfacteur	
K_0	constante spécifique d'élasticité	
K_{abs}	coefficient d'absorption	m^{-1}
K_{dif}	coefficient de diffusion	m^{-1}
K_{ext}	coefficient d'extinction	m^{-1}
K_e	coefficient d'extinction adimensionné	
K_T	coefficient de transfert de chaleur	
L	largeur	m
L_p	distance maximale mesurée au sein des particules (« Feret »)	m
L_v	chaleur latente de pyrolyse	MJ.kg ⁻¹
M	masse molaire	g.mol ⁻¹
m	indice complexe de réfraction des suies	
m	masse	kg
M_{abs}	Moment pour le calcul de l'absorption	m^{-3}
M_{dif}	Moment pour le calcul de la diffusion	m^{-3}
m_F	taux de production de combustible	kg.s ⁻¹
M_s	masse molaire du carbone solide	kg.mol ⁻¹
N	nombre de charge	
n	indice de réfraction	
N_{ag}	nombre de particules par unité de volume	m^{-3}
N_p	nombre sphérule primaire	
P_{mano}	pression manométrique	bar
Q	puissance calorifique	kW

q	flux de chaleur	$\text{J.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$
Q_{abs}	efficacité d'absorption	
R	taux de combustion	$\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$
r	rayon de l'agrégat assimilé à une sphère	m
R_g	rayon de giration	m
S	surface	m^2
S_{LII}	signal LII	
T	température	K
t	temps	s
U_∞	entraînement d'air	m.s^{-1}
V	vitesse	m.s^{-1}
v_{TE}	vitesse terminale électrostatique	m.s^{-1}
w	largeur de la plaque de PMMA	m
x	direction suivant la largeur de la plaque de PMMA	cm
y	direction suivant l'épaisseur de la plaque de PMMA	cm
z	direction suivant la hauteur de la plaque de PMMA	cm
Z_p	mobilité électrique	$\text{m}^2.\text{V}^{-1}.\text{s}^{-1}$

Chapitre I

Introduction

De nos jours, l'évolution des technologies et de la société ont modifiées la façon dont se déclarent les incendies ainsi que leurs impacts. Cela est en grande partie dû à la présence quotidienne de nouveaux types de matériaux. Par exemple, les matériaux plastiques sont couramment utilisés dans les transports ou encore dans les habitations. Ces matériaux peuvent avoir des propriétés physiques et chimiques très diverses. D'autant plus qu'ils sont souvent mélangés avec d'autres produits comme des particules ou des colorants afin de modifier leurs propriétés. Avec toutes ces possibilités se pose la question de la sécurité face à de tels matériaux, et plus précisément en cas d'un incendie. Les diverses propriétés des matériaux plastiques entraînent divers types de comportement au feu. La connaissance de ces comportements est donc nécessaire pour respecter les normes de sécurité incendie dans les transports ou les habitations. De plus, ces dernières sont de plus en plus strictes.

Malgré l'évolution des normes et le développement de moyens de secours plus performant, les incendies continuent de faire des dégâts matériels ainsi que des victimes humaines. La majorité de ces victimes est due à la formation de fumée dans des enceintes fermées. La fumée se caractérise par deux problèmes majeurs qui nuisent à la sécurité : son opacité et sa composition en particules polluantes (monoxyde de carbone et suies principalement). Son opacité empêche le bon déroulement de l'évacuation des personnes. Quant aux particules polluantes, elles s'avèrent mortelles une fois inhalées. Les particules majoritairement responsables de ces deux problèmes sont les particules de suie. La

formation de ces particules se produit dans des flammes de richesse élevée et de haute température, ce qui est le cas pour les flammes d'incendie. Les suies sont des agrégats de petites tailles (nanométriques) qui, une fois inhalées, pénètrent dans les poumons. La quantité de suies produite lors d'un incendie va dépendre de la configuration du feu (taille, puissance, ventilation, ...) mais aussi du type de combustible rencontré. Ces suies vont également participer à la propagation de l'incendie en raison de leurs rayonnements sous l'effet de la température de la flamme.

Dans l'optique de pouvoir appréhender le déclenchement, la propagation ainsi que les conséquences d'un incendie, des études expérimentales et numériques sont donc nécessaires. Pour améliorer la sécurité, des modèles numériques sont utilisés pour déterminer l'évolution des incendies. Mais ces derniers font appel à des processus physiques complexes, principalement les différents types de transferts de chaleur. De plus, la modélisation de la formation des suies, dont le rôle est important comme vu précédemment, pose des problèmes. Des études expérimentales sont donc indispensables pour améliorer la compréhension de certains phénomènes. Une des configurations qui est souvent rencontrée lors d'un incendie est le cas d'un feu de paroi verticale. Cette configuration s'avère critique car elle provoque une propagation rapide du feu. Cela est dû au fait que la flamme est très proche de la zone imbrûlée. Dans cette configuration, le rayonnement, et notamment celui des suies, est le transfert de chaleur majeur qui engendre cette propagation. Une étude de Ren et al. [1] démontre cela avec la simulation LES d'une flamme de paroi verticale. Les composantes radiative et convective du flux à la paroi obtenues en fonction de la hauteur sont présentées sur la figure I.1, pour différentes valeurs de la perte de masse ($MLR = 12,68, 17,05$ et $22,37 \text{ g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$). On constate que au delà de 20 cm, le flux radiatif devient nettement supérieur au flux convectif. Ces résultats montrent bien qu'il est donc important d'être capable de quantifier le rayonnement.

Cette étude va donc coupler les différentes problématiques citées précédemment : la combustion d'un matériau plastique, la production de particules de suie et le feu de paroi verticale. Une étude expérimentale est ainsi menée pour permettre une comparaison avec des modèles de propagation qui sont utilisés pour l'amélioration de la sécurité. L'ob-

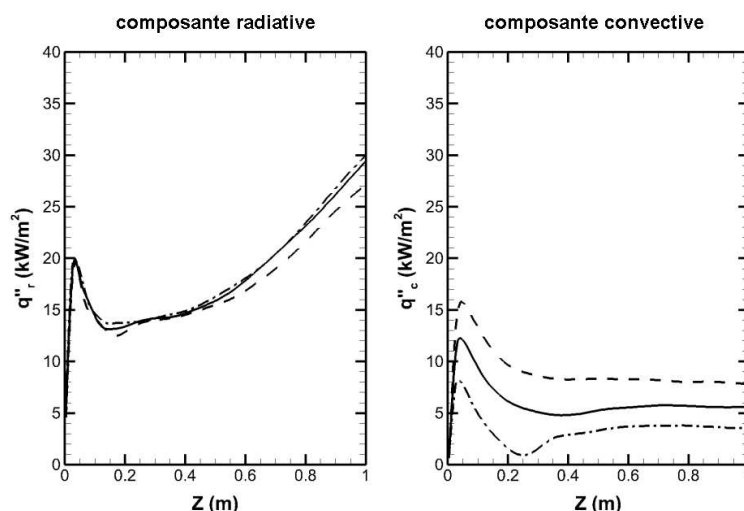


FIGURE I.1 – Détermination des composantes radiative et convective par simulation LES d'un feu de paroi verticale (ligne brisée : $MLR = 12,68 \text{ g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$, ligne continue : $MLR = 17,05 \text{ g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$, ligne brisée-pointillée : $MLR = 22,37 \text{ g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) [1]

jectif principal de la thèse est d'étudier, à l'échelle du matériau, la combustion d'une plaque verticale de matière plastique. Plus particulièrement, une base de données sur la caractérisation et la quantité de suies produites dans la flamme, en utilisant un diagnostic optique, est attendue. Ces données permettront une meilleure modélisation du rayonnement des particules de suie et donc de la propagation de la flamme.

Ce manuscrit va s'articuler de la manière suivante :

Le chapitre 2 va détailler les différents points théoriques mis en jeu, c'est-à-dire :

- les phénomènes de propagation de la flamme sur un matériau solide,
- les propriétés et travaux existant sur le combustible solide utilisé, le PMMA,
- la caractérisation des suies et leur rôle dans un incendie,
- la méthode de mesure pour déterminer la fraction volumique de suie dans la flamme, l'Incandescence Induite par Laser (LII).

Le chapitre 3 va présenter les différents montages expérimentaux mis en place pour déterminer la fraction volumique de suie produite par le PMMA et un brûleur gaz, ainsi que les propriétés optiques et morphologiques des suies générées par ces deux flammes.

Le chapitre 4 va spécifier les caractéristiques techniques de la méthode de LII, c'est-à-dire les conditions d'utilisation du laser et d'enregistrement des signaux, les corrections

apportées à ces derniers ainsi que leur calibration pour obtenir la fraction volumique de suies.

Le chapitre 5 va montrer les résultats obtenus sur les caractéristiques morphologiques et les propriétés optiques des particules de suie, c'est-à-dire leurs tailles et leurs morphologies fractales pour le premier point et le coefficient d'extinction spectrale in-situ et ex-situ ainsi que la fonction d'indice pour le second point.

Enfin, le dernier chapitre va présenter les résultats obtenus sur la combustion de la plaque verticale de PMMA, c'est-à-dire la quantification des suies avec l'obtention de champs 2D de la fraction volumique en fonction du temps.

Chapitre II

Contexte de l'étude

Cette étude s'est focalisée sur la propagation d'une flamme le long d'un matériau solide. Une meilleure compréhension des phénomènes mis en jeu est indispensable pour l'amélioration de la sécurité incendie, que ce soit pour la prévention ou les méthodes d'extinction . Comme énoncé dans l'introduction, l'objectif principal de cette étude est d'obtenir des données pour permettre la modélisation du rayonnement produit par les particules de suie présentes dans la flamme. Pour cela une étude des suies produites par la combustion d'un matériau solide, ici le polyméthacrylate de méthyle (PMMA de l'anglais PolyMethyl MethAcrylate), est donc nécessaire. Leur quantification dans la flamme a été mesurée à l'aide d'un diagnostic optique. Ce chapitre va détailler le contexte de cette étude ainsi que les connaissances actuelles sur le sujet. Tout d'abord sont présentés les phénomènes physiques mis en jeu lors de la combustion d'un matériau solide. Ensuite sera détaillé le cas de la combustion du PMMA avec les propriétés de ce matériau. Puis sera expliqué lors d'un incendie le rôle, le processus de formation et les caractéristiques morphologiques des particules de suie. Enfin la méthode d'Incandescence Induite par Laser (LII) qui permet de mesurer la fraction volumique de suie in-situ dans une flamme sera expliquée.

II.1 La combustion d'un matériau solide

II.1.1 L'ignition et la pyrolyse

Lors d'un incendie, en se plaçant à l'échelle du matériau, différentes étapes sont mises en jeu pour permettre l'apparition d'une flamme. Une étape préliminaire est l'ignition. Elle est généralement décrite comme une succession de trois processus, un préchauffage du matériau sans réactions jusqu'à ce qu'une température de pyrolyse soit atteinte, le mélange des vapeurs avec l'oxygène et les réactions de combustion en phase gaz [2]. Ce processus initial de chauffage est caractérisé par un temps de pyrolyse (t_{py}). Ce temps dépend fortement du flux imposé à la surface du matériau. Le phénomène de pyrolyse est la dégradation du matériau en vapeur de combustible sous l'effet de la chaleur. Des gaz inflammables commencent donc à apparaître à la surface du matériau, jusqu'à ce qu'un mélange inflammable soit formé. Cette seconde étape dans le processus d'ignition est caractérisée par un temps de mélange (t_M). Si la température du mélange inflammable est suffisante, une réaction exothermique autonome apparaît. Cette dernière étape est caractérisée par un temps d'induction (t_I). Le temps total nécessaire pour aboutir à l'ignition peut être simplement exprimé comme l'addition de ces trois temps caractéristiques : $t_{ig} = t_{py} + t_M + t_I$. Le temps t_{ig} dépend du flux total imposé au matériau, c'est-à-dire du flux convectif à la paroi (avant inflammation) et d'un flux radiatif extérieur. Luche et al. donnent pour le PMMA les valeurs de t_{ig} [3]. En général et pour une première approche, on néglige les temps t_M et t_I devant t_{py} . Pour le PMMA, Dakka et al. [4] ont montré que t_M n'était pas forcément négligeable devant t_{py} . D'autre part Long et al. mettent en évidence que l'ignition dépend d'une concentration minimum de fuel [5].

Une fois l'ignition atteinte, la combustion est amorcée moyennant une température suffisante pour permettre l'inflammation du mélange gazeux formé. Cette température minimum est encore mal connue. En particulier il n'y a pas de convergence sur cette notion dans le cas de l'extinction. C'est ensuite la pyrolyse qui va entretenir cette combustion en fournissant le combustible nécessaire. Cette pyrolyse est quant à elle générée par un transfert de chaleur entre la flamme et le matériau. Ces phénomènes d'ignition

et de pyrolyse ne seront pas étudiés dans cette étude, notamment du fait que, en ce qui concerne le PMMA, de nombreuses études expérimentales et numériques abordent déjà ces phénomènes (bibliographie déjà présentée précédemment avec les travaux de Dakka et al. [4], Luche et al. [3] ou Long et al. [5], ainsi que d'autres présentés par la suite). Mais ces phénomènes représentent des conditions initiales qui influencent énormément par la suite la propagation de la flamme sur le matériau [6]. C'est pourquoi des précautions seront prises par la suite lors de la mise en place du système d'allumage du PMMA.

II.1.2 Propagation de la flamme

Une fois la combustion initiée, la flamme va ensuite pouvoir se propager. La propagation consiste en un déplacement de la partie pyrolysée vers la partie non pyrolysée du solide. Ce phénomène est caractérisé par la vitesse de propagation de la flamme V_f (m.s^{-1}) et il est dû à un échange de transferts thermiques entre la flamme et le combustible. Lors d'un incendie, la rapidité de la propagation s'avère critique quant à l'évolution du feu d'où la nécessité d'être capable de la prédire. Les mécanismes qui contrôlent cette propagation font donc l'objet de nombreuses études [7, 8, 9]. Pour décrire ce phénomène de propagation, une équation fondamentale a été définie à partir du principe de conservation de l'énergie [7]. Cette équation considère l'énergie transférée (flux de chaleur) \dot{q}'' ($\text{J.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) en fonction de la masse volumique du matériau ρ (kg.m^{-3}), de son épaisseur δ (m), de la vitesse de propagation V_f (m.s^{-1}), de la chaleur spécifique C_p ($\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$) et de la variation de température entre la température d'ignition T_{ig} (K) et la température du solide T_s (K) d'où :

$$\dot{q}'' = \rho V \delta C_p (T_{ig} - T_s) \quad (\text{II.1})$$

Le terme $C_p(T_{ig} - T_s)$ correspond à l'enthalpie de préchauffage de la zone devant le front de flamme. Ce flux de chaleur dépend des différents types de transferts thermiques mis en jeu qui ont chacun une importance plus ou moins grande selon la configuration de

la propagation.

Deux cas de figure particuliers peuvent se présenter : la propagation à co-courant et à courant opposé. La figure II.1 propose un schéma synthétique de ces deux configurations. La vitesse U_∞ est équivalente à un entraînement d'air provoqué par le vent pour les feux en extérieur ou à une convection naturelle engendrée par la propagation de la flamme. La zone grise présente sur le combustible solide correspond à la zone ayant déjà subi la pyrolyse. La propagation à co-courant correspond à une vitesse de cet entraînement d'air dans la même direction que la vitesse de propagation de la flamme et à courant opposé dans le sens inverse. La vitesse de propagation est donc logiquement plus élevée dans le cas du co-courant. La propagation va également dépendre de l'orientation de la surface du matériau solide : horizontale ou verticale.

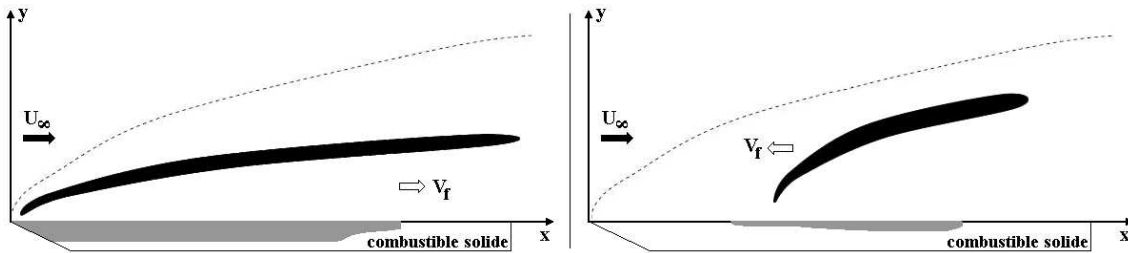


FIGURE II.1 – Schéma synthétique de la propagation d'une flamme sur une surface solide horizontale : cas du co-courant (gauche) et du courant opposé (droite)

La configuration choisie dans cette étude concerne le cas d'une propagation à co-courant pour une plaque de combustible solide en position verticale (Figure II.2). Tout d'abord, grâce à la pyrolyse, la flamme est alimentée en gaz combustible caractérisé par un taux de production de combustible \dot{m}_F'' . Dans cette configuration, la propagation de la flamme est contrôlée par les transferts de chaleur qui ont lieu entre la flamme et le solide [2, 10, 11]. Des échanges thermiques peuvent aussi avoir lieu entre les fumées et le solide et participer à la propagation [12] mais cette étude se focalise uniquement sur la flamme. Ces différents types de transfert de chaleur sont :

- la convection de la flamme vers le solide \dot{q}_{cv}'' ,
- le rayonnement de la flamme vers le solide \dot{q}_r'' ,
- le rayonnement du solide vers la flamme $\dot{q}_{s,r}''$.

Des pertes de chaleur s'ajoutent à cela telles que :

- la conduction à travers le solide $\dot{q}_{s,c}''$,
- le rayonnement de la flamme vers l'extérieur $\dot{q}_{L,r}''$.

Les transferts de chaleur allant de la flamme vers le solide vont permettre de pyrolyser la zone imbrûlée du solide. Cela va donc entraîner la propagation de la flamme du bas vers le haut de la plaque verticale. Pour pouvoir prédire la propagation et sa vitesse, il faut donc être capable de quantifier les différents échanges de chaleur mis en jeu. Dans la configuration d'une propagation à courant opposé, c'est la conduction thermique des gaz chauds de la flamme vers la partie non pyrolysée du solide qui permet en majorité le phénomène de propagation. Il faut noter que si l'épaisseur du solide n'est pas trop faible, la conduction à travers le solide $\dot{q}_{s,c}''$ joue aussi un rôle [8]. Dans la configuration d'une propagation à co-courant, les échanges convectifs viennent s'ajouter mais le rayonnement a un rôle important [13]. Comme montré dans l'introduction, sur la figure I.1, l'importance de ce rayonnement a été mise en évidence avec une étude LES sur un feu de paroi verticale [1]. Une partie de ce rayonnement est générée par les particules de suie présentes dans la flamme. C'est pourquoi cette étude va se focaliser sur la quantification des suies dans la flamme.

Deux hauteurs, utilisées pour la sécurité incendie, permettent de caractériser la combustion d'un matériau solide. Tout d'abord, la hauteur de pyrolyse h_{py} (m) permet de définir la hauteur de la zone du combustible qui brûle. Ensuite est définie la hauteur de flamme h_f (m) qui peut être déterminée :

- à partir de la hauteur de pyrolyse avec une loi de puissance [8] :

$$h_f \approx h_{py}^\alpha \quad (\text{II.2})$$

- à partir du dégagement de chaleur HRR (W, de l'anglais Heat Release Rate) suivant la relation [14] :

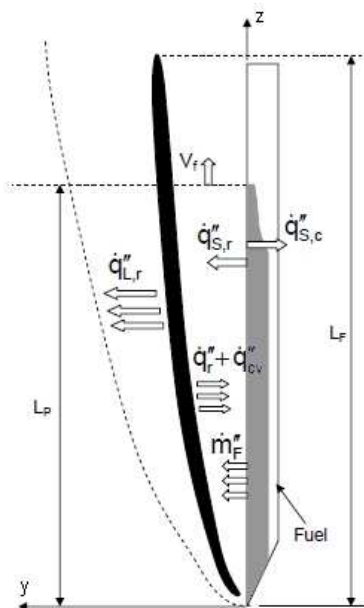


FIGURE II.2 – Schéma des mécanismes mis en jeu lors de la propagation d'une flamme sur une paroi verticale de combustible solide

$$h_f = 4,2 \left(\frac{HRR}{\rho_{air} C_{p_{air}} T_{air} \sqrt{g}} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (\text{II.3})$$

avec g la constante gravitationnelle ($9,81 \text{ m.s}^{-2}$) et des paramètres de l'air ambiant : ρ_{air} la masse volumique (kg.m^{-3}), T_{air} la température (K) et $C_{p_{air}}$ la capacité calorifique ($\text{J.kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$). Le dégagement de chaleur est quant à lui obtenu à partir du taux de combustion R ($\text{kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) suivant la relation :

$$HRR = RS\chi\Delta h_c \quad (\text{II.4})$$

avec S la surface du combustible solide (m^2), χ un coefficient permettant de rendre compte d'une combustion incomplète, $\chi = 1$ si l'on considère une combustion complète, et Δh_c la chaleur de combustion (J.kg^{-1}). Enfin, une dernière caractéristique est la perte de masse MLR (kg.s^{-1} , de l'anglais Mass Loss Rate) qui est égale à $R \times S$. La perte de masse et le taux de combustion sont fonction du temps. Tous ces termes permettent de

caractériser la combustion du matériau solide et sont donc souvent déterminés dans les études qui analysent la combustion des matériaux solides.

II.2 La combustion du PMMA

II.2.1 Propriétés physiques et processus de dégradation

Le matériau solide utilisé pour cette étude est le PMMA. Ce matériau est un plastique transparent plus connu sous la marque Plexiglas. Son utilisation s'avère de plus en plus courante dans les habitations, les transports, la médecine, etc... Il est aussi souvent utilisé dans la recherche sur la combustion de matériau solide de par ses propriétés. En effet, lors de sa combustion, il ne coule pas et ne produit que peu de résidus carbonés à sa surface [4, 15, 16]. Le PMMA est un polymère dont la formule chimique est $(C_5H_8O_2)_n$ (figure II.3). Ces propriétés chimiques et physiques sont bien connues et sont énumérées dans le tableau II.1.

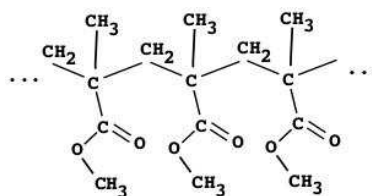
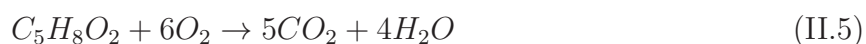


FIGURE II.3 – Structure chimique du PMMA

Masse molaire	$M(\text{g.mol}^{-1})$	100,12	[17]
Masse volumique	$\rho_{PMMA}(\text{kg.m}^{-3})$	1150	Donnée fabricant
Température de fusion	$T_f(\text{K})$	403 à 413	Donnée fabricant
Température d'ébullition	$T_e(\text{K})$	473	Donnée fabricant
Indice de réfraction	n	1,49	Donnée fabricant
Chaleur de combustion	$\Delta h_c(\text{J.kg}^{-1})$	$25,6.10^6$	[17]
Chaleur spécifique	$C_p(\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1})$	2100	[18]
Enthalpie standard de formation	$\Delta H_f(\text{kJ.mol}^{-1})$	-184,5	[19]
Conductivité thermique	$\lambda_t(\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1})$	0,187	Donnée fabricant
Chaleur latente de pyrolyse	$L_v(\text{MJ.kg}^{-1})$	2	Donnée fabricant

TABLE II.1 – Propriétés chimiques et physiques du PMMA

L'équation chimique de la combustion complète du MMA (monomère du PMMA) est la suivante [19] :



Mais en réalité la décomposition d'un polymère durant sa combustion se fait en différentes étapes. Un modèle général proposé par Woolley et al. [20] décrit les modes de dégradation (figure II.4). Ce modèle peut s'appliquer au PMMA. Cette décomposition débute par une étape primaire en phase solide/liquide avec une dégradation soit par pyrolyse soit par oxydation. Les mêmes processus dégradent les produits formés en phase gazeuse lors d'une étape secondaire. On obtient ainsi différents produits de combustion qui vont ensuite alimenter la flamme. Ces produits sont principalement (> 90 %) le monomère méthacrylate de méthyle (MMA) mais aussi le CO_2 , le CO , le CH_3OH , le CH_4 et les résidus carbonés [21]. Spécifiquement pour le PMMA, Luche et al. [3] proposent un schéma de dégradation thermique en quatre étapes à partir d'une étude expérimentale faite avec un cône calorimètre. Lautenberger et al. [22] ont utilisé quant à eux un modèle de pyrolyse pour simuler cette dégradation. Enfin, Kashiwagi et al. [23] et Dakka et al. [4] ont étudié l'influence de la composition gazeuse de l'atmosphère ambiant sur cette dégradation et sur les produits de combustion formés.

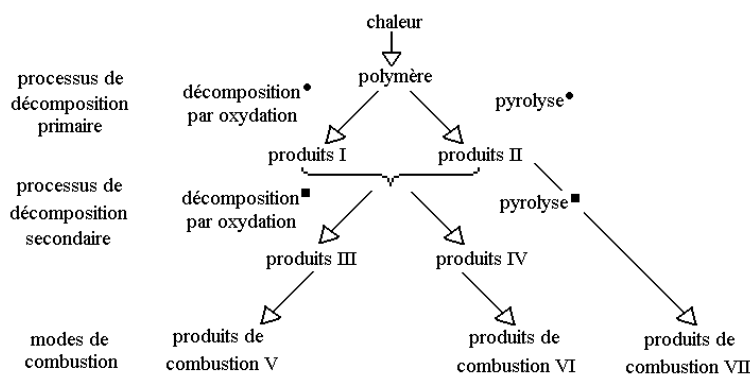


FIGURE II.4 – Modes de formation des produits de la combustion d'un polymère (● : phase solide/liquide, ■ : phase gazeuse) [20]

II.2.2 Les travaux existants

Le PMMA est souvent utilisé dans les expériences impliquant la combustion ou la pyrolyse d'un matériau solide. Une bibliographie non exhaustive de ces travaux est faite ici. Tout d'abord, la pyrolyse et l'ignition du PMMA ont été souvent étudiées. Par exemple, la spectroscopie a été utilisée pour analyser les produits de combustion [21], un cône calorimètre [24] ou une caméra IR [4] pour mesurer le temps d'ignition ou encore un cône calorimètre pour calculer la perte de masse MLR et le dégagement de chaleur HRR [3]. Pour représenter ces phénomènes, des modèles semi-analytiques et empiriques ont été développés [25, 26, 24]. Des conditions atmosphériques différentes, microgravité [27] ou atmosphère d'exploration spatiale [28], ont été aussi réalisées.

Pour ce qui concerne la combustion du PMMA, on trouve des configurations plus spécifiques comme l'étude d'une flamme de diffusion de PMMA à contre-courant avec l'analyse du rayonnement des gaz [29], l'effet d'un maintien en sandwich du PMMA [30] ou l'effet de retardant au feu avec l'ajout de particules dans le PMMA [31, 32]. Mais deux configurations sont prédominantes : une plaque en position horizontale (configuration similaire à un feu de nappe) ou en position verticale (feu sur un mur). Pour la première configuration, les différentes études concernent principalement la mesure du taux de combustion [33], de l'épaisseur de flamme [34], du ratio molaire CO/CO_2 dégagé [35] ou encore de l'absorption du rayonnement à l'intérieur du solide [36].

La deuxième configuration, c'est-à-dire la plaque de PMMA en position verticale, est la configuration choisie dans cette étude. Les premières études faites dans cette configuration ont été menées par Orloff et al. [37, 38]. La plaque de PMMA allumé à sa base a permis d'obtenir des relations entre la vitesse de propagation de la flamme, le flux de chaleur à la paroi et le taux de combustion. Par la suite Fernandez-Pello et al. proposent un bilan des différents mécanismes qui contrôlent la propagation de la flamme pour deux configurations : co-courant et courant opposé (voir partie sur la propagation de la flamme) [8]. Le cas du courant opposé sera de nouveau étudié plus tard par Ayani et al. pour voir l'effet de la largeur de la plaque [39]. Les études suivantes concernent le cas du co-courant, cas utilisé dans cette étude. Pour les échanges thermiques au niveau de la

paroi, les transferts conductifs dans le matériau ont été mesurés par Kulkarni et al. [40]. Tu et al. ont montré que la hauteur de flamme est corrélée à la puissance dégagée (par unité de largeur) avec une loi en puissance $2/3$ [41], loi confirmée en suite par Tewarson et al. [42]. Delichatsios utilise ces résultats expérimentaux pour développer une solution asymptotique de la vitesse de déplacement de la flamme [43].

Des études avec la simulation 2D des équations de l'écoulement et de la combustion ont été également entreprises afin d'analyser les variations de la hauteur de pyrolyse h_{py} , de la hauteur de flamme h_f , du débit de pyrolyse et du flux à la paroi en fonction de la hauteur sur la plaque. Certaines utilisent une approche RANS pour calculer l'écoulement turbulent [44, 45, 16]. Dans d'autres travaux, l'approche LES a été utilisée [46, 1].

Pour la présente étude, la configuration étudiée par Pizzo et al. [15, 47] a été reprise, c'est-à-dire une plaque verticale de PMMA maintenue par un cadre en acier. Pizzo et al. ont effectué pour cette configuration des mesures de taux de combustion [15] et de hauteur de pyrolyse [47] pour différentes largeurs de plaque. Comme on va le voir en détail par la suite, la présence de suies dans la flamme et leur rayonnement doivent être pris en compte dans les modèles numériques de propagation. Mais dans les études expérimentales décrites précédemment sur la combustion du PMMA, aucune n'a permis de quantifier les particules de suie dans la flamme. C'est pourquoi cette étude va se focaliser sur ce sujet.

II.3 Les particules de suie

II.3.1 Formation et morphologie des suies

La formation des particules de suie se produit dans des flammes de richesse élevée et à haute température, ce qui est le cas pour les flammes d'incendie. Cette formation met en jeu des phénomènes complexes dont seules les principales étapes vont être présentées ici brièvement. Ces étapes sont la nucléation, la croissance de surface, la coagulation et l'agglomération (figure II.5). Pour plus de détails sur ces processus de formation, voir les travaux de thèse de VanHulle [48] et de Schoemaeker-Moreau [49].

La première étape dans le processus de formation est donc la nucléation. Elle corres-

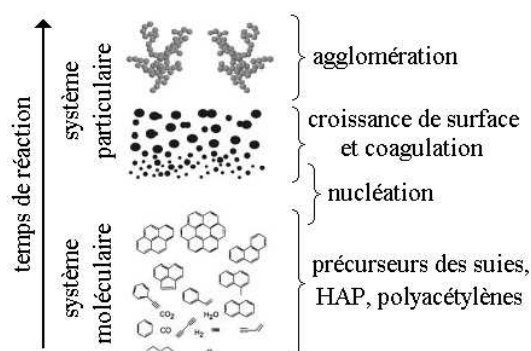


FIGURE II.5 – Processus de formation des particules de suie dans une flamme

pond à la genèse des particules primaires dans la zone réactive de la flamme. Lors de cette étape, des nucléi sont formés à partir des polyacétylènes, des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) et d'autres précurseurs présents dans la flamme [50]. Cette phase correspond au passage d'un système moléculaire vers un système particulaire. Ensuite différents phénomènes de croissance, compétitifs et/ou consécutifs, vont pouvoir se produire :

- la croissance de surface : elle est due à une réaction entre les nucléi produits et les précurseurs. Les nucléi vont ainsi grossir pour former des particules primaires de forme quasi sphérique,
- la coagulation : elle correspond à la fusion entre des particules pour en donner de plus grosses,
- l'agglomération : elle correspond à une agrégation des particules sans fusionner ce qui donne une morphologie complexe de type agrégats (figure II.6).

Enfin un dernier processus va se produire dans les zones peu réactives de la flamme. Les particules se trouvant dans ces zones peuvent être oxydées car l'oxygène y est de plus en plus présent. Cette oxydation correspond à une combustion partielle de ces agrégats. Dans l'optique de pouvoir utiliser la théorie de la RDG-FA pour remonter au rayonnement des particules de suie dans la flamme (détaillée par la suite), la morphologie des agrégats doit être connue. Différents paramètres permettent de la caractériser. Tout d'abord, les particules primaires, qui composent une particule de suie, peuvent être décrites par leur diamètre D_p (celles-ci étant assimilées à des sphères) et leur nombre

N_p . Ces caractéristiques sont facilement accessibles par exemple avec l'analyse de clichés par microscopie électronique à transmission (MET), voir par exemple la figure II.6. Mais pour décrire la morphologie complète d'un agrégat, une analyse fractale doit être faite [51]. Pour cela deux paramètres sont utilisés : la dimension fractale d_f et le préfacteur k_f . On introduit aussi le diamètre de giration D_g (m) qui donne une estimation de la répartition massique de l'agrégat. Celui-ci correspond à la moyenne des carrés des distances d_i (m) entre les particules primaires et le centre de masse d'où :

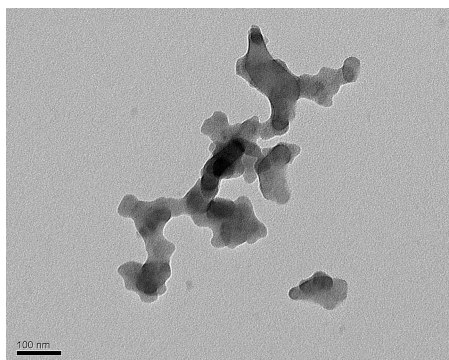
$$D_g^2 = \frac{4}{N_p} \sum_i d_i^2 \quad (\text{II.6})$$

Ce diamètre est utile car il intervient dans la détermination des caractéristiques fractales de l'agrégat (équation II.7 ci-dessous) et il est possible de l'obtenir à partir de clichés MET. Tous ces paramètres sont reliés entre eux grâce à la relation [48] :

$$N_p = k_f \left(\frac{D_g}{D_p} \right)^{d_f} \quad (\text{II.7})$$

La dimension fractale permet de rendre compte de la compacité de l'agrégat, c'est-à-dire de l'aspect plus ou moins aéré de celui-ci. Une dimension fractale de 1 correspond à un agrégat de forme linéaire alors qu'une valeur de 3 correspond à un agrégat très compact, dont la forme est proche d'une sphère. Pour le préfacteur, il varie beaucoup, dans la littérature, en fonction des conditions expérimentales (entre 1 et 8 [48]).

La taille d'un agrégat peut être déterminée par le diamètre de giration, introduit précédemment, mais aussi à l'aide d'autres types de diamètres [17], comme le diamètre de mobilité D_m (m) par exemple (figure II.7). Ce diamètre est fonction de la mobilité électrique Z_p ($\text{m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) et correspond à la vitesse d'équilibre qu'acquiert une particule de charge Ne (nombre de charge multiplié par la charge élémentaire ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C)) soumis à un champ électrique E et aux frottements visqueux, d'où :

FIGURE II.6 – Exemple de cliché MET de particules de suie ($\times 140000$)

$$Z_p = \frac{v_{TE}}{E} = NeB = \frac{NeC_c}{3\pi\mu D_m} \quad (\text{II.8})$$

avec v_{TE} la vitesse terminale électrostatique (m.s^{-1}), μ la viscosité du gaz ($\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$), B la mobilité dynamique ($\text{m.N}^{-1}.\text{s}^{-1}$) et C_c le facteur de correction de Cunningham. Les particules de suie n'étant pas sphériques, la mesure du diamètre de mobilité donne un diamètre équivalent, c'est-à-dire le diamètre d'une sphère qui aurait une déviation identique si elle est soumise au même champ électrique. Le diamètre de giration et le diamètre de mobilité ne sont pas égaux, on définit ainsi le rapport de ces deux diamètres par une fonction β suivant la relation :

$$\beta = \frac{D_g}{D_m} \quad (\text{II.9})$$

Cette fonction s'avère très utile, si il est connu, pour obtenir le diamètre de giration directement à partir du diamètre de mobilité. En effet, le diamètre de mobilité se détermine facilement à partir d'un appareil de mesure de mobilité électrique alors que le diamètre de giration nécessite l'analyse de centaines de clichés MET. Les méthodes expérimentales pour déterminer les différentes caractéristiques morphologiques énoncées ci-dessus seront détaillées dans le chapitre suivant.

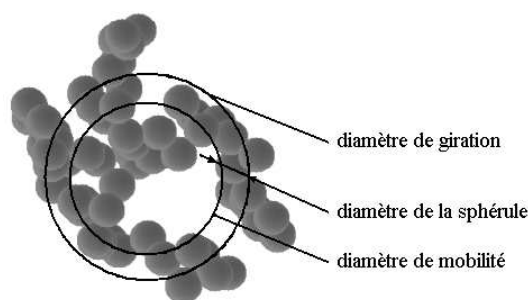


FIGURE II.7 – Représentation des diamètres caractéristiques d'un agrégat utilisés dans cette étude [48]

II.3.2 Les suies et les incendies

Les particules de suie jouent un rôle important lors d'un incendie. Deux types d'effets sont prépondérants : dans les fumées et dans la flamme. L'impact des suies dans les fumées est multiple : sur la visibilité, la détection du feu et l'intoxication des victimes par inhalation [52]. Mais ces points ne seront pas détaillés dans cette étude.

Comme vu dans la partie précédente sur la propagation d'une flamme, les suies présentes dans la flamme participent aussi au développement du feu [53]. Le rayonnement des particules de suie est important, et il peut représenter, pour les foyers de grandes tailles, la part majoritaire comparée au rayonnement des autres produits de la combustion. Dans les études LES de Wang et al. et de Ren et al. [46, 1], ce rayonnement est calculé à partir du coefficient d'absorption K_{abs} , qui se définit par l'absorption de la lumière après avoir traversé le milieu. Ce coefficient dépend de la longueur d'onde, de la température et il est proportionnel à la fraction volumique $f_{v_{suie}}$ des suies dans l'écoulement. Pour déterminer cette dernière, Consalvi et al. [45, 16] utilisent un modèle de formation des suies qui se base sur les équations de conservation de la fraction massique et du nombre par unité de volume [54]. Ce modèle tient compte des processus de nucléation, de croissance de surface et de coagulation. Mais la formation des suies est un phénomène complexe qui est difficile à modéliser correctement. Il faut ajouter à cela que, comme vu précédemment, cette fraction volumique n'a jamais été mesurée pour la combustion d'une plaque verticale de PMMA. Aucune validation du modèle de formation n'a donc été faite pour cette configuration d'où l'intérêt de la quantification de la concentration des suies faite dans

cette étude.

En réalité, les particules de suies peuvent aussi diffuser la lumière. On définit alors le coefficient de diffusion K_{dif} . L'atténuation d'un faisceau lumineux le long du trajet optique est donc la résultante de l'absorption et de la diffusion et cette extinction est caractérisée par le coefficient $K_{ext} = K_{abs} + K_{dif}$. Les coefficients K_{abs} , K_{dif} et K_{ext} se déterminent en utilisant des théories qui peuvent tenir compte de la morphologie complexe des agrégats [55, 56]. Il existe une approche simplifiée, la théorie de la RDG-FA (Rayleigh-Debye-Gans for Fractal Agregates) qui, sous certaines conditions donne d'excellents résultats comparés aux théories plus complètes [55, 56]. L'utilisation de cette théorie permet dans une première approche d'avoir une estimation rapide et analytique de l'influence de la morphologie des agrégats sur leurs propriétés optiques d'absorption et d'extinction [57].

Le coefficient spectral d'extinction K_{ext} , en utilisant la théorie de la RDG-FA, est donné par [17, 58] :

$$K_{ext}(\lambda) = K_{abs}(\lambda) + K_{dif}(\lambda) = C_a M_{abs} E(m) + C_b M_{dif} F(m) \quad (\text{II.10})$$

Les deux coefficients C_a et C_b sont obtenus à partir du diamètre des sphérules primaires D_p :

$$C_a = \frac{\pi^2 D_p^3}{\lambda} \quad (\text{II.11})$$

$$C_b = \frac{2\pi^5 D_p^6}{3\lambda^4} \quad (\text{II.12})$$

Les moments d'absorption M_{abs} et de diffusion M_{dif} sont déterminés à partir de l'analyse morphologique des suies :

$$M_{abs} = \int_{D_g} N_p(D_g) dN^{ag}(D_g) \quad (\text{II.13})$$

$$M_{dif} = \int_{D_g} N_p^2(D_g) g(R_g, \lambda, d_f) dN^{ag}(D_g) \quad (\text{II.14})$$

avec $dN^{ag}(D_g)$ le nombre de particules par unité de volume entre D_g et $D_g + dD_g$ et $g(R_g, \lambda, d_f)$ donné par la relation :

$$g(R_g, \lambda, d_f) = \left(1 + \frac{4}{3d_f} \left(\frac{2\pi R_g}{\lambda} \right)^2 \right)^{-\frac{d_f}{2}} \quad (\text{II.15})$$

Enfin les fonctions d'indice d'absorption $E(m)$ et d'indice de diffusion $F(m)$, où m est l'indice complexe de réfraction des suies, sont définies par :

$$E(m) = -Im \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right) \quad (\text{II.16})$$

$$F(m) = \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2 \quad (\text{II.17})$$

En conclusion : la connaissance de l'indice optique et de la morphologie des suies permet donc de calculer les coefficients d'absorption et d'extinction, ceux-ci servant à calculer le rayonnement des particules de suie dans les modèles numériques.

Il existe une approximation permettant de déterminer le coefficient d'extinction. Elle est plus ou moins justifiée par la théorie de la RDG-FA [59] et est donnée par la relation suivante :

$$K_{ext}(\lambda) = K_e(\lambda) \frac{fv_{sui}}{\lambda} \quad (\text{II.18})$$

avec K_e le coefficient d'extinction adimensionné. Ce coefficient dépend de la longueur d'onde mais aussi des propriétés optiques des suies. Si on suppose que la diffusion est négligeable alors on a :

$$K_e(\lambda) = 6\pi E(m, \lambda) \quad (\text{II.19})$$

Le coefficient d'extinction adimensionné dépend du combustible utilisé et de la configuration de la combustion [60]. Les valeurs de ce coefficient que l'on trouve dans la littérature sont très dispersées, elles vont de 2 jusqu'à plus de 10 [58]. Il s'avère donc nécessaire d'effectuer une mesure pour déterminer ce coefficient d'extinction adimensionné. Pour cela il est nécessaire de mesurer les propriétés optiques des suies. De plus, ces propriétés dépendent de la longueur d'onde. Une analyse spectrale est donc à faire.

On introduit aussi l'extinction spécifique σ_s ($\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$) qui permet de relier l'extinction à la concentration massique des particules :

$$K_{ext}(\lambda) = \sigma_s(\lambda) C_s = \frac{K_e(\lambda) C_s}{\lambda \rho_s} \quad (\text{II.20})$$

avec C_s la concentration massique de suies ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$) et ρ_s la masse volumique des suies ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$). Dans le cas où la diffusion par les agrégats est négligeable, on a alors :

$$K_{ext}(\lambda) = \sigma_s(\lambda) C_s = \frac{6\pi E(m, \lambda) C_s}{\lambda \rho_s} \quad (\text{II.21})$$

II.4 L'Incandescence Induite par Laser (LII)

II.4.1 Absorption de l'énergie laser

Le phénomène d'Incandescence Induite par Laser a été observé pour la première fois par Weeks et Duley en 1974 grâce à une excitation laser sur un aérosol de noir de carbone et d'alumine [61]. Mais le potentiel de cette technique pour mesurer la fraction volumique et la taille des particules de suie a été mis en évidence avec les travaux d'Eckbreth [62], de Melton [63] et de Dasch [64]. Par la suite cette technique a été utilisée dans différents types d'expérience de combustion comme par exemple : pour des flammes laminaires [65, 66, 67], turbulentes [68, 69, 70] ou encore à haute pression [71]. Mais typiquement le domaine d'application de cette méthode concerne des flammes de combustible gazeux et non solide.

Le principe de la méthode consiste à envoyer un pulse laser intense afin de chauffer les particules de suie jusqu'à leur température d'incandescence (figure II.8). Ces particules vont absorber l'énergie du pulse et subir une accumulation de chaleur, donc une forte montée en température. Afin de revenir à la température de la flamme (nettement inférieure à la température atteinte par les suies sous l'effet du pulse laser), les particules vont se refroidir à l'aide de trois modes de transferts thermiques : conduction, sublimation et rayonnement thermique. Ce dernier mode de transfert, le rayonnement thermique, est appelé signal d'Incandescence Induite par Laser (S_{LII}). Si les particules de suie se comportent comme un corps noir, le rayonnement émis n'est fonction que de la taille et de la température de la particule, ce qui permet de remonter à la fraction volumique.

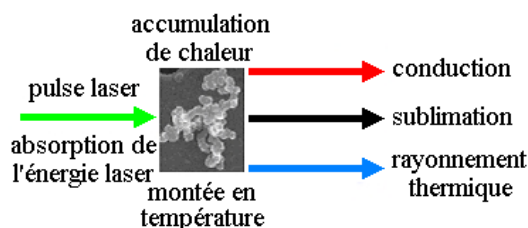


FIGURE II.8 – Effets de l'envoi d'un pulse laser sur une particule de suie

Les particules de suie soumises au pulse laser subissent donc une compétition entre

les trois modes de transfert thermique. Cela entraîne une évolution de la température de la particule au cours du temps qui passe tout d'abord par un maximum avant de décroître exponentiellement. Compte tenu du fait que l'intensité de la radiation dépend de la température (loi de Planck), l'évolution temporelle du signal LII a une allure similaire avec l'évolution de la température (figure II.9). Concernant cette évolution du signal LII, la décroissance qui suit le maximum est dépendante de la taille des particules [49]. Cela s'explique par le fait qu'une particule plus grosse mettra plus de temps pour se refroidir. Le signal LII peut donc être plus ou moins long dans le temps en fonction de la taille des particules rencontrées (d'une à plusieurs centaines de nanosecondes). Mais ce temps s'avère long en comparaison avec les temps de décroissance d'autres signaux tel que la diffusion des suies ou des gaz (de l'ordre de 50 ns) ou encore la fluorescence (durée proche de celle du pulse laser) des HAP ou du C_2 par exemple. Cela est donc un avantage qui permet la mise en place de techniques d'élimination des signaux autres que le signal LII qui sont également générés lors de l'envoi d'un pulse laser sur une particule de suie.

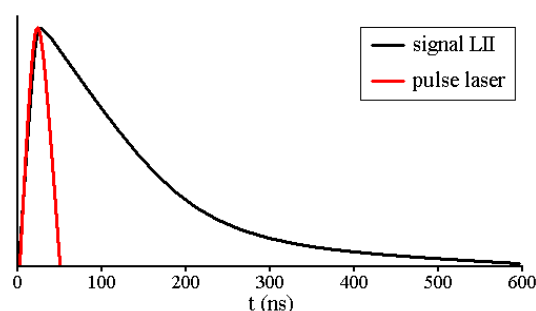


FIGURE II.9 – Allure générale caractéristique de la décroissance temporelle du signal LII

II.4.2 Mise en équation

La mise en équation du phénomène d'incandescence a été détaillée dans la thèse de Schoemaeker-Moreau [49]. Ici, seuls les points principaux vont être énumérés. Cette mise en équation se base sur un bilan énergétique de la particule de suie. L'accumulation de chaleur interne de cette particule, H_{AC} (W), est liée à quatre types d'échange d'énergie (figure II.8) :

- l'absorption du flux laser H_A (W)

- le rayonnement thermique H_R (W)
- la sublimation H_S (W)
- la conduction avec le milieu extérieur H_C (W)

En supposant la conservation de l'énergie au sein de la particule au cours du temps, on a :

$$H_{AC} = H_A + H_R + H_S + H_C \quad (\text{II.22})$$

En utilisant les lois de la thermodynamique, l'accumulation de chaleur de la particule dépend de sa capacité calorifique Cp_p ($\text{J.K}^{-1}.\text{kg}^{-1}$) suivant la relation :

$$H_{AC} = mCp_p \frac{dT_p}{dt} \quad (\text{II.23})$$

avec m la masse (kg) et T_p la température des particules (K). Pour l'absorption du flux laser, celle-ci dépend de l'énergie laser apportée q (W.m^{-2}) mais aussi de l'efficacité d'absorption de la particule Q_{abs} (capacité à absorber l'énergie des photons incidents avec $Q_{abs} = K_{abs}/\pi r^2 N_p$ [72]) d'où :

$$H_A = Q_{abs} \pi r^2 q \quad (\text{II.24})$$

avec r le rayon (m) des particules de suie (rayon de l'agrégat assimilé à une sphère). Le rayonnement thermique est exprimé avec la loi de Stefan-Boltzmann qui correspond à la loi de Planck intégrée sur toutes les longueurs d'onde pour un corps gris d'où :

$$H_R = \sigma \epsilon (T^4 - T_p^4) 4\pi r^2 \quad (\text{II.25})$$

avec σ la constante de Stéfán-Boltzmann ($5,67 \cdot 10^8 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-4}$), ϵ l'émissivité et T la température du milieu (K). L'émissivité est égale ici à l'absorption suivant la loi de Kirchoff, les particules étant dans le régime de Rayleigh. En utilisant de nouveau les lois de la thermodynamique, la sublimation s'exprime suivant la relation :

$$H_S = \frac{\Delta_s H}{M_s} \frac{dm}{dt} \quad (\text{II.26})$$

avec $\Delta_s H$ la chaleur latente (J.mol^{-1}) et M_s la masse molaire du carbone solide (kg.mol^{-1}). Enfin pour la conduction, celle-ci découle de la théorie cinétique des gaz d'où :

$$H_C = 4\pi r^2 \Delta T K_T \quad (\text{II.27})$$

avec K_T le coefficient de transfert de chaleur.

L'équation de conservation de l'énergie (équation II.22) permet ensuite d'aboutir à un système de deux équations différentielles qui est résolue pour obtenir la température de la particule et son rayon au cours du temps. Ces deux variables étant liées, le signal LII est considéré comme proportionnel au rayon initial au cube mais pas directement au rayon au cours du temps. Ce rayon initial au cube permet finalement de remonter à la fraction volumique car on a :

$$fv_{suie} \propto N_p r^3 \quad (\text{II.28})$$

Le calcul de l'intensité du signal LII se fait ensuite en utilisant la loi de Planck et la loi de Kirchoff. Cela permet d'aboutir au final à une relation simplifiée en fonction de la fraction volumique fv_{suie} :

$$S_{LII} = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} C(E(m), \lambda) \left[\exp\left(\frac{hc}{\lambda k T_p}\right) \right]^{-1} f v_{suie} d\lambda \quad (\text{II.29})$$

avec λ_1 et λ_2 les bornes de la gamme spectrale de détection, $C(E(m), \lambda)$ une constante qui dépend de la longueur d'onde λ et de la fonction d'indice $E(m)$, c la célérité de la lumière (3.10^8 m.s^{-1}), h la constante de Planck ($6,63.10^{-34} \text{ J.s}$) et k la constante de Boltzmann ($1,38.10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$). En considérant que la fonction d'indice $E(m)$ et la température des particules T_p sont constantes, l'équation II.29 se simplifie par :

$$S_{LII} = C_{\text{étal}} f v_{suie} \quad (\text{II.30})$$

La détermination du coefficient d'étalonnage $C_{\text{étal}}$ permettra donc de connaître directement la fraction volumique à partir des signaux LII. Pour cela, une mesure d'extinction est faite. Cette mesure consiste à effectuer le ratio entre l'intensité de référence I_0 d'un faisceau laser et l'intensité transmise I après passage dans la flamme de largeur L . Ce ratio permet ainsi de remonter à la fraction volumique des suies rencontrées par le faisceau. Pour cela, la loi de Beer-Lambert est utilisée [71] d'où :

$$\frac{I}{I_0} = \exp(-K_{\text{ext}}L) = \exp\left(-K_e \frac{f v_{suie}}{\lambda} L\right) \quad (\text{II.31})$$

Ainsi la comparaison entre le signal LII et la fraction volumique obtenus à l'endroit où est effectuée la mesure d'extinction permet d'obtenir le coefficient d'étalonnage. Ce coefficient est ensuite utilisé pour calibrer l'ensemble du signal LII enregistré sur la zone d'étude.

Dans la détermination du coefficient d'étalonnage, le coefficient d'extinction adimensionné K_e est de nouveau utilisé (équation II.31). Comme vu précédemment, ce coefficient dépend des propriétés optiques des suies et notamment de la fonction d'indice $E(m)$. On

a vu que les valeurs de ce coefficient dans la littérature étaient très dispersées, elles vont de 2 jusqu'à plus de 10 [58]. Ce coefficient a donc un impact important sur $C_{\text{étal}}$ et donc sur $f v_{\text{suie}}$. Il est donc capital de le déterminer expérimentalement. Il sera dans cette étude déterminé à partir de l'étude des propriétés optiques des suies faite par la suite.

II.5 Conclusion sur le contexte de l'étude

Cette étude se place donc dans le cas de la combustion d'un matériau solide sous forme d'une plaque verticale (cas d'un feu sur un mur). La propagation de la flamme jouant un rôle critique lors d'un incendie, il est donc nécessaire de comprendre tous les phénomènes mis en jeu. Un de ces phénomènes qui est encore mal connu est le rayonnement des particules de suie présentes dans la flamme. Ce dernier est souvent modélisé en utilisant des approximations. Le matériau choisi pour cette étude est le PMMA compte tenu de ses propriétés et de sa fréquente utilisation. Les particules de suies produites par la combustion de ce matériau vont être décrites dans cette étude grâce à différentes caractéristiques : le diamètre et le nombre des sphérules, les diamètres de mobilité et de giration, la dimension fractale, ainsi que les propriétés optiques spectrales. Ces termes vont permettre d'avoir les données nécessaires, hormis la fraction volumique, pour mieux quantifier le rayonnement des particules de suie dans les modèles. La fraction volumique de suies sera déterminée à l'aide de la LII. Les propriétés optiques obtenues (notamment le coefficient d'extinction adimensionné) serviront à calibrer cette méthode de mesure. Ainsi la caractérisation complète des suies (morphologie, propriétés optiques et concentration) produites par la combustion du PMMA sera effectuée. Le chapitre suivant va donc décrire les moyens expérimentaux mis en oeuvre pour déterminer ces différents termes.

Chapitre III

Description des dispositifs expérimentaux et méthodes de mesure

Le chapitre précédent a montré qu'il était nécessaire, pour mieux comprendre la propagation d'une flamme sur un matériau solide en position verticale, d'être capable de quantifier le rayonnement émis par les particules de suie. Pour cela, une étude complète sur la morphologie des suies et leurs quantifications est une étape indispensable. Les différents dispositifs expérimentaux ainsi que les méthodes de mesure utilisées pour permettre cela vont donc être décrits dans ce chapitre. Dans un premier temps est présenté le dispositif conçu pour la combustion des plaques de PMMA. Ensuite sera décrit le brûleur gaz mis en place pour avoir une flamme stationnaire plus facilement utilisable que celle du PMMA. Enfin les diagnostics optiques et les systèmes de prélèvement des suies ainsi que les mesures associées seront détaillés.

III.1 Dispositif pour la combustion du PMMA

III.1.1 Description du support et des plaques de PMMA

La configuration d'étude choisie est un feu de paroi verticale (chapitre 2.1). Le matériau solide en combustion sera donc sous forme d'une plaque disposée verticalement. Le montage s'inspire de celui utilisé par Pizzo et al. [15] pour permettre une comparaison de certains résultats. Le PMMA utilisé comme combustible solide pour cette étude est un PMMA acrylique transparent de type G (Delire Provence Caoutchouc). Les plaques sont découpées pour avoir une dimension de 450 mm x 250 mm et une épaisseur de 30 mm (figure III.1). Cette dimension correspond à celle utilisée par Pizzo et al. [15]. Ces plaques sont percées de quatre trous afin de les fixer sur un support en acier (+ sur la figure III.1). Ces trous sont situés dans les coins de la plaque à 12,5 mm des bords. Dans le but d'incruster un cadre sur le bord de ces plaques, elles sont aussi creusées de 10 mm en profondeur tout autour sur une bande de 27 mm de large. Le repère qui sera utilisé par la suite est constitué des trois axes suivants : z correspond à l'axe vertical (hauteur de la plaque), x à l'axe horizontal parallèle à la surface du PMMA (largeur de la plaque) et y à l'axe horizontal perpendiculaire à cette dernière (épaisseur).

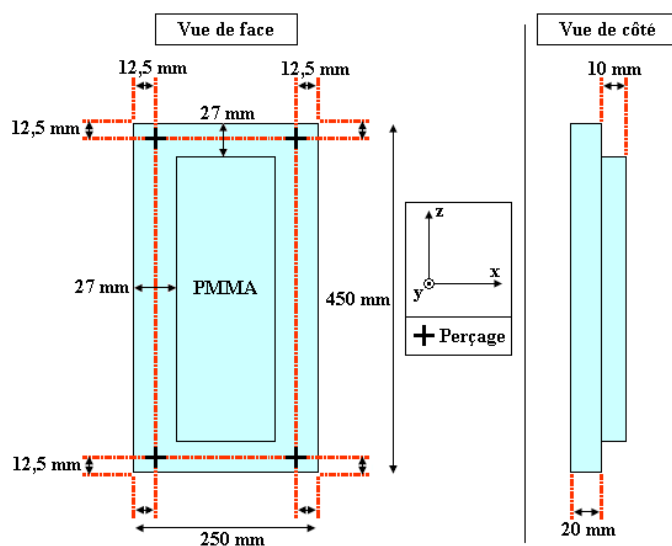


FIGURE III.1 – Dimensions de la plaque de PMMA

Le support en acier est constitué de deux plaques, de taille 600 mm x 250 mm, qui

permettent de maintenir la plaque de PMMA pendant sa combustion (figure III.2) : cette dernière est ainsi prise en sandwich entre ces deux plaques en acier ce qui permet d'éviter les problèmes de gonflement et d'ondulation sous l'effet du rayonnement de la flamme [34]. La face arrière est constituée d'une plaque pleine. Le cadre en face avant limite la zone de combustion sur une zone de 400 mm x 200 mm ce qui permet d'avoir une combustion « maîtrisée » de la plaque de PMMA. L'épaisseur de ce cadre est de 5 mm, ce qui permet d'avoir la surface du PMMA qui dépasse de 5 mm (vue de côté) au début de l'expérience (cela aura son importance par la suite d'un point de vue visualisation de la flamme compte tenue de la régression de la surface due à la pyrolyse). Le cadre servira de point de repère pour l'axe suivant y ($y = 0$ à la surface de celui-ci) et pour l'axe suivant z ($z = 0$ en bas de celui-ci). Le haut du cadre est prolongé d'environ 16 cm (par rapport à la taille de la plaque de PMMA) pour éviter des effets de bord et donc une perturbation du haut de la flamme.

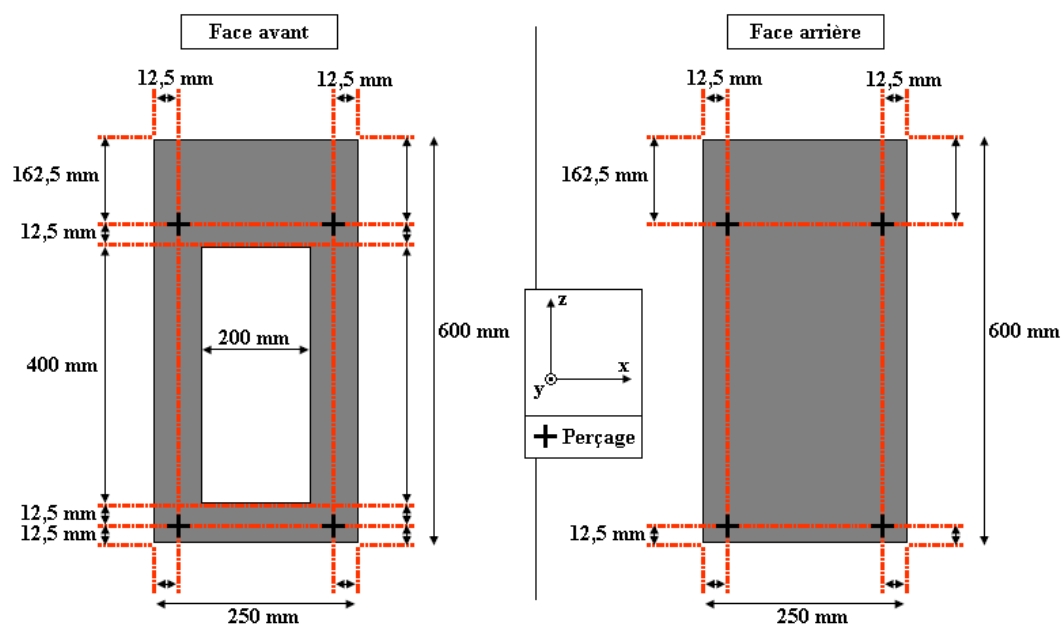


FIGURE III.2 – Dimensions des plaques en acier servant à maintenir la plaque de PMMA et à délimiter la zone de combustion

Le support complet (plaques aciers + plaque PMMA) est ensuite fixé sur un double déplacement motorisé (ISEL, figure III.3). Cela permet d'effectuer des déplacements dans les directions y (perpendiculaire à la surface de la plaque de PMMA) et z (hauteur de la

plaque).

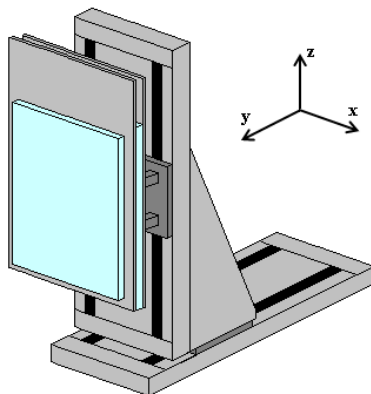


FIGURE III.3 – Disposition du support et de la plaque de PMMA sur un double déplacement motorisé suivant les axes y et z

III.1.2 Allumage et extinction

L'allumage de la plaque de PMMA est initié à l'aide d'un barreau chauffant (figure III.4). Ce barreau (Acim Jouanin) est constitué d'une résistance électrique de 2 kW et permet d'obtenir une température homogène à sa surface sur sa longueur efficace (25 cm de long pour un diamètre de 2 cm). Un thermocouple fixé à sa surface procure la valeur de la température. Le barreau est préalablement mis en chauffe jusqu'à une température de 1123 K avant d'être mis devant le bas de plaque de PMMA grâce à un support pivotant, à une distance de 1 cm. Un allumage homogène du bas de la plaque est ainsi obtenu au bout de 30 s par rayonnement du barreau. Pour éviter un préchauffage et une dégradation du reste de la plaque, un capot est placé au-dessus du barreau afin de déporter les gaz chauds. Un chronomètre est mis en marche dès l'apparition de la flamme, qui sert de repère temporel ($t = 0$ s). Le barreau est alors retiré (par pivotement) puis mis hors tension. Ce dispositif permet l'obtention d'un allumage reproductible, l'allumage étant un paramètre important puisqu'il conditionne la future propagation.

La zone de combustion est centrée sous une hotte aspirante à une distance suffisante (1,3 m du haut de la plaque de PMMA) pour ne pas perturber le développement naturel du feu. Une fois la fin de l'expérience, la flamme est éteinte à l'aide d'un extincteur à CO_2 .

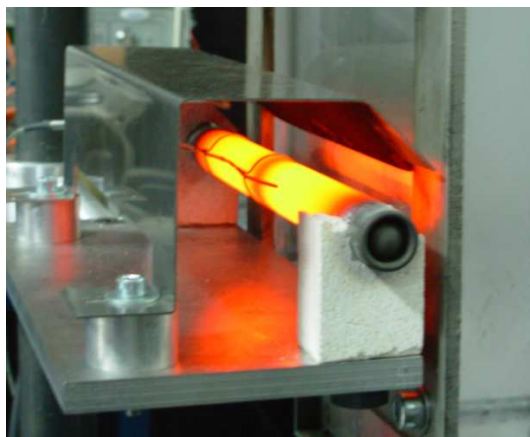


FIGURE III.4 – Photo du barreau chauffant utilisé pour l’allumage de la plaque de PMMA

Afin de protéger l’appareillage électronique situé à proximité de la zone de combustion, un système de confinement a été mis en place. Un caisson en aluminium est descendu devant la plaque de PMMA en feu grâce à un système de balancier (figure III.5). Un orifice au dos de celle-ci permet d’introduire le tromblon de l’extincteur et ainsi d’éteindre proprement et rapidement la flamme. Une pesée des plaques est effectuée pour chaque allumage, avant et après la combustion, pour obtenir la perte de masse totale.



FIGURE III.5 – Système de confinement pour l’extinction de la plaque de PMMA avec un extincteur à CO_2 : position relevée pendant le déroulement des expériences (à gauche) et position abaissée pour l’extinction (à droite)

III.2 Brûleur gaz

La flamme obtenue avec la combustion du PMMA n'est pas facilement utilisable pour mettre en place les différentes techniques de mesure (à cause de la propagation de la flamme, du temps de changement d'une plaque, etc...). Pour cela, un brûleur gaz a été mis en place pour avoir à disposition une flamme stationnaire allumable et éteignable rapidement. Ce brûleur est une version modifiée du brûleur utilisé durant les travaux de thèse de Coutin [73]. La flamme de celui-ci servira donc à la mise en place des techniques de mesure, mais également de moyen de comparaison avec la flamme du PMMA et de support pour la calibration de la LII (chapitre 4.4).

III.2.1 Débitmètries

Le brûleur gaz est alimenté avec un mélange méthane/éthylène afin d'obtenir une flamme suffisamment fuligineuse. Le méthane utilisé est du méthane G20. L'éthylène lui est de l'éthylène N35 (pure à 99,95 %). Après le détendeur en sortie de bouteille, l'éthylène passe par une vanne, un manomètre puis un col sonique en cuivre de 1 mm pour régler le débit (figure III.6). Le méthane, quant à lui, est séparé en deux lignes : une vanne, un manomètre et un col sonique en cuivre de 0,8 mm pour la première et un col sonique en cuivre de 0,2 mm pour la seconde. La première ligne est mélangée avec l'éthylène avant d'atteindre un rotamètre puis le brûleur gaz. La deuxième arrive vers une rampe qui sert à accrocher le bas de la flamme du brûleur. Cette rampe est sous la forme d'un tube cylindrique percé d'une ligne de trous de diamètre 1 mm tous les 5 mm sur une longueur de 25 cm (largeur du poreux en bronze) dont l'extrémité est bouchée.

Les différents cols soniques utilisés sont calibrés avec le gaz associé à l'aide d'un compteur gaz (figure III.7). La linéarité des courbes montre que le régime sonique est bien établi pour ces valeurs de pression manométrique. Les débits d'utilisation sont : 1,8 L.min⁻¹ pour le méthane de la rampe ($P_{mano} = 1,5$ bar), 21,5 L.min⁻¹ pour le méthane du brûleur ($P_{mano} = 2$ bar) et 24,5 L.min⁻¹ pour l'éthylène du brûleur ($P_{mano} = 2$ bar). Cela donne au final une flamme alimentée avec 51 % d'éthylène et 49 % de méthane.

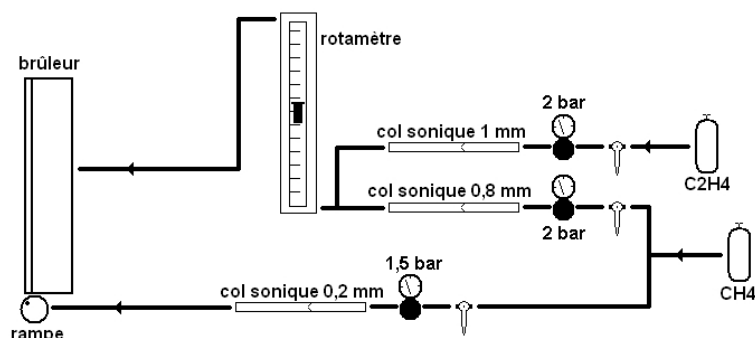


FIGURE III.6 – Débitmétries utilisées pour l'alimentation du brûleur gaz et de la rampe

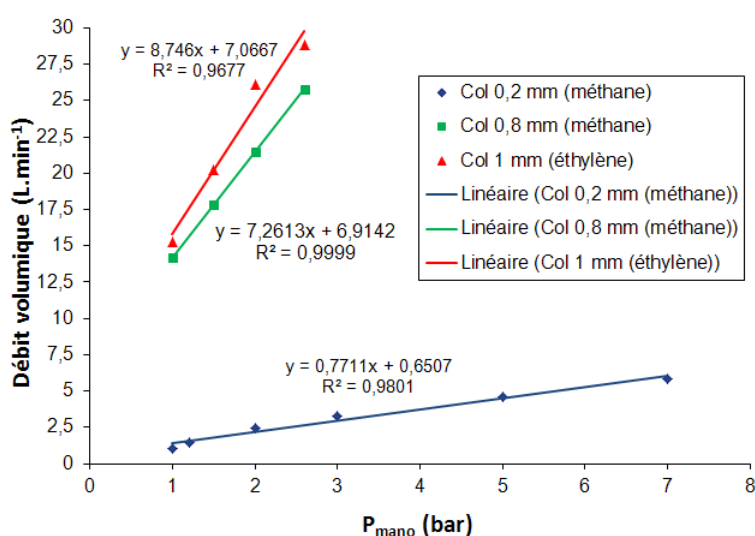


FIGURE III.7 – Etalonnage des cols soniques en cuivre suivant le gaz utilisé

III.2.2 Description du brûleur

Le brûleur gaz est constitué d'un poreux en bronze, d'une épaisseur de 20 mm, en position verticale de taille 400 mm x 250 mm (figure III.8), fixé devant une chambre de tranquillisation, par lequel les gaz sortent de manière horizontale. Ce brûleur a déjà été utilisé dans d'autres études [74, 75, 73]. Ce poreux a donc des dimensions proches de celles de la zone de combustion pour les plaques de PMMA. Il est parcouru par un serpentin (d'un diamètre de 8 mm) alimenté en eau maintenue à 338 K (utilisation d'un thermoplongeur dans un circuit fermé). Cela permet d'éviter la condensation de l'eau produite par la flamme sur la surface qui, mélangée aux suies, encrasserait le poreux. Une paroi en acier est disposée autour de ce dernier (figure III.9), derrière laquelle se

trouve un échangeur thermique (circuit d'eau froide alimenté en continu) afin de limiter l'échauffement de la paroi ainsi que la dérive du brûleur au cours du temps. Cela permet d'avoir une flamme plus stable et un temps de fonctionnement plus long. La paroi sert aussi à éviter les effets de bord autour du poreux. Enfin, comme dit précédemment, une rampe sert à stabiliser et accrocher le bas de la flamme. Ce brûleur permet d'obtenir au final une flamme d'environ 1,5 m de hauteur.

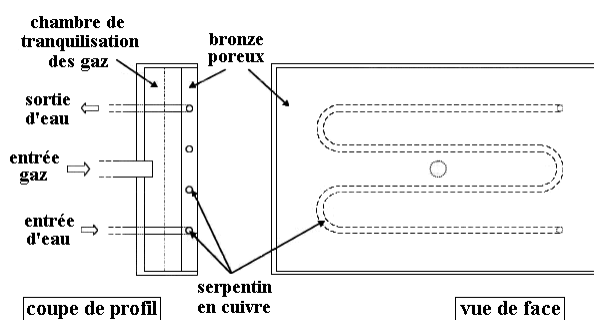


FIGURE III.8 – Schéma du poreux en bronze et de la chambre de tranquillisation du brûleur gaz [73]

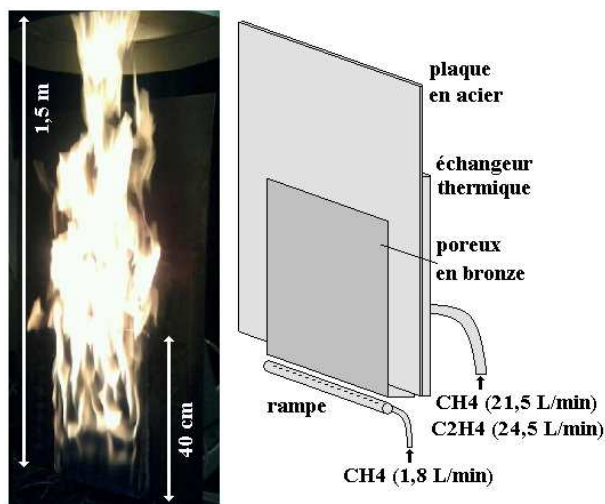


FIGURE III.9 – Photo et schéma du brûleur gaz

Le brûleur gaz est directement fixé, comme pour la plaque de PMMA, sur le double déplacement motorisé (figure III.3). Ce brûleur permet donc d'avoir une flamme turbulente de type feu de paroi mais plus stationnaire dans le temps (avec la présence d'une légère dérive dans le temps, et cela malgré la mise en place d'un échangeur thermique (figure

III.9)). Typiquement, une flamme d'incendie est caractérisée par un nombre de Froude initial Fr_{ini} petit de l'ordre de 10^{-6} à 10^{-4} [76]. Sur ce brûleur, Coutin [73] a estimé que la flamme produite (en utilisant différents gaz tels que le propane, le méthane et l'acétylène) correspond à un nombre de Froude initial de l'ordre de 2.10^{-6} à 6.10^{-5} et donc qu'elle est bien représentative d'une flamme d'incendie. Cette gamme de nombre de Froude correspond à une fourchette de 18 à 90 kW pour la puissance calorifique \dot{Q} . La puissance calorifique théorique du brûleur utilisé dans cette étude (compte tenu des débits de gaz) est d'environ 50 kW (en prenant $PCI(CH_4) = 9,94 kWh.m^{-3}$ et $PCI(C_2H_4) = 16,5 kWh.m^{-3}$). Cette puissance est donc bien dans la fourchette représentative de la puissance d'un feu de paroi réelle.

III.3 Diagnostics optiques in-situ

Différents diagnostics optiques in-situ sont utilisés dans les deux flammes présentées précédemment. Les dispositifs expérimentaux et les appareils utilisés pour ces diagnostics sont détaillés dans cette partie. Tout d'abord est présenté le dispositif de LII servant à la mesure de la fraction volumique de suie. Puis sera présentée la mesure d'extinction spectrale in-situ faite avec le passage d'un faisceau laser blanc dans la flamme.

III.3.1 Mesure de la fraction volumique de suie par LII

La figure III.10 présente le dispositif expérimental pour la mesure d'Incandescence Induite par Laser (détails de la méthode vue précédemment dans le chapitre 2.4).

La LII nécessite tout d'abord l'utilisation d'un laser pulsé. Le laser utilisé est un Nd : YAG (Quantel Brio, figure III.11). Le Nd : YAG (Neodyme : Yttrium-Aluminium-Garnet) correspond à la composition du milieu amplificateur qui est activé à l'aide d'une lampe flash (FL). Ce milieu amplificateur sert de réserve d'énergie qui est libérée en une fois pour générer un pulse laser énergétique : cela s'appelle le Q-Switch (QS). Le temps entre le signal (TTL) de déclenchement de la lampe flash et celui du Q-Switch peut être modifié, ici il sera de $140 \mu s$ pour permettre un fonctionnement plus stable. Le temps entre le signal

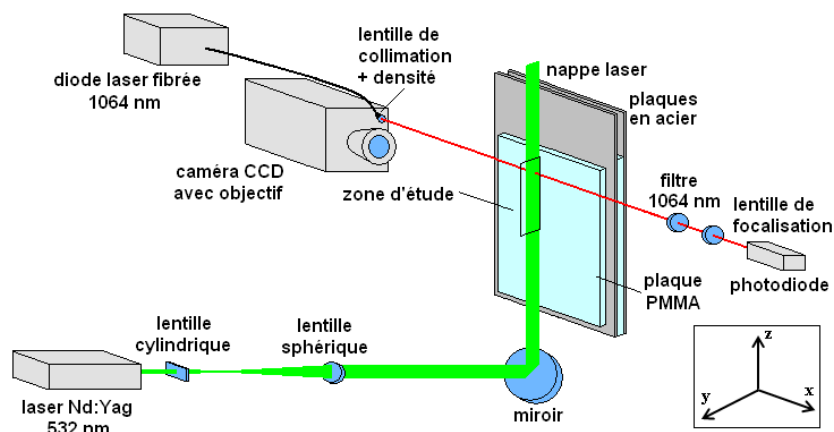


FIGURE III.10 – Dispositif expérimental pour la mesure LII couplée avec une mesure d'extinction

du Q-Switch et la sortie du pulse laser est obligatoirement de 50 ns. Ce système génère des pulses de 5 ns avec une cadence de 20 Hz et une longueur d'onde de 1064 nm (longueur d'onde fondamentale). Il est possible d'utiliser la seconde harmonique (532 nm) en utilisant un module générateur d'harmoniques à 2ω . La puissance maximum disponible est de 120 mJ à 1064 nm et de 65 mJ à 532 nm. Un module d'atténuation du faisceau (BAM) permet de choisir la fluence en sortie du laser en imposant un pourcentage d'intensité que l'on laisse passer. A l'aide d'un puissance-mètre, on obtient la correspondance entre la puissance en sortie du laser et le pourcentage appliqué à l'atténuateur (figure III.12). Cela permet aussi de vérifier que l'on a une relation de linéarité entre ce pourcentage et la puissance laser. Dans cette étude, une longueur d'onde de 532 nm et une fluence de $0,08 \text{ J/cm}^2$ sont utilisées. La justification de ces choix sera faite dans le chapitre 4.1.



FIGURE III.11 – Photo du laser Nd : Yag

Ensuite un jeu de lentilles permet la formation d'une nappe laser à partir du faisceau

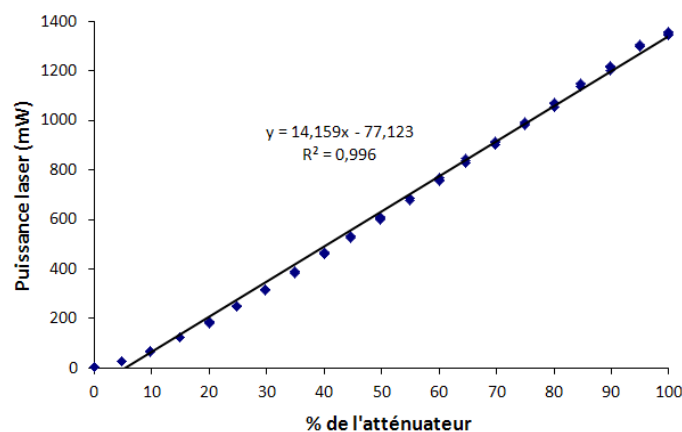


FIGURE III.12 – Puissance du faisceau en sortie du laser en fonction du pourcentage appliqué au BAM

gaussien (d'un diamètre de 4 mm). Tout d'abord une lentille cylindrique de focale $f = -10$ cm est située à 13 cm de la sortie du laser. Puis, à une distance de 110 cm par rapport à la lentille cylindrique, une lentille sphérique de focale $f = 100$ cm est placée. La nappe ainsi formée arrive enfin sur un miroir (distant de 65 cm par rapport à la lentille sphérique) afin de la rediriger devant la plaque de PMMA ou le brûleur gaz, dans le plan (y,z) et avec une direction verticale et parallèle à la surface de ces derniers. Ce miroir est situé à environ 20 cm en dessous du bas de la plaque de PMMA. Cette configuration a été choisie afin de pouvoir visualiser l'épaisseur de la flamme (suivant y) ainsi que la hauteur (suivant z) mais sur une largeur de flamme fine (suivant x). Cela permet d'avoir une coupe de la flamme sur son épaisseur. Entre la sortie du laser et le milieu de la plaque de PMMA, le faisceau parcourt une distance d'environ 2,5 m. Le décalage temporel engendré par cette distance (environ 10 ns) n'est donc pas négligeable et sera pris en compte par la suite. La nappe laser est placée à 5 cm du bord de la flamme suivant la direction x et du côté où se situe la caméra. Celle-ci a une très faible divergence ce qui lui permet d'avoir une taille quasiment constante sur la hauteur de la plaque de PMMA. Une étude de l'homogénéité de cette nappe sera effectuée dans le chapitre 4.1.

La caméra utilisée pour enregistrer les signaux LII (figure III.13) est une caméra CDD (coupled charge device) intensifiée (Princeton PIMAX 2) dont le capteur a une dimension de 1024 x 1024 pixels. L'intensificateur est composé d'une photocathode, d'une plaque

microcanaux constituée de multiplicateurs d'électrons et d'un écran phosphore. Il permet d'amplifier fortement le signal enregistré. Le domaine de visibilité de la caméra est situé autour du spectre visible (figure III.13, l'intensificateur de la caméra utilisé étant un GEN II RB). Cette caméra est placée à 90° par rapport à la direction de la nappe laser. Cela permet d'enregistrer des champs 2D suivant z et y sur toute la largeur de la nappe. Pour faire une mise au point au niveau de la nappe laser, la caméra est équipée d'un objectif (Nikon 50 mm) dont l'ouverture est fixée à $f/1,2$ pour capter le maximum de signal. La zone d'étude obtenue a une hauteur d'environ 13 cm (suivant z) et une largeur de 3 cm (suivant y) avec une résolution de $125 \mu\text{m}/\text{pixel}$. Un filtre passe bande de $410 \text{ nm} \pm 50 \text{ nm}$ est également placé devant la caméra. Le choix de ce filtre sera justifié dans le chapitre 4.2. Le contrôle de la caméra se fait sous le logiciel Winview, qui permet un réglage du temps d'ouverture (gate width) et du retard (gate delay) par rapport à un trigger externe. Un gate width de 70 ns et un gate delay de 30 ns sont utilisés. Les valeurs de ces temps seront justifiées dans le chapitre 4.2.

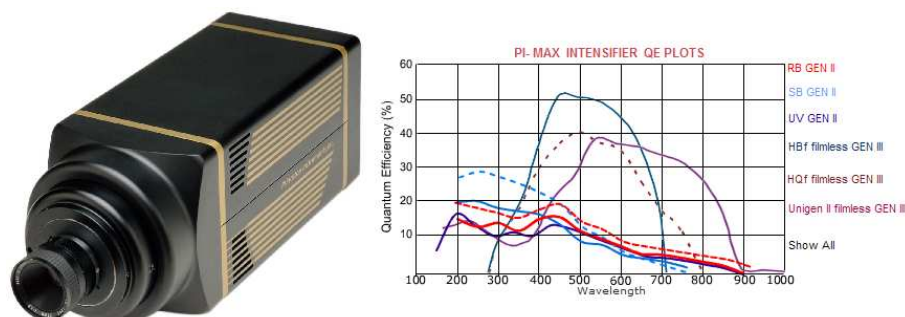


FIGURE III.13 – Photo de la caméra et efficacité en fonction de longueur d'onde (courbe constructeur), l'intensificateur de la caméra utilisé étant un GEN II RB

Afin de calibrer le signal LII enregistré, un montage d'extinction a été mis en place [71]. Une diode laser fibrée (Keopsys) générant un faisceau continu à 1064 nm est utilisée. Cette longueur d'onde de 1064 nm a été choisie afin de pouvoir négliger la diffusion. Une lentille de collimation et une densité sont placées en sortie de fibre pour avoir un faisceau non divergent de petite taille (environ 2 mm de diamètre) et de faible intensité (pour ne pas saturer le système de détection). Après passage dans la flamme en passant par une zone commune avec la zone d'étude enregistrée par la caméra, le faisceau arrive sur un

système de détection pour mesurer son intensité. Ce système est composé d'un filtre passe bande centré sur 1064 nm, d'une lentille de focalisation ($f = 5$ cm) et d'une photodiode reliée à un oscilloscope (Lecroy). La mesure est faite en extinction directe (simple passage) compte tenue de la largeur de la flamme traversée (environ 20 cm) à une position $y = 1$ cm et $z = 34$ cm. Ce montage complet permet donc d'obtenir simultanément l'enregistrement du signal LII sur la zone d'étude et la mesure d'extinction (à 1064 nm).

III.3.2 Mesure spectrale d'extinction in-situ

Dans l'optique d'avoir plus d'information sur les suies produites par la combustion du PMMA, une mesure spectrale d'extinction est effectuée. Grâce à l'utilisation d'un laser blanc, cette mesure peut être faite en in-situ. Le dispositif expérimental mis en place pour cela est présenté sur la figure III.14.

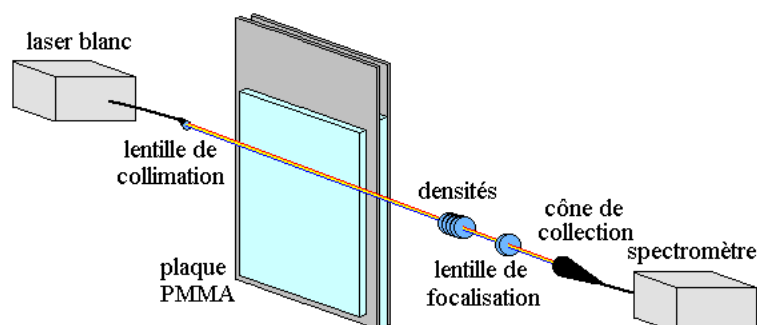


FIGURE III.14 – Dispositif expérimental pour la mesure spectrale d'extinction in-situ

Le laser blanc utilisé (Leukos) est un laser continu fibré qui génère un faisceau dont le spectre s'étend de 400 à 2400 nm (figure III.15). Ce laser fournit donc un large spectre continu. Le pic d'intensité présent pour une longueur d'onde de 1064 nm est la résultante de la longueur d'onde du laser pompe utilisé. Ce pic empêchera d'obtenir des mesures autour de 1064 nm. Une lentille de collimation est située en sortie de fibre afin d'avoir un faisceau non divergent de petite taille (environ 2 mm de diamètre). Après passage dans la flamme, le faisceau traverse des densités pour atténuer l'intensité afin de ne pas saturer le détecteur. Puis il traverse une lentille de focalisation suivie d'un cône de collection (composé d'une lentille dont la distance avec la sortie du cône est réglable) qui permettent

de le focaliser dans une fibre. L'axe du cône peut également être décalé ou incliné afin d'aligner correctement le faisceau et la fibre. Cette dernière est reliée à un spectromètre (Maya Oceanoptics) qui couvre une gamme spectrale de 200 à 1100 nm. Celui-ci permet l'enregistrement d'un spectre complet par seconde grâce à un réseau qui étale les longueurs d'onde collectées sur un capteur CCD. Ce spectromètre a une plage dynamique de 15000 :1 et un rapport signal sur bruit d'environ 450 :1. Les spectres enregistrés sont moyennés sur un temps de 20 s. Ces spectres sont ensuite traités à l'aide d'un logiciel (SpectraSuite). La flamme de PMMA étant instationnaire, cette extinction spectrale sera mesurée en fonction du temps. Lors du traitement des signaux, une soustraction du spectre de l'émission de la flamme $I_{fl}(\lambda)$ est effectuée pour obtenir le coefficient d'extinction suivant la relation :

$$K_{ext}(\lambda) = -\frac{1}{L} \ln \left(\frac{I(\lambda) - I_{fl}(\lambda)}{I_0(\lambda)} \right) \quad (\text{III.1})$$

avec L la largeur de flamme traversée, $I_0(\lambda)$ le spectre référence du faisceau laser seul et $I(\lambda)$ le spectre du faisceau laser après passage dans la flamme.

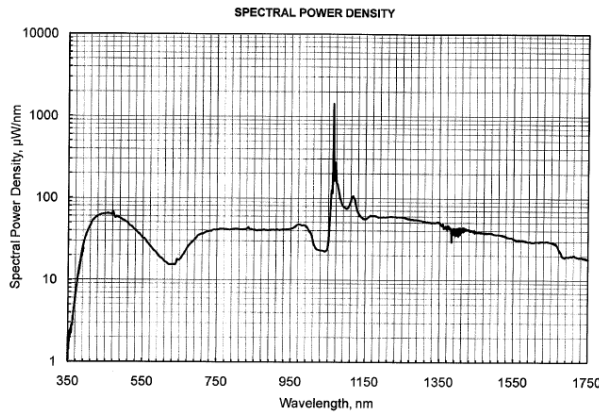


FIGURE III.15 – Spectre d'émission du laser blanc (données constructeur)

Ce dispositif permet donc d'obtenir l'extinction spectrale in-situ, mais pour pouvoir remonter aux propriétés optiques des suies il est nécessaire de connaître leur concentration massique. Pour cela un prélèvement des suies dans la flamme est indispensable. Un dispositif de prélèvements a donc été utilisé.

III.4 Mesures ex-situ

Pour permettre d'effectuer une mesure des propriétés optiques des suies ainsi que des caractéristiques morphologiques, l'utilisation de méthodes ex-situ est nécessaire. Un système de prélèvement a donc été utilisé pour générer un aérosol des suies présentes dans la flamme. Différentes mesures sont ensuite effectuées sur cette aérosol. Après avoir présenté le système de prélèvement, les méthodes pour mesurer le diamètre de mobilité, la concentration massique et l'extinction spectrale ex-situ seront détaillées. Enfin sera expliqué le protocole de prélèvement des suies sur grilles de microscope électronique dans l'optique d'obtenir le diamètre des sphérules, le diamètre de giration ainsi que la dimension fractale de ces particules. La flamme de PMMA étant instationnaire, les différentes mesures énoncées seront effectuées en fonction du temps.

III.4.1 Système de prélèvement des suies (FPS)

Afin d'effectuer le prélèvement des particules de suie présentes dans la flamme, un FPS (Fine Particle Sampler - 4000, Dekati) est utilisé [60]. Ce dispositif est équipé d'une sonde de prélèvement et d'un double système de dilution (figure III.16). Il est possible de contrôler le débit d'aspiration, le taux de dilution ainsi que la température. La sonde de prélèvement a été modifiée avec l'adaptation d'un embout en céramique afin de pouvoir résister à la chaleur de la flamme [77]. Mais pour éviter une surchauffe du dispositif proche de la flamme, la sonde n'est laissée au maximum qu'une minute au contact de cette dernière (la flamme est déplacée à l'aide du déplacement motorisé suivant y). Un système de chauffage permet de contrôler la température au niveau de la sonde. Le premier système de dilution permet une dilution à chaud afin de maintenir la température de l'échantillon (grâce également à un contrôle de la température de chauffe de l'air pour la dilution). Les deux systèmes de chauffage permettent d'éviter la condensation de la vapeur d'eau et de particules volatiles autour des particules de suie [58]. Ces deux systèmes de chauffage sont maintenus à 423 K. L'aspiration s'effectue ensuite grâce à un éjecteur alimenté en air comprimé non chauffé (2^{ème} système de dilution). Une dépression est provoquée par effet Venturi à l'aide d'un col ce qui entraîne les particules dans la sonde. Un débit d'aspiration

d'environ $15 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ est ainsi obtenu. Afin de connaître le taux de dilution pendant le prélèvement, le dispositif est équipé de thermocouples et de capteurs de pression (la valeur du taux de dilution étant donnée par le logiciel qui pilote le FPS). Une gamme de dilution entre 7 et 12 sera utilisée. Toutes les mesures présentées par la suite seront corrigées par le taux de dilution utilisé. Plusieurs sorties au bout du dispositif permettent d'envoyer l'aérosol vers différents appareils de mesure. Ici, toutes ces sorties seront regroupées en une seule. Le prélèvement sera effectué à $z = 34 \text{ cm}$, $y = 1 \text{ cm}$ et $x = 10 \text{ cm}$ (qui correspond au milieu de la flamme).

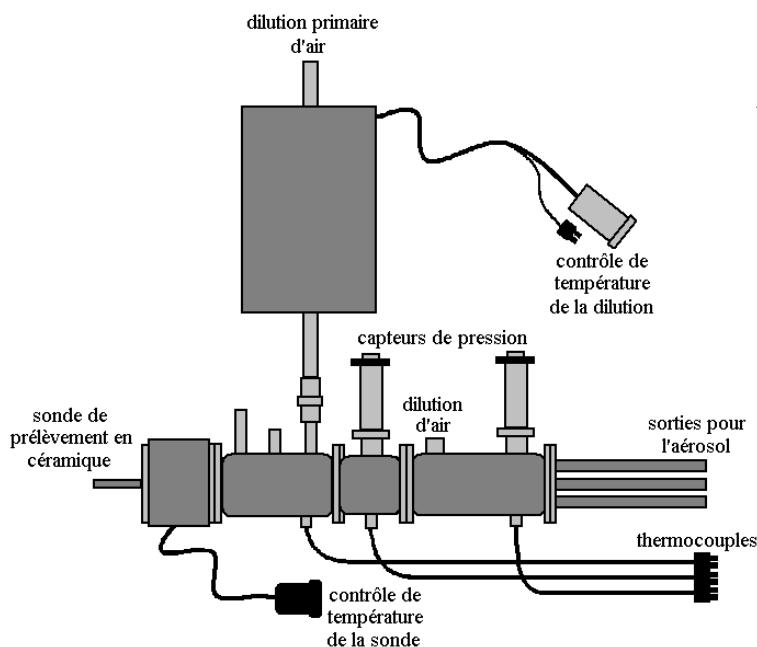


FIGURE III.16 – Schéma de la sonde de prélèvement et du système de dilution

III.4.2 Mesure du diamètre de mobilité (DMS)

Le premier appareil de mesure utilisable après la création de l'aérosol de suies par prélèvement est un appareil qui mesure la taille des particules de suie. Celui utilisé ici est un DMS 500 (Intertek, figure III.17). Son fonctionnement repose sur le tri des particules en fonction de leur mobilité électrique à l'aide d'une colonne DMA (Differential Mobility Analyser). La mobilité électrique Z_p dépend du diamètre de mobilité D_m (m) suivant la relation (équation II.8) :

$$Z_p = \frac{NeC_c}{3\pi\mu D_m}$$

Les particules de l'aérosol sont soumises à un champ électrique dans la colonne et vont ainsi être déviées différemment selon leur mobilité électrique donc selon leur diamètre de mobilité. Des capteurs vont ensuite permettre de compter le nombre de particules en fonction de leur trajectoire ce qui permet d'obtenir une distribution en diamètre de mobilité de l'aérosol étudié.

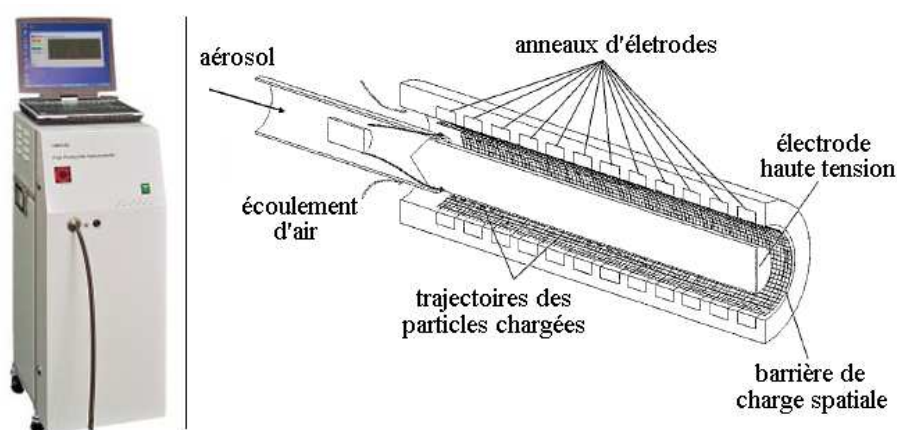


FIGURE III.17 – Photo du DMS et schéma du principe de fonctionnement du DMA

Dans le cas des particules de suies, le diamètre mesuré par le DMS est un diamètre de mobilité équivalent, c'est-à-dire le diamètre d'une sphère qui aurait une déviation identique soumis au même champ électrique que la particule étudiée. Le DMS aspire l'aérosol avec un débit de $8 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ et il est équipé d'une dilution interne pour ne pas saturer les capteurs en particules. Il couvre une gamme de mesure de 5 à 2500 nm et donne les distributions à partir de 22 classes qui correspondent aux 22 électrodes de mesure. Sa fréquence d'acquisition est de 10 Hz au maximum, soit une mesure en temps réel, qui sera fixé à une mesure par seconde dans notre cas. Il permet donc finalement d'obtenir la distribution en diamètres de mobilité de l'aérosol étudié. L'avantage de cette mesure est qu'elle permet d'obtenir facilement et rapidement un diamètre caractéristique des agrégats de suie. Cela permet également de pouvoir faire varier, par exemple, la hauteur de mesure

ou de suivre l'évolution du diamètre dans le cas d'une flamme instationnaire (flamme de PMMA). Ce diamètre est donc plus facilement accessible que la mesure du diamètre de giration présentée par la suite.

III.4.3 Mesure de la concentration massique (TEOM)

Afin de déterminer les propriétés optiques des suies, il est nécessaire de connaître leur concentration massique C_s . Le TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance, series 1105) est un appareil qui permet d'obtenir cette concentration massique d'un aérosol (figure III.18) [17]. Son fonctionnement repose sur le principe d'une microbalance inertielle. Le débit d'aspiration de l'aérosol est de $3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. L'écoulement rencontre ensuite un filtre interchangeable qui est monté sur un élément oscillant. Cet élément a une extrémité libre (où se situe le filtre) pouvant osciller naturellement et une autre fixe. L'ensemble microbalance et filtre est maintenue à 323 K pour éviter la condensation de la vapeur d'eau.

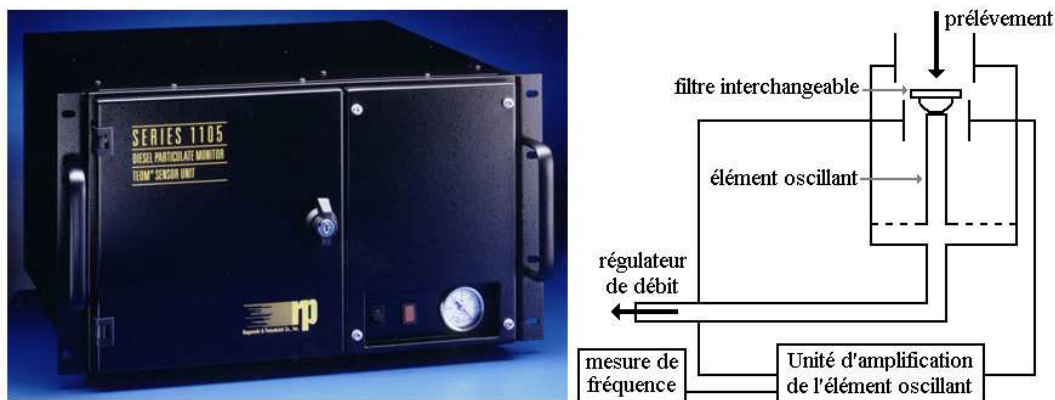


FIGURE III.18 – Photo et schéma de principe du TEOM series 1105

Compte tenu de la masse du filtre (à vide) et de l'écoulement appliqué (sans aérosol), l'élément oscille à une fréquence naturelle de 250 Hz . Quand un aérosol est aspiré, les particules se déposent sur le filtre. La masse du filtre augmente donc ce qui entraîne une diminution de la fréquence d'oscillation. Ainsi la variation de fréquence ($f_1 - f_0$) permet d'obtenir la variation de masse Δm suivant la relation :

$$\Delta m = K_0 \frac{1}{f_1^2 - f_0^2} \quad (\text{III.2})$$

avec K_0 : constante spécifique d'élasticité. Le TEOM permet de mesurer des variations de masse de l'ordre de 10 ng et de remonter à la concentration massique de l'aérosol étudié. Pour cela, deux méthodes permettent d'obtenir la concentration massique : le suivi temporel de la concentration massique et le suivi temporel de l'augmentation linéaire de la masse. Pour le suivi temporel de la concentration massique, la valeur prise correspond à une moyenne sur les valeurs maximales obtenues. Pour le suivi temporel de l'augmentation linéaire de la masse, le calcul de la pente de la droite donne directement la concentration massique.

III.4.4 Mesure spectrale d'extinction ex-situ

Simultanément avec les mesures du DMS et du TEOM, une mesure de l'extinction spectrale est effectuée. L'écoulement provenant du prélèvement fait avec le FPS passe tout d'abord par un banc de turbidimétrie (figure III.19) avant d'être redirigé vers les autres appareils de mesure (DMS et TEOM).

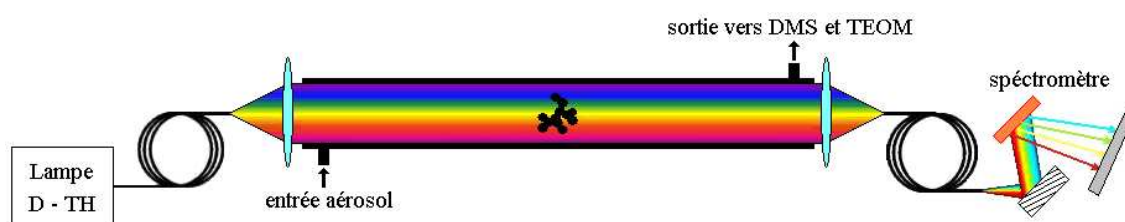


FIGURE III.19 – Banc de turbidimétrie pour la mesure de l'extinction spectrale ex-situ

Ce banc de turbidimétrie permet d'effectuer une mesure d'extinction spectrale ex-situ par simple passage grâce à l'utilisation d'une source lumineuse à large spectre [78]. Cette source est une lampe Deutérium - Tungstène-Halogène (Oceanoptics DH-2000-CAL) qui émet un faisceau spectralement continu de 200 à 1100 nm. L'aérosol est injecté dans une cellule fermée de 1,5 m de long. A l'intérieur de la cellule, un jeu de lentilles permet d'avoir

un faisceau lumineux élargi et collimaté qui est ensuite refocalisé dans une fibre. Cette fibre est connectée à un spectromètre (Maya Oceanoptics), identique à celui utilisé pour la mesure d'extinction in-situ. Les spectres enregistrés sont moyennés sur un temps de 20 s comme pour la mesure in-situ. Ce dispositif permet donc d'obtenir l'extinction spectrale mais cette fois-ci en ex-situ (c'est-à-dire pour des suies « froides », non soumises à la température de la flamme). L'avantage de cette étude par prélèvement est que l'on peut coupler la mesure d'extinction avec les autres mesures faites simultanément comme par exemple avec la concentration massique. Cela permet de remonter à l'extinction spécifique σ_s puis à la fonction d'indice $E(m)$ des suies, comme vu dans le chapitre 2.3, en utilisant l'équation II.21 :

$$K_{ext}(\lambda) = \sigma_s(\lambda) C_s = \frac{6\pi E(m, \lambda) C_s}{\lambda \rho_s}$$

III.4.5 Diamètre de giration et dimension fractale (MET)

Pour pouvoir utiliser le modèle de la RDG-FA et remonter au rayonnement des particules de suie, il faut connaître les caractéristiques morphologiques de celles-ci (chapitre 2.3). Pour cela, un autre type de prélèvement est effectué. Celui utilisé est un prélèvement thermophorétique dont le fonctionnement repose sur le principe de la thermophorèse [79]. Ce dispositif de prélèvement (figure III.20) est constitué d'un vérin à air comprimé et d'une pince. Le vérin permet d'avancer et de reculer rapidement la pince. Grâce à l'utilisation d'un boîtier électronique, le temps de maintien en position dans la flamme peut être réglé jusqu'à un minimum de quelques millisecondes. Une micro-grille est fixée au bout de la pince en position verticale (pour éviter le phénomène d'impaction) afin d'être introduite dans la flamme. Par thermophorèse, les suies de la flamme vont venir se coller sur cette grille mais le temps de séjour dans la flamme ne doit pas être trop long pour ne pas surcharger la grille en particules. Le temps utilisé dans cette étude est de 200 ms pour les deux types de flamme. Ces grilles sont ensuite analysées à l'aide d'un microscope électronique par transmission (MET) afin de réaliser des clichés des particules de suie.

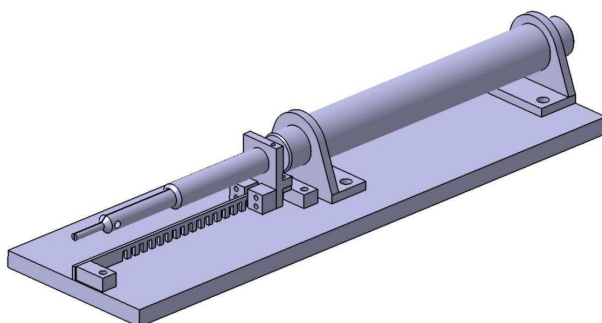


FIGURE III.20 – Dispositif de prélèvement thermophorétique

Le traitement de ces clichés (environ 200 par grille) va permettre d'obtenir des informations statistiques sur la morphologie des agrégats de suie, notamment le diamètre de giration D_g , le nombre N_p et le diamètre des sphérules primaires D_p [58]. Pour cela, les clichés sont binarisés (avec un programme sous Scilab) pour avoir l'agrégat en noir et le fond en blanc. Tout d'abord, pour déterminer D_p , on effectue une analyse statistique sur la distribution en diamètre obtenue directement sur les clichés pour déterminer un diamètre moyen $\overline{D_p}$. On calcule ensuite la surface projetée de la taille moyenne des sphérules A_p avec la relation :

$$A_p = \pi \frac{\overline{D_p}^2}{4} \quad (\text{III.3})$$

La surface projetée des agrégats entiers seuillés A_a est ensuite déterminée sous Image J (« Area ») ainsi que la distance maximale mesurée au sein des particules L_p (« Feret »). Le nombre de particules par agrégat est obtenu avec la relation [80, 81] :

$$N_p = k_a \left(\frac{A_a}{A_p} \right)^\alpha \quad (\text{III.4})$$

avec $k_a = 1,155$ et $\alpha = 1,095$ [48]. Ces deux coefficients permettent d'effectuer une correction pour tenir compte de la forme 3D des particules, les clichés MET étant des images projetées en 2D. Et le rapport entre le rayon de giration et le rayon des sphérules

primaires est déterminé avec la relation [58] :

$$\frac{R_g}{R_p} = \frac{L_p}{1,48\overline{D}_p} \quad (\text{III.5})$$

Cette relation permet également de déterminer le diamètre de giration. Finalement la dimension fractale et le préfacteur sont déduits de la relation (équation II.7) :

$$N_p = k_f \left(\frac{R_g}{R_p} \right)^{d_f}$$

Le logarithme du nombre de sphérules N_p est donc tracé en fonction du logarithme du ratio des rayons R_g et R_p . Cette courbe donne une droite dont l'équation permet d'obtenir la dimension fractale (pente de la droite) et le préfacteur (déduit de l'ordonnée à l'origine). L'analyse des clichés MET permet donc de déterminer le diamètre de giration, le diamètre des sphérules ainsi que la dimension fractale et le préfacteur. Les caractéristiques morphologiques sont donc ainsi obtenues.

III.5 Conclusion sur les dispositifs expérimentaux et les méthodes de mesure

Les deux flammes utilisées dans cette étude sont des flammes de types feu de paroi. La première concerne la combustion d'un matériau solide, le PMMA, sous forme de plaque maintenue par un cadre en acier et soumis à une propagation naturelle. La deuxième est une flamme de brûleur gaz provenant d'un poreux alimenté avec un mélange méthane/éthylène. Les différentes techniques de mesure sont donc appliquées à ces deux flammes. Les mesures effectuées sont :

- la fraction volumique de suie avec un montage de LII utilisant un laser pulsé à 532 nm, une caméra CDD intensifiée et un montage d'extinction à 1064 nm pour la calibration,

- l’extinction spectrale in-situ avec un laser blanc et un spectromètre,
- la distribution en diamètre de mobilité des particules avec un DMS,
- la concentration massique avec un TEOM,
- l’extinction spectrale ex-situ avec un banc de turbidimétrie,
- le diamètre de giration, le nombre de sphérules et le diamètre de ces sphérules primaires par prélèvement thermophorétique sur grille MET, ceci permettant d’en déduire la dimension fractale et le préfacteur.

Ces différentes mesures vont permettre d’obtenir une base de données complète dans l’optique d’améliorer les modèles de formation des suies, de rayonnement et de propagation de flamme pour les feux de paroi.

La mesure de fraction volumique de suie par LII nécessite des choix de réglage au niveau du laser et de la caméra ainsi que des traitements spécifiques pour les images enregistrées et la calibration des signaux. Ces différents points vont être détaillés dans le chapitre suivant.

Chapitre IV

Enregistrement et traitement des signaux LII

Le chapitre précédent a présenté entre autres le dispositif expérimental utilisé pour mesurer la fraction volumique de suie : méthode d'Incandescence Induite par Laser avec calibration par mesure de l'extinction. Cette technique demande des précautions dans son utilisation afin d'éviter des erreurs de mesure et de réduire les incertitudes. C'est pourquoi ce chapitre détaille et justifie les différentes caractéristiques utilisées et les corrections apportées pour l'enregistrement et le traitement des signaux LII. Tout d'abord sont présentées les caractéristiques d'utilisation du laser puis de la caméra. Ensuite la technique de correction des signaux LII sera détaillée. Enfin la méthode de calibration sur le brûleur gaz sera expliquée.

IV.1 Caractéristiques du faisceau laser et courbes de fluence

Comme vu dans le chapitre 3.2, le laser utilisé est un Nd : YAG. Celui-ci permet d'obtenir des pulses de 5 ns avec une cadence de 20 Hz. Il offre aussi la possibilité de choisir la longueur d'onde d'utilisation entre 1064 nm (fondamentale) et 532 nm (2ω). La longueur d'onde choisie pour cette étude est 532 nm. Cette longueur d'onde a été

préférée à celle de 1064 nm car elle se situe dans le visible ce qui facilite la conception et l’alignement de la nappe laser utilisée. Mais son utilisation nécessite de prendre des précautions au niveau de la détection car cette longueur d’onde favorise la génération des signaux de diffusion des suies et de fluorescence des HAP en comparaison avec une longueur d’onde de 1064 nm [66]. Les procédés expérimentaux mis en oeuvre pour éliminer ces signaux seront détaillés par la suite.

A l’aide d’une lentille cylindrique et d’une lentille sphérique (comme indiqué sur la figure III.10 du chapitre 3.3), le faisceau laser arrive dans la flamme sous forme d’une nappe laser. Pour une hauteur $z = 30$ cm devant la plaque de PMMA, l’homogénéité de la nappe est observée à l’aide d’un analyseur de faisceau (USBeamPro, Photon). Une image de la nappe (figure IV.1) est faite en superposant trois images (compte tenu de la taille du capteur de l’analyseur de faisceau). Ensuite, un profil suivant y (proche du milieu de la nappe suivant x) et trois profils suivant x (pour trois positions y) sont tracés (figure IV.2). Le profil suivant y permet de voir que la nappe peut être considérée comme homogène sur une largeur de 3 cm ce qui est suffisant par rapport à l’épaisseur moyenne des flammes étudiées (environ 2 cm). De petits décalages sont visibles sur les zones de recouvrement entre les trois images liés au décalage de la position du profil suivant y entre ces images. Les fluctuations observées sur les 5 premiers millimètres sont dues à la diffraction du bord de la nappe au contact de la paroi en acier. Les profils suivant x donnent la valeur de l’épaisseur de la nappe qui est au maximum de 0,87 mm à $(1/e^2)$, soit une fine épaisseur pour ne pas tenir compte par la suite de la direction suivant x .

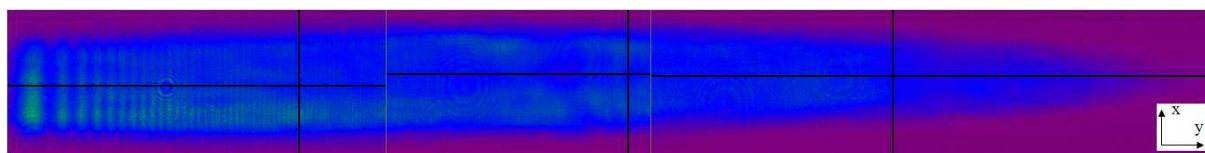


FIGURE IV.1 – Visualisation de la nappe laser (en trois images superposées) à l’aide d’un analyseur de faisceau (les traits noirs verticaux et horizontaux représentent la position des profils)

Un phénomène qui peut induire une erreur sur les signaux de LII est le phénomène de trapping [82], c’est-à-dire la réabsorption du signal LII par les suies présentes dans la

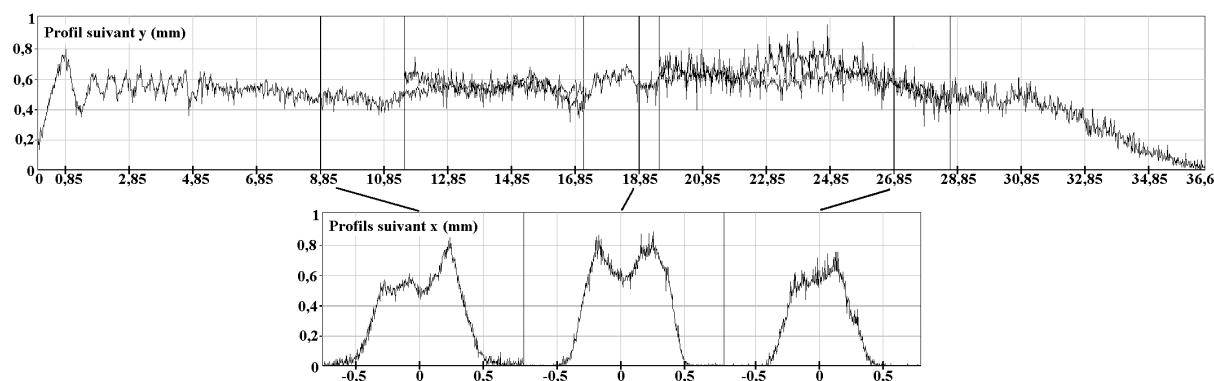


FIGURE IV.2 – Profils normalisés de la nappe laser suivant y et suivant x (pour trois positions y), la normalisation étant faite à partir de l’intensité maximum pour la totalité de l’image de la nappe

flamme entre la nappe laser et le système de détection. Ce phénomène est d’autant plus important que l’épaisseur de flamme traversée par le signal LII est grande. Pour réduire cette diminution du signal, la nappe laser est placée à 5 cm du bord de la flamme (suivant la direction x et du côté où se situe la caméra). Cette distance ne peut pas être réduite davantage car la nappe laser se retrouverait dans une zone de la flamme soumise aux effets de bord (par rapport à la taille de la zone de combustion). Mais le coefficient de calibration étant calculé sur des signaux LII ayant subi ce trapping, il tiendra donc déjà compte, pour la zone de mesure de celui-ci, de la perte de signal liée à ce phénomène. Le trapping n’étant pas homogène dans la flamme en fonction de la hauteur, l’incertitude de mesure sera due à la différence de trapping entre les hauteurs de mesure. Cependant, une estimation de la diminution maximum de signal causée par ce phénomène sera faite par la suite (chapitre 6.2) en utilisant la mesure d’extinction à 1064 nm effectuée à travers la largeur de la flamme.

La mesure de LII nécessite de choisir une intensité laser (fluence) spécifique. Typiquement l’intensité du signal LII augmente quand on augmente la fluence du faisceau laser jusqu’à atteindre un plateau parfois suivi d’une décroissance [66]. La fluence qu’il est préférable d’utiliser correspond à la valeur obtenue au début de ce plateau [83]. Cela permet d’éviter que le signal LII ne dépende des fluctuations de la fluence que peut provoquer le laser (pour les basses fluences) et que les particules de suie ne soient sublimées (pour

les hautes fluences). Pour obtenir cette valeur d'intensité laser, une courbe de fluence est tracée (figure IV.4). Compte tenu des instabilités pour la flamme de PMMA, celle-ci a été réalisée sur le brûleur gaz pour trois zones d'étude différentes : de 29 à 33 cm (noté « bas »), de 33 à 37 cm (noté « milieu ») et de 37 à 41 cm (noté « haut ») (figure IV.3). Une moyenne du signal LII est effectuée sur chaque zone d'étude (en éliminant les signaux LII trop proche du bruit de fond qui correspondent à des zones où la flamme est peu présente) puis est normalisée par rapport au maximum d'intensité (pour être plus facilement comparée). Le réglage de la fluence est effectué grâce au module d'atténuation du faisceau (BAM) présenté dans le chapitre 3.3. La zone de mesure correspond à une zone située dans le haut de la flamme (hauteur comprise entre $z = 29$ cm et $z = 41$ cm) et de largeur correspondant à l'épaisseur de la flamme. Chaque zone d'étude (haut, milieu et bas) correspond donc à une valeur moyenne sur un tiers de la zone totale de mesure. La distinction entre ces trois zones d'étude permet de voir l'effet, sur les courbes de fluence, de l'absorption de la nappe laser ainsi que des variations des propriétés optiques des suies en fonction de la hauteur.

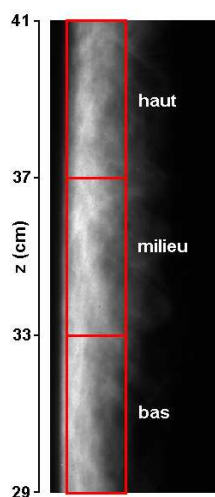


FIGURE IV.3 – Position des trois zones d'étude pour la détermination des courbes de fluence

Les trois courbes montrent que l'on obtient bien ce plateau mais plus on monte dans la flamme plus il faut une grande fluence pour atteindre le plateau (figure IV.4). Ce décalage de la valeur de fluence révèle, comme attendu, que la nappe laser est absorbée durant sa

propagation suivant la hauteur de la flamme. Pour que le signal LII enregistré ne dépende pas de cette absorption laser, une valeur de $0,08 \text{ J/cm}^2$ est choisie pour que même en haut de la flamme, le plateau de la courbe de fluence soit atteint. Cette valeur de fluence s'avère faible en comparaison avec les valeurs que l'on trouve typiquement dans la littérature (autour de $0,2 \text{ J/cm}^2$ à 532 nm [69]). Afin de vérifier que cette valeur est suffisante pour avoir un signal LII correct sur toute la hauteur de la flamme, des mesures sont effectuées avec une fluence plus élevée égale à $0,13 \text{ J/cm}^2$. Des profils de signaux LII, présentés sur la figure IV.5, sont réalisés sur le PMMA pour $t = 1740 \text{ s}$ et pour deux hauteurs ($z = 28$ et 36 cm). Chaque fluence est testée pour deux séries de mesure. Les résultats montrent que les signaux LII obtenus avec ces deux fluences sont similaires, avec des variations équivalentes à la répétabilité des mesures. L'énergie apportée aux particules de suie, avec une fluence de $0,08 \text{ J/cm}^2$, est donc suffisante, sur toute la hauteur de la flamme malgré l'absorption de la nappe laser suivant cette dernière. Cette valeur de fluence sera donc utilisée pour toutes les mesures de LII de cette étude.

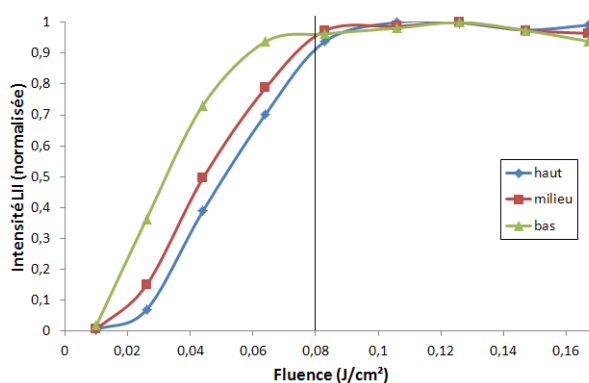


FIGURE IV.4 – Courbes de fluence obtenues avec le brûleur gaz pour trois zones d'étude dans la flamme (de 29 à 33 cm (bas), de 33 à 37 cm (milieu) et de 37 à 41 cm (haut))

IV.2 Caractéristiques d'enregistrement du signal

Après avoir défini les caractéristiques d'utilisation du laser, celles du système de détection sont détaillées ici. Tout d'abord, dans l'optique de réduire les signaux parasites (diffusion des suies ou des gaz et fluorescence des HAP ou du C_2 par exemple) qui

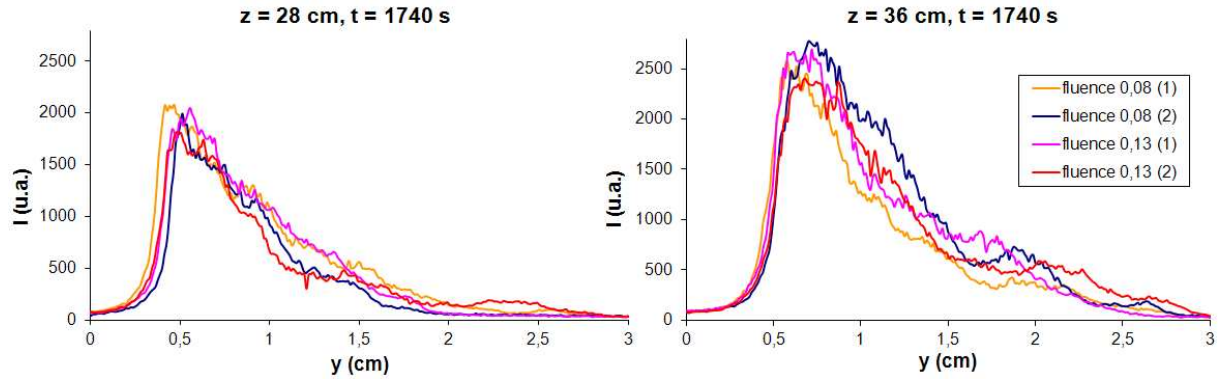


FIGURE IV.5 – Comparaison des profils de signaux LII pour le PMMA, à $t = 1740$ s et pour $z = 28$ et 36 cm, en utilisant deux fluences différentes égales à $0,08$ J/cm^2 et $0,13$ J/cm^2

s'ajoutent au signal LII enregistré, un filtre interférentiel peut être utilisé. La gamme spectrale d'émission du signal LII est environ de 350 à 700 nm (figure IV.6). Mais s'ajoutent à ce signal les bandes de Swan du C_2 ainsi que les raies Raman d'espèces présentes dans la flamme. Pour remédier à cela, les filtres les plus souvent utilisés dans la littérature (tableau IV.1) sont des filtres passes bandes de longueurs d'onde comprises entre 400 et 450 nm. Un filtre passe bande de 410 nm \pm 50 nm est donc placé devant la caméra. Ce filtre possède une transmission maximum de 60 %. Celui-ci est situé dans une zone spectrale en dehors des bandes de Swan du C_2 , excepté une bande de faible intensité pour environ 430 nm (figure IV.6) [49]. Ce filtre permet également d'avoir un meilleur rapport signal sur bruit (SNR (avec filtre) $\approx 2,6$ contre SNR (sans filtre) $\approx 0,7$) car il permet une forte diminution de l'émission de la flamme enregistrée en comparaison avec la diminution du signal LII opérée. D'autres filtres ont été testés (un filtre 415 nm \pm 3 nm avec une transmission maximum de 30 % et un filtre 430 nm \pm 10 nm avec une transmission maximum de 40 %) mais les rapports signal sur bruit obtenus étaient beaucoup plus faibles (respectivement SNR $\approx 0,1$ et SNR $\approx 0,3$).

Le logiciel qui pilote la caméra CCD permet de définir le temps d'ouverture (gate width) et le retard (gate delay) par rapport à un trigger externe. Comme vu dans le chapitre 2.4, le signal LII a un temps de décroissance long par rapport aux autres signaux tel que la diffusion (de l'ordre de 50 ns) ou la fluorescence (durée proche de celle du

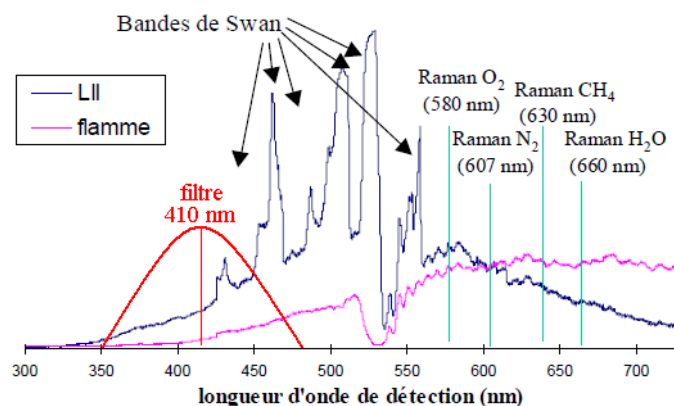


FIGURE IV.6 – Position spectrale du filtre à 410 nm comparée aux bandes de Swan du C_2 du spectre d'émission de la LII et au spectre d'émission de la flamme pour une excitation à 532 nm [49]

auteur	référence	filtre interférentiel
Geitlinger	[84]	430 nm (bande de 32 nm)
Lee	[70]	$400 \pm 12,5$ nm
Ni	[85]	450 ± 25 nm
Oh	[86]	450 ± 10 nm
Qamar	[68]	430 nm (bande de 10 nm)
Schoemaeker Moreau	[66]	410 nm
Xin	[69]	410 ± 10 nm

TABLE IV.1 – Filtres passe bande utilisés en LII dans la littérature avec une longueur d'onde d'excitation de 532 nm

pulse laser). Un décalage de l'ouverture de la caméra par rapport à l'arrivée du pulse laser sur les particules de suie est donc un moyen de renforcer l'élimination des signaux parasites [69, 66], déjà fortement éliminés par le filtre interférentiel. Le gate delay de la caméra est donc fixé à 30 ns. Ensuite un temps d'ouverture de 70 ns (gate width) a été choisi pour avoir suffisamment de signal LII. Comme l'a montré Vander Wal [65], un temps d'ouverture allant jusqu'à 100 ns ne modifie que peu le signal LII. Mais il est aussi reconnu qu'un temps d'intégration trop long peut biaiser la mesure LII vers les particules de grandes tailles. Ainsi, deux tests ont été effectués sur le brûleur gaz en utilisant des valeurs de 70 ns et 100 ns pour le gate width. Un exemple de comparaison des profils de signaux LII pour ces deux gate width, à $z = 34$ cm, est présenté sur la figure IV.7

(pour 2 séries de mesure). Les résultats obtenus étant similaires (en tenant compte de la répétabilité des mesures), cela indique que cet effet n'est pas important dans notre cas. D'autant plus que le temps caractéristique de diminution du signal LII en fonction de la taille des particules peut aller jusqu'à 200 ns.

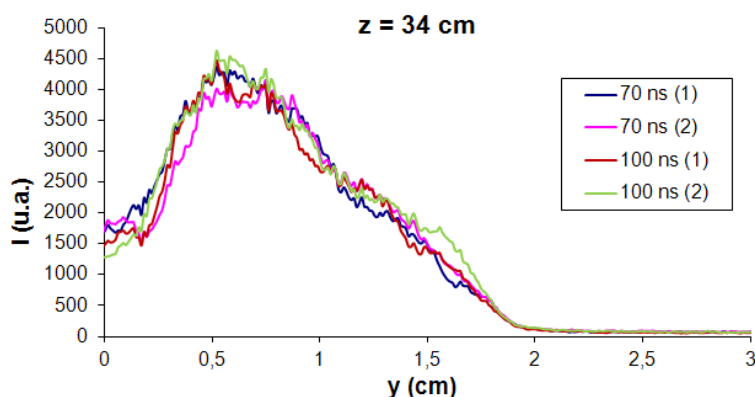


FIGURE IV.7 – Comparaison des profils de signaux LII pour 2 séries de mesure sur le brûleur gaz, à $z = 34$ cm, en utilisant deux valeurs pour le gate width : 70 et 100 ns

Pour pouvoir régler le gate delay et le gate width par rapport au passage du pulse laser, la caméra est directement synchronisée avec le laser. Le schéma de cette synchronisation est présenté sur la figure IV.8. Le temps entre le signal TTL du Q-Switch (QS) et l'arrivée du pulse laser dans la flamme est court ($t = 60$ ns), ce qui pose problème par rapport au temps de transfert du signal TTL jusqu'à la caméra. Cette dernière est donc triggée avec le signal TTL de la flash lampe (FL) ce qui permet d'avoir un temps supplémentaire de $140 \mu\text{s}$. Il est ainsi possible de régler plus facilement l'ouverture de la caméra 30 ns après le passage du pulse laser et cela pendant un temps de 70 ns.

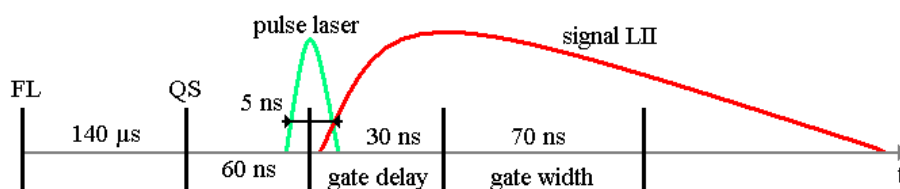


FIGURE IV.8 – Schéma de la synchronisation utilisée pour régler l'ouverture de la caméra par rapport au passage du pulse laser

IV.3 Correction des inhomogénéités

Après avoir choisi les caractéristiques d'utilisation pour la méthode de LII, des tests d'enregistrement de signaux sont effectués pour voir si des corrections doivent être apportées. Un premier point, qu'il est nécessaire de prendre en considération, est de vérifier que le signal enregistré par le système de détection correspond bien au signal reçu par ce dernier. Pour cela le système de détection doit être éclairé par une source lumineuse homogène. Un papier calque éclairé par une source halogène lointaine permet d'obtenir une source quasi homogène (mais présence de fluctuations locales aux petites échelles liées au grain du papier calque). Cette lumière diffuse est ensuite enregistrée par la caméra CCD et l'image obtenue est présentée dans la figure IV.9. Un profil suivant z est tracé (courbe noire) pour voir si l'image obtenue est homogène. Sur le graphique, l'échelle des pixels suivant z démarre par le haut de l'image. Ce profil montre tout d'abord les fluctuations aux petites échelles causées par le grain du papier calque. Ensuite, en traçant la tendance générale du profil (courbe rouge), on observe une diminution du signal enregistré sur le haut de l'image. Cette diminution atteint un maximum d'environ 20 % ce qui entraînerait une erreur importante sur les signaux enregistrés si une correction n'est pas appliquée.

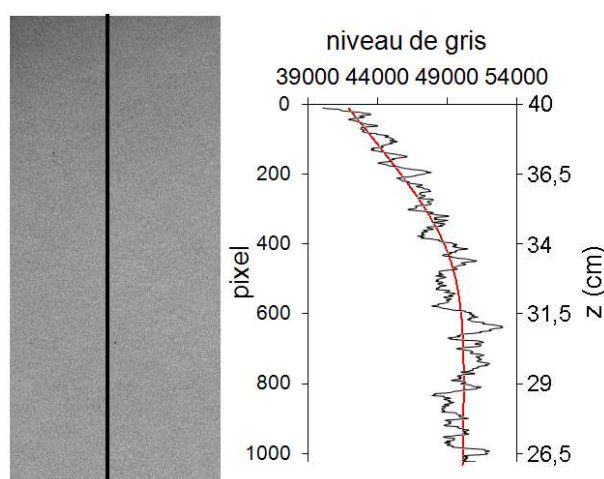


FIGURE IV.9 – Image enregistrée par la caméra pour la source quasi homogène (papier calque + halogène) et tracé d'un profil (courbe noire) et de la tendance générale (courbe rouge)

Avant de procéder à une correction et afin de voir d'où provient cette perte de signal

et si le problème peut être résolu, différents tests ont été effectués. Tout d'abord, une image du fond est faite (entrée de la caméra obscurcie avec un bouchon opaque) et celle-ci ne révèle aucune inhomogénéité. Ensuite, pour vérifier que cette diminution n'est pas dû à du vignettage compte tenu de la forte ouverture de l'objectif utilisée ($f/1,2$), cette dernière est diminuée. Cette modification n'engendre aucune réduction de la perte de signal. Un test de défaut de mise au point est aussi réalisé mais la diminution persiste. Enfin, une rotation de la caméra est faite pour vérifier que la perte de signal ne provient pas du papier calque mais l'inhomogénéité du haut de la caméra est toujours observée. Le problème semble donc venir directement d'un défaut du capteur CDD. Une correction est donc nécessaire.

Pour effectuer cette correction, l'image enregistrée avec le papier calque éclairé par une source halogène est utilisée. Compte tenu des fortes fluctuations aux petites échelles obtenues sur le profil de cette image dues en grande partie au grain du papier calque, un lissage est effectué. Un filtre médian de taille 9×9 pixels est alors utilisé. Un exemple de profils suivant z obtenus avec et sans ce lissage sont présentés sur la figure IV.10. On peut voir que ce lissage permet de diminuer fortement les fluctuations aux petites échelles. Il permet également de conserver la tendance générale, c'est-à-dire la perte de signal sur le haut de l'image. Il faut faire attention au fait que le lissage est fait avec un filtre médian c'est-à-dire une moyenne suivant z mais aussi suivant y sur la taille du filtre (lissage 2D). Il n'est donc pas anormal que, sur la figure IV.10, le profil lissé ne soit pas centré par rapport au profil non lissé. Cela est dû à l'effet des profils voisins suivant y pris en compte dans le processus de lissage. Les images de signaux LII sont corrigées en les divisant par l'image du papier calque (lissée ou non) mais aucun réajustement du niveaux des signaux n'est effectué. Cela n'est pas nécessaire car le coefficient de calibration est déterminé à partir des images déjà corrigées.

Afin de vérifier l'effet de la correction par l'image du papier calque, un profil suivant y d'un signal LII normalisé est corrigé avec cette image avec et sans le lissage (figure IV.11). Une normalisation est effectuée afin de pouvoir être comparatif car, comme vu précédemment, le niveau des signaux corrigés n'est pas réajuster. La correction avec

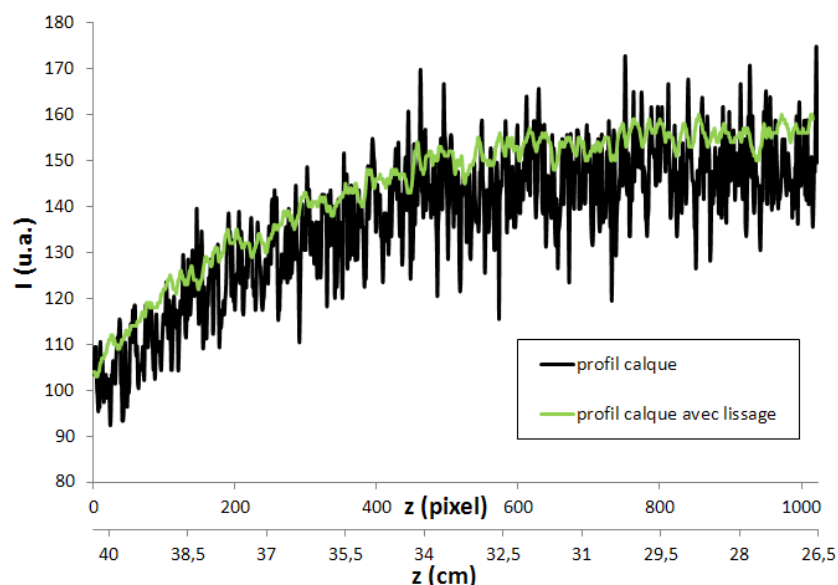


FIGURE IV.10 – Profils suivant z de l'image de correction faite avec le papier calque pour montrer l'effet d'un lissage avec un filtre médian 9×9

l'image non lissée montre l'apparition de fluctuations aux petites échelles non présentes sur le profil LII sans correction. Cela indique donc que même si la diminution de signal due au haut du capteur CCD est corrigée, une erreur de mesure est ajoutée à cause du grain du papier calque. En ce qui concerne la correction avec une image lissée, on observe cette fois-ci qu'aucune fluctuation à petite échelle supplémentaire n'apparaît sur le profil LII.

La vérification de l'effet de la correction est également faite dans l'autre direction, c'est-à-dire suivant z , la direction où l'on observe l'inhomogénéité de la caméra. Un profil suivant z d'un signal LII normalisé (pour les mêmes raisons que pour les profils suivant y) est donc corrigé avec l'image du calque avec et sans le lissage (figure IV.12). On observe, comme pour le cas suivant y , que les fluctuations aux petites échelles sont éliminées avec le papier calque lissé. On remarque aussi que le papier calque lissé rehausse bien le signal pour le haut de la caméra alors que la correction avec papier calque non lissé induit une correction trop forte pour le haut de la caméra. Il faut cependant faire attention car cette variation entre les deux signaux dépend de l'effet 2D du lissage avec le filtre médian. Pour conclure, le lissage de l'image avec un filtre médian 9×9 est donc suffisant pour éliminer

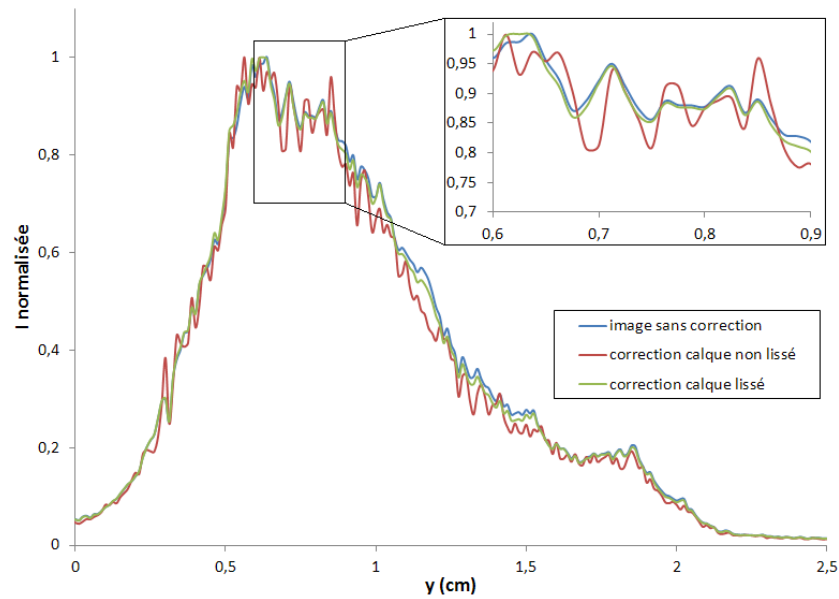


FIGURE IV.11 – Effet de la correction avec l’image du papier calque avec ou sans lissage sur un profil de signal LII normalisé suivant y

l’ajout de fluctuations aux petites échelles tout en corrigeant la perte de signal du haut du capteur CCD. Les images de signaux LII enregistrées par la suite seront donc corrigées avec cette image du papier calque lissée.

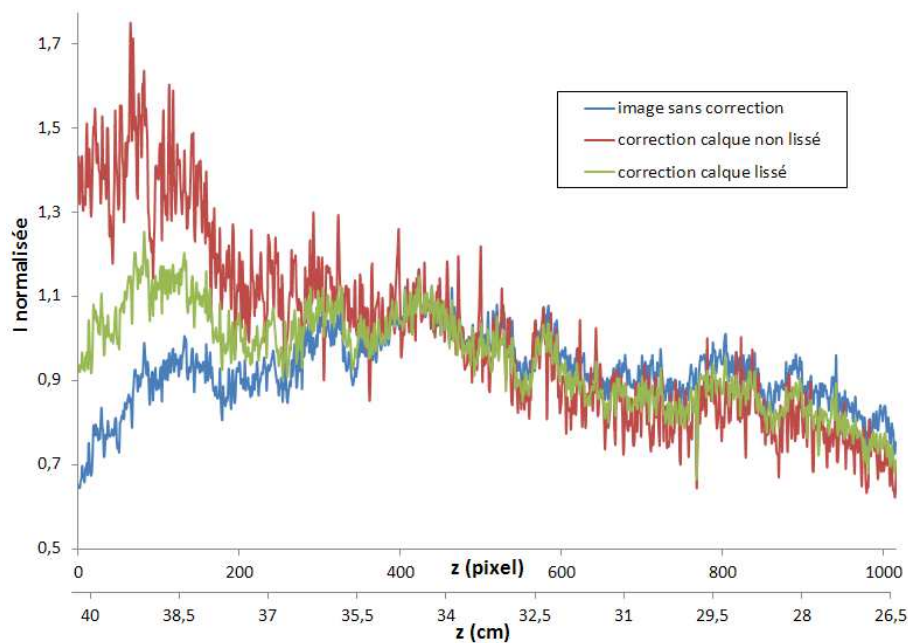


FIGURE IV.12 – Effet de la correction avec l’image du papier calque avec ou sans lissage sur un profil de signal LII normalisé suivant z

Dans un second temps, en ce qui concerne la nappe laser, on a vu précédemment avec un analyseur de faisceau qu'elle pouvait être considérée comme homogène suivant sa largeur (suivant y) sur la zone de mesure. Afin de confirmer cette homogénéité, une cuve spectrophotométrique de dimension $10 \times 4 \times 1 \text{ cm}^3$ est utilisée. Compte tenu de la longueur d'onde du laser de 532 nm, la cuve est remplie avec de la rhodamine 6G diluée fortement dans de l'éthanol (pour réduire l'absorption de la nappe laser). Les courbes d'absorption et de fluorescence (avec une longueur d'onde d'excitation de 532 nm) de la rhodamine 6G sont présentées sur la figure IV.13.

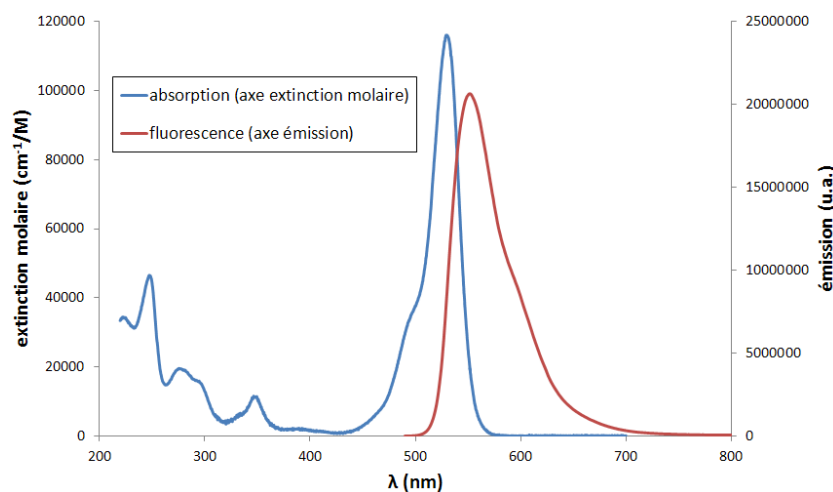


FIGURE IV.13 – Courbes d'absorption et de fluorescence (avec une excitation à 532 nm) de la rhodamine 6G en fonction de la longueur d'onde

Des images de la cuve sont faites avec passage de la nappe laser dans le mélange rhodamine/éthanol. Le signal de fluorescence émis est enregistré à l'aide de la caméra utilisée pour les mesures de LII. Des profils normalisés suivant y pour trois hauteurs différentes ($z = 32, 34$ et 36 cm) sont tout d'abord tracés (figure IV.14). Ils permettent de voir que la nappe laser peut bien être considérée comme homogène à grande échelle sur sa largeur (sur 3 cm), les variations du signal de fluorescence observées étant au maximum de 10 % pour les fluctuations aux petites échelles. Ensuite sont tracés des profils suivant z pour deux positions suivant y égales à 1 et 2,5 cm (figure IV.15). Compte tenu de la taille du champ étudié (environ 13 cm), la cuve a été positionnée à deux hauteurs : au milieu et en bas du champ de la caméra, c'est-à-dire une zone homogène de cette dernière

pour ne pas avoir à corriger les images enregistrées. Mais une forte réflexion de la nappe laser sur le bas de la cuve fait que seule la partie haute de celle-ci est exploitable, avec cependant une légère absorption présente qui provoque une petite diminution du signal en fonction de la hauteur. A cause de cette absorption, les essais avec la cuve n'ont pas pu être approfondis dans l'optique de corriger l'inhomogénéité du haut du capteur CCD. Malgré cette diminution, les profils faits pour les deux positions suivant y (1 et 2,5 cm) montrent une homogénéité de la nappe suivant la hauteur équivalente, en termes de variations, à celle obtenue pour la largeur. De plus la fluence utilisée permet de ne pas avoir à tenir compte de l'absorption de la nappe laser dans la flamme suivant la hauteur (suivant z). Aucune correction ne sera donc effectuée en ce qui concerne la nappe laser et l'énergie reçue par les particules de suie.

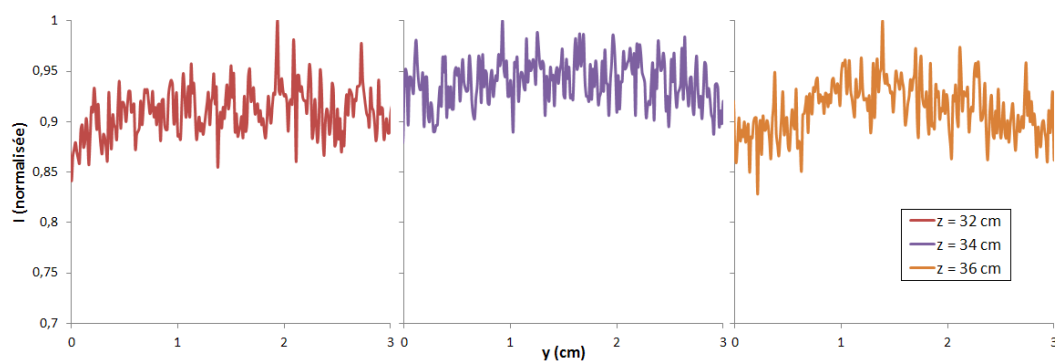


FIGURE IV.14 – Profils normalisés du signal de fluorescence de la rhodamine 6G suivant y pour trois hauteurs différentes ($z = 32, 34$ et 36 cm)

IV.4 Calibration du signal LII

Une fois les signaux LII corrigés des inhomogénéités dues au système de détection, ces derniers doivent être calibrés pour obtenir la fraction volumique de suie. Comme vu dans les chapitres 2.4 et 3.2, la calibration est faite grâce à une mesure d'extinction à 1064 nm. Mais les instabilités de la flamme produites par la combustion du PMMA ne permettent pas d'obtenir des valeurs fiables pour cette mesure, notamment à cause de la position fixe du faisceau servant à faire cette mesure en comparaison avec la propagation verticale de la flamme (déplacement suivant z au début de la combustion) et le déplacement suivant

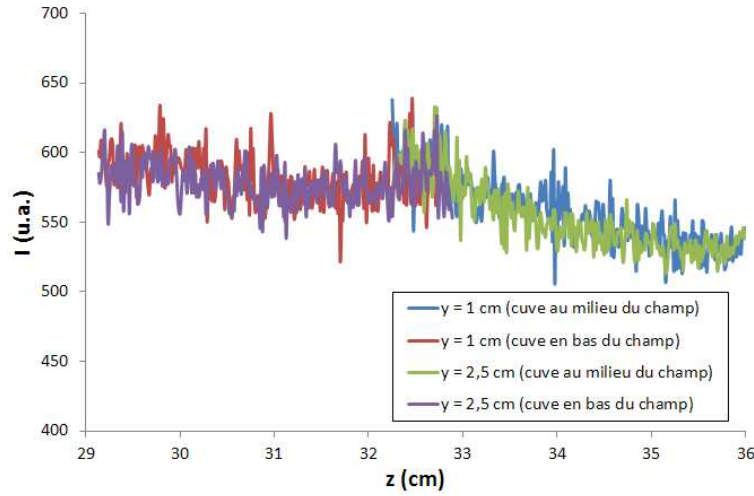


FIGURE IV.15 – Profils du signal de fluorescence de la rhodamine 6G suivant z pour $y = 1$ et $2,5$ cm (la cuve est positionnée à deux hauteurs : bas et milieu par rapport au champ de la caméra)

y lié à la régression de la surface de la plaque de PMMA. La mesure d'extinction est donc faite à des endroits différents dans la flamme au cours du temps, elle rencontre donc des zones plus ou moins fuligineuses. Pour remédier à cela, entre autres, un brûleur gaz a été mis en place. En effet, des travaux ont montré qu'il était possible, en utilisant des conditions de mesure identiques, de déterminer le coefficient d'étalonnage $C_{\text{étal}}$ sur une autre flamme [87]. Des mesures d'extinction et de LII sont donc faites simultanément sur ce brûleur. Le coefficient d'étalonnage est ensuite déterminé, comme vu dans le chapitre 2.4, à l'aide des équations II.30 et II.31 :

$$S_{LII} = C_{\text{étal}} f v_{\text{suie}}$$

$$\frac{I}{I_0} = \exp(-K_{\text{ext}}L) = \exp\left(-K_e \frac{f v_{\text{suie}}}{\lambda} L\right)$$

En ce qui concerne le coefficient d'extinction adimensionné K_e présent dans la deuxième équation, une valeur de la littérature égale à 6,4 est provisoirement prise [88]. Cette va-

leur est obtenue sur une flamme de brûleur gaz alimenté en éthylène avec une longueur d'onde de 1310 nm. Le choix de cette valeur est basé sur le combustible utilisé et sur la longueur d'onde de mesure. Les longueurs d'onde sont ici différentes (1064 et 1310 nm) mais, comme on le verra dans le chapitre 5.3, les propriétés optiques sont constantes dans cette gamme de longueurs d'onde. Les valeurs de $C_{\text{étal}}$ obtenues sont présentées sur la figure II.30 pour un total de 32 séries de mesure. On observe de fortes variations de ce coefficient, malgré le fait que cette flamme soit stationnaire, sûrement liées à la forte turbulence de la flamme. Une calibration directement sur la flamme de PMMA, qui n'est pas stationnaire, ne s'avère donc pas envisageable. Une valeur moyenne est tout de même calculée. On obtient une valeur de 26,3 avec un écart type de 30 %. Il faudra donc par la suite tenir compte du fait que les valeurs de fraction volumique présentées sont soumises à cette incertitude, mais qu'elles permettront quand même de quantifier la production de suie. En utilisant une correction avec l'image du papier calque non lissée, on obtient une valeur de 20,3 avec également un écart type de 30 % [89]. L'écart entre ces deux coefficients de calibration est provoqué par le fait que le niveau des signaux LII corrigés n'est pas réajusté. Mais comme ces coefficients de calibration tiennent compte de la correction utilisée, cela aboutit au final à des fractions volumiques proches avec les deux types de correction.

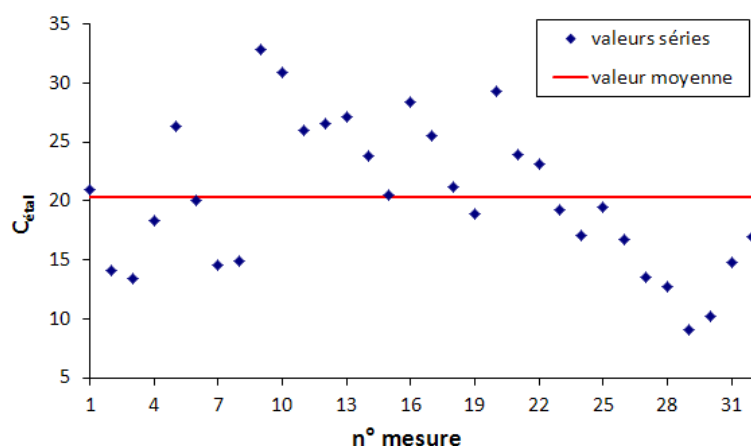


FIGURE IV.16 – Valeurs du coefficient d'étalonnage servant à calibrer le signal LII à partir d'une mesure d'extinction, obtenues sur le brûleur gaz, et valeur moyenne en utilisant $K_e = 6,4$

Afin de vérifier que la valeur du coefficient d'étalonnage obtenue avec le brûleur gaz est bien utilisable sur la flamme de PMMA, une comparaison est faite avec des mesures faites sur cette dernière. Des mesures d'extinction et de LII sont effectuées simultanément durant la combustion du PMMA (au cours du temps) pour trois plaques différentes (3 séries). Les valeurs du coefficient d'étalonnage sont présentées sur la figure IV.17. On observe une variabilité plus grande que pour le brûleur gaz ainsi qu'une augmentation suivie d'une décroissance au cours du temps qui sont liées au déplacement de la flamme durant la combustion du PMMA. C'est pour cela que, comme dit précédemment, ces valeurs ne sont pas assez fiables pour être utilisées pour la calibration. Mais elles sont utilisables tout de même pour effectuer une comparaison avec la valeur obtenue avec le brûleur gaz. Une valeur moyenne sur les trois séries est calculée sur une zone où la mesure d'extinction est localisée autour du milieu de la flamme (suivant son épaisseur), c'est-à-dire de $t = 1000$ à 2000 s. On obtient une valeur égale à $29,4 \pm 13,0$ en utilisant la correction avec l'image du papier calque lissée. Cette moyenne est proche de celle obtenue avec le brûleur gaz mais avec une incertitude de mesure beaucoup plus grande. De plus, l'avantage de mesurer ce coefficient sur la flamme du brûleur gaz est que, compte tenu du fait que la flamme soit stationnaire dans le temps, cela permet d'avoir une valeur moyenne faite sur un plus grand nombre de mesures. Afin de justifier l'utilisation du coefficient d'étalonnage mesuré dans le brûleur gaz sur les signaux LII du PMMA, les propriétés optiques de ces deux flammes vont être comparées dans le chapitre suivant, compte tenu du fait que le coefficient d'étalonnage et le signal LII dépendent de ces propriétés.

IV.5 Conclusion sur l'enregistrement et le traitement des signaux LII

Ce chapitre a permis de voir la méthode expérimentale mise en place pour l'enregistrement et le traitement des signaux LII. En ce qui concerne les caractéristiques d'utilisation du laser et d'enregistrement du signal, les points principaux sont :

- la longueur d'onde du faisceau laser est de 532 nm,

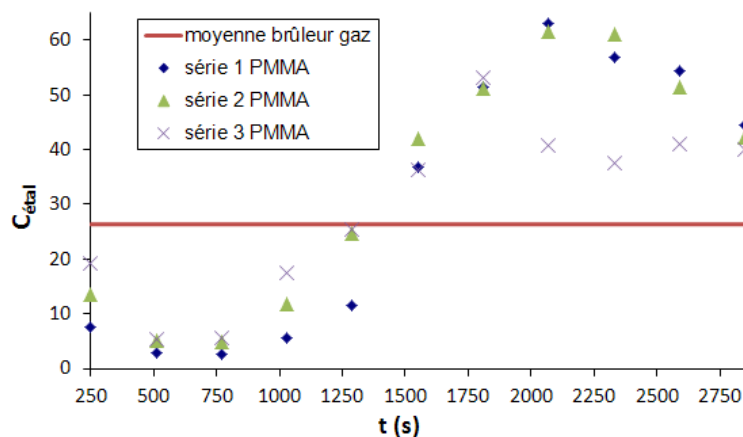


FIGURE IV.17 – Comparaison entre les coefficients d'étalonnage obtenus sur la flamme de PMMA au cours du temps et la valeur moyenne du brûleur gaz (trait rouge)

- le phénomène de trapping a été limité en dirigeant la nappe laser à 5cm du bord suivant x et sera estimé dans le chapitre 6,
- la fluence utilisée est de $0,08 \text{ J/cm}^2$,
- un filtre passe bande à $410 \pm 50 \text{ nm}$ est placé devant la caméra,
- l'ouverture de la caméra se fait avec un retard de 30 ns par rapport au pulse laser et pendant un temps de 70 ns,
- cette ouverture est synchronisée à partir du signal TTL de la flash lampe du laser.

Les signaux enregistrés en utilisant ces caractéristiques sont ensuite corrigés. En utilisant un analyseur de faisceau et une cuve spectrophotométrique, on a pu voir que la nappe laser était homogène sur la zone de mesure et qu'aucune correction n'était donc nécessaire sur l'énergie apportée aux particules de suie. En ce qui concerne le système de détection, une perte de signal a été observée sur le haut du capteur CCD de la caméra. Une image lissée faite à partir d'un papier calque éclairé par une source halogène sera donc utilisée pour corriger cela. Enfin les signaux LII corrigés seront calibrés en utilisant le coefficient d'étalonnage C_{etal} déterminé à partir d'une mesure simultanée d'extinction et de LII dans la flamme générée par le brûleur gaz.

Avant de déterminer la fraction volumique sur la flamme de PMMA à partir des signaux LII, les suies produites par cette dernière ainsi que celles du brûleur gaz vont tout d'abord être caractérisées. La morphologie et les propriétés optiques de ces suies sont donc

présentées dans le chapitre suivant.

Chapitre V

Résultats sur les propriétés optiques des suies

Ce chapitre va se consacrer à la détermination des caractéristiques morphologiques et des propriétés optiques des particules de suie. Deux configurations vont être étudiées : le brûleur gaz et la combustion d'une plaque verticale de PMMA. Les différents moyens expérimentaux présentés dans le chapitre 3 vont donc être utilisés dans ces deux flammes. Tout d'abord est présentée l'analyse morphologique des agrégats avec la détermination du diamètre de giration, de la dimension fractale et du diamètre de mobilité utile à l'utilisation de la théorie de la RDG-FA. Ensuite seront présentées les mesures d'extinction in-situ et ex-situ ainsi qu'une comparaison de ces deux techniques de mesure. Enfin seront montrés les résultats sur l'obtention des propriétés optiques telles que l'extinction spécifique, la fonction d'indice d'absorption et le coefficient d'extinction adimensionné qui sera utilisé par la suite (chapitre suivant) dans la détermination de la fraction volumique de suie à partir de mesures LII.

V.1 Etude morphologique

Dans l'optique de pouvoir utiliser un modèle thermique pour quantifier le rayonnement des particules de suie présentes dans la flamme, il est nécessaire de déterminer les

caractéristiques morphologiques des agrégats de suie. Les résultats obtenus sont présentés dans cette partie.

V.1.1 Morphologie et tailles des particules de suie

Comme détaillé dans le chapitre 3.4, la méthode expérimentale pour déterminer le diamètre de giration et la dimension fractale des particules de suie consiste à effectuer des clichés de microscopie électronique (MET) de ces dernières [58]. Pour cela un prélèvement thermophorétique sur grille est effectué dans chacune des deux flammes. Ce prélèvement est effectué à une hauteur de $z = 34$ cm. Un nombre de 225 clichés a été obtenu pour la flamme du brûleur gaz ainsi que pour la flamme du PMMA. Des exemples de clichés obtenus sont présentés pour les suies du brûleur gaz (figure V.1) et pour celles de la combustion du PMMA (figure V.2). Différents grossissements ont été utilisés pour effectuer ces clichés. Le calcul de la résolution spatiale en fonction du grossissement est obtenu en analysant des clichés MET avec des billes de latex (particules sphériques et de diamètre connu (102 nm)). On obtient une résolution de $1,32 \text{ pixel.nm}^{-1}$ pour un grossissement de 140000, $1,76 \text{ pixel.nm}^{-1}$ pour 190000 et $2,45 \text{ pixel.nm}^{-1}$ pour 270000. On peut voir sur ces clichés que les agrégats ont une taille plus ou moins grande et ont une apparence similaire entre la flamme de brûleur gaz et celle du PMMA. Les différentes caractéristiques morphologiques et fractales sont mesurées à partir de ces clichés.

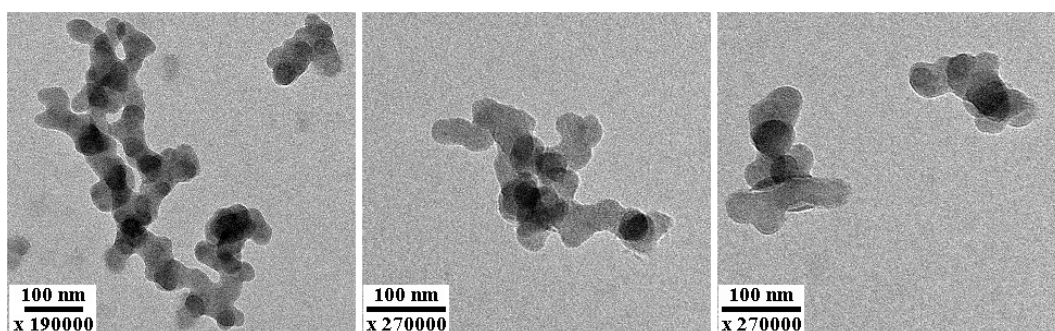


FIGURE V.1 – Exemples de clichés MET obtenus sur les suies issues du brûleur gaz

Les caractéristiques morphologiques sont tout d'abord déterminées pour la flamme du brûleur gaz. La première caractéristique mesurée est le diamètre des sphérules primaires.

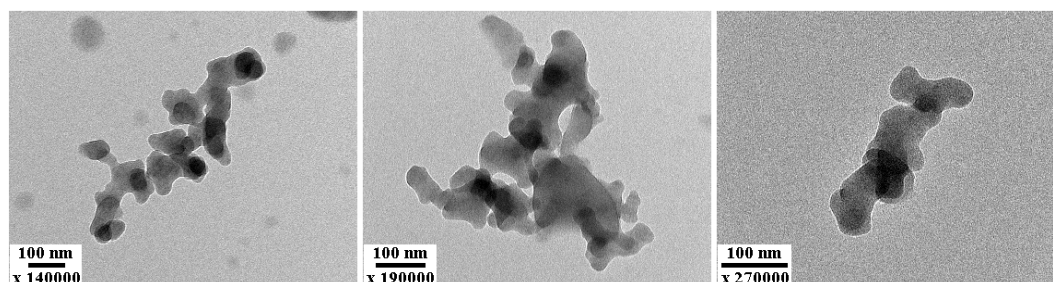


FIGURE V.2 – Exemples de clichés MET obtenus sur les suies issues de la combustion du PMMA

On effectue une analyse statistique pour déterminer un diamètre moyen $\overline{D_p}$ à partir de la distribution en diamètre. Il est généralement admis que la loi de distribution de taille est de type normale (gaussienne) ou log-normale [17]. Cela permet une simplification au niveau de l'analyse de la morphologie des agrégats en assimilant le diamètre des particules à la valeur moyenne. Le diamètre de 222 sphérules est mesuré sur les clichés et la distribution de ces diamètres est tracée sur le graphique de la figure V.3. Cette distribution suit, comme le montre la figure V.3, une loi log-normale. On obtient grâce à cette distribution une valeur pour le diamètre moyen des sphérules égal à 25,5 nm avec un écart type géométrique de 1,2.

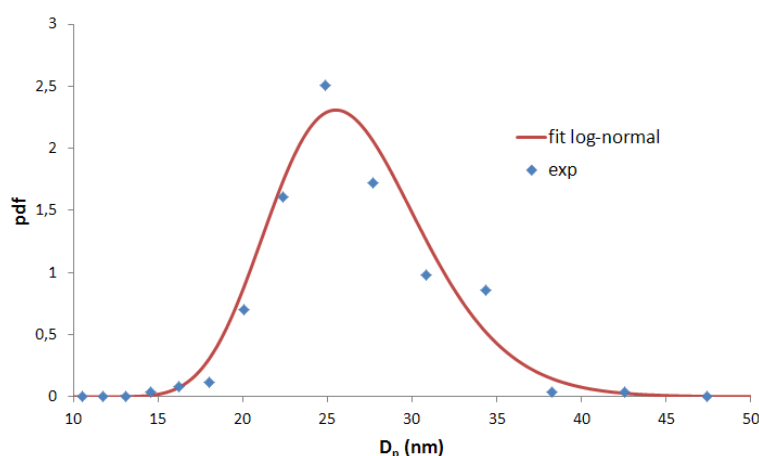


FIGURE V.3 – Distribution en diamètre des sphérules primaires pour les suies du brûleur gaz et tracé d'une loi log-normale

A partir du diamètre moyen des sphérules primaires, il est possible de remonter au diamètre de giration. Comme vu dans le chapitre 2.3, le diamètre de giration D_g (m)

donne une estimation de la répartition massique de l'agrégat. Pour le calculer, on utilise l'équation III.5, comme cela est recommandé par Yon et al. [58], d'où :

$$\frac{R_g}{R_p} = \frac{L_p}{1,48\overline{D_p}}$$

Le diamètre de Feret L_p est mesuré sur les 397 agrégats que contiennent les clichés. On obtient donc finalement une distribution du diamètre de giration et celle-ci est tracée sur le graphique de la figure V.4 pour le cas du brûleur gaz. Une fonction log-normal monomodale ainsi qu'une bimodale ont été utilisées pour représenter les distributions expérimentales. La distribution bimodale est aussi utilisée compte tenu de la présence d'un pic sur les valeurs mesurées à un diamètre de giration proche de 40 nm. La distribution bimodale représente mieux la distribution expérimentale comme on peut le voir sur la figure V.4. La distribution monomodale donne un mode pour le diamètre de giration de 107,5 nm avec un écart type géométrique de 2,2 mais ce mode n'est pas représentatif de la distribution expérimentale obtenue. Le premier mode, pour la distribution bimodale, est à une valeur de 39,6 nm avec un écart type géométrique de 1,3. Compte tenu de ce faible diamètre, cela veut dire que ce mode correspond à des agrégats comprenant environ 2 à 3 sphérules. Pour le deuxième mode, une valeur de 138,7 nm avec un écart type géométrique de 1,7 est obtenue. Les suies produites sur ce brûleur montrent donc l'obtention de deux modes pour le diamètre de giration. Cela peut être dû au fait que les particules de suie ne sont pas toutes produites à la même hauteur dans la flamme (le brûleur gaz ayant une configuration de paroi verticale) donc qu'elles ont un temps de séjour dans la flamme plus ou moins long, la hauteur de prélèvement étant de $z = 34$ cm. Le mode 1 peut donc correspondre plutôt à des suies jeunes et le mode 2 à des suies plus âgées. On va donc considérer la distribution du diamètre de giration comme bimodale tout en émettant une réserve sur l'existence réelle et physique du premier mode même si ce type de distribution a déjà été observé. Mais compte tenu de la petite valeur du mode 1, celui-ci n'aura que peu d'effet en terme d'extinction par rapport au mode 2 (voir équation II.10 dans le chapitre 2.3). Le mode 2 seul pourra donc être utilisé dans l'application de la théorie de la RDG-FA [58].

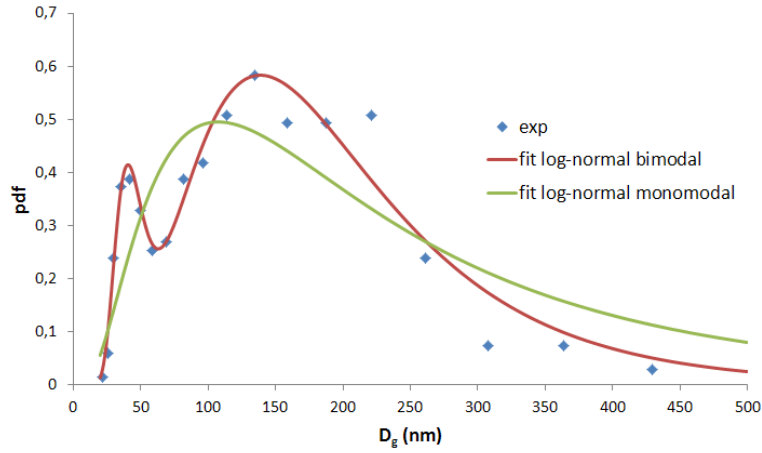


FIGURE V.4 – Distribution en diamètre de giration pour les suies du brûleur gaz et tracé d’une loi log-normale bimodale et d’une monomodale

Après avoir déterminé le diamètre des sphérules primaires et le diamètre de giration des agrégats, les clichés MET permettent aussi de remonter à la dimension fractale. Pour cela l’équation II.7 est utilisée :

$$N_p = k_f \left(\frac{R_g}{R_p} \right)^{d_f}$$

Le rapport entre le rayon de giration et le rayon des sphérules primaires est obtenu à partir du diamètre de Feret utilisé précédemment (équation III.5). Pour le nombre de sphérules primaires N_p , il est calculé à partir du ratio entre la surface projetée des agrégats A_a et celle d’une sphérule primaire de diamètre moyen A_p suivant l’équation III.4 [80, 81, 48] :

$$N_p = k_a \left(\frac{A_a}{A_p} \right)^\alpha$$

avec $k_a = 1,155$ et $\alpha = 1,095$. Ces deux coefficients permettent d’effectuer une correction pour tenir compte de la forme 3D des particules, les clichés MET étant des images projetées en 2D. Le logarithme du nombre de sphérules est ensuite tracé en fonction du logarithme du ratio des rayons sur un graphique (figure V.5). On élimine de ce graphique

les points où N_p est inférieur à 1 pour ne pas avoir d'agrégats de moins d'une sphérule, ce qui n'est pas physiquement possible. Une droite est tracée ($r^2 = 0,97$) et permet d'obtenir la dimension fractale ainsi que le préfacteur. On obtient pour les suies du brûleur gaz $d_f = 1,77 \pm 0,02$ et $k_f = 1,93 \pm 1,03$. Si l'on considère maintenant qu'un agrégat ne peut être considéré comme fractal qu'à partir de 10 sphérules, on trace un nouveau graphique (figure V.6) pour $N_p \geq 10$. On obtient cette fois-ci, en traçant une droite ($r^2 = 0,90$), $d_f = 1,62 \pm 0,03$ et $k_f = 2,57 \pm 1,81$. On observe donc que cette hypothèse a un effet non négligeable sur la valeur de la dimension fractale.

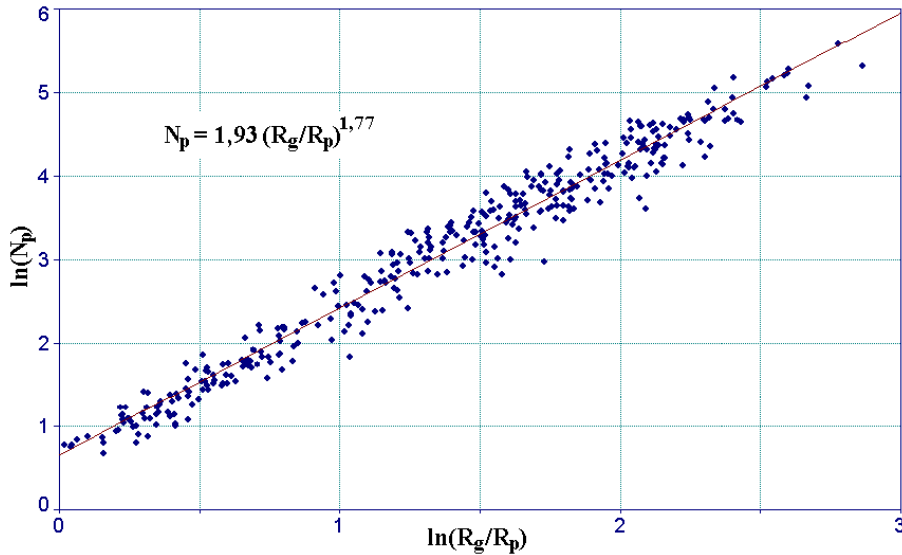


FIGURE V.5 – Détermination de la dimension fractale et du préfacteur à partir du tracé de la courbe $\ln(N_p) = f(\ln(R_g/R_p))$ pour les suies du brûleur gaz

Une analyse similaire est à présent faite sur les suies issues de la combustion du PMMA. Pour déterminer le diamètre moyen des sphérules $\overline{D_p}$, une mesure est effectuée sur 242 sphérules. La distribution du diamètre de ces sphérules est tracée sur le graphique de la figure V.7. Comme pour les suies du brûleur gaz, une loi log-normale est optimisée pour représenter la distribution des valeurs expérimentales. La valeur obtenue pour le diamètre moyen des sphérules primaires est de 23,8 nm avec un écart type géométrique de 1,2.

A partir de ce diamètre et du diamètre de Feret (voir l'équation III.5) est de nouveau calculé le diamètre de giration. La distribution de ce diamètre est tracée sur le graphique de la figure V.8. Comme pour le brûleur gaz, une distribution bimodale et une distribu-

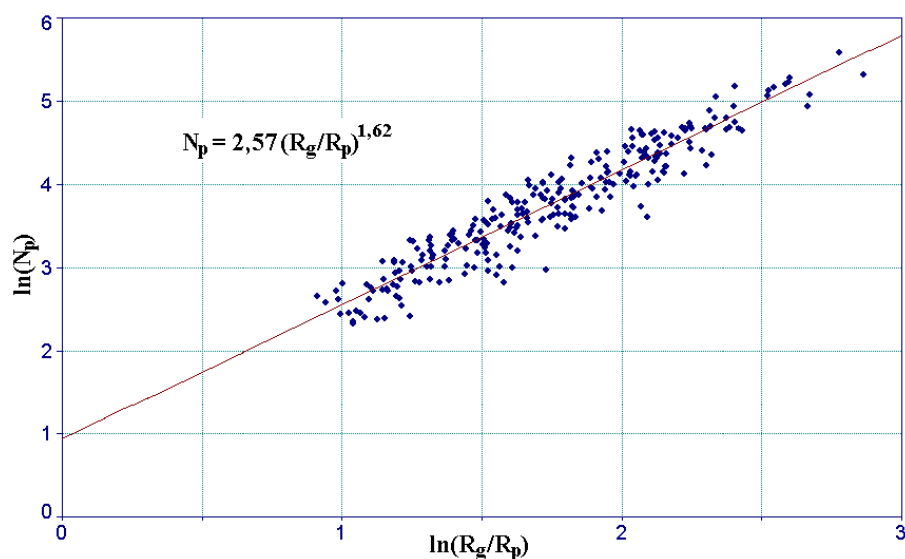


FIGURE V.6 – Détermination de la dimension fractale et du préfacteur à partir du tracé de la courbe $\ln(N_p) = f(\ln(R_g/R_p))$ pour les suies du brûleur gaz avec $N_p \geq 10$

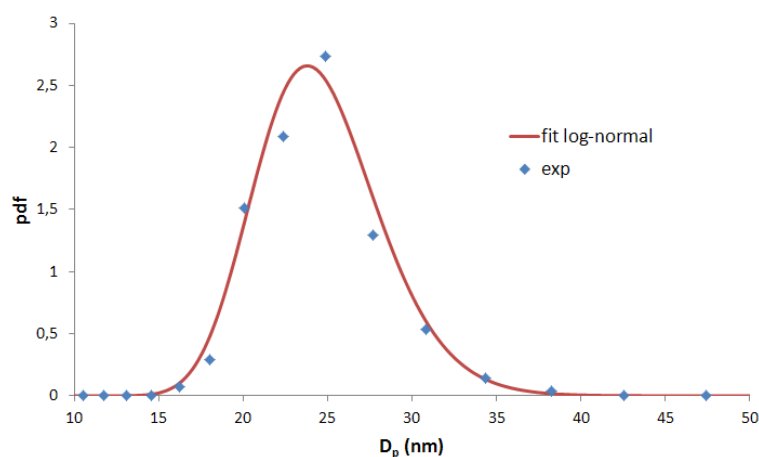


FIGURE V.7 – Distribution en diamètre des sphérules primaires pour les suies du PMMA et tracé d'une loi log-normale

tion monomodale sont tracées. La distribution monomodale donne un mode de 115,4 nm avec un écart type géométrique de 2,0 mais de nouveau cette distribution semble moins représentative des valeurs expérimentales. La distribution bimodale paraît plus proche même si, pour le PMMA, le pic de valeur équivalent au premier mode est moins marqué. La configuration de combustion étant proche entre la flamme du brûleur gaz et celle du PMMA (paroi verticale), on peut ainsi retrouver la possible présence de suies ayant des temps de séjour dans la flamme plus ou moins long. Le premier mode obtenu avec la

distribution bimodale donne une valeur pour le diamètre de giration de 40,0 nm avec un écart type géométrique de 1,4. Quant au deuxième mode, une valeur de 132,7 nm avec un écart type géométrique de 1,6 est obtenue. Les conclusions et réserves énoncées pour le brûleur gaz sont donc aussi valables pour le PMMA.

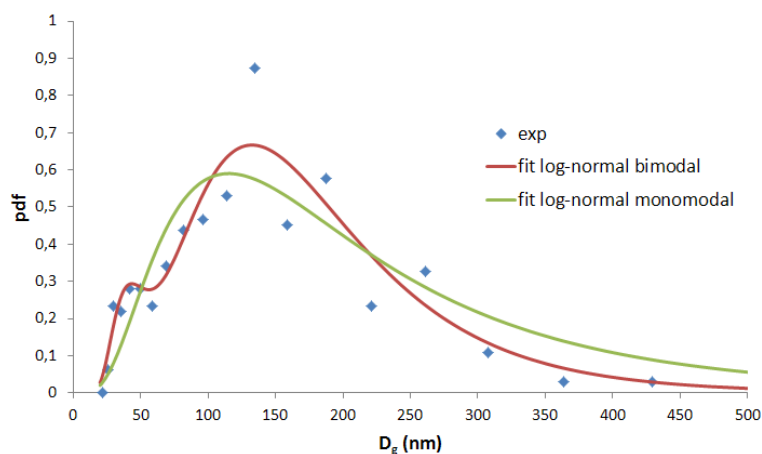


FIGURE V.8 – Distribution en diamètre de giration pour les suies du PMMA et tracé d’une loi log-normale bimodale et d’une monomodale

Enfin sont déterminées les caractéristiques de la morphologie fractale des suies issues de la combustion du PMMA. On trace le logarithme du nombre de sphérules en fonction du logarithme du ratio R_g/R_p sur un graphique (figure V.9). On élimine les points où N_p est inférieur à 1 et une droite est de nouveau tracée ($r^2 = 0,96$) pour obtenir la dimension fractale ainsi que le préfacteur. On obtient finalement pour les suies du PMMA $d_f = 1,71 \pm 0,02$ et $k_f = 2,57 \pm 1,03$. La figure V.9 permet pour le PMMA d’observer le comportement non fractal des agrégats en dessous de 10 sphérules ($\ln(N_p) < 2,3$). On trace donc un nouveau graphique (figure V.10) pour $N_p \geq 10$. On obtient, en traçant une droite ($r^2 = 0,94$), $d_f = 1,54 \pm 0,02$ et $k_f = 3,55 \pm 1,04$. Comme pour le brûleur gaz, les valeurs de la dimension fractale sont différentes si l’on ne tient compte que des agrégats de plus de 10 sphérules.

V.1.2 Diamètre de mobilité

Un autre paramètre de taille utilisé pour décrire les agrégats est le diamètre de mobilité (définition dans le chapitre 2.3). Celui-ci peut être déterminé à l’aide d’un appareil de

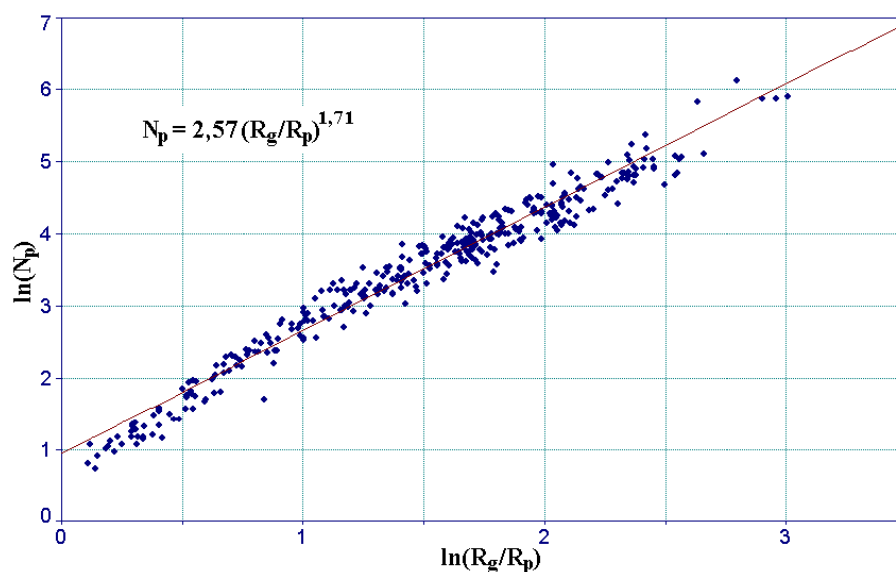


FIGURE V.9 – Détermination de la dimension fractale et du préfacteur à partir du tracé de la courbe $\ln(N_p) = f(\ln(R_g/R_p))$ pour les suies du PMMA

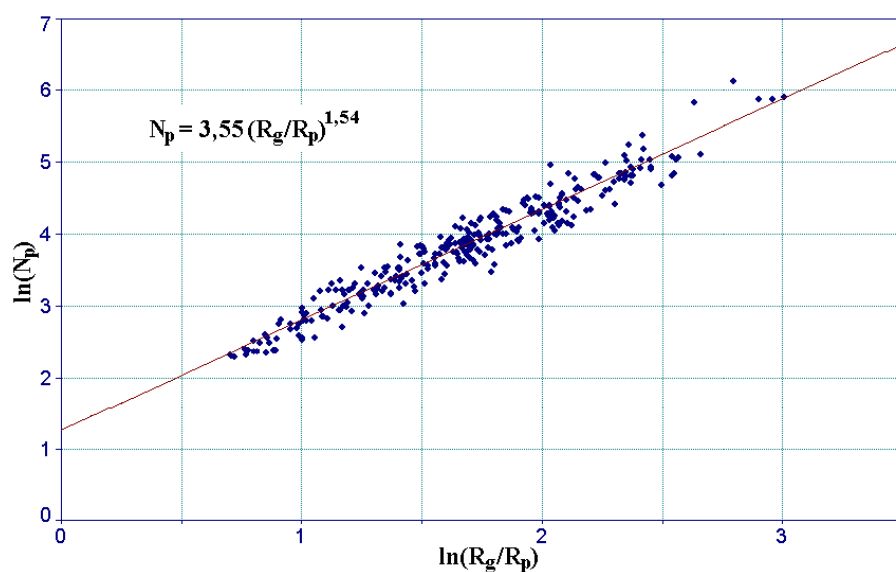


FIGURE V.10 – Détermination de la dimension fractale et du préfacteur à partir du tracé de la courbe $\ln(N_p) = f(\ln(R_g/R_p))$ pour les suies du PMMA avec $N_p \geq 10$

mesure, le DMS (voir chapitre 3.4). Les particules de suie sont prélevées dans la flamme à l'aide d'un FPS (voir également le chapitre 3.4) et envoyé vers le DMS (qui peut mesurer une distribution toutes les secondes). La hauteur à laquelle est effectuée ce prélèvement est équivalente à celle utilisée pour le prélèvement thermophorétique, c'est-à-dire $z = 34$ cm. Le DMS fournit directement la distribution en diamètre de mobilité. L'avantage de

cette mesure (chapitre 3.4) est qu'elle permet, contrairement à la mesure du diamètre de giration, d'obtenir facilement et rapidement le diamètre de mobilité et de pouvoir faire varier, par exemple, la hauteur de mesure ou de suivre l'évolution du diamètre dans le cas d'une flamme instationnaire (flamme de PMMA par la suite). Pour les suies du brûleur gaz, des exemples de distributions obtenues sont présentés sur la figure V.11. La mesure est effectuée de nombreuses fois afin de tester la répétabilité. Comme pour le diamètre de giration, deux modes sont obtenus. Mais de nouveau, une réserve est émise sur l'existence réelle et physique du premier mode. Le DMS fait une inversion des mesures de courant sur l'électromètre pour déterminer la distribution en taille et cela peut induire l'apparition de faux modes. On remarque également que la position de ces deux modes est bien reproductible entre les différentes mesures. Le premier mode correspond à un diamètre de mobilité de $22,6 \pm 0,3$ nm. Le second mode correspond à un diamètre de $77,7 \pm 1,7$ nm. Il est intéressant de comparer le diamètre de giration au diamètre de mobilité. Pour cela on calcule, comme vu dans le chapitre 2.3 (équation II.9), le rapport $\beta = D_g/D_m$. On obtient pour le premier mode, en supposant son existence, $\beta = 1,75$ et pour le second mode $\beta = 1,78$. Ces valeurs de β sont donc plutôt élevées en comparaison avec la littérature [17].

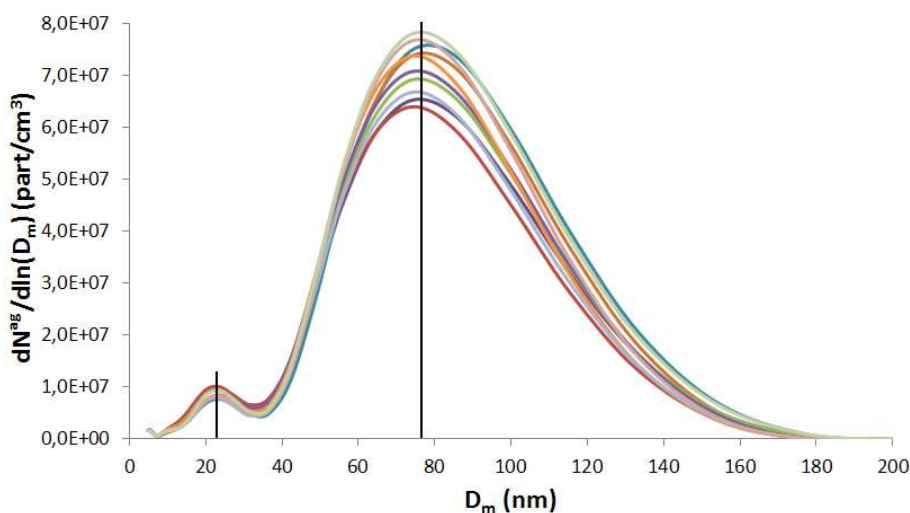


FIGURE V.11 – Distribution en diamètre de mobilité pour les suies du brûleur gaz pour plusieurs mesures successives au cours du temps

Une analyse similaire est effectuée sur les suies du PMMA. Des mesures sont effectuées

pour deux allumages de plaque et à des temps différents par rapport au début de la combustion de la plaque. Trois hauteurs ont également été testées ($z = 34, 29$ et 24 cm) pour voir si cela influence la distribution obtenue. Afin d'analyser la répétabilité des mesures, des résultats obtenus pour plusieurs mesures successives au cours du temps de $t = 1480$ s à $t = 1490$ s sont présentés sur la figure V.12, pour $z = 34$ cm. La répétabilité obtenue est un peu moins bonne que pour le brûleur gaz compte tenu de l'évolution dans le temps de la flamme de PMMA durant les mesures successives. On remarque, comme pour le brûleur gaz, l'obtention de deux modes. Une réserve identique est donc émise sur le premier mode. Ce premier mode correspond à un diamètre de mobilité de $21,0 \pm 2,0$ nm. Le second mode correspond à un diamètre de $86,7 \pm 6,8$ nm. Afin de voir l'effet du temps de combustion et de la hauteur de mesure sur la distribution des diamètres de mobilité, les valeurs des modes sont détaillées pour la combustion des deux plaques différentes sur la figure V.13. Ce graphique permet de voir que le temps et la hauteur de mesure modifient peu la valeur des modes. Mais il faut faire attention à ne pas généraliser cela à toute la hauteur de la flamme. En effet, les hauteurs de mesure étant égales à 24, 29 et 34 cm, elles correspondent à la partie haute de la flamme et la variation maximum entre les hauteurs n'est que de 10 cm sur une hauteur totale de plaque de 40 cm et une hauteur de flamme pouvant atteindre 80 cm (figure VI.20). On relie également les valeurs obtenues pour le diamètre de giration et le diamètre de mobilité à l'aide de la fonction β . On obtient pour le premier mode $\beta = 1,90$ et pour le second mode $\beta = 1,53$. Le premier mode donne de nouveau une valeur de β plutôt élevée tandis que le deuxième mode donne une valeur plus proche des valeurs de la littérature [17].

V.1.3 Comparaison entre les suies du PMMA, du brûleur gaz et des valeurs de la littérature

Les clichés MET et le DMS ont permis d'obtenir les caractéristiques morphologiques des particules de suie produites par le brûleur gaz et par la combustion du PMMA. Les valeurs de ces différentes caractéristiques sont résumées dans le tableau V.1. On a donc dans ce tableau toutes les caractéristiques morphologiques nécessaires pour tenir compte

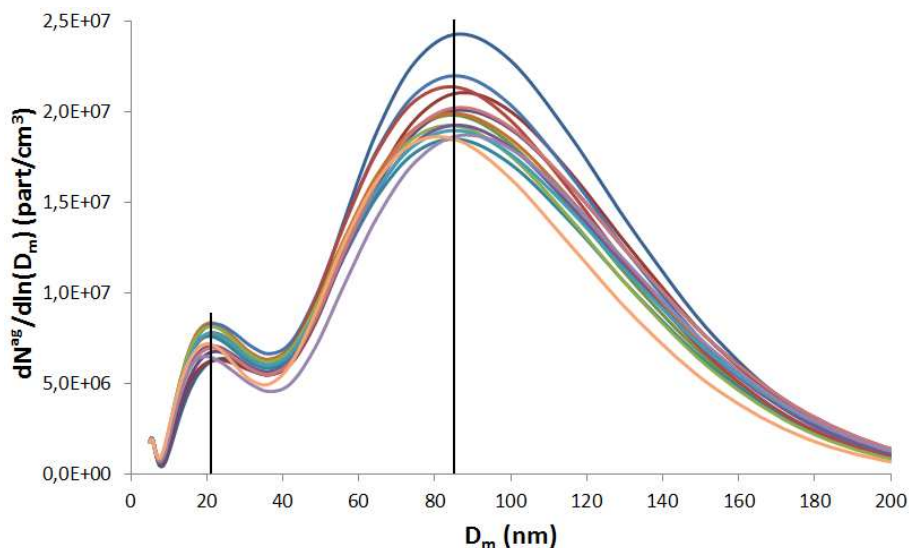


FIGURE V.12 – Exemple de distribution en diamètre de mobilité pour les suies du PMMA obtenue pour $z = 34$ cm pour plusieurs mesures successives, sur un même allumage, au cours du temps (de $t = 1480$ s à 1490 s)

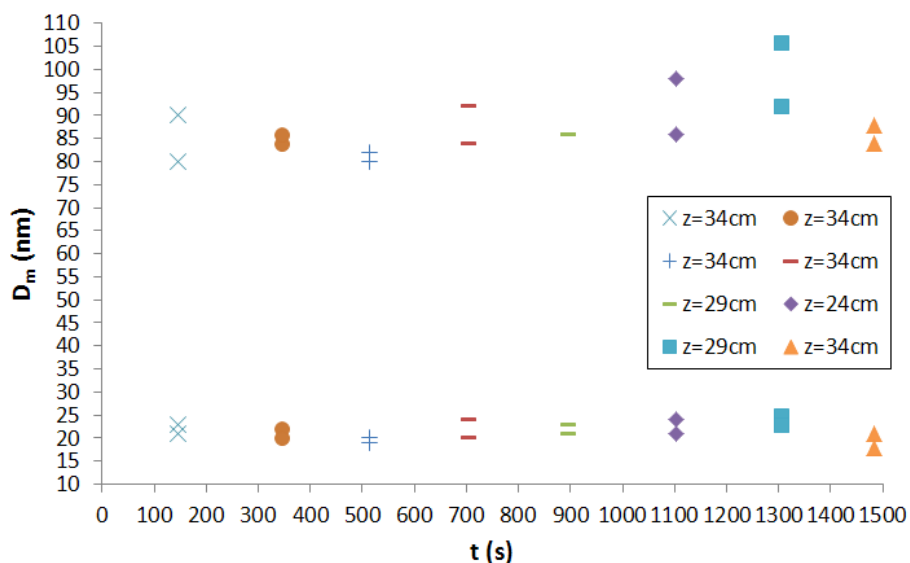


FIGURE V.13 – Effet du temps de combustion et de la hauteur de mesure sur le diamètre de mobilité des suies du PMMA pour deux plaques différentes

de la diffusion dans le calcul du rayonnement des particules de suie en utilisant la théorie de la RDG-FA. Ce tableau permet également de constater que les caractéristiques des suies du brûleur gaz et du PMMA sont assez proches.

Ces valeurs vont maintenant être comparées avec les valeurs que l'on peut trouver dans

	Brûleur gaz	PMMA
$D_{p,moy}$	25,5	23,8
$D_g(\text{mode 1})$	39,6	40,0
$D_g(\text{mode 2})$	138,7	132,7
$D_g(\text{monomodal})$	107,5	115,4
d_f avec $N_p \geq 1$	1,77	1,71
k_f avec $N_p \geq 1$	1,93	2,57
d_f avec $N_p \geq 10$	1,62	1,54
k_f avec $N_p \geq 10$	2,57	3,55
$D_m(\text{mode 1})$	22,6	21,0
$D_m(\text{mode 2})$	77,7	86,7
$\beta(\text{mode 1})$	1,75	1,90
$\beta(\text{mode 2})$	1,78	1,53

TABLE V.1 – Tableau récapitulatif des caractéristiques morphologiques et des tailles des suies du brûleur gaz et du PMMA

la littérature. Pour le diamètre des sphérules primaires, les valeurs sont reportées dans le tableau V.2. On remarque que les valeurs obtenues dans cette étude sont en général plus faibles que celles de la littérature que ce soit pour le combustible gazeux ou solide. Mais les valeurs de la littérature concernent des flammes jets pour le méthane et l'éthylène et une configuration horizontale (feu de nappe) pour le PMMA. Dans une configuration de feu de paroi, la formation des suies n'est pas localisée uniquement dans le bas de la flamme mais à toutes les hauteurs de celle-ci. Cela peut expliquer la valeur plus faible pour le D_p moyen compte tenu de la présence possible de suies ayant eu un temps de séjour court dans la flamme, c'est-à-dire des suies formées dans la partie haute de la flamme. Ces particules ont donc moins subi les processus de croissance par ajout de masse à la surface des sphérules.

La dimension fractale et le préfacteur sont eux aussi comparés aux valeurs de la littérature. Ces valeurs sont données dans le tableau V.3. Les dimensions fractales obtenues dans cette étude (1,62-1,77 et 1,54-1,71 respectivement pour le brûleur gaz et le PMMA) sont en bon accord avec celles de la littérature. Toutes les valeurs sont entre 1,5 et 1,8, ce qui s'explique par le type de croissance des agglomérats de suie. En effet, ces valeurs de d_f indiquent que la croissance est due à des collisions de type « amas-amas » [17],

Combustible	D_p (nm)	Description flamme et prélèvement	Référence
Méthane	19,8	Flamme jet de diffusion, prélèvement thermophorétique ($z = 5$ cm)	[90]
Méthane	20	Flamme jet de prémélange, prélèvement par emprisonnement dans une bouteille ($z = 1,2$ cm)	[91]
Méthane	30	Flamme jet de diffusion, prélèvement thermophorétique ($z = 15$ à 35 cm)	[48]
Ethylène	32	Flamme jet de diffusion, prélèvement thermophorétique	[92]
Ethylène	43,3	Flamme jet de diffusion, prélèvement thermophorétique ($z = 4$ cm)	[77]
Méthane/Ethylène	25,5	Feu de paroi verticale, prélèvement thermophorétique ($z = 34$ cm)	cette étude
PMMA	42-61	Feu de nappe, prélèvement thermophorétique (dans les fumées)	[17]
PMMA	23,8	Feu de paroi verticale, prélèvement thermophorétique ($z = 34$ cm)	cette étude

TABLE V.2 – Comparaison des valeurs de D_p de cette étude avec des valeurs de la littérature

ce qui donne aux particules une compacité assez réduite et donc une dimension fractale inférieure à 2. En ce qui concerne le préfacteur, les valeurs de la littérature sont assez dispersées mais les valeurs de cette étude (1,93-2,57 et 2,57-3,55 respectivement pour le brûleur gaz et le PMMA) sont assez proches des valeurs de la littérature pour le méthane et pour le PMMA.

La dimension fractale d_f est généralement proche pour des agrégats issus de différents combustibles. Celle-ci dépend majoritairement du mode de formation des agrégats. Ainsi lorsque d_f est inférieur à 2, on est plutôt en présence de processus d'agrégations de type « amas-amas », comme vu précédemment [17]. C'est ce processus qui prédomine dans le cas des flammes. Celui-ci fait intervenir des amas déjà formés, la collision et l'adhésion de

Combustible	d_f	k_f	Description flamme et prélèvement	Référence
Méthane	1,64		Flamme jet de diffusion, prélèvement thermophorétique ($z = 5$ cm)	[90]
Méthane	1,6-1,72		Flamme jet de prémélange, prélèvement par emprisonnement dans une bouteille ($z = 1,2$ cm)	[91]
Méthane	1,74	2,45	Flamme jet de prémélange, prélèvement thermophorétique ($z = 1,2$ et $1,8$ cm)	[93]
Méthane	1,8	2,3	Flamme jet de diffusion, prélèvement thermophorétique ($z = 15$ à 35 cm)	[48]
Ethylène	1,66	2,35	Flamme jet de diffusion, prélèvement thermophorétique ($z = 1,5$ cm)	[94]
Ethylène	1,49	4,14	Flamme jet de diffusion, prélèvement thermophorétique ($z = 4$ cm)	[77]
Ethylène	1,62-1,74	5,8	Flamme jet de diffusion, prélèvement thermophorétique ($z = 3$ cm)	[95]
Méthane/Ethylène	1,62-1,77	1,93-2,57	Feu de paroi verticale, prélèvement thermophorétique ($z = 34$ cm)	cette étude
PMMA	1,67-1,78	2,50-2,97	Feu de nappe, prélèvement thermophorétique (dans les fumées)	[17]
PMMA	1,54-1,71	2,57-3,55	Feu de paroi verticale, prélèvement thermophorétique ($z = 34$ cm)	cette étude

TABLE V.3 – Comparaison des valeurs de d_f et k_f de cette étude avec des valeurs de la littérature

ces amas donnant des agrégats aérés et peu compact. Lorsque d_f est supérieur à 2, c'est le processus « particules-amas » qui devient prédominant. Il s'avère donc logique de trouver des valeurs proches pour les valeurs de la dimension fractale présentées dans le tableau V.3 celles-ci ne dépendant que majoritairement du mode de formation des agrégats. En ce qui concerne la configuration de la combustion (flamme jet, feu de nappe ou de paroi

verticale), elle ne semble pas influencer la valeur de d_f . Malgré le fait que, dans les flammes de paroi verticale de cette étude, le temps de séjour des suies est plus dispersé (comme vu précédemment) que pour des flammes jets par exemple, on obtient des valeurs de d_f similaires pour les différentes configurations. Le temps de séjour des suies ne semble donc pas provoquer de variations sensibles sur la dimension fractale. Contrairement à cette dernière, le préfacteur dépend quant à lui du combustible utilisé. Cela explique les variations sur les valeurs présentées. On a également pu voir que le fait de tenir compte ou non des agrégats de moins de 10 sphérules avait un effet non négligeable sur les valeurs de la dimension fractale et du préfacteur déterminées.

V.2 Mesures d'extinction in-situ et ex-situ

Après avoir déterminé les caractéristiques morphologiques des particules de suie, leurs propriétés optiques vont maintenant être présentées. Comme précédemment, les deux types de flamme ont été étudiés, c'est-à-dire la flamme du brûleur gaz et la flamme de la combustion du PMMA. La propriété optique qui a été mesurée dans cette partie est le coefficient d'extinction spectrale $K_{ext}(\lambda)$. Deux types de mesure ont été effectués pour déterminer cette extinction : in-situ et ex-situ. Cette propriété est utilisée dans la calibration de la méthode de LII d'où son importance.

V.2.1 Extinction spectrale in-situ

La première technique de mesure de l'extinction utilisée est une mesure in-situ. Comme vu dans le chapitre 3.3, cette mesure est faite en utilisant un laser blanc qui traverse directement la flamme. Tout d'abord sont présentés les résultats obtenus sur le brûleur gaz puis sur le PMMA.

V.2.1.1 Mesures sur le brûleur gaz

Dans le processus de mesure du coefficient d'extinction spectrale in-situ, une soustraction de l'émission de la flamme, notée $I_{fl}(\lambda)$, est faite (chapitre 3.3). Le calcul de ce

coefficient d'extinction se fait suivant la relation (équation III.1) :

$$K_{ext}(\lambda) = -\frac{1}{L} \ln \left(\frac{I(\lambda) - I_{fl}(\lambda)}{I_0(\lambda)} \right)$$

Avant de présenter le coefficient d'extinction spectrale, les différents spectres bruts ($I_0(\lambda)$, $I(\lambda)$ et $I_{fl}(\lambda)$) enregistrés pour le brûleur gaz sont présentés sur la figure V.14. Ces spectres sont des moyennes sur un temps de 20 s, $I_{fl}(\lambda)$ et $I_0(\lambda)$ étant enregistrés successivement (avec 20 s de battement entre chaque mesure). Tout d'abord on observe un pic de saturation autour de 1064 nm qui correspond à la longueur d'onde du laser pompe utilisé pour générer le faisceau laser blanc. Ce pic ne sera pas pris en compte dans la suite en supprimant les valeurs du K_{ext} déterminées au niveau de ce pic. Pour l'émission de la flamme, elle est comprise entre 600 et 1100 nm mais il est possible que cette émission continue vers les hautes longueurs d'onde car la borne supérieure de 1100 nm correspond à la limite de détection du spectromètre. Cette émission équivaut ici, en proportion, à la moitié du signal laser + flamme, ce qui met en évidence l'importance du signal de la flamme et qu'il est capital de s'en affranchir en le soustrayant au signal reçu par le spectromètre lorsque le laser traverse la flamme. Ces spectres sont ensuite utilisés pour déterminer le $K_{ext}(\lambda)$. Les résultats obtenus pour la flamme du brûleur gaz sont présentés sur la figure V.15. La mesure est effectuée à une hauteur $z = 34$ cm dans la flamme et une distance $y = 1$ cm de la surface du brûleur. Cette distance à la surface correspond au centre de la flamme par rapport à son épaisseur moyenne d'environ 2 cm (voir figure VI.7 dans le chapitre 6.2). Toutes les mesures seront donc effectuées à cette distance $y = 1$ cm par la suite que ce soit pour le brûleur gaz ou le PMMA (afin de pouvoir être comparatif entre les deux flammes). Trois séries de mesure sont effectuées dans le but de tester la répétabilité. On remarque sur le graphique que l'on a une bonne répétabilité entre les trois séries de mesure. Deux zones spectrales ne permettent pas d'obtenir la valeur de l'extinction. La première, située entre 620 nm et 730 nm, correspond à une zone où les mesures obtenues ne s'avèrent ni fiables ni reproductibles. Cela est dû à un problème d'alignement du faisceau qui ne se focalise pas correctement dans la fibre optique reliée au

spectromètre. Les longueurs d'onde de cette zone subissent donc une mauvaise détection. Ce problème d'alignement est engendré par les gradients thermiques dans la flamme. La deuxième zone, autour de 1064 nm, correspond, comme dit précédemment, à la longueur d'onde du laser pompe utilisé pour générer le faisceau laser blanc ce qui entraîne une forte puissance à cette longueur d'onde et donc une saturation du capteur (chapitre 3.3). On reporte sur la figure V.15 la valeur d'extinction obtenue avec la diode laser à 1064 nm qui sert à calibrer la mesure de LII (chapitre 4.4). Cette valeur est cohérente avec la mesure d'extinction spectrale in-situ. Globalement, on observe une décroissance de l'extinction en fonction de la longueur d'onde mais deux zones peuvent être dissociées où le taux de décroissance est différent. Deux tests de décroissance par une fonction puissance sont donc effectués sur le graphique. Ils correspondent à des décroissances suivant la longueur d'onde en λ^{-1} et $\lambda^{-1,4}$. On peut voir que dans la zone spectrale de 400 à 620 nm le K_{ext} suit une décroissance en $\lambda^{-1,4}$ et que dans la zone de 730 nm à 1100 nm il suit une décroissance en λ^{-1} . Cela s'explique par le fait que pour les hautes longueurs d'onde, la diffusion est faible d'où un coefficient d'extinction qui ne dépend que de l'absorption. On peut ainsi montrer que, si l'indice optique de la matière varie peu avec la longueur d'onde, alors K_{ext} est proportionnel à λ^{-1} (régime de Rayleigh) [58].

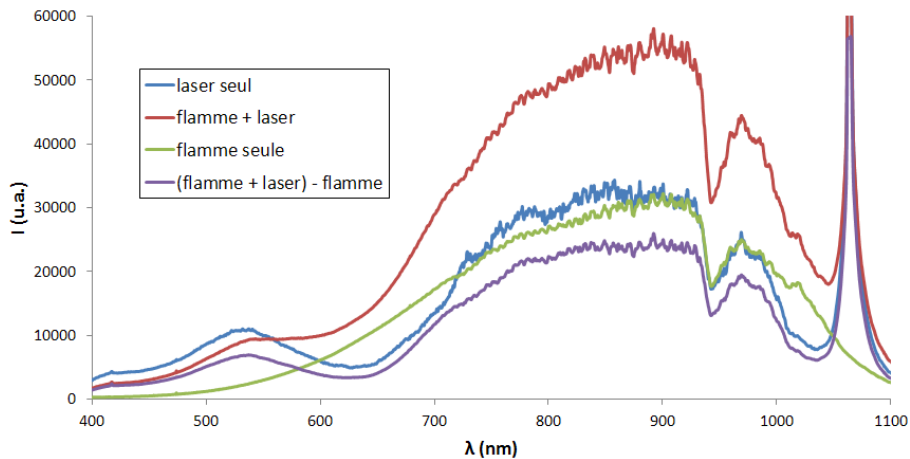


FIGURE V.14 – Spectres enregistrés pour le calcul du K_{ext} in-situ avec le brûleur gaz à $z = 34$ cm, avec laser seul = $I_0(\lambda)$, flamme + laser = $I(\lambda)$, flamme seule = $I_{fl}(\lambda)$ et (flamme + laser) - flamme = $I(\lambda) - I_{fl}(\lambda)$

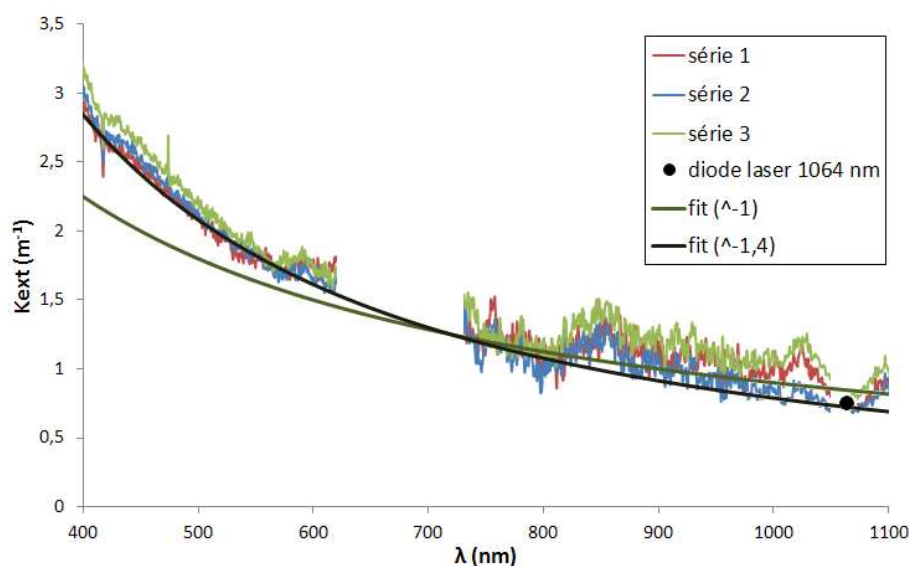


FIGURE V.15 – Coefficient d’extinction spectral mesuré in-situ dans la flamme du brûleur gaz pour 3 séries réalisées en $z = 34$ cm et $y = 1$ cm et valeur obtenue avec la diode laser à 1064 nm (pour une position identique) pour la calibration de la LII

V.2.1.2 Mesures sur le PMMA

Comme pour le brûleur gaz, les spectres sont enregistrés sur 20 s afin d’obtenir le coefficient d’extinction. Mais cette fois-ci, la flamme étant instationnaire, $I_{fl}(\lambda)$ est enregistré avant et après $I(\lambda)$ et la soustraction est faite avec la valeur moyenne de l’émission propre de la flamme. Les spectres bruts ($I_0(\lambda)$, $I(\lambda)$ et $I_{fl}(\lambda)$) sont présentés sur la figure V.16 pour $z = 34$ cm et $t = 1140$ s. Le pic de saturation autour de 1064 nm est de nouveau obtenu. On obtient cette fois-ci des signaux plus faibles que pour le brûleur gaz. La flamme de PMMA étant instationnaire, une évolution des spectres de l’émission de la flamme est présentée en fonction du temps. Les résultats obtenus sont présentés d’une part, en fonction du temps à $z = 34$ cm, sur la figure V.17, et d’autre part, pendant une phase plus stationnaire (définie dans le chapitre suivant), à trois hauteurs différentes, sur la figure V.18. On observe tout d’abord que la gamme spectrale de l’émission de la flamme, de 600 à 1100 nm (avec 1100 nm correspondant de nouveau à la borne de détection du spectromètre), est identique avec celle obtenue pour le brûleur gaz. On observe également une augmentation de l’émission au cours du temps jusqu’à environ 700 s, avec pour les premiers temps des signaux très faibles compte tenu du fait que la flamme n’a pas encore

atteint la zone de mesure. L'émission se stabilise ensuite et cela malgré la variation de la hauteur de mesure. Cette émission suit donc logiquement les phases de propagation de la flamme sur le PMMA. Toutefois, l'émission propre est toujours inférieure à celle du brûleur gaz

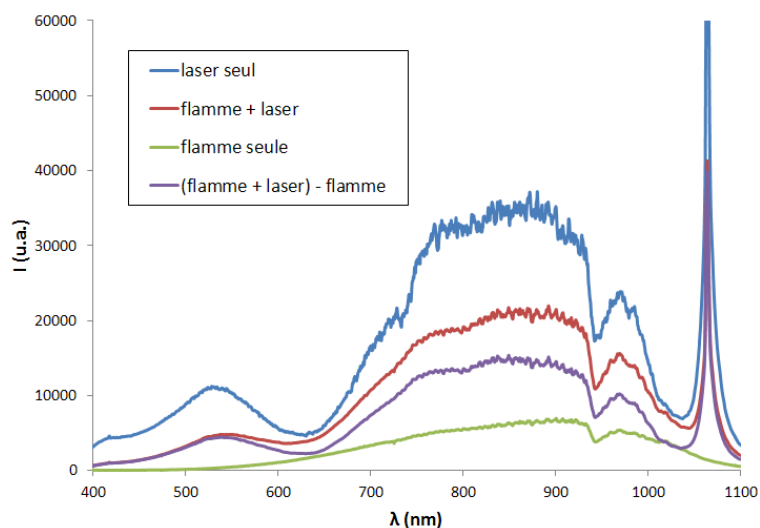


FIGURE V.16 – Spectres enregistrés pour le calcul du K_{ext} in-situ avec le PMMA à $z = 34$ cm, $y = 1$ cm et $t = 1140$ s

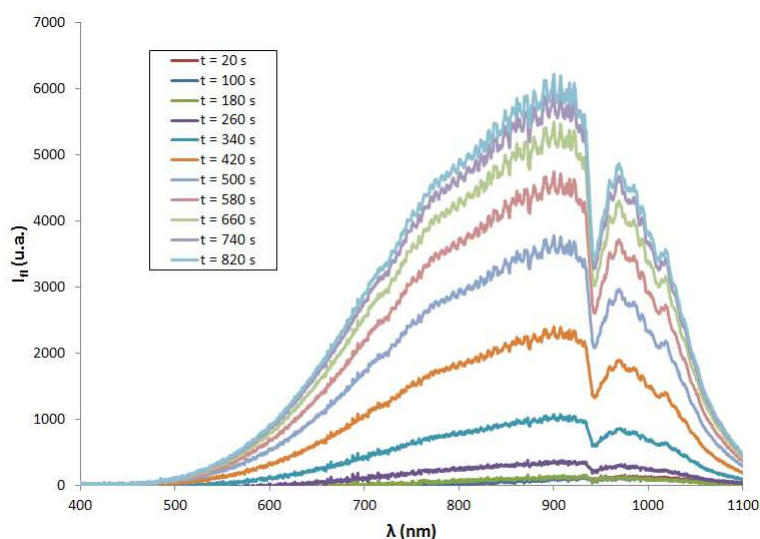


FIGURE V.17 – Spectre de l'émission de la flamme en fonction du temps pour le PMMA à $z = 34$ cm et $y = 1$ cm pendant la phase instationnaire (ces émissions propres sont directement la moyenne des deux spectres enregistrés)

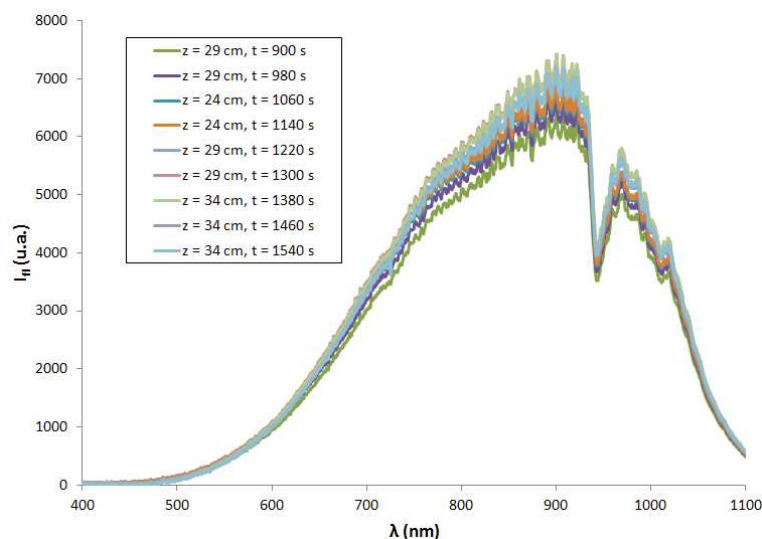


FIGURE V.18 – Spectre de l’émission de la flamme de PMMA en fonction du temps et à trois hauteurs de mesure pendant la phase plus stationnaire (ces émissions propres sont directement la moyenne des deux spectres enregistrés)

En ce qui concerne les mesures d’extinction faites sur le PMMA, on rappelle que le faisceau laser est fixe par rapport à la flamme qui se propage sur le PMMA. Comme pour les spectres d’émission propre de la flamme, les résultats sont présentés d’une part en fonction du temps à $z = 34$ cm et d’autre part pendant une phase plus stationnaire (définie dans le chapitre suivant), à trois hauteurs différentes. Pour $z = 34$ cm, le coefficient d’extinction spectrale en fonction du temps est représenté sur la figure V.19. Une mesure est obtenue toutes les 80 s, c’est-à-dire 20 s d’enregistrement pour $I(\lambda)$ et $I_{fl}(\lambda)$ avec 20 s de battement, de 20 à 820 s. Comme pour le brûleur gaz, deux zones sans valeurs apparaissent. La première va cette fois-ci de 720 nm à 760 nm. Cela est de nouveau dû à un problème d’alignement du faisceau qui ne se focalise pas correctement dans la fibre optique reliée au spectromètre. Les longueurs d’onde de cette zone sont différentes de celles obtenues pour le brûleur gaz car l’alignement a été modifié entre les deux cas et les gradients thermiques ne sont pas forcément les mêmes dans les deux flammes. Par contre la deuxième, due au laser pompe, est identique. On observe tout d’abord que le K_{ext} augmente au cours du temps avant de se stabiliser. Ceci est dû à la propagation de la flamme vers la position de mesure qui est fixe, et qui subit une augmentation de la concentration de suie avec le temps. On remarque ensuite, pour les basses longueurs

d'onde, que la décroissance en longueur d'onde augmente également au cours du temps avant de se stabiliser. Mais on remarque aussi que, au delà de 760 nm, les valeurs du K_{ext} sont constantes et plus élevées que celles avant la zone de coupure (entre 600 et 700 nm). De plus, une décroissance en λ^{-1} n'est pas obtenue, comme cela est attendu, pour les grandes longueurs d'onde. Cela peut tout d'abord provenir, comme pour la première zone de coupure, des gradients thermiques dans la flamme. Cela peut ensuite provenir de la présence d'espèces absorbantes autres que les suies (goudrons sous formes de gouttes non présentes dans le brûleur gaz et dû à la combustion du PMMA). Cela peut enfin provenir d'un problème au niveau de la soustraction des spectres mais des tests, qui semblent écarter cette hypothèse, ont été effectués.

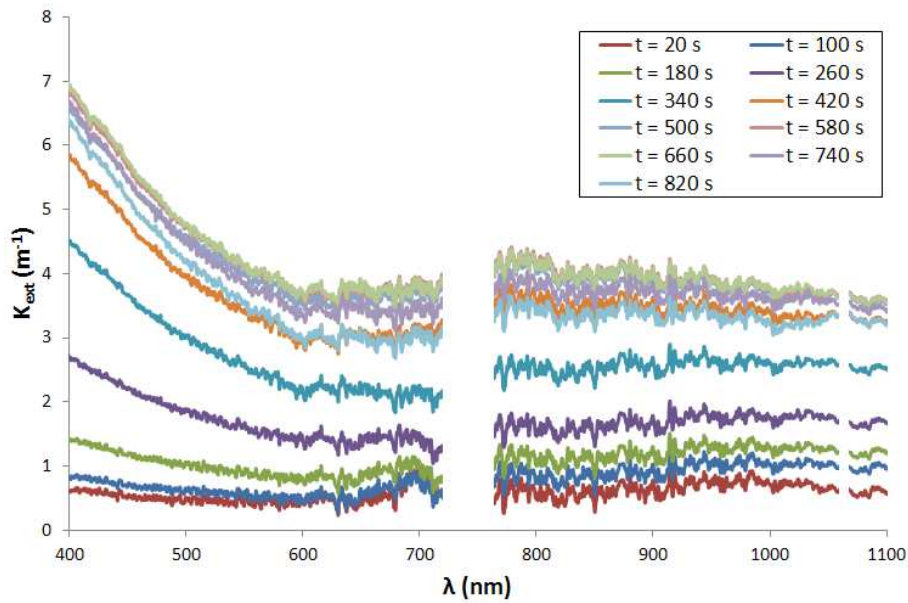


FIGURE V.19 – Coefficient d'extinction spectral in-situ pour la flamme du PMMA en fonction du temps à $z = 34$ cm et $y = 1$ cm pendant la phase instationnaire

Ensuite, des mesures à trois hauteurs $z = 34$ cm, 29 cm et 24 cm ont été réalisées à des temps plus grands pour lesquels la flamme est devenue plus stationnaire. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure V.20. Les deux zones sans valeurs sont identiques au cas précédent. On obtient cette fois-ci une diminution du K_{ext} au cours du temps et une valeur pour les basses longueurs d'onde qui semble constante. On retrouve également, comme pour la phase instationnaire, une hausse des valeurs du K_{ext} après $\lambda = 760$ nm,

par rapport à celles correspondant à 600-700 nm, qui peut être expliquée soit par un problème de détection soit par l'absorption d'espèces autres que les suies. En ce qui concerne la décroissance en fonction du temps, elle s'explique par le fait que la flamme se déplace suivant la direction y alors que la position de mesure est fixe. Ce déplacement est dû à une régression de la surface de la plaque de PMMA au fur et à mesure de sa combustion (voir chapitre 6.3). Le faisceau laser utilisé pour la mesure traverse donc au cours du temps une zone où il y a de moins en moins de suies. Entre $z = 34$ cm et 24 cm, la variation de la hauteur de mesure ne semble pas influencer la décroissance temporelle de K_{ext} .

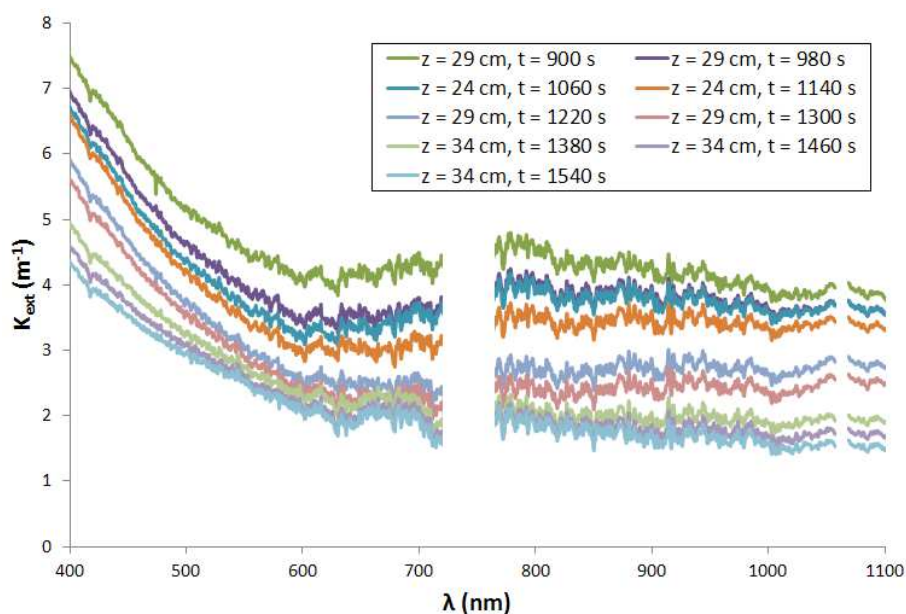


FIGURE V.20 – Coefficient d'extinction spectral in-situ pour la flamme de PMMA en fonction du temps et à trois hauteurs de mesure pendant la phase plus stationnaire

Afin de mieux se rendre compte de l'évolution au cours du temps du coefficient d'extinction, la valeur de ce dernier est tracée pour une seule longueur d'onde. La figure V.21 montre cette évolution, par exemple, pour $\lambda = 1000$ nm. On obtient une augmentation du coefficient d'extinction jusqu'à 400 s suivi d'un plateau. Ce coefficient varie d'environ 0,5 à 4 m^{-1} . Cette augmentation s'explique par le fait que la concentration en suie augmente au début dans la flamme. On verra dans le chapitre suivant que la valeur de 400 s correspond à la fin de la phase propagative de la flamme sur la plaque de PMMA.

Ensuite, entre $t = 500$ s et 1100 s, un plateau est obtenu dont la valeur moyenne est de $3,6 \pm 0,2 \text{ m}^{-1}$. Ce plateau confirme que la flamme atteint une phase plus stationnaire après la phase propagative. Enfin on retrouve, comme on l'a vu pour la figure V.20, une décroissance en fonction du temps qui s'explique par le déplacement de la flamme pour une mesure d'extinction fixe. La variation de la hauteur de mesure entre $z = 34$ cm et 24 cm semble de nouveau ne pas modifier l'évolution temporelle du K_{ext} .

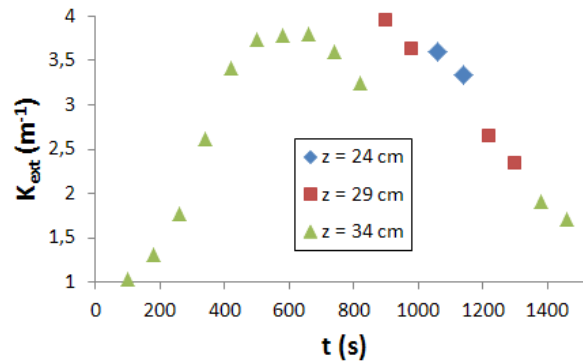


FIGURE V.21 – Coefficient d'extinction in-situ pour $\lambda = 1000$ nm dans la flamme de PMMA en fonction du temps et à trois hauteurs de mesure

Comme pour le brûleur gaz, on s'intéresse à la décroissance en fonction de la longueur d'onde. En ce qui concerne les grandes longueurs d'onde, une décroissance en λ^{-1} n'est pas obtenue, ce qui reste à expliquer. Pour la gamme spectrale de 400 à 600 nm, on trouve sur la figure V.22 l'évolution au cours du temps du paramètre de puissance x de la loi de décroissance λ^{-x} , appliquée aux évolutions spectrales des valeurs mesurées de K_{ext} . On observe une courbe croissante, qui démarre à x proche de 1, jusqu'à environ 350 s et qui atteint ensuite un plateau avec une valeur moyenne de $1,80 \pm 0,16$. La loi de décroissance λ^{-x} n'évolue donc quasiment plus en fonction du temps après la phase propagative et cela malgré la variation de la hauteur de mesure entre $z = 34$ cm et 24 cm et le déplacement de la flamme suivant y pour des temps plus grands.

V.2.2 Extinction spectrale ex-situ

Après avoir mesuré l'extinction spectrale in-situ, des mesures similaires sont effectuées mais cette fois-ci ex-situ. Pour cela l'aérosol est prélevé avec la sonde à dilution FPS. Cet

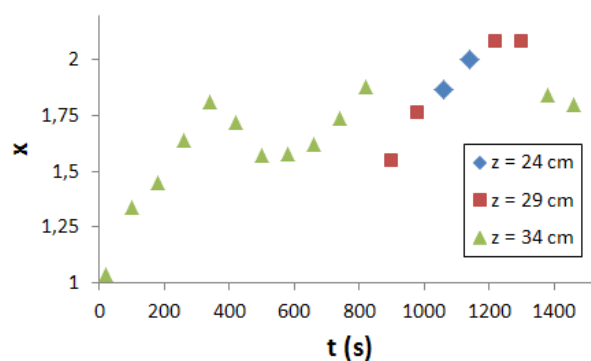


FIGURE V.22 – Paramètre de puissance x de la loi λ^{-x} avec les mesures in-situ pour une gamme spectrale de 400 à 600 nm pour la flamme du PMMA en fonction du temps et à trois hauteurs de mesure

échantillon est envoyé dans un banc de turbidimétrie pour obtenir l'extinction spectrale ex-situ (chapitre 3.4). Tout d'abord sont présentés les résultats obtenus sur le brûleur gaz puis sur le PMMA.

V.2.2.1 Mesures sur le brûleur gaz

Les résultats obtenus pour la mesure d'extinction spectrale ex-situ pour la flamme du brûleur gaz sont présentés sur la figure V.23. La position du prélèvement est identique à la position à laquelle a été mesurée l'extinction spectrale in-situ c'est-à-dire $z = 34$ cm et $y = 1$ cm. Mais la position de mesure suivant la largeur de la flamme est $x = 10$ cm (qui correspond au milieu de la flamme), par conséquent, le K_{ext} déterminé n'est pas moyenné sur toute la largeur de la flamme ($L = 20$ cm) contrairement au cas in-situ. Le temps d'enregistrement d'un spectre est également identique avec la mesure in-situ, c'est-à-dire 20 s. Trois séries de mesure sont faites et une assez bonne répétabilité est obtenue, c'est-à-dire une allure similaire mais des valeurs un peu plus faibles pour la série 1. On remarque également une décroissance de l'extinction en fonction de la longueur d'onde. Une loi du type λ^{-x} est superposée d'une part pour les basses longueurs d'onde et d'autre part pour les grandes longueurs d'onde. Sur la figure V.23, cette loi est tracée pour la série 2. On obtient une décroissance en $\lambda^{-1,4}$ pour les basses longueurs d'onde ($\lambda < 600$ nm) et en λ^{-1} pour les grandes longueurs d'onde ($\lambda > 800$ nm). Ces résultats obtenus en ex-situ seront par la suite comparés avec ceux obtenus en in-situ.

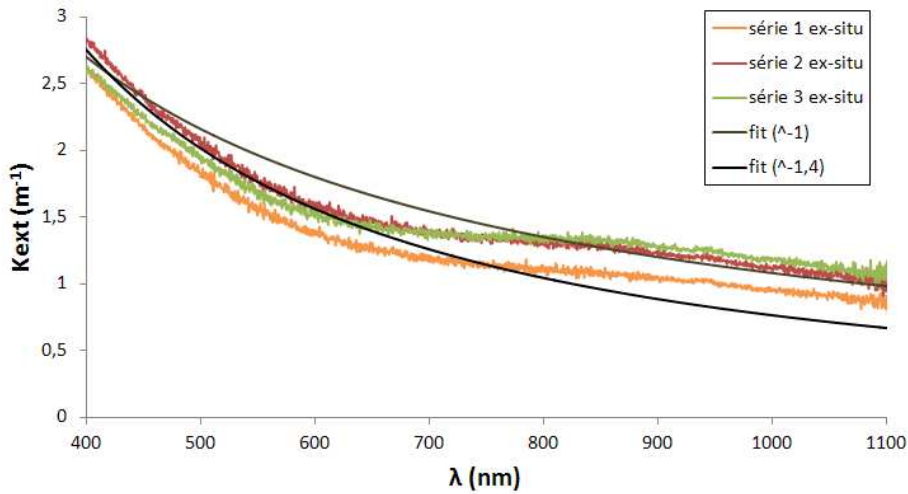


FIGURE V.23 – Coefficient d’extinction spectral ex-situ pour 3 séries de mesure dans la flamme du brûleur gaz avec tracé des lois en λ^{-x} pour la série 2 (le prélèvement ayant été fait en $x = 10$ cm, $z = 34$ cm et $y = 1$ cm)

V.2.2.2 Mesures sur le PMMA

Pour la mesure d’extinction spectrale in-situ sur la flamme du PMMA, les résultats sont présentés en fonction du temps à la même position $x = 10$ cm, $z = 34$ cm et $y = 1$ cm (figure V.24) ainsi que, pendant une phase plus stationnaire (définie dans le chapitre suivant), à trois hauteurs différentes, $z = 34$ cm, 29 cm et 24 cm (figure V.25). On obtient, comme pour les cas précédents, une décroissance du coefficient d’extinction en fonction de la longueur d’onde. Mais pour certaines, on observe une légère augmentation pour les grandes longueurs d’onde notamment pour $t = 587$ s et $t = 822$ s. Une décroissance en λ^{-1} était attendue pour ces longueurs d’onde. Cette augmentation est probablement due à un problème similaire avec celui obtenu pour la mesure in-situ. Un petit décalage dans l’alignement du faisceau (qui engendre une mauvaise focalisation dans la fibre du spectromètre) peut favoriser la détection de certaines longueurs d’onde, ici les grandes, et surestimer l’extinction. On rappelle que cela peut aussi s’expliquer par la présence d’espèces absorbantes autres que les suies, ou par des propriétés optiques des suies du PMMA différentes de celles du brûleur gaz.

Les valeurs du coefficient d’extinction ex-situ pour $\lambda = 1000$ nm sont tracées sur la figure V.26. Ce graphe permet de nouveau de mieux voir l’évolution en fonction du temps

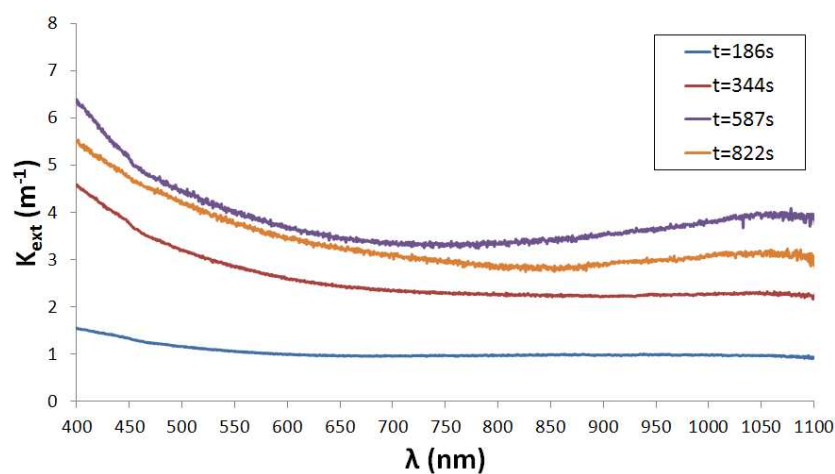


FIGURE V.24 – Coefficient d’extinction spectral ex-situ pour la flamme du PMMA en fonction du temps avec un prélèvement effectué en $x = 10$ cm, $z = 34$ cm et $y = 1$ cm)

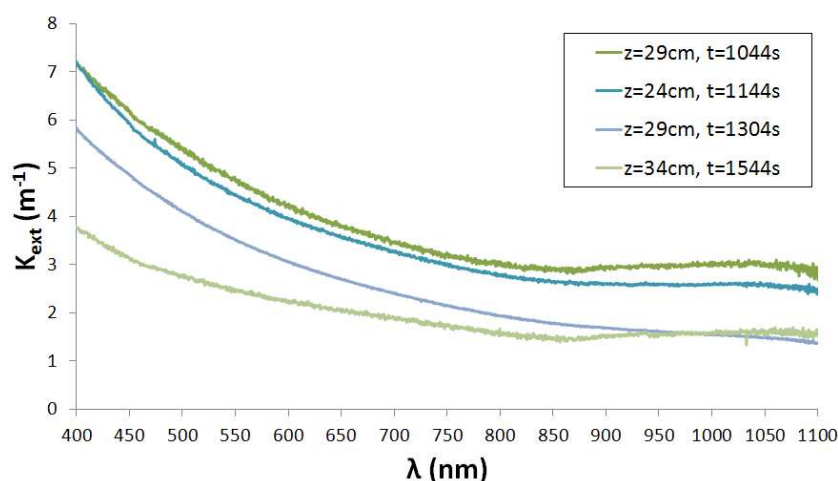


FIGURE V.25 – Coefficient d’extinction spectral ex-situ pour la flamme du PMMA à trois hauteurs de mesure

et de la position de mesure. Pour $z = 34$ cm, on obtient une croissance dans la phase propagative suivi d’un plateau puis d’une décroissance pendant la phase plus stationnaire de la flamme. Cette dernière évolution dans le temps est due, comme précédemment, au déplacement de la flamme par rapport à la position de prélèvement. Toujours pour cette dernière période, les mesures réalisées à d’autres hauteurs (24 et 29 cm) confirment cette évolution. Pour une gamme spectrale entre 400 et 600 nm, on trace sur la figure V.27 le paramètre de puissance x de la loi de décroissance λ^{-x} . On obtient des valeurs comprises entre 1,1 et 1,6. Par rapport aux cas précédents, les résultats sont plus dispersés mais

cela est certainement dû au faible nombre de points obtenus notamment dans la phase propagative. Aucune tendance ne peut donc être déduite ici comme pour la mesure in-situ où le nombre de points étaient plus important (voir figure V.22).

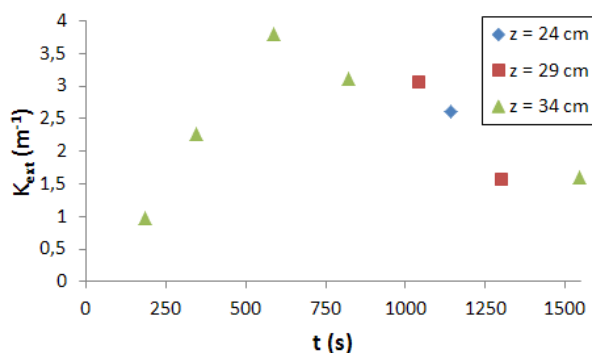


FIGURE V.26 – Coefficient d’extinction ex-situ avec $\lambda = 1000$ nm pour la flamme du PMMA en fonction du temps et à différentes hauteurs de mesure

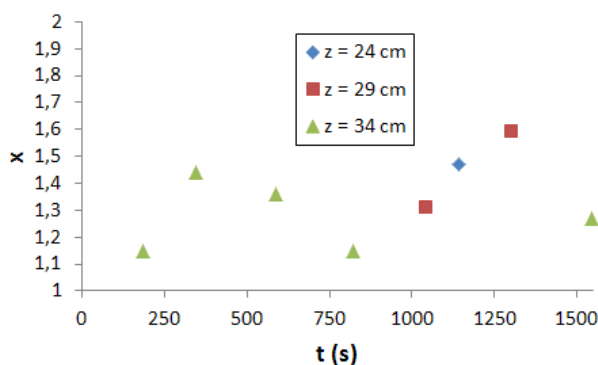


FIGURE V.27 – Décroissance en λ^{-x} des mesures ex-situ avec une gamme spectrale de 400 à 600 nm pour la flamme du PMMA en fonction du temps et de la hauteur de mesure

V.2.2.3 Comparaison in-situ et ex-situ : effet de la température sur les propriétés optiques

Une différence importante qu’il existe entre les mesures d’extinction in-situ et ex-situ est la température des particules de suie. La mesure in-situ se fait directement dans la flamme, les particules de suie sont donc soumises à la température de cette dernière. Pour la mesure ex-situ, un prélèvement est effectué. Dans ce cas les particules se refroidissent

avant d'atteindre le banc de turbidimétrie. Elles se retrouvent donc à une température comprise entre 293 K (température ambiante) et 323 K (température de l'air de dilution du FPS). Afin de voir l'influence de la température sur les propriétés optiques des particules, les résultats in-situ et ex-situ sont comparés. Une seconde différence concerne la prise en compte de la largeur de la flamme. La mesure in-situ est moyennée sur la totalité de cette dernière (20 cm) alors que le prélèvement est fait en $x = 10$ cm. La comparaison permettra donc de voir également si la mesure moyenne (in-situ) est représentative de la mesure ponctuelle (ex-situ).

La comparaison est tout d'abord faite pour les suies générées par le brûleur gaz. Les coefficients d'extinction spectraux mesurés dans les deux cas sont tracés sur la figure V.28. Sur l'ensemble du spectre, les courbes se superposent assez bien, l'accord étant meilleur pour les grandes longueurs d'onde. Cela veut tout d'abord dire que les échantillons des mesures ex-situ sont représentatifs des particules existant au point de prélèvement. La technique d'échantillonnage n'a pas beaucoup perturbé la flamme. Ce point est important car on a vu que, pour le PMMA, la dispersion des résultats expérimentaux étaient un peu plus grande. On peut affirmer que, pour les mêmes positions de prélèvement dans la flamme, cette dispersion n'est pas imputable à la perturbation apportée par la sonde de prélèvement mais plutôt à une variabilité dans les processus d'allumage et de propagation de la flamme. D'autre part cette concordance des spectres implique que la température ne semble pas avoir beaucoup d'effets sur le coefficient d'extinction. Cela montre également que la mesure ponctuelle (mesure ex-situ) est représentative de la valeur moyenne sur la largeur de la flamme (mesure in-situ). On a pu également voir, sur les figures V.15 et V.23, que les décroissances en longueur d'onde étaient similaires, c'est-à-dire une décroissance en $\lambda^{-1,4}$ pour les basses longueurs d'onde et en λ^{-1} pour les grandes longueurs d'onde.

Une comparaison similaire est effectuée pour les suies issues de la combustion du PMMA. Les courbes d'extinction in-situ et ex-situ sont associées une à une pour des temps proches. On rappelle que le spectre des mesures ex-situ est continu et qu'il n'y a pas de mesures aux alentours de 750 nm et de 1064 nm pour les mesures in-situ. Les mesures pour la période correspondant au début de la combustion de la plaque sont reportées sur

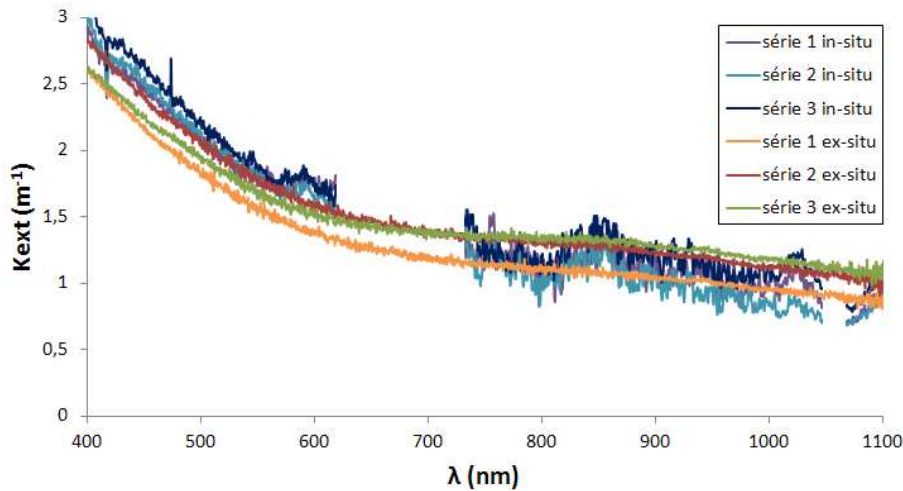


FIGURE V.28 – Comparaison entre les mesures d’extinction spectrales in-situ et ex-situ pour la flamme du brûleur gaz à $z = 34$ cm

la figure V.29 pour $z = 34$ cm, et pour la phase plus stationnaire sur la figure V.30 pour trois hauteurs différentes. On obtient des courbes assez proches entre les mesures in-situ et ex-situ. La similarité des résultats n’est pas aussi marquée que pour le brûleur gaz mais il faut tenir compte du fait que la répétabilité est moins bonne avec la combustion des plaques de PMMA. Les mesures in-situ et ex-situ ont été faites sur deux allumages différents de plaques et l’évolution de la flamme n’est pas parfaitement reproductible malgré une procédure d’allumage identique. La similitude des résultats observée grâce à cette comparaison suggère que la température des particules ne joue également pas de rôle sur les propriétés optiques des particules générées par la combustion du PMMA. Et aussi que la mesure ponctuelle (mesure ex-situ) est représentative de la valeur moyenne sur la largeur de la flamme (mesure in-situ). Ceci sera confirmé ci-dessous grâce à une comparaison plus détaillée à $\lambda = 1000$ nm et sur le coefficient de puissance x de la loi de décroissance λ^{-x} .

On trace sur la figure V.31 l’ensemble des valeurs obtenues in-situ et ex-situ pour le coefficient d’extinction pour $\lambda = 1000$ nm et sur la figure V.32 pour le paramètre x . Pour le premier graphique, on obtient des valeurs proches en fonction du temps. On note que la concordance est un peu moins bonne durant la phase stationnaire. Malgré tout, cela confirme donc qu’il n’y a pas d’effet sensible de la température. Pour le deuxième

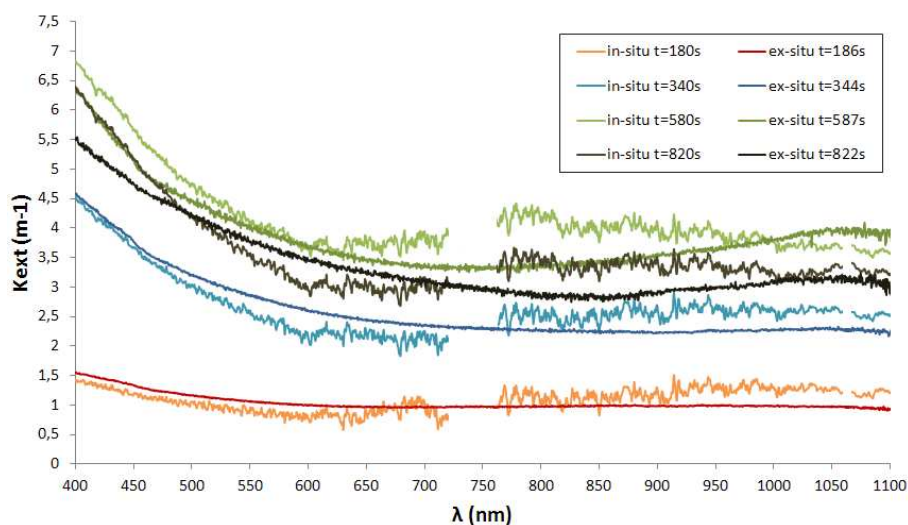


FIGURE V.29 – Comparaison entre les mesures d’extinction spectrales in-situ et ex-situ pour la flamme du PMMA à $z = 34$ cm et au début de la combustion de la plaque

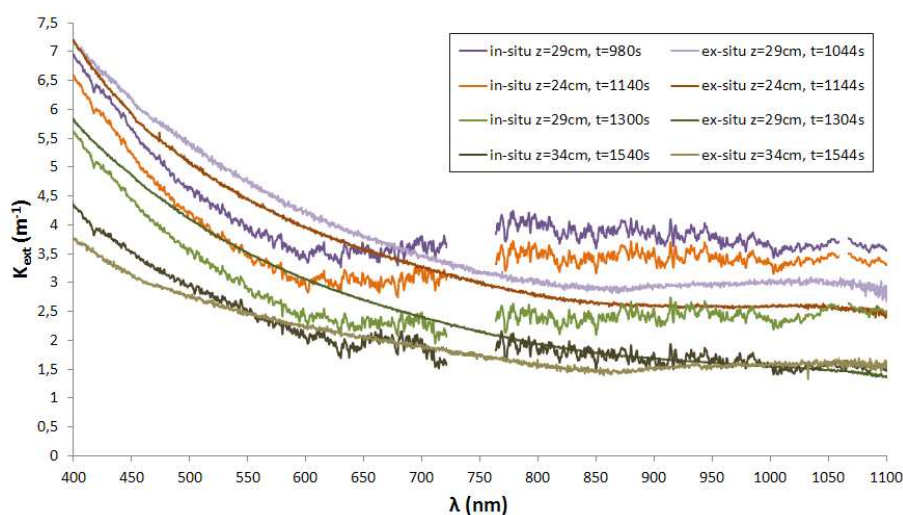


FIGURE V.30 – Comparaison entre les mesures d’extinction spectrales in-situ et ex-situ pour la flamme du PMMA dans la phase plus stationnaire de la combustion de la plaque

graphique, les valeurs de x obtenues en ex-situ sont toujours inférieures à celles en in-situ, mais l’évolution au cours du temps est similaire. De façon générale, on peut donc conclure que, pour le brûleur gaz ou pour le PMMA, on obtient des résultats similaires pour l’extinction entre les mesures in-situ et ex-situ et donc que la température des particules de suie ne modifie pas beaucoup les propriétés optiques de ces dernières. La valeur du coefficient d’extinction dans le visible dépend de la morphologie et de la taille des agrégats

de suie mais aussi de l'indice optique de la matière de ces particules. A priori, à un instant et une hauteur donnés dans la flamme, la morphologie et la taille ne changent pas entre les particules présentes dans l'écoulement et les échantillons prélevés. On pourrait objecter que la sonde de prélèvement déforme les agrégats mais les résultats sur la flamme du brûleur gaz confirment le contraire, tout comme une étude de Ouf et al. sur le sujet [96]. Seul l'indice optique pourrait varier, d'autant plus qu'il est fonction de la température. La concordance observée sur les résultats in-situ et ex-situ mériterait d'être analysée plus en détail en considérant par exemple une loi de dispersion de l'indice de la matière [58].

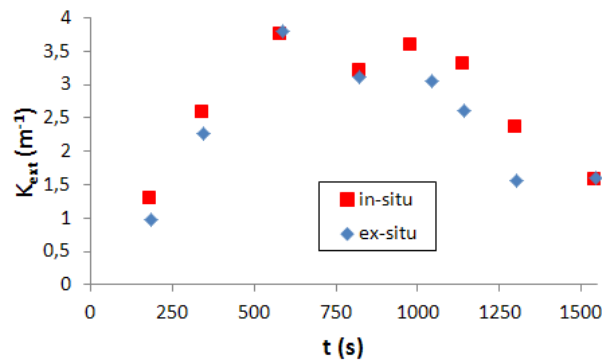


FIGURE V.31 – Comparaison des coefficients d'extinction ex-situ et in-situ avec $\lambda = 1000$ nm pour la flamme du PMMA (à trois hauteurs de mesure non différenciées ici)

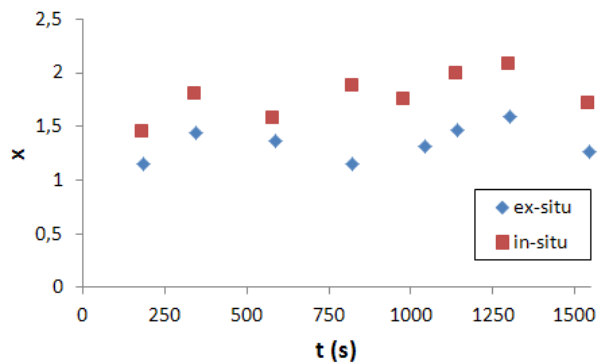


FIGURE V.32 – Comparaison de la décroissance en λ (loi λ^{-x}) entre les mesures ex-situ et in-situ pour une gamme spectrale de 400 à 600 nm pour la flamme du PMMA (pour les trois hauteurs de mesure non différenciées ici)

V.3 Extinction spécifique et fonction d'indice $E(m)$

Le coefficient d'extinction a été déterminé dans la flamme du brûleur gaz et du PMMA. Mais pour pouvoir faire une comparaison avec des valeurs de la littérature, d'autres propriétés optiques qui découlent du coefficient d'extinction doivent être calculées. Les propriétés les plus souvent rencontrées sont l'extinction spécifique σ_s et la fonction d'indice $E(m)$. De plus, comme vu dans le chapitre 2.3, la fonction d'indice permet d'obtenir le coefficient d'extinction adimensionné K_e utilisé dans la calibration de la LII. L'extinction spécifique σ_s est reliée au coefficient d'extinction suivant la relation (équation II.20) :

$$K_{ext} = \sigma_s C_s$$

Le coefficient d'extinction adimensionné est donné par (équation II.20) :

$$K_{ext} = \frac{K_e C_s}{\lambda \rho_s}$$

Le coefficient d'extinction est la somme du coefficient d'absorption et du coefficient de diffusion (équation II.10) :

$$K_{ext} = K_{abs} + K_{dif}$$

Si on peut négliger la diffusion, ce qui est surtout vrai aux grandes longueurs d'onde ($\lambda > 600\text{nm}$) [58], alors K_{ext} est égal à K_{abs} et la fonction d'indice $E(m)$ est donné par (équation II.21) :

$$\sigma_s = \frac{6\pi E(m)}{\rho_s \lambda}$$

V.3.1 Concentration massique

Les équations précédentes montrent qu'il est donc nécessaire de connaître la concentration massique pour déterminer σ_s , $E(m)$ et K_e . Comme vu dans le chapitre 3.4, le TEOM permet de mesurer cette grandeur. Mais cela s'effectue à partir d'un aérosol, donc après prélèvement des suies dans la flamme. La sonde de prélèvement (essentiellement son embout) aurait gêné le passage du faisceau laser blanc pour les mesures in-situ. C'est pourquoi les mesures de C_s n'ont été faites que pour les observations ex-situ. Les valeurs de la concentration massique obtenues pour le brûleur gaz sont présentées sur la figure V.33. Deux dilutions de la sonde FPS ont été choisies : 7 et 12. Cette variation de la dilution permet de voir si cette dernière influence la mesure de la concentration massique. Ensuite les deux méthodes qui permettent d'obtenir la concentration massique ont été utilisées : le suivi temporel de la concentration massique (mass conc) et le suivi temporel de l'augmentation linéaire de la masse (pente) comme cela a été détaillé dans le chapitre 3.4. On constate tout d'abord, sur la figure V.33, qu'il n'y a pas de différence notable entre les valeurs mesurées avec les deux dilutions. On remarque également qu'il n'y a pas de différence systématique entre les deux méthodes d'interprétation des signaux du TEOM. Enfin, on observe une dispersion des résultats mais une moyenne se dégage. La valeur moyenne est calculée sur les 20 mesures effectuées avec les différentes conditions. On obtient $C_s = 0,163 \pm 0,020 \text{ g.m}^{-3}$.

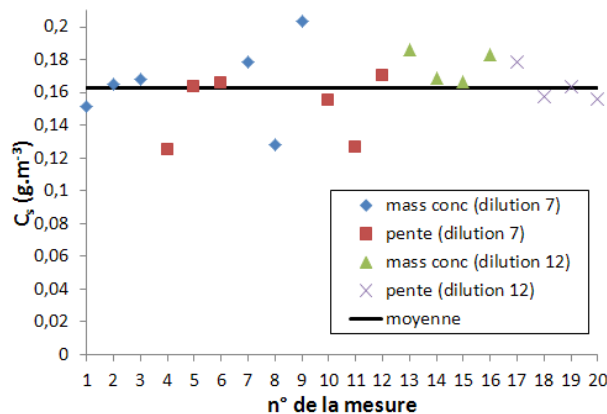


FIGURE V.33 – Concentration massique pour les suies du brûleur gaz déterminée par deux méthodes d'interprétation des signaux du TEOM et pour deux dilutions de la sonde de prélèvement

Pour le cas du PMMA, la concentration massique est de nouveau mesurée avec les deux méthodes d'interprétation des signaux du TEOM (mass conc et pente). Mais cette fois-ci la dilution est fixée à 10, compte tenu du fait qu'elle n'a pas d'effet notable sur les valeurs mesurées. La figure V.34 montre les valeurs de la concentration massique obtenues au cours du temps. On obtient une croissance au cours du temps, liée à la propagation verticale de la flamme durant la phase instationnaire, suivie d'une décroissance (à partir de $t = 1100$ s). Cette décroissance est similaire à celle obtenue pour le K_{ext} , qui est liée au déplacement de la flamme suivant y . Comme vu précédemment, cela engendre une diminution des suies prélevées et donc une diminution de la concentration massique. La valeur moyenne calculée durant la phase stationnaire est égale à $0,313 \pm 0,030 \text{ g.m}^{-3}$, soit environ le double de la valeur obtenue avec le brûleur gaz.

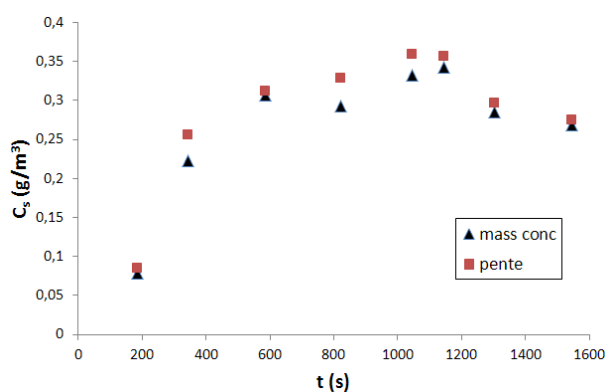


FIGURE V.34 – Concentration massique pour les suies du PMMA en fonction du temps déterminée par deux méthodes d'interprétation des signaux du TEOM

V.3.2 Extinction spécifique

Une fois la concentration massique déterminée, il est possible de calculer l'extinction spécifique spectrale à partir du coefficient d'extinction spectral ex-situ (équation II.20). On rappelle que la mesure de la concentration massique n'a été réalisée que lors des mesures ex-situ. Pour la flamme de brûleur gaz, les résultats obtenus sont présentés sur la figure V.35 pour $z = 34$ cm. L'extinction spécifique pour le brûleur gaz décroît de 17 à $5 \text{ m}^2.\text{g}^{-1}$.

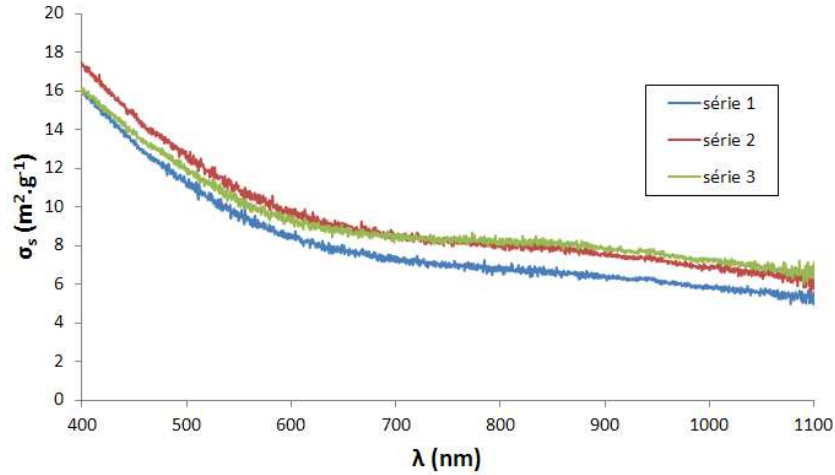


FIGURE V.35 – Extinction spécifique spectrale pour la flamme de brûleur gaz en fonction du temps à $z = 34$ cm obtenue à partir des mesures ex-situ

Pour la flamme de PMMA, les résultats sont présentés sur la figure V.36. L'ensemble des résultats en fonction du temps et à différentes hauteurs a été regroupé sur la même figure. On constate, comme pour K_{ext} , une certaine dispersion des résultats. Mais on remarque qu'elle est moins grande que celle de K_{ext} (voir figure V.24 et V.25), surtout durant la phase stationnaire de la combustion de la plaque (pour $t > 1044$ s et les trois hauteurs de mesure). L'extinction spécifique ne varie plus avec le temps et la hauteur de mesure durant cette phase. Celle-ci met donc mieux en évidence les propriétés optiques intrinsèques des particules de suie. Les valeurs obtenues vont de 20 à 5 $\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$. On obtient donc des valeurs assez proches de celles obtenues pour la flamme du brûleur gaz.

Pour l'extinction spécifique spectrale ou pour trois longueurs d'onde : $\lambda = 458, 632$ et 1064 nm, on trouve d'autres valeurs dans la littérature. Mulholland et al. ont effectué des mesures pour une flamme jet d'éthylène [97, 98]. Ouf et al. [60] et Newman et al. [99] ont étudié une flamme de PMMA respectivement pour un feu de nappe et dans les fumées. Enfin, dans le but de comparer l'extinction spécifique obtenue pour d'autres combustibles, Schnaiter et al. [100] et Yon et al. [58] ont effectué des mesures pour une flamme jet de diesel. Yon et al. ont de plus effectué ces mesures avec un dispositif identique à cette étude. La comparaison des résultats est montrée sur la figure V.37. Les valeurs de cette étude présentées sont des valeurs moyennes sur les trois séries pour le brûleur gaz et à

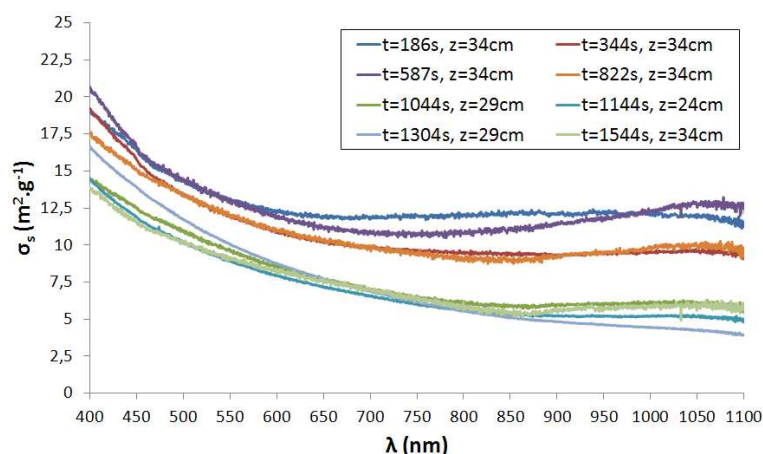


FIGURE V.36 – Extinction spécifique spectrale pour la flamme de PMMA en fonction du temps et de la hauteur de mesure

partir de $t = 822$ s pour le PMMA (élimination de la phase propagative). Les résultats obtenus dans cette étude pour les deux flammes sont en bon accord avec les valeurs de la littérature pour des combustibles identiques et entre le PMMA et l'éthylène (avec ou sans méthane). Par contre, ces résultats sont plus élevés que pour ceux obtenus avec le diesel. L'extinction spécifique est donc sensible à la nature du combustible mais elle est tout de même similaire entre le PMMA et l'éthylène (avec ou sans méthane). De plus, elle ne semble pas sensible à la configuration de combustion.

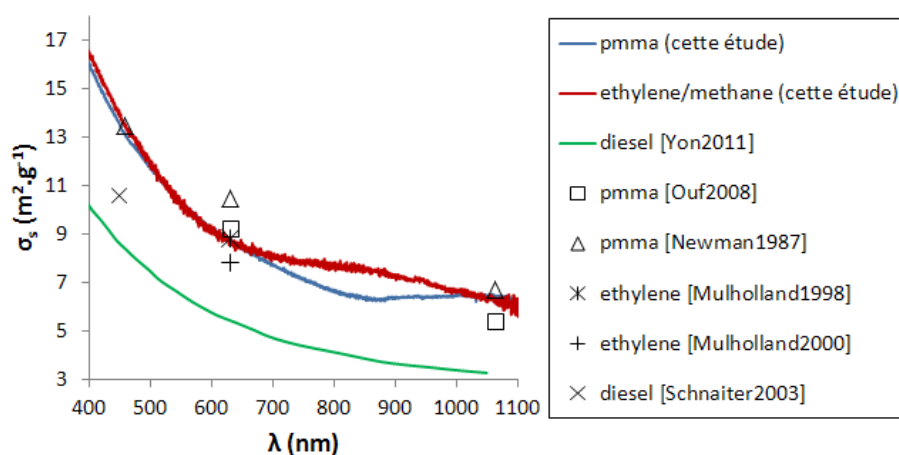


FIGURE V.37 – Comparaison de quelques valeurs disponibles dans la littérature de l'extinction spécifique spectrale ou à trois longueurs d'onde (458, 632 et 1064 nm) avec celles de cette étude

V.3.3 Fonction d'indice $E(m)$ et coefficient d'extinction adimensionné

A partir de l'extinction spécifique spectrale, on obtient la fonction d'indice $E(m)$ (équation II.21), en supposant la diffusion négligeable sur la gamme spectrale de mesure, à condition de connaître la masse volumique de la matière suie. Actuellement, cette valeur n'est pas encore bien connue. Nous avons choisi la valeur $\rho_s = 1,74 \text{ g.cm}^{-3}$ [101]. Pour les 3 séries de mesure réalisées avec le brûleur gaz et à $z = 34 \text{ cm}$, les valeurs de la fonction d'indice en fonction de la longueur d'onde sont reportées sur la figure V.38. Les valeurs obtenues sont comprises entre 0,45 et 0,7. Pour les grandes longueurs d'onde, la fonction d'indice obtenue est constante comme pour l'extinction spécifique (régime de Rayleigh). Mais on s'aperçoit aussi qu'elles ne sont pas très différentes des valeurs déterminées aux plus faibles longueurs d'onde. Les mesures réalisées dans ce travail montrent que $E(m)$ varie peu avec la longueur d'onde pour la flamme du brûleur gaz étudiée. Par contre, les valeurs obtenues s'avèrent être élevées par rapport à celles que l'on trouve généralement dans la littérature : dans la gamme 0,2 - 0,4 pour le domaine des longueurs d'onde visible et proche infra-rouge [17]. Mais il faut faire attention au fait que $E(m)$ dépend fortement de ρ_s qui n'est pas encore bien connue.

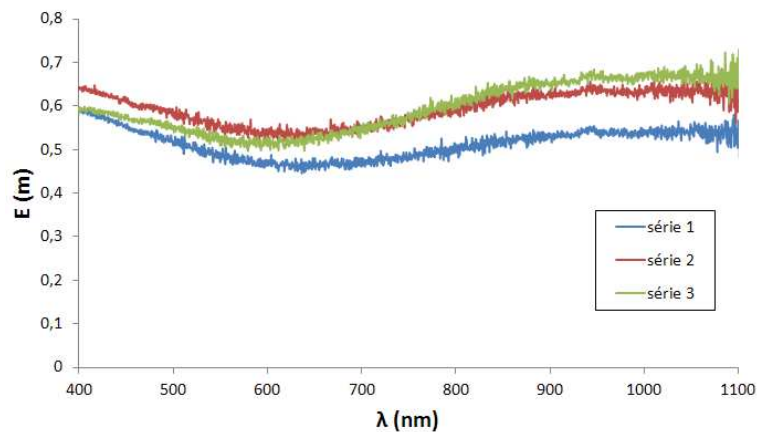


FIGURE V.38 – Fonction d'indice spectrale $E(m)$ pour le brûleur gaz à $z = 34 \text{ cm}$

Pour la flamme de PMMA, la fonction d'indice spectrale est présentée sur la figure V.39 en fonction du temps et de la hauteur de mesure. Pour $t < 1044 \text{ s}$ et $\lambda > 600 \text{ nm}$, on

constate que $E(m)$ n'est pas constant, mais augmente avec λ . Ceci est logique si on se réfère aux résultats de la figure V.24 qui montraient que K_{ext} est pratiquement constant (voir en légère augmentation). Par contre pour $t > 1044$ s, on retrouve comme pour le cas du brûleur gaz et en accord avec les résultats de la figure V.25, que $E(m)$ varie peu avec λ et est constante en fonction du temps et de la hauteur (si $z \geq 24$ cm). On constate que les valeurs de $E(m)$ déterminées pour le PMMA sont, comme pour le brûleur gaz, élevées par rapport à celles que l'on rencontre dans la littérature qui ont une valeur proche de 0,4 [17]. Ceci peut s'expliquer par la présence d'autres espèces que les suies qui modifie donc les propriétés optiques globales. On constate également que les valeurs de $E(m)$ pour les deux flammes sont très proches pour les basses longueurs d'onde, notamment entre 400 et 500 nm. Ces longueurs d'onde correspondent à la zone de détection de la LII (avec l'utilisation du filtre à 410 ± 50 nm). La similarité des fonctions d'indice justifie donc que la calibration est été faite sur le brûleur gaz pour calibrer les mesures du PMMA (chapitre 4.4), le coefficient d'étalonnage étant dépendant du $E(m)$ (équation II.29). De plus, dans cette gamme de longueur d'onde, $E(m)$ varie peu en fonction du temps pour le PMMA.

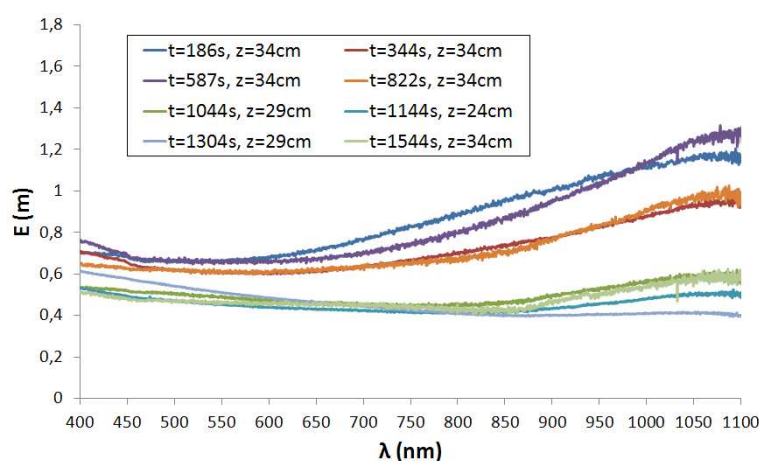


FIGURE V.39 – Fonction d'indice spectrale pour la flamme de PMMA en fonction du temps et de la hauteur de mesure

Pour obtenir le coefficient d'extinction adimensionné qui sera utilisé dans la calibration de la LII, il suffit de multiplier la fonction d'indice $E(m)$ par 6π . Les valeurs obtenues sont présentées sur la figure V.40 pour le brûleur gaz et sur la figure V.41 pour la flamme de PMMA. On obtient pour le brûleur gaz des valeurs qui varient de 9 à 12. De plus, le K_e

devient constant à partir de $\lambda = 800$ nm. Pour le PMMA, les valeurs varient de 8 à 23. On obtient, jusqu'à $t = 1044$ s, une décroissance de K_e au cours du temps et une augmentation en fonction de la longueur d'onde. Enfin, à partir de $t = 1044$ s, le coefficient d'extinction adimensionné ne varie presque plus en fonction du temps, ceci malgré la variation de la position de mesure, et il a une allure similaire à celle obtenue pour le brûleur gaz. Pour ces temps, le K_e varie de 8 à 11. Afin de pouvoir utiliser ce coefficient par la suite, une valeur moyenne est calculée. Pour la flamme du brûleur gaz, la dispersion entre les trois essais est due à la répétabilité de la mesure, qui donne une estimation de l'erreur. La moyenne est effectuée pour $\lambda > 900$ nm, c'est-à-dire pour une zone où la diffusion est faible et où la fonction d'indice obtenue est constante. Une valeur de $11,5 \pm 1$ est obtenue. Cette valeur sera utilisée pour la calibration de la LII dans le calcul de la fraction volumique à partir de l'extinction mesurée, d'autant plus que cette calibration est faite avec une longueur d'onde de 1064 nm (chapitre 3.3). Par contre, pour le PMMA et au début de l'essai, la flamme est instationnaire par rapport au système de mesure, la moyenne doit être faite après cette période durant la phase plus stationnaire. Donc pour la flamme de PMMA, la moyenne est également effectuée pour $\lambda > 900$ nm, mais sans tenir compte des résultats obtenus durant la phase propagative. Une valeur de $9,7 \pm 0,6$ est obtenue. Par comparaison, la valeur prise provisoirement dans la littérature dans le chapitre 4.4 pour le calcul du coefficient d'étalonnage était de 6,4 [88]. Cette valeur est mesurée sur une flamme de brûleur gaz alimentée en éthylène avec une longueur d'onde de 1310 nm. Un rapport 1,5 est obtenu entre la valeur de la littérature choisie et la valeur mesurée dans cette étude pour la flamme du brûleur gaz, d'où l'importance de la détermination de ce coefficient. D'autant plus que ce coefficient dépend du combustible utilisé et de la configuration de la combustion, et que les valeurs que l'on trouve dans la littérature sont très dispersées comme vu dans le chapitre 2.3.

V.4 Conclusion sur les propriétés optiques des suies

Ce chapitre a permis de déterminer les caractéristiques morphologiques et les propriétés optiques pour les particules de suie produites dans deux flammes différentes. Les

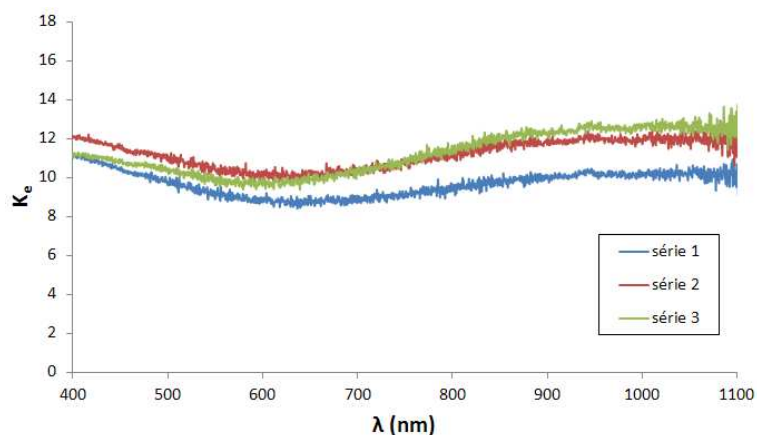


FIGURE V.40 – Coefficient d'extinction adimensionné spectral pour la flamme du brûleur gaz en fonction du temps à $z = 34$ cm

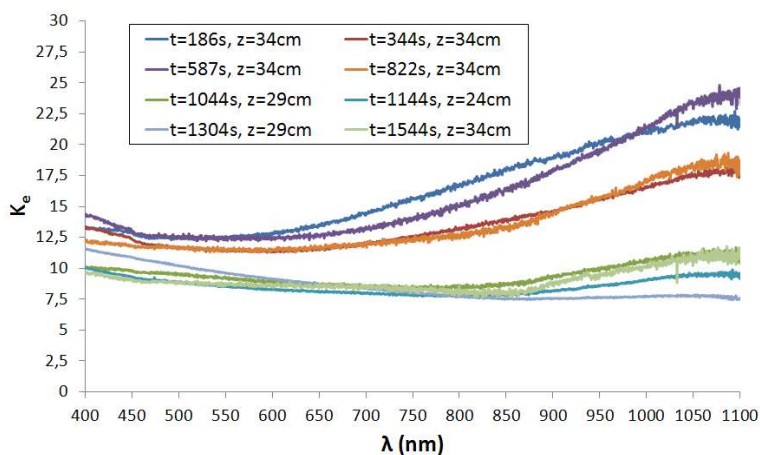


FIGURE V.41 – Coefficient d'extinction adimensionné spectral pour la flamme de PMMA en fonction du temps et de la hauteur de mesure

résultats obtenus sont les suivants :

- pour le brûleur gaz et le PMMA, les caractéristiques morphologiques des particules sont proches,
- les valeurs du diamètre des sphérules primaires sont plus faibles que celles de la littérature mais la configuration de la présente étude n'avait encore jamais été étudiée,
- les propriétés fractales sont en bon accord avec celle de la littérature,
- les mesures du coefficient d'extinction spectrale en in-situ et ex-situ montrent qu'il n'y a pas d'effet sensible de la température des particules sur les propriétés optiques,

- l’extinction spécifique est en bon accord avec les valeurs de la littérature pour le brûleur gaz et pour le PMMA,
- la similarité des fonctions d’indice entre les deux flammes pour la longueur d’onde de détection de la LII appuie le choix du brûleur gaz pour calibrer les signaux LII de la flamme de PMMA,
- une valeur moyenne de 11,5 du coefficient d’extinction adimensionné a été déterminée et sera utilisé dans la calibration de la LII pour le calcul de la fraction volumique à partir de l’extinction mesurée à 1064 nm dans la flamme du brûleur gaz.

Le chapitre suivant montrera les concentrations de particules de suie obtenues dans les flammes de parois verticales grâce à l’utilisation de la LII.

Chapitre VI

Résultats sur la combustion PMMA

Ce dernier chapitre se focalise sur les résultats obtenus pour la combustion du PMMA. La LII est la principale méthode de mesure employée ici. Elle permet d'obtenir la fraction volumique de suie mais également le taux de combustion. Tout d'abord sont détaillées les différentes phases de la combustion de la plaque de PMMA. Ensuite sont présentés les champs de signal LII obtenus en instantanés et de façon moyennés dans le temps. Ces champs, une fois calibrés, fournissent la fraction volumique de suie en fonction du temps et de la position dans la flamme. Enfin sont montrés des résultats sur le taux de combustion et sur le taux de dégagement de chaleur.

VI.1 Propagation de la flamme

VI.1.1 Les phases de propagation

Cette partie détaille les différentes étapes rencontrées lors de la combustion de la plaque de PMMA. Le montage comprenant la plaque de PMMA ainsi que le cadre en acier qui maintient cette dernière ont été présentés dans le chapitre 3.1. Le démarrage de la flamme est obtenu grâce à un barreau chauffant ce qui permet un allumage homogène sur le bas de la plaque. Le temps $t = 0$ s correspond à l'apparition de la flamme. Des photos de l'évolution de la flamme au cours du temps sont présentées sur la figure VI.1 pour $t = 60, 250$ et 1500 s. On peut voir pour la première photo que la flamme est bien

homogène sur la largeur de la plaque. Ensuite la flamme se propage dans la direction verticale. Le cadre permet de limiter la zone de combustion et empêche une propagation sur les bords de la plaque. Il limite aussi la hauteur. La propagation suivant la hauteur est donc stoppée une fois que la flamme a atteint le bord du cadre en haut de la plaque. Une fois cette hauteur atteinte, la flamme va creuser la plaque de PMMA sous l'effet de la pyrolyse mais la hauteur de la flamme moyenne ne va plus varier au cours du temps.

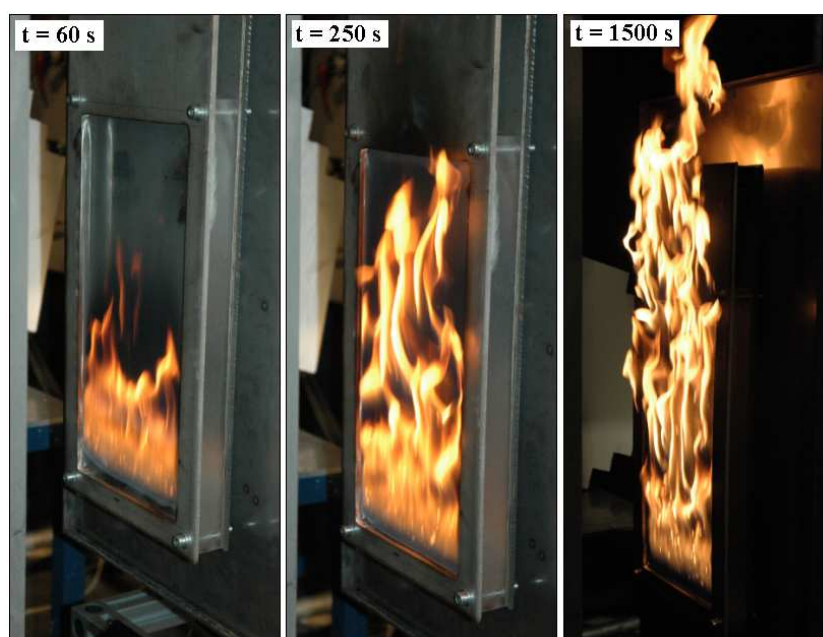


FIGURE VI.1 – Photos de l'évolution de la flamme au cours du temps pour la combustion de la plaque verticale de PMMA

Pour permettre une meilleure caractérisation des étapes de propagation de la flamme, la visualisation de la flamme n'est pas suffisante. Pizzo et al., avec un montage similaire, ont mesuré la perte de masse au cours du temps [15]. Ces mesures ont été effectuées pour différentes largeurs de plaques w . La largeur qui correspond à celle de cette étude est $w = 20$ cm. L'évolution au cours du temps de la perte de masse est présentée sur la figure VI.2. La perte de masse augmente au cours du temps jusqu'à atteindre un plateau pour un temps proche de 1500 s. L'évolution de la flamme est ainsi découpée en trois étapes : la phase propagative, la phase instationnaire et la phase stationnaire. La phase propagative correspond au parcours de la zone de pyrolyse et du point d'attache de la flamme du bas jusqu'au bord supérieur de la plaque. Pour une largeur de 20 cm, cette phase se termine

pour un temps d'environ 400 s. Une fois que la flamme s'est installée sur la totalité de la surface du PMMA, une phase instationnaire commence. Durant cette phase, la perte de masse continue d'augmenter au cours du temps. Cette variation dans le temps, malgré que la flamme ne se propage plus, est liée à la conduction dans le solide. Une fois que le flux conductif ne joue plus de rôle, la perte de masse ne va plus varier au cours du temps. La flamme est alors dans une phase stationnaire qui débute à partir d'environ 1500 s. Cette dernière ne va donc plus varier au cours du temps. La seule évolution temporelle présente dans cette phase est la régression de la surface de la plaque due à la pyrolyse et qui permet d'avoir une perte de masse constante. Cette régression va donc entraîner un déplacement de la flamme vers l'intérieur du cadre c'est-à-dire dans la direction y (voir figure III.3). On verra par la suite les avantages et désavantages de ce déplacement de la flamme pour les mesures effectuées.

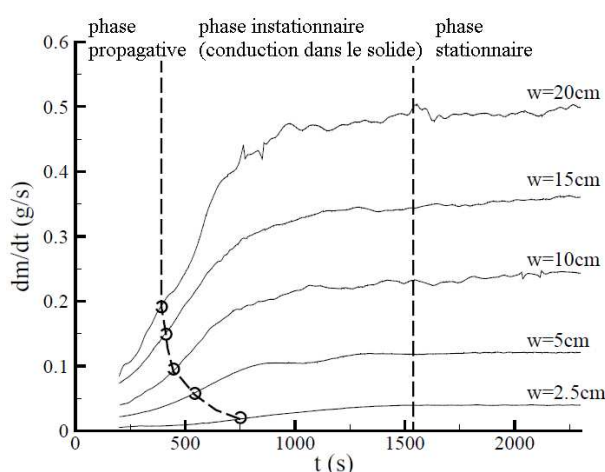


FIGURE VI.2 – Mesure de la perte de masse au cours du temps montrant les différentes étapes de la combustion de plaques verticales de PMMA pour différentes largeurs (w) [15]

Une pesée des plaques est effectuée pour chaque allumage, avant et après la combustion, pour obtenir la perte de masse totale. Cela permet d'effectuer une comparaison avec les valeurs présentées sur la figure VI.2 pour une largeur de 20 cm. Une valeur moyenne est calculée sur 15 allumages différents avec un temps de combustion d'environ 3000 s. La perte de masse totale obtenue est égale à $0,42 \pm 0,01 \text{ g}\cdot\text{s}^{-1}$. La valeur obtenue est donc cohérente avec la perte de masse mesurée par Pizzo et al. en fonction du temps (figure

VI.2).

VI.1.2 Similitudes temporelles entre l'extinction et la perte de masse

Pour pouvoir calibrer les signaux LII qui seront présentées par la suite, une mesure d'extinction in-situ est effectuée simultanément aux mesures LII (chapitre 3.3). Contrairement aux résultats présentés dans le chapitre 5.2, cette mesure d'extinction est faite pour une seule longueur d'onde, $\lambda = 1064$ nm. Le couplage de cette valeur d'extinction et du signal LII permettra donc de remonter à la fraction volumique de suie (voir chapitre 2.4). Mais pour la combustion du PMMA, la mesure d'extinction va varier durant les différentes phases de l'évolution de la flamme au cours du temps. C'est pourquoi l'évolution temporelle de l'extinction est présentée sur la figure VI.3 (avec pour axe des ordonnées l'échelle de droite). Celle-ci est comparée à l'évolution temporelle de la perte de masse obtenue par Pizzo et al. (avec pour axe des ordonnées l'échelle de gauche) [15]. La mesure de l'extinction est faite pour 5 séries (une série équivaut à un allumage d'une plaque) afin de tester la répétabilité de la méthode expérimentale. Le pourcentage d'extinction varie fortement entre ces séries mais l'évolution temporelle est similaire. On obtient comme pour la perte de masse une augmentation durant la phase propagative. Cette augmentation continue au début de la phase instationnaire jusqu'à atteindre un plateau. Mais pour l'extinction, une diminution est obtenue à la fin de la phase instationnaire et durant la phase stationnaire. Alors que, comme vu avec la perte de masse, une valeur constante de l'extinction devrait être obtenue. Cette diminution est due au déplacement de la flamme suivant la direction y . La mesure d'extinction est faite pour une position fixe dans l'espace. Mais la pyrolyse de la plaque de PMMA entraîne le déplacement de sa surface et donc de la flamme qui y est attachée. L'extinction est donc mesurée dans des zones différentes de la flamme à partir d'un temps d'environ 1000 s. Ces zones contiennent de moins en moins de suie car le faisceau s'éloigne du centre de la flamme et atteint la zone extérieure. On obtient donc une diminution du pourcentage d'extinction au cours du temps. Mais cette mesure permet tout de même de voir que l'on retrouve dans notre cas les différentes phases qui ont été

déterminées avec la mesure de la perte de masse.

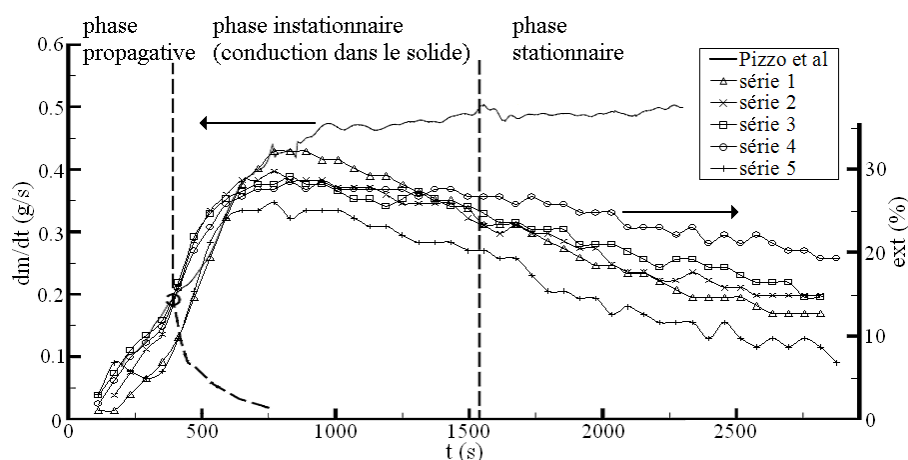


FIGURE VI.3 – Comparaison de l'évolution temporelle de la perte de masse [15] (échelle de gauche) avec la mesure de l'extinction obtenue pour 5 essais différents et pour $\lambda = 1064$ nm (échelle de droite)

Le déplacement de la flamme suivant y est dans ce cas un désavantage. Il ne permet pas d'avoir facilement une mesure fiable et reproductible de la mesure de l'extinction. C'est pourquoi, comme avancé dans le chapitre 4.4, la calibration du signal LII est effectuée sur la flamme du brûleur gaz. Cette dernière est stationnaire et permet de calculer une valeur statistique du coefficient de calibration. De plus, comme vu dans le chapitre 5, les propriétés optiques des deux flammes sont similaires sur la gamme spectrale de détection de la mesure de LII. La flamme du brûleur gaz sera donc utilisée par la suite pour calibrer les signaux LII.

VI.2 Résultats avec la mesure LII

VI.2.1 Signal LII instantané

Après avoir montré les différentes phases de la propagation de la flamme, les signaux LII détectés et enregistrés vont être présentés. Le montage expérimental pour la mesure de LII a été détaillé dans le chapitre 3.3. On a vu que la caméra utilisée pour l'enregistrement des signaux est située sur le côté de la plaque, à 90° par rapport à la nappe laser. Or la flamme se déplace suivant y au cours du temps. Par conséquent, à partir d'un certain

temps, la flamme passe derrière le cadre support par rapport au champ de visibilité de la caméra. Pour permettre une visibilité plus longue de la flamme et donc du signal LII, la surface du PMMA est donc avancée de 5 mm par rapport au cadre en acier. Pour cela les bords de la plaque de PMMA ont été creusés pour incruster ce dernier (chapitre 3.1). Ce cadre servira de référence pour déterminer la position de la flamme. Tout d'abord les signaux LII instantanés enregistrés au cours du temps pour une hauteur dans la flamme comprise entre $z = 26$ et 39 cm sont montrés sur la figure VI.4. Ces images représentent un champ 2D des zones de suies suivant l'épaisseur de la flamme y et la hauteur z . On obtient donc des coupes transversales et instantanées de la flamme. Ces exemples d'images permettent de visualiser la structure turbulente des signaux LII. On observe également que ces signaux apparaissent de façon intermittente sur les images. Le coefficient de calibration mesuré étant une valeur moyenne, il n'est donc pas possible de calibrer les signaux en instantané. Un protocole d'obtention des images moyennes est donc mis en place.

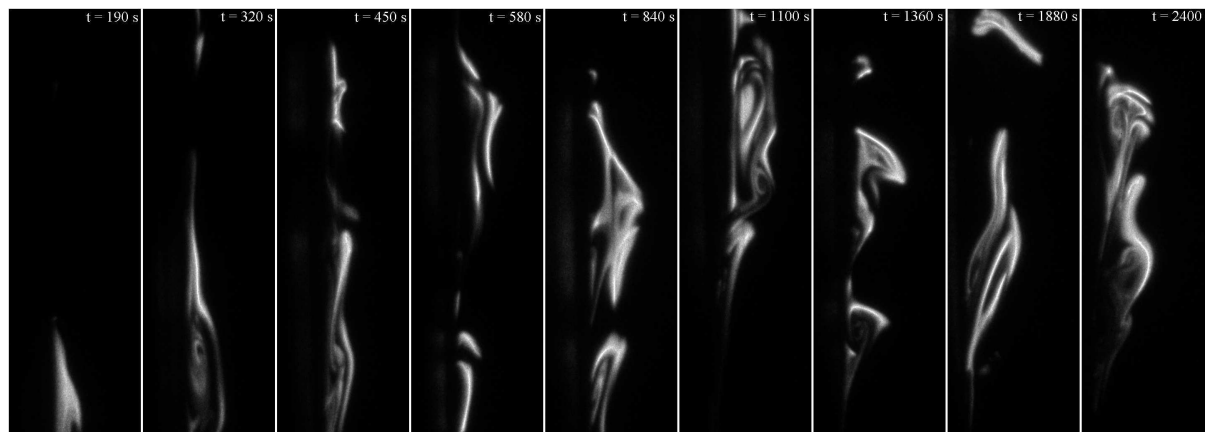


FIGURE VI.4 – Exemple d'images instantanées obtenues avec la LII et à différents instants pour une hauteur dans la flamme comprise entre $z = 26$ et 39 cm

VI.2.2 Champs 2D moyen du signal LII

La valeur de l'extinction servant à calibrer les signaux LII est déterminée avec une moyenne sur la largeur de la flamme et dans le temps (sur 1 minute minimum). Pour tester le nombre minimum d'images qu'il faut moyenner pour être reproductible, le brûleur gaz

est utilisé. Sa flamme stationnaire permet de comparer des champs moyens calculés avec différents nombres d'images. Un nombre de 400 images a été jugé satisfaisant et choisi par la suite. Malgré l'utilisation d'un filtre interférentiel, un faible signal provenant de l'émission de la flamme est présent sur les champs LII instantanés. Ce signal est visible en enregistrant des images instantanées sans envoyer le faisceau laser (figure VI.5). Ces signaux sont faibles mais le processus d'image moyenne sur la profondeur de la flamme fait que l'émission de celle-ci peut atteindre jusqu'à 5 % du signal LII moyen. La figure VI.5 détaille le protocole de soustraction de cette émission. Après avoir enregistré 400 images du signal LII instantané où est présent l'émission de la flamme, 400 images de la flamme seule sont également enregistrées. La moyenne de ces séries de 400 images est faite. La soustraction de ces deux images permet finalement d'obtenir le champ moyen 2D du signal LII. Comme vu précédemment, une série de 400 images requiert 120 s d'enregistrement. En comptant 10 s de battement entre chaque série, les champs 2D moyen du signal LII sont donc obtenus toutes les 260 s.

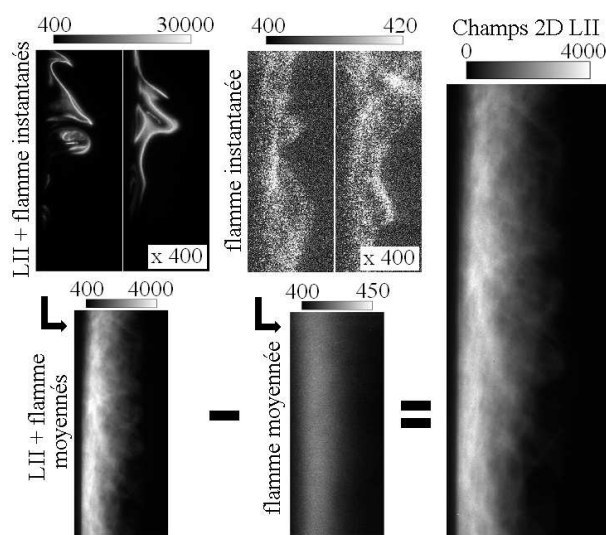


FIGURE VI.5 – Images instantanées et moyennes des signaux LII + flamme et flamme seule. Soustraction des images moyennes pour obtenir un champ 2D moyen du signal LII

La mesure des champs LII a été faite pour différentes hauteurs du champ de la caméra dans la flamme :

- haut de la flamme : séries 1, 2 et 3

- milieu de la flamme : séries 4 et 5
- bas de la flamme : série 6

On rappelle que le temps $t = 0$ s correspond à l'allumage de la plaque. Pour chaque série, les champs LII sont donc obtenus toutes les 260 s jusqu'à environ 3000 s. Un assemblage des trois hauteurs de mesure (fait avec les séries 2, 4 et 6) est présenté sur la figure VI.6. Le maximum de l'échelle de couleurs du signal LII (fixé à 6000) ne correspond pas au maximum de signal obtenu. Ce choix a été fait pour mieux visualiser la structure de la flamme. Pour les zones de recouvrement sur cet assemblage, les séries 2 et 6 recouvrent la série 4. Les champs des 6 séries sont montrés dans l'annexe A. Pour ces champs, les 400 images de l'émission de la flamme sont enregistrées avant celles de LII + flamme. Les temps affichés sur la figure correspondent au temps de début d'enregistrement des images LII + flamme. Ce temps correspond donc au milieu du temps total d'enregistrement d'un champ moyen de LII. L'assemblage des 3 séries permet d'obtenir le signal LII sur une zone allant de 4 à 39 cm suivant la hauteur pour une largeur de 3 cm. Les jonctions entre les séries montrent majoritairement une bonne continuité entre les champs. Les petites variations et discontinuités observées sont liées à la répétabilité des mesures, compte tenu du fait que chaque série correspond à un allumage de plaque différent. Cette dernière sera mieux mise en avant par la suite avec l'étude des profils de fraction volumique. Avec les images moyennes, les structures turbulentes et intermittentes des signaux LII ont disparu. A la place se dessine une structure de flamme qui met en évidence la couche limite réactive. Cette dernière possède une épaisseur d'environ 1 cm (obtenue par la suite avec des profils suivant y). On remarque également que la flamme est penchée. Cela est dû au fait que la zone basse de la plaque est restée plus longtemps en présence de la flamme que la zone haute et donc elle a eu un temps de pyrolyse plus long. La surface de la plaque est donc plus creusée en bas qu'en haut. On observe ensuite un double déplacement de la flamme. Tout d'abord, un déplacement a lieu suivant la hauteur avec le développement de la flamme durant la phase propagative suivi d'une montée lente jusqu'à la phase stationnaire. Le deuxième déplacement concerne la direction y . Il est provoqué, comme vu précédemment, par la pyrolyse et donc la régression de la surface. Avant l'allumage, la

surface de la plaque dépasse de 5 mm par rapport à la surface du cadre en acier, cette dernière étant définie à $y = 0$ cm. Cela permet donc de suivre le déplacement de la flamme qui reste « accrochée » à la surface de la plaque et donc suit sa régression. Au bout d'un certain temps, la flamme passe derrière le cadre et n'est donc plus visible par la caméra. Comme vu dans le chapitre 4.1, l'effet du trapping induit une incertitude sur les signaux enregistrés même si le coefficient de calibration corrige une partie de cet effet. Il est donc estimé en utilisant la mesure de l'extinction à 1064 nm ainsi que la loi de Beer-Lambert (équation II.31, chapitre 2.4). Pour une largeur de flamme de 20 cm, la valeur maximale mesurée pour le coefficient d'extinction à 1064 nm est égale à $1,93 \text{ m}^{-1}$. En supposant ici que ce coefficient d'extinction est inversement proportionnel à la longueur d'onde, c'est-à-dire que la diffusion est négligeable, le coefficient d'extinction maximum pour la longueur d'onde de détection de la LII (410 nm) est de $5,0 \text{ m}^{-1}$. La nappe laser étant située à 5 cm du bord de la flamme suivant x , une sous-estimation du signal LII est obtenue avec une erreur maximum de 22 %. Finalement, ces champs, en utilisant la calibration, vont donc permettre d'obtenir la fraction volumique de suie.

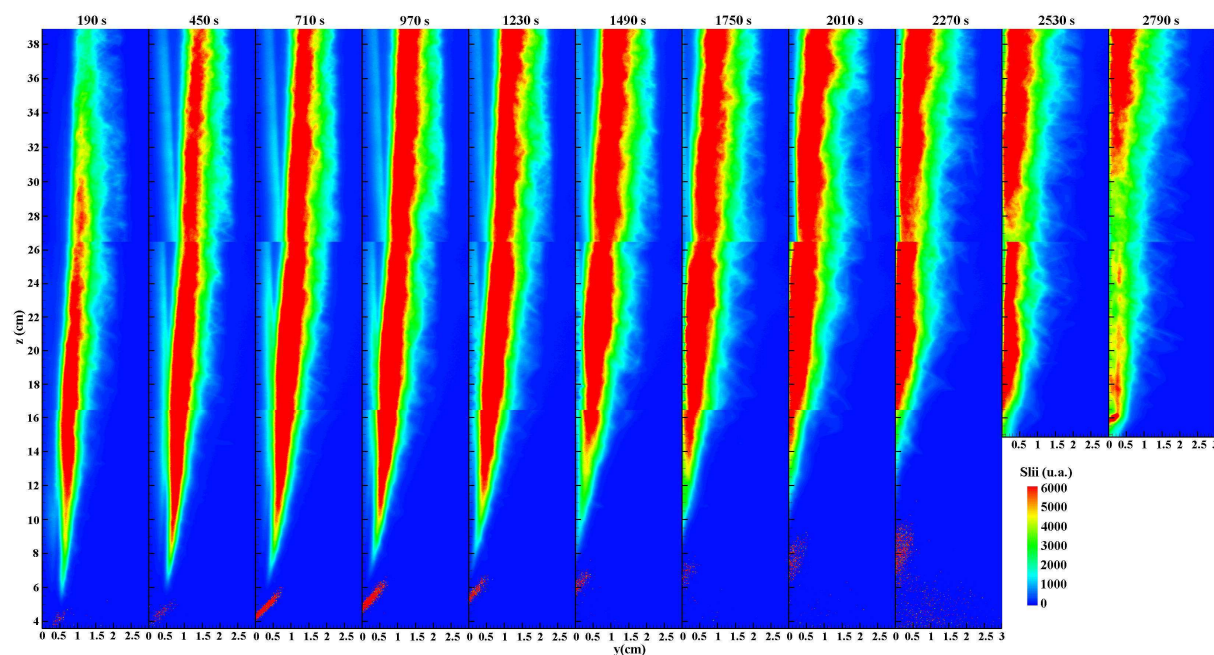


FIGURE VI.6 – Champs 2D du signal LII en fonction du temps pour la flamme de PMMA. Les séries 2, 4 et 6 ont été utilisées

Des mesures de LII ont également été effectuées sur la flamme du brûleur gaz. Leur utilité première a été le calcul du coefficient de calibration. Mais ces mesures peuvent aussi servir de comparatif avec la flamme de PMMA notamment pour voir si la flamme du brûleur gaz simule bien une flamme de paroi combustible. Les champs 2D du signal LII, obtenus pour 3 séries de mesure, sont donc présentés sur la figure VI.7 haut dans la flamme. Pour le brûleur gaz, la position de référence $y = 0$ cm correspond à la surface du poreux en bronze par lequel sort le mélange éthylène/méthane. On observe cette fois-ci, par rapport au cas du PMMA, une flamme plus verticale due à la surface fixe du brûleur. On observe ensuite des niveaux de signal LII proches de ceux de la flamme de PMMA (la même échelle étant utilisée). Une couche limite de présence des suies, d'une épaisseur d'environ 1 cm (obtenue comme pour le PMMA sur des profils suivant y), est de nouveau obtenue avec les images moyennes. On peut voir enfin que les champs semblent reproductibles entre les 3 séries, la flamme étant stationnaire. Cette répétabilité sera mieux mise en avant par la suite avec les profils de fraction volumique. Finalement, on peut conclure que le brûleur gaz simule assez bien la flamme produite par un feu de paroi verticale de PMMA.

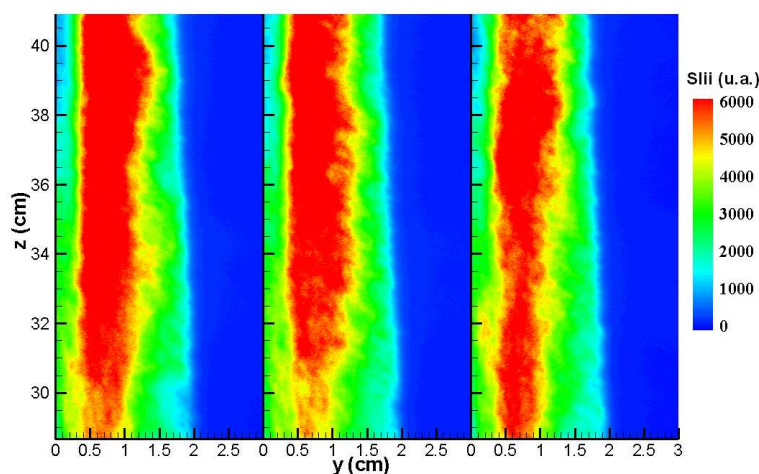


FIGURE VI.7 – Champs 2D du signal LII pour 3 séries en haut dans la flamme du brûleur gaz

VI.2.3 Champs 2D et profils de la fraction volumique

Pour obtenir la fraction volumique de suie, les champs LII sont calibrés en utilisant la méthode décrite dans le chapitre 4.4. Dans celui-ci, le coefficient de calibration a été obtenu sur la flamme du brûleur gaz. Il avait été calculé en utilisant une valeur de la littérature pour le coefficient d’extinction adimensionné, $K_e = 6,4$ à 1310 nm, mesurée sur une flamme jet d’éthylène [88]. Or, comme vu dans le chapitre 5.3, l’étude des propriétés optiques a permis de déterminer une valeur de K_e pour le brûleur gaz. Celle-ci est égale à 11,5 pour $\lambda > 900$ nm. Le coefficient de calibration est donc recalculé en utilisant la valeur mesurée dans cette étude. Les valeurs obtenues sont présentées sur la figure VI.8. La valeur moyenne de ce coefficient, utilisée par la suite, est de 36,6 avec toujours un écart type de 30 %.

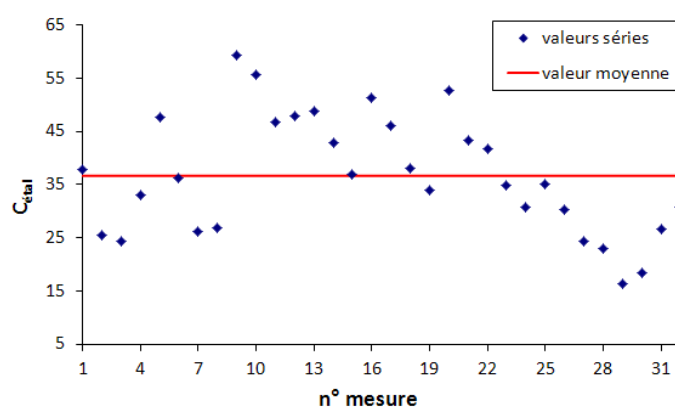


FIGURE VI.8 – Coefficients d’étalonnage obtenu sur le brûleur gaz et valeur moyenne en utilisant $K_e = 11,5$

Les champs 2D du signal LII (figure VI.6) sont donc divisés par le coefficient de calibration pour obtenir des champs 2D de fraction volumique pour le PMMA. Ces champs sont présentés sur la figure VI.9. Cette figure est identique à celle faite pour les champs du signal LII mais avec un changement d’échelle. Comme pour le signal LII, le maximum de l’échelle de couleurs de la fraction volumique (fixé à 162 ppb) ne correspond pas au maximum de fraction volumique obtenu. Ce choix a de nouveau été fait pour mieux visualiser la structure de la flamme. Les valeurs maximums de la fraction volumique seront montrées par la suite sur des profils. Les remarques faites précédemment sur les champs

LII sont donc valables ici. Les champs LII faits pour les 3 séries sur le brûleur gaz sont également transformés. Ces champs sont présentés sur la figure VI.10.

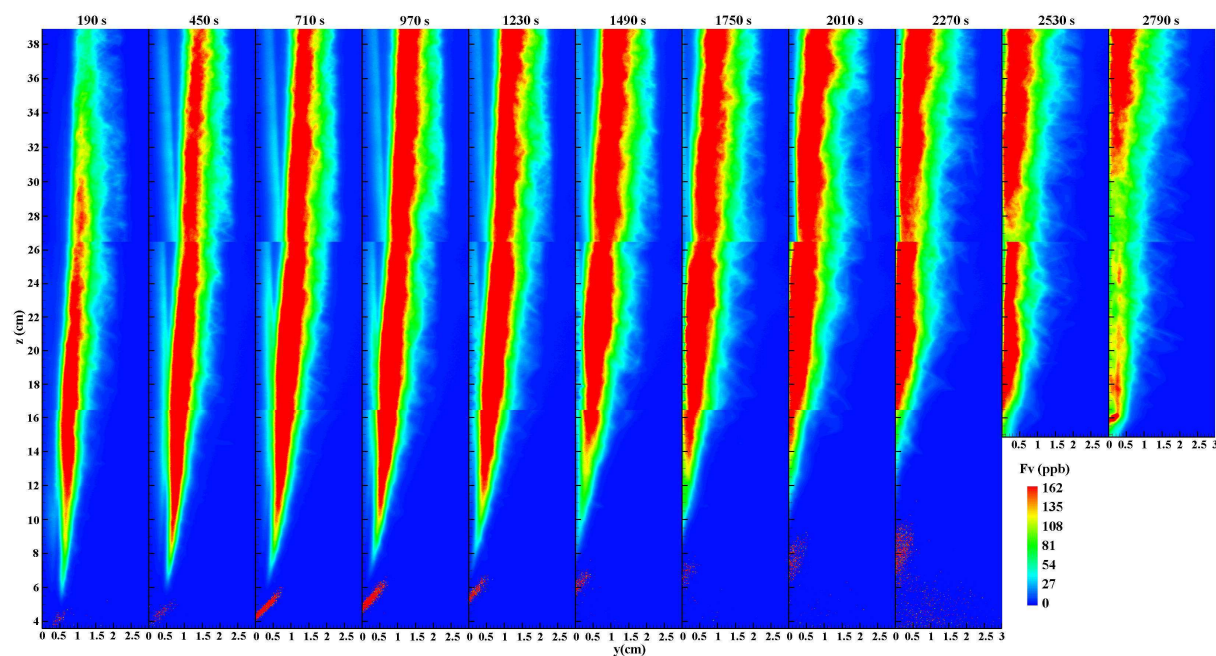


FIGURE VI.9 – Champs 2D de la fraction volumique de suie en fonction du temps pour la flamme de PMMA

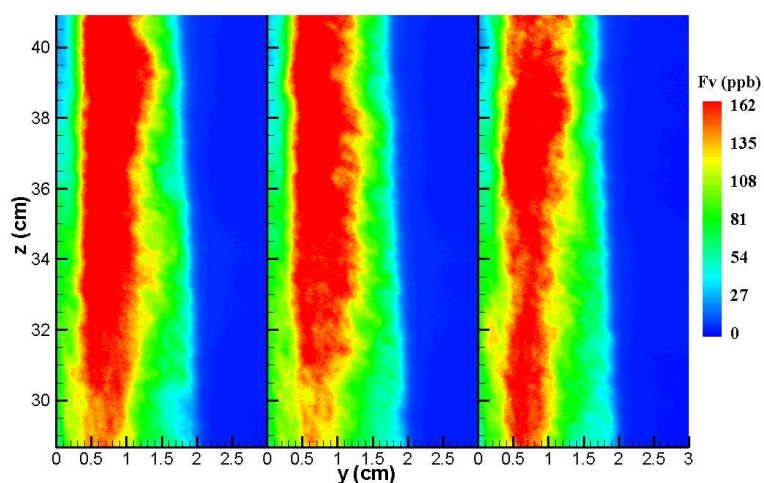
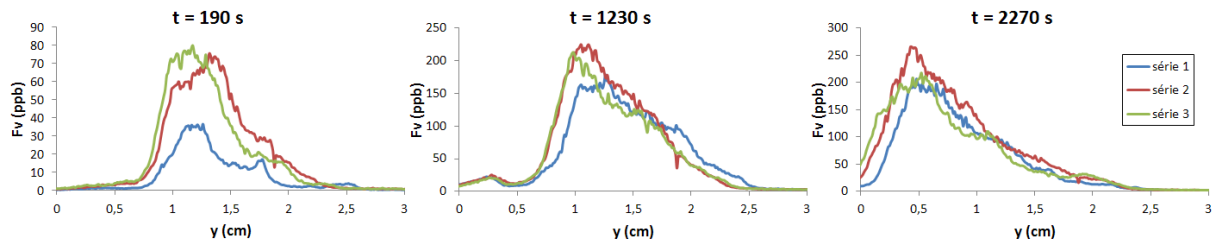
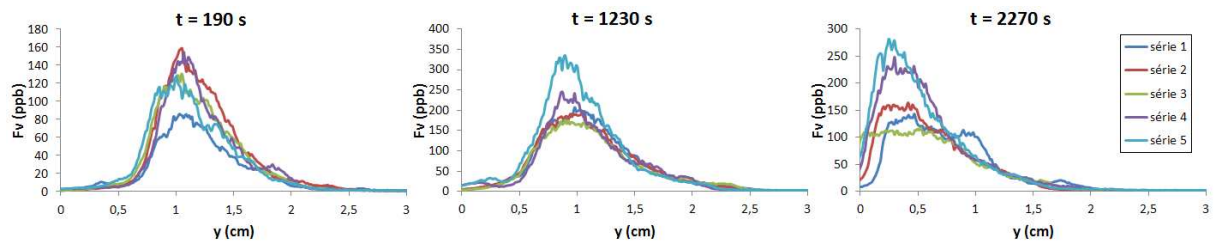
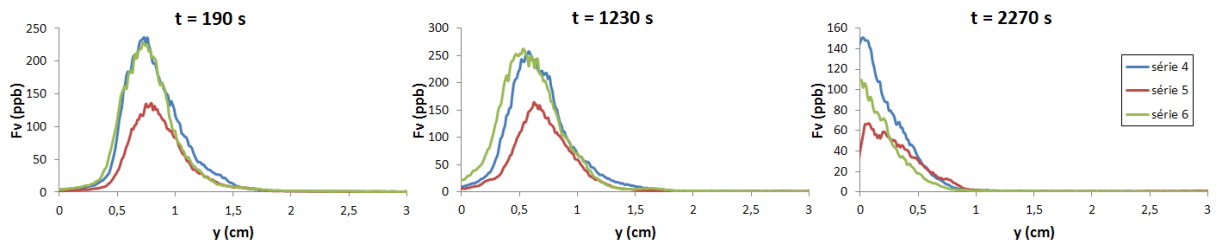


FIGURE VI.10 – Champs 2D de la fraction volumique de suie pour 3 séries en haut dans la flamme du brûleur gaz

Pour mieux préciser les valeurs de fraction volumique obtenues, des profils suivant y et à une hauteur fixée sont tracés. Cela permettra aussi de mieux voir, pour différentes

hauteurs, l'évolution en fonction du temps ainsi que la répétabilité entre les séries. Pour le PMMA, trois groupes de figures sont présentés contenant chacun les profils pour trois temps, $t = 190, 1230$ et 2270 s, et à une hauteur donnée. Le 1^{er} groupe (figure VI.11) présente les profils pour $z = 36$ cm. Le 2nd groupe (figure VI.12) présente les profils pour $z = 27$ cm. Cette hauteur correspond à une zone commune entre les champs observés en haut de la flamme (séries 1, 2 et 3) et au milieu (séries 4 et 5). Enfin le 3^{ème} groupe (figure VI.13) présente les profils pour $z = 16$ cm. Cette hauteur correspond cette fois-ci à une zone commune entre les champs au milieu de la flamme (séries 4 et 5) et en bas (série 6). La totalité des profils, c'est-à-dire pour tous les temps de mesure et pour toutes les hauteurs tous les 2 cm de 10 à 38 cm, est présenté dans l'annexe B. Tout d'abord les groupes de profils présentés ci-dessous montrent une répétabilité qui est satisfaisante, hormis quelques profils isolés, compte tenu du fait que chaque série correspond à l'allumage d'une plaque différente. On retrouve également, comme vu pour l'assemblage des champs (figure VI.6), une bonne superposition des profils au niveau des zones de jonction. Ensuite, on s'aperçoit que les profils se déplacent vers $y = 0$ cm au cours du temps, ce qui permettra de quantifier le déplacement de la flamme suivant y . Ils mettent surtout mieux en valeur, par rapport aux champs 2D, la localisation du front de flamme proche de la plaque. Cette localisation sera utilisée par la suite pour déterminer la vitesse de déplacement de la flamme. On peut aussi mieux voir l'épaisseur de la couche limite réactive, en la définissant par exemple par la largeur du profil à mi-hauteur. Enfin, les fractions volumiques de suie obtenues donnent un maximum compris entre 200 et 350 ppb pour la flamme de PMMA. Malgré une incertitude de 30 % sur le coefficient d'étalonnage, ces bornes pour la valeur maximum de la fraction volumique donnent un bon ordre de grandeur sur la quantité de suie produite par la combustion du PMMA.

Comme pour le PMMA, des profils de la fraction volumique en fonction de la hauteur sont tracés pour le brûleur gaz (figure VI.14). On remarque tout d'abord une meilleure répétabilité entre les séries, liée au fait que la flamme soit stationnaire dans le temps. Ainsi, on peut affirmer que la dispersion observée précédemment pour les profils avec le PMMA était principalement due à la répétabilité de l'allumage et l'instationnarité de la

FIGURE VI.11 – Profils de la fraction volumique à $z = 36$ cm pour 3 temps et 3 sériesFIGURE VI.12 – Profils de la fraction volumique à $z = 27$ cm pour 3 temps et 5 sériesFIGURE VI.13 – Profils de la fraction volumique à $z = 16$ cm pour 3 temps et 3 séries

flamme. On remarque aussi que la fraction volumique n'est pas nulle pour $y = 0$ cm. Cela est dû à une réflexion du signal sur la surface métallique du brûleur. Les valeurs d'une zone d'environ 2 mm suivant y à partir de la surface ne sont donc pas à prendre en considération. On observe, pour la hauteur de 36 cm, des profils similaires à ceux obtenus pour le PMMA dans la phase stationnaire, c'est-à-dire avec des maximums équivalents (entre 200 et 250 ppb) et situés à peu près à la même distance y (figure VI.11 pour $t = 2270$ s). Cela confirme que le brûleur gaz, avec les débits de gaz utilisés, représente assez bien une flamme de type feu de paroi pour le PMMA quand la propagation de la flamme est terminée. On remarque que les profils à différentes hauteurs, obtenus dans la partie haute de la flamme du brûleur, varient peu. La flamme n'évolue plus beaucoup avec la hauteur. L'ordre de grandeur du maximum des profils, pour le PMMA ou le brûleur gaz, peut être comparé à des résultats obtenus dans d'autres études. Pour des flammes

turbulentes axisymétriques, comme par exemple pour une flamme jet de propane [68] ou encore pour une flamme de méthane [69], on observe les mêmes ordres de grandeurs, donc le PMMA est un matériau qui produit assez peu de suies. Par contre, les présentes mesures sont inférieures à celles obtenues pour une flamme jet d'éthylène [70].

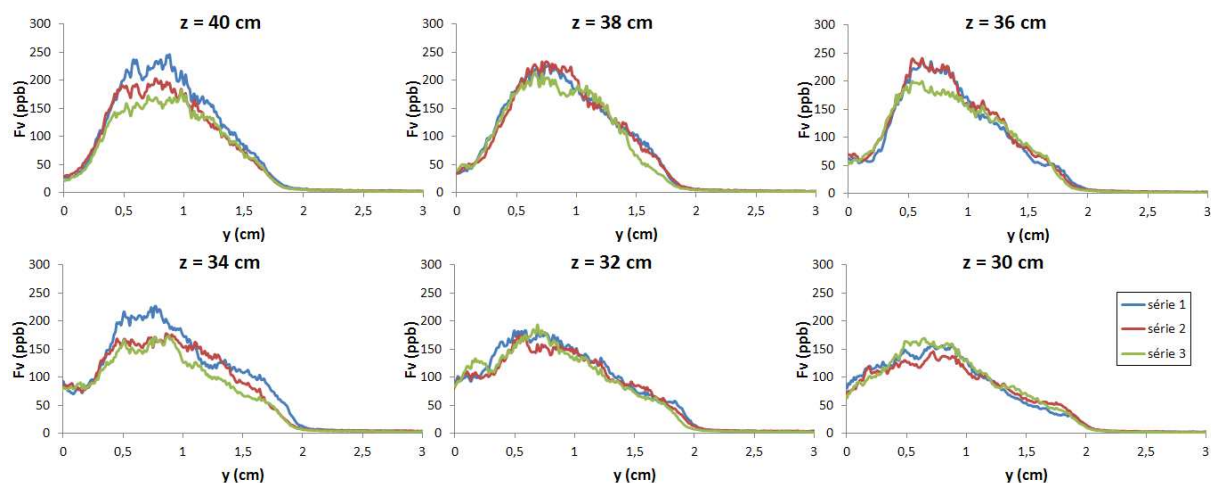


FIGURE VI.14 – Profils de la fraction volumique en fonction de la hauteur pour 3 séries pour la flamme du brûleur gaz

VI.3 Taux de combustion et HRR

VI.3.1 Vitesse de déplacement du front de flamme

Comme vu précédemment, on observe un déplacement de la flamme provoqué par la pyrolyse de la surface du PMMA. Grâce au traçage de profils du signal LII ou de la fraction volumique suivant y , il est possible de localiser la position du front de flamme. Par exemple, on a tracé sur la figure VI.15 les profils du signal LII en fonction du temps et pour $z = 36$ cm. On fixe ensuite une valeur référence pour le signal LII, ici de 4000 qui se situe environ à mi-hauteur des profils, afin de localiser la position du front de flamme. On obtient donc finalement la position du front de flamme au cours du temps.

En utilisant la position du front de flamme, on détermine une vitesse de déplacement V (en mm.s^{-1}) de la flamme au cours du temps. On calcule donc cette vitesse en fonction du temps et de la hauteur pour les 6 séries. Les valeurs obtenues sont présentées sur la

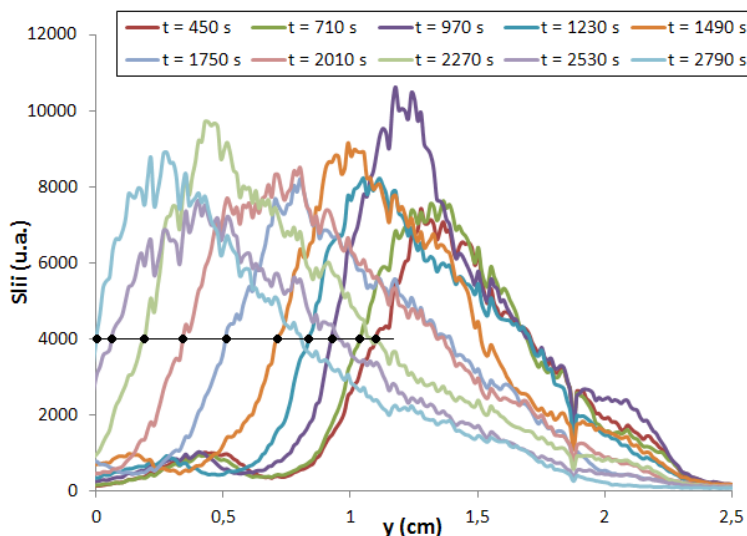


FIGURE VI.15 – Décalage temporelle suivant y des profils du signal LII à $z = 36$ cm

figure VI.16. Le temps affiché sur les graphiques correspond à la valeur supérieure des deux temps pris pour mesurer la vitesse. Par exemple un temps de 970 s correspond à la vitesse de déplacement entre les positions pour des temps de 710 et 970 s. Durant la phase propagative, aucune valeur de vitesse n'est obtenue compte tenu du fait que la flamme ne subit pas encore ce déplacement. Dans la phase stationnaire, la disparition de la flamme derrière le cadre en acier empêche la mesure de la vitesse pour les temps plus élevés et les faibles hauteurs. On observe qu'à partir de 1230 s, la vitesse ne varie pas beaucoup en fonction du temps. Le maximum de la vitesse obtenue est compris entre 8.10^{-3} et 12.10^{-3} mm.s^{-1} . Ces vitesses maximums se produisent durant la phase stationnaire, phase durant laquelle la perte de masse et donc la pyrolyse sont maximums et constantes.

VI.3.2 Calcul du taux de combustion dans la phase stationnaire

Une fois la vitesse de déplacement déterminée, il est possible de remonter au taux de combustion. Pour cela, on fait l'hypothèse que le déplacement de la flamme suit la régression de la surface de la plaque. On suppose donc que la distance entre le front de flamme et la surface de la plaque de PMMA est constant au cours du temps. La vitesse de déplacement de la flamme est considérée ainsi comme égale à la vitesse de régression de la surface. Le taux de combustion R (en $\text{g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$) se calcule donc simplement en

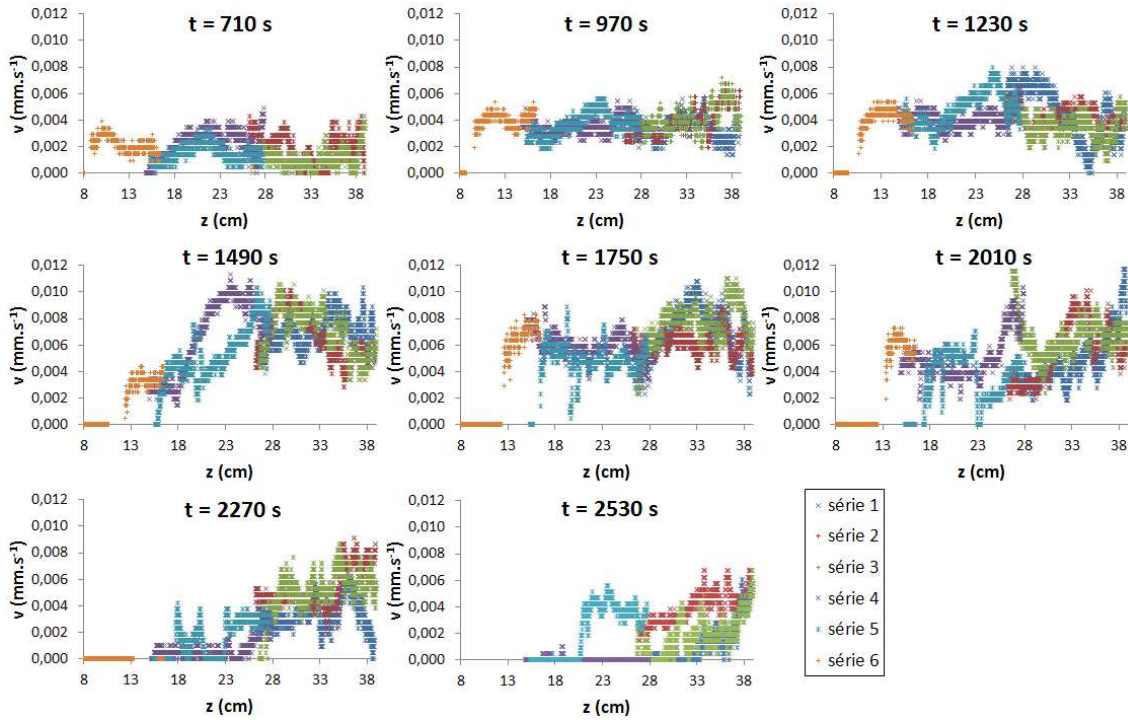


FIGURE VI.16 – Vitesse de déplacement du front de flamme en fonction de la hauteur et du temps pour les 6 séries

multipliant cette vitesse V (en mm.s^{-1}) par la masse volumique du PMMA ρ_{PMMA} (en g.m^{-3}) d'où la relation :

$$R = \rho_{PMMA}V \quad (\text{VI.1})$$

La valeur prise pour la masse volumique du PMMA est $\rho_{PMMA} = 1,150.10^6 \text{ g.m}^{-3}$ (tableau II.1). La valeur de la vitesse utilisée pour le calcul est une valeur moyenne dans le temps sur les valeurs obtenues dans la phase stationnaire (de $t = 1490$ à 2270 s). Ce choix découle du fait que, durant la phase stationnaire, la perte de masse et donc la régression de la surface sont constantes. Le taux de combustion dans cette phase ne varie donc pas en fonction du temps. Seule l'évolution en fonction de la hauteur sera analysée. Tout d'abord, on regarde la sensibilité des valeurs du taux de combustion au choix de la valeur référence du signal LII prise pour déterminer la vitesse. Pour la série 2, on calcule le taux de combustion en fonction de la hauteur pour des valeurs du signal LII égales à

4000 et égales à 3000 (figure VI.17). On observe que les valeurs obtenues sont plus ou moins proches selon la hauteur, avec un bon accord pour les plus grandes hauteurs dans la flamme ($z > 32$ cm). L'écart maximum entre ces deux courbes est de $1,1 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$ et l'écart moyen est de $0,34 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$. Le choix de la valeur référence pour le signal LII entraîne donc une incertitude d'environ 6 % sur le taux de combustion. La valeur de 4000 sera utilisée par la suite pour les calculs.

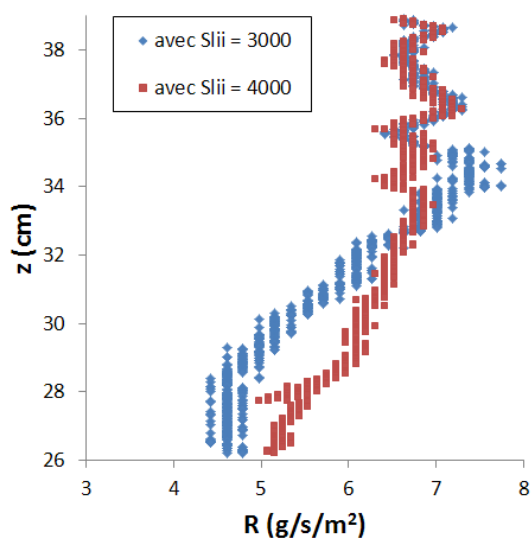


FIGURE VI.17 – Comparaison du taux de combustion en fonction de la hauteur et obtenu avec des signaux LII de référence égaux à 3000 et 4000, pour la série 2

On détermine à présent le taux de combustion en fonction de la hauteur en utilisant les 6 séries de mesure. Les valeurs obtenues sont présentées sur la figure VI.18. Les valeurs étant assez dispersées, une courbe lissée est représentée afin de mieux voir la tendance générale en fonction de la hauteur. On obtient donc un taux de combustion compris entre 4 et $7 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$. La tendance générale montre une augmentation de ce taux en fonction de la hauteur. Ces valeurs sont ensuite comparées avec des valeurs de la littérature (figure VI.19). Pizzo et al. ont obtenu le taux de combustion sur un montage de plaque similaire mais avec une autre méthode de mesure [15]. Orloff et al. ont utilisé une plaque de PMMA de dimension plus grande [37]. Enfin des valeurs pour deux hauteurs provenant de cette étude ont été obtenues en utilisant une correction des images avec un calque non lissé (voir chapitre 4.3) [89]. Les valeurs déterminées dans cette étude sont en assez bon accord

avec celles de la littérature. On remarque que les résultats de cette étude montrent une augmentation de R avec la hauteur, en accord avec les mesures de Orloff et al., mais en désaccord avec les résultats de Pizzo et al. obtenus assez bas dans la flamme, qui donnent une légère diminution. La méthode de LII a donc permis la détermination du taux local de combustion en fonction de la hauteur.

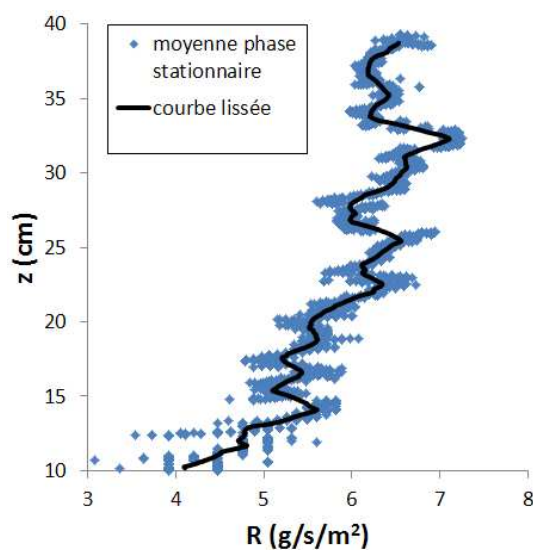


FIGURE VI.18 – Taux de combustion moyenné sur la phase stationnaire en fonction de la hauteur et traçage de la courbe lissée

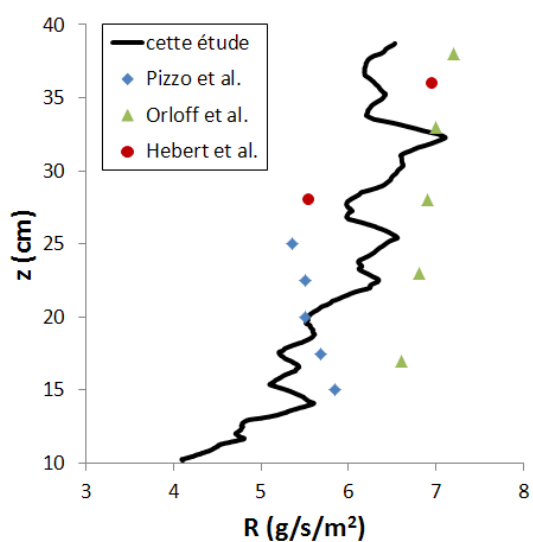


FIGURE VI.19 – Comparaison du taux de combustion avec des valeurs de la littérature en fonction de la hauteur

VI.3.3 Calcul du HRR par différentes méthodes

Une des grandeurs caractéristiques d'un incendie est le dégagement de chaleur HRR. Ce paramètre est donc déterminé en utilisant différentes méthodes. Tout d'abord, comme vu dans le chapitre 2.1, il est possible d'obtenir cette grandeur à partir du taux de combustion (équation II.4) :

$$HRR = RS\chi\Delta h_c$$

Pour cela on intègre le taux de combustion sur toute la hauteur de la plaque. On obtient une valeur de R égale à $5,84 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-1}$. En prenant $S = 0,08 \text{ m}^2$, $\chi = 1$ et $\Delta h_c = 25,6.10^6 \text{ J.kg}^{-1}$ (tableau II.1), on aboutit finalement à $HRR = 11,96 \text{ kW}$.

Une seconde méthode consiste à utiliser la perte de masse globale. Une valeur moyenne égale à $0,42 \text{ g.s}^{-1}$ a été obtenue grâce à la pesée des plaques après la combustion ainsi que la mesure du temps de combustion. En divisant cette valeur par la surface, on obtient un taux de combustion global de $5,25 \text{ g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$ et donc un HRR de $10,75 \text{ kW}$. Les valeurs obtenues pour le taux de combustion et pour le HRR sont ainsi similaires à celles obtenues avec la LII.

Enfin, une dernière méthode consiste à utiliser la hauteur de flamme. Cette hauteur permet d'obtenir, comme vu dans le chapitre 2.1 [14], le HRR avec la relation (équation II.3) :

$$h_f = 4,2 \left(\frac{HRR}{\rho_{air} C_{p_{air}} T_{air} \sqrt{g}} \right)^{\frac{2}{3}}$$

Les constantes utilisées dans cette équation ont pour valeur : $\rho_{air} = 1,2 \text{ kg.m}^{-3}$, $C_{p_{air}} = 1005 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$, $T_{air} = 293 \text{ K}$ et $g = 9,81 \text{ m.s}^{-2}$. La hauteur de flamme est mesurée ici en utilisant des photographies de la flamme de PMMA au cours du temps. Une moyenne de la hauteur est effectuée sur des photographies successives compte tenu de la turbulence de la flamme. Les hauteurs mesurées sont présentées sur la figure VI.20. On retrouve tout

d'abord avec cette courbe les différentes phases de la combustion de la plaque au cours du temps. On calcule ensuite une valeur moyenne de la hauteur de flamme dans la phase stationnaire et on obtient $h_f = 80,9$ cm. On obtient finalement à partir de cette valeur un HRR par unité de largeur égal à $93,56 \text{ kW.m}^{-1}$. En divisant par la largeur de la plaque, de 20 cm, on aboutit à $\text{HRR} = 18,71 \text{ kW}$. On obtient cette fois-ci une valeur plus élevée pour le dégagement de chaleur. Mais l'utilisation de photographies pour déterminer la hauteur de flamme peut porter à discussion. On calcule donc un HRR moyen à partir des deux premières méthodes et on obtient pour la flamme de PMMA une valeur égale à $11,4 \pm 0,9 \text{ kW}$.

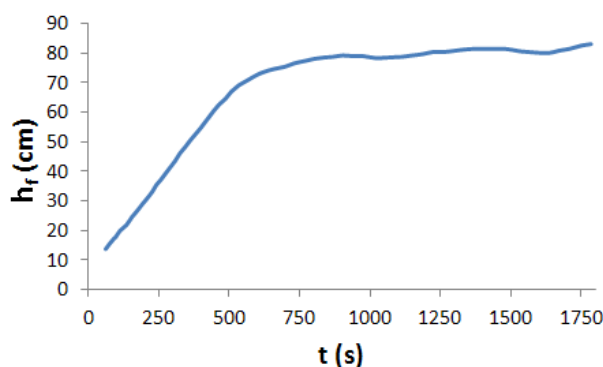


FIGURE VI.20 – Hauteur de flamme en fonction du temps pour la flamme de PMMA

Une donnée qu'il serait important de mesurer pour le PMMA afin d'être comparatif avec les modélisations est la vitesse de l'écoulement dans la flamme. Cette vitesse peut être obtenue en effectuant une mesure de PIV (Particle Image Velocity). Mais cette méthode requiert d'ensemencer la flamme avec des traceurs ce qui s'avère délicat dans le cas de la combustion du PMMA. Des tests de fabrication de plaques de PMMA chargées en particules d'Alumine ont donc été effectués. Une grosse difficulté qui a été rencontrée concerne le protocole de fabrication de ces plaques afin que les particules d'Alumine soient réparties de façon homogène dans la plaque. Un essai d'allumage d'une telle plaque (de petites dimensions) a été effectué mais les résultats obtenus n'ont pas été concluants. La présence des particules d'alumine a tout d'abord eu un effet de retardant au feu, modifiant ainsi la vitesse de propagation de la flamme. De plus, en utilisant le passage d'un faisceau laser dans la flamme, aucune détection de ces particules n'a pu être faite.

C'est pourquoi ces résultats ont été placés dans l'annexe C. Mais ils sont sujets à une perspective intéressante.

VI.4 Conclusion sur les résultats sur la combustion du PMMA

Dans ce chapitre, différents résultats ont été présentés sur la combustion d'une plaque verticale de PMMA. Tout d'abord, les différentes phases de la combustion du PMMA, c'est-à-dire la phase propagative, la phase instationnaire et la phase stationnaire, ont été retrouvées en utilisant la mesure d'extinction à 1064 nm à travers la flamme. La mesure de la perte de masse totale montre également un bon accord avec les mesures de Pizzo et al. [15]. Ensuite la moyenne des images de LII a permis d'obtenir des champs 2D de fraction volumique en fonction de la hauteur mais aussi du temps. Ainsi la quantité de suies a été obtenue dans la flamme sur toute la hauteur de la plaque. Des champs similaires (maximum et positions) ont été obtenus sur la flamme du brûleur gaz ce qui montre que ce dernier simule bien une flamme de PMMA si il est alimenté par un mélange d'éthylène à 51 % et de méthane à 49 %. Des profils de fraction volumique tracés pour différentes hauteurs montre une bonne répétabilité mais aussi la visualisation du déplacement de la flamme dû à la pyrolyse (suivant y). Des valeurs maximums comprises entre 200 et 350 ppb pour le PMMA et entre 200 et 250 ppb pour le brûleur gaz ont été mesurées. Ces valeurs sont comparables à celles obtenues pour des flammes turbulentes axisymétriques de méthane ou de propane par exemple. Le déplacement de la flamme suivant y a ensuite permis de déterminer la vitesse de déplacement du front de flamme. Cette vitesse étant considérée comme égale à la vitesse de régression de la surface du PMMA, le taux de combustion en fonction de la hauteur a été obtenu. Les valeurs de ce taux sont comprises entre 4 et 7 $\text{g.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$ et sont en bon accord avec celles de Orloff et al. [37] et de Pizzo et al. [15]. Enfin le HRR a été déterminé par différentes méthodes donnant une valeur moyenne égale à 11,4 kW. Les caractéristiques principales de la combustion du PMMA dans une configuration de plaque verticale ont donc été obtenues et fournissent ainsi une

base de données pour permettre une comparaison avec les modèles de propagation. Ces modèles pourront désormais tenir compte de la quantité des particules de suie et donc de leur rayonnement.

Chapitre VII

Conclusion et perspectives

L'objectif principal de la thèse a été d'étudier, à l'échelle du matériau, la combustion d'une plaque verticale de matière plastique, ainsi que la création d'une base de données sur la caractérisation et la quantité de suies produites dans la flamme.

Cette étude s'est placée dans la configuration de la combustion d'un matériau solide sous forme d'une plaque verticale (cas d'un feu sur un mur). La propagation de la flamme joue dans ce cas un rôle critique lors d'un incendie. Une meilleure compréhension des phénomènes mis en jeu est donc importante d'un point de vue sécurité incendie. Un des phénomènes qui est à l'heure actuelle mal connu et plus difficilement modélisable est le rayonnement des particules de suie présentes dans la flamme, ce qui a motivé cette étude. Le matériau choisi a été le PMMA compte tenu de ses propriétés et de sa fréquente utilisation dans d'autres études. Les suies produites par la combustion de ce matériau sont des agrégats et ils ont été décrits grâce à différentes caractéristiques : le diamètre et le nombre des sphérules, les diamètres de mobilité et de giration, la dimension fractale, ainsi que les propriétés optiques spectrales. Ces paramètres vont permettre d'avoir les données nécessaires pour quantifier le rayonnement des particules de suie à l'aide de modèles de rayonnement. La fraction volumique de suies a également été déterminée en utilisant la LII. Les propriétés optiques ont permis de calibrer cette méthode de mesure. Ainsi la caractérisation complète des suies (morphologie, propriétés optiques et concentration) produites par la combustion du PMMA a été effectuée.

Deux flammes de paroi ont été utilisées dans cette étude. La première concerne la combustion du PMMA, sous forme de plaque maintenue par un cadre en acier et soumis à une propagation naturelle. La deuxième est une flamme de brûleur gaz provenant d'un poreux alimenté avec un mélange méthane/éthylène. Cette seconde flamme, stationnaire, a servi de comparatif avec la flamme de PMMA, mais également de support pour la mise en place des techniques de mesure et pour la calibration de la LII. Les différentes techniques de mesure ont donc été appliquées à ces deux flammes. Les techniques et dispositifs de mesure utilisés ont été :

- la LII pour mesurer la fraction volumique de suie dans la flamme,
- un laser blanc et un spectromètre pour l'extinction spectrale in-situ,
- un DMS pour la distribution en diamètre de mobilité des particules,
- un TEOM pour la concentration massique,
- un banc de turbidimétrie pour l'extinction spectrale ex-situ,
- un prélèvement thermophorétique sur grille MET pour le diamètre de giration, le nombre et le diamètre des sphérules primaires ainsi que la dimension fractale et le préfacteur.

Une attention particulière a été portée sur la méthode optique de LII et elle a été plus spécifiquement détaillée car elle nécessite des choix de réglage ainsi que des traitements spécifiques pour les images enregistrées. L'homogénéité de la nappe, de la caméra et la calibration des signaux LII sont trois difficultés importantes de la méthode. En ce qui concerne la nappe laser, elle a été considérée comme homogène sur la zone de mesure et donc aucune correction n'a été nécessaire sur l'énergie apportée aux particules de suie. Pour le système de détection, une perte de signal a été observée sur le haut du capteur CCD de la caméra. Une image lissée faite à partir d'un papier calque éclairé par une source halogène a donc été utilisée pour corriger les signaux LII. Enfin les signaux LII ont été calibrés en utilisant le coefficient d'étalonnage C_{etal} déterminé à partir d'une mesure simultanée d'extinction et de LII dans la flamme générée par le brûleur gaz.

Les résultats sur les caractéristiques morphologiques et les propriétés optiques, pour les particules de suie produites dans les deux flammes, sont les suivants :

- les caractéristiques morphologiques des particules sont proches pour le brûleur gaz et le PMMA,
- les valeurs du diamètre des sphérules primaires sont plus faibles que celles de la littérature mais la configuration de la présente étude n'avait jamais encore été étudiée,
- les propriétés fractales sont en bon accord avec celle de la littérature,
- les mesures du coefficient d'extinction spectrale en in-situ et ex-situ montrent qu'il n'y a pas d'effet sensible de la température des particules sur les propriétés optiques,
- l'extinction spécifique est en bon accord avec les valeurs de la littérature pour le brûleur gaz et pour le PMMA,
- la similarité des fonctions d'indice entre les deux flammes pour la longueur d'onde de détection de la LII appuie le choix du brûleur gaz pour calibrer les signaux LII de la flamme de PMMA.
- une valeur moyenne du coefficient d'extinction adimensionné a été déterminée pour la calibration de la LII.

Enfin ont été obtenus différents résultats sur la combustion d'une plaque verticale de PMMA :

- les différentes phases de la combustion du PMMA, c'est-à-dire la phase propagative, la phase instationnaire et la phase stationnaire, ont été observées,
- une mesure de la perte de masse totale a montré un bon accord avec les mesures de Pizzo et al. [15],
- des champs 2D de fraction volumique de suie en fonction du temps ont été obtenus dans la flamme de PMMA sur toute la hauteur de la plaque,
- des champs similaires (maximum et positions) ont été obtenus sur le haut de la flamme du brûleur gaz ce qui montre que ce dernier simule bien une flamme de PMMA si il est alimenté par un mélange d'éthylène à 51 % et de méthane à 49 %,
- des profils de fraction volumique tracés pour différentes hauteurs montrent la visualisation du déplacement de la flamme dû à la pyrolyse (suivant y),
- des valeurs maximales comprises entre 200 et 350 ppb pour le PMMA et entre 200 et

250 ppb pour le brûleur gaz ont été mesurées, ces valeurs étant comparables à celles obtenues pour des flammes turbulentes axisymétriques de méthane ou de propane par exemple,

- le déplacement de la flamme suivant y a ensuite permis de développer une méthode originale pour déterminer la vitesse de déplacement du front de flamme et pour remonter au taux de combustion en fonction de la hauteur,
- les valeurs de ce taux sont comprises entre 4 et 7 $\text{g}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ et sont en bon accord avec celles de Orloff et al. [37] et de Pizzo et al. [15],
- enfin le HRR a été déterminé par différentes méthodes donnant une valeur moyenne égale à 11,4 kW.

Les caractéristiques principales de la combustion du PMMA dans une configuration de plaque verticale ainsi que les caractéristiques et la quantification des particules de suie produites dans la flamme ont donc été obtenues. Cette étude ouvre donc tout d'abord une perspective intéressante de comparaison des données expérimentales obtenues avec celles calculées par les modèles de formation des suies et de propagation de flamme. Ensuite l'utilisation des caractéristiques et de la quantification des particules de suie va permettre de calculer directement le rayonnement de ces dernières. Mais des données expérimentales supplémentaires demandent à être obtenues pour avoir une description complète de la flamme. Par exemple, la visualisation de la zone réactive pourrait être obtenue par fluorescence sur les produits de pyrolyse. Une mesure des températures dans la flamme serait également intéressante en utilisant par exemple de l'imagerie infra-rouge. Enfin, comme cela a été entrepris de façon non concluante (Annexe C), une détermination des vitesses de l'écoulement dans la flamme par PIV ou LDV, sur les suies ou par ensemencement de particules, compléterait la caractérisation de cette dernière.

Annexe A

Champs 2D du signal LII pour les 6 séries pour la flamme de PMMA

Cette annexe présente les champs 2D de signal LII obtenus pour les 6 séries faites sur la flamme de PMMA.

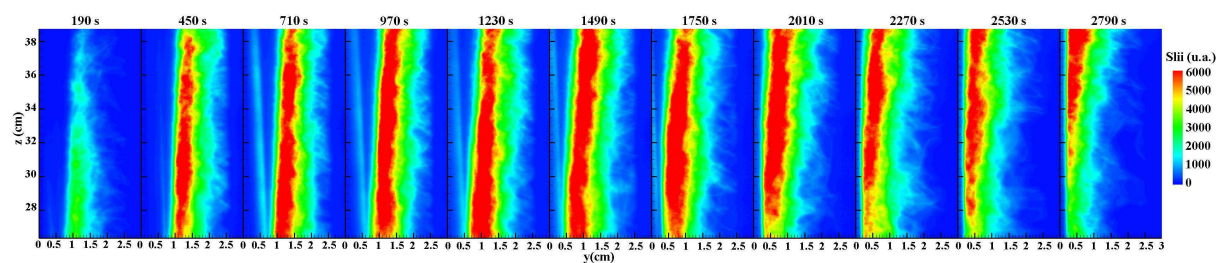


FIGURE A.1 – Champs 2D du signal LII pour la série 1 (haut de la plaque)

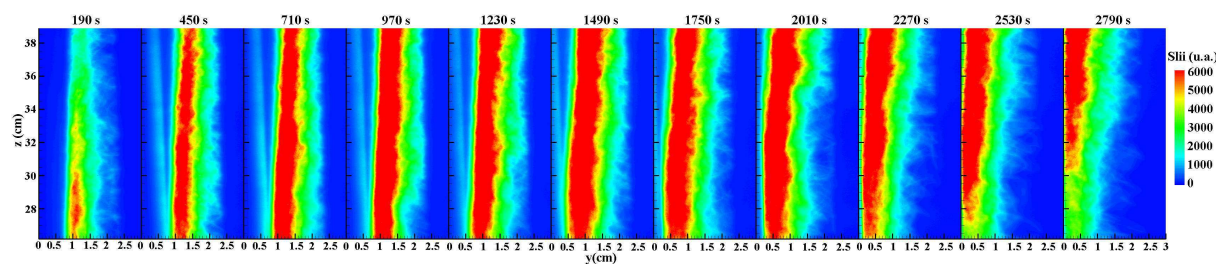


FIGURE A.2 – Champs 2D du signal LII pour la série 2 (haut de la plaque)

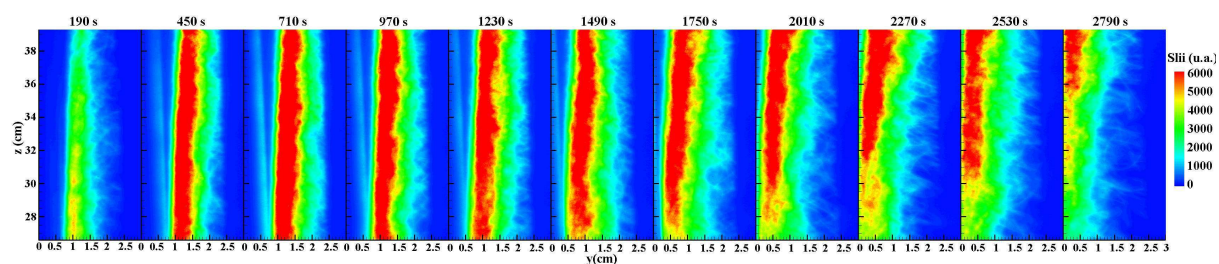


FIGURE A.3 – Champs 2D du signal LII pour la série 3 (haut de la plaque)

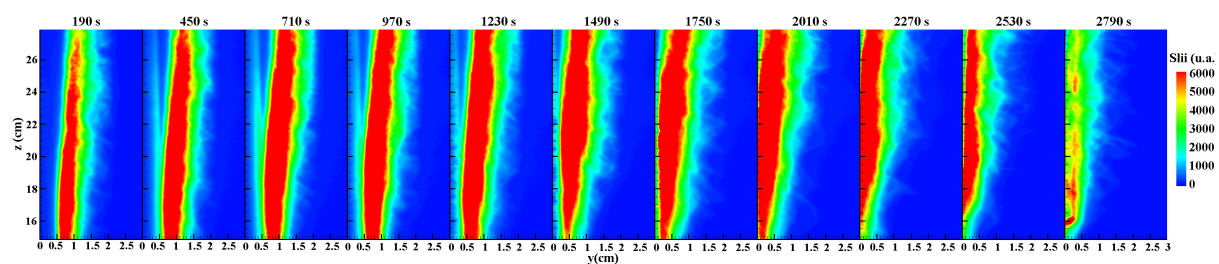


FIGURE A.4 – Champs 2D du signal LII pour la série 4 (milieu de la plaque)

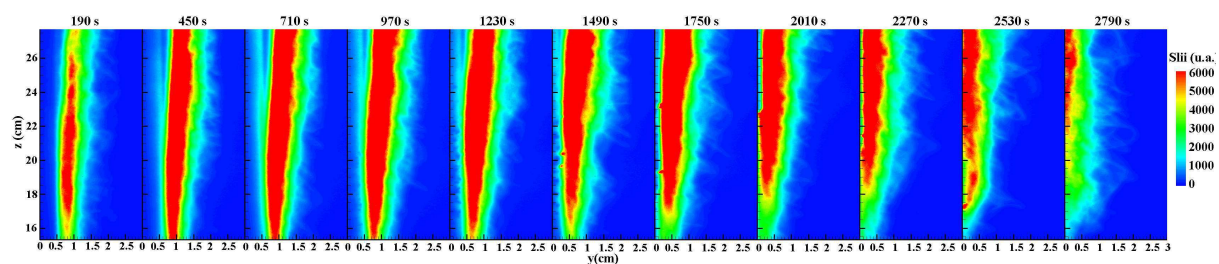


FIGURE A.5 – Champs 2D du signal LII pour la série 5 (milieu de la plaque)

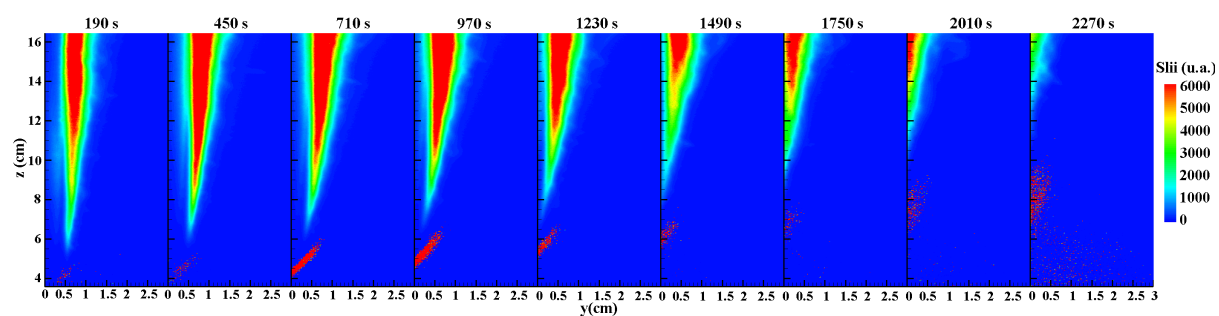
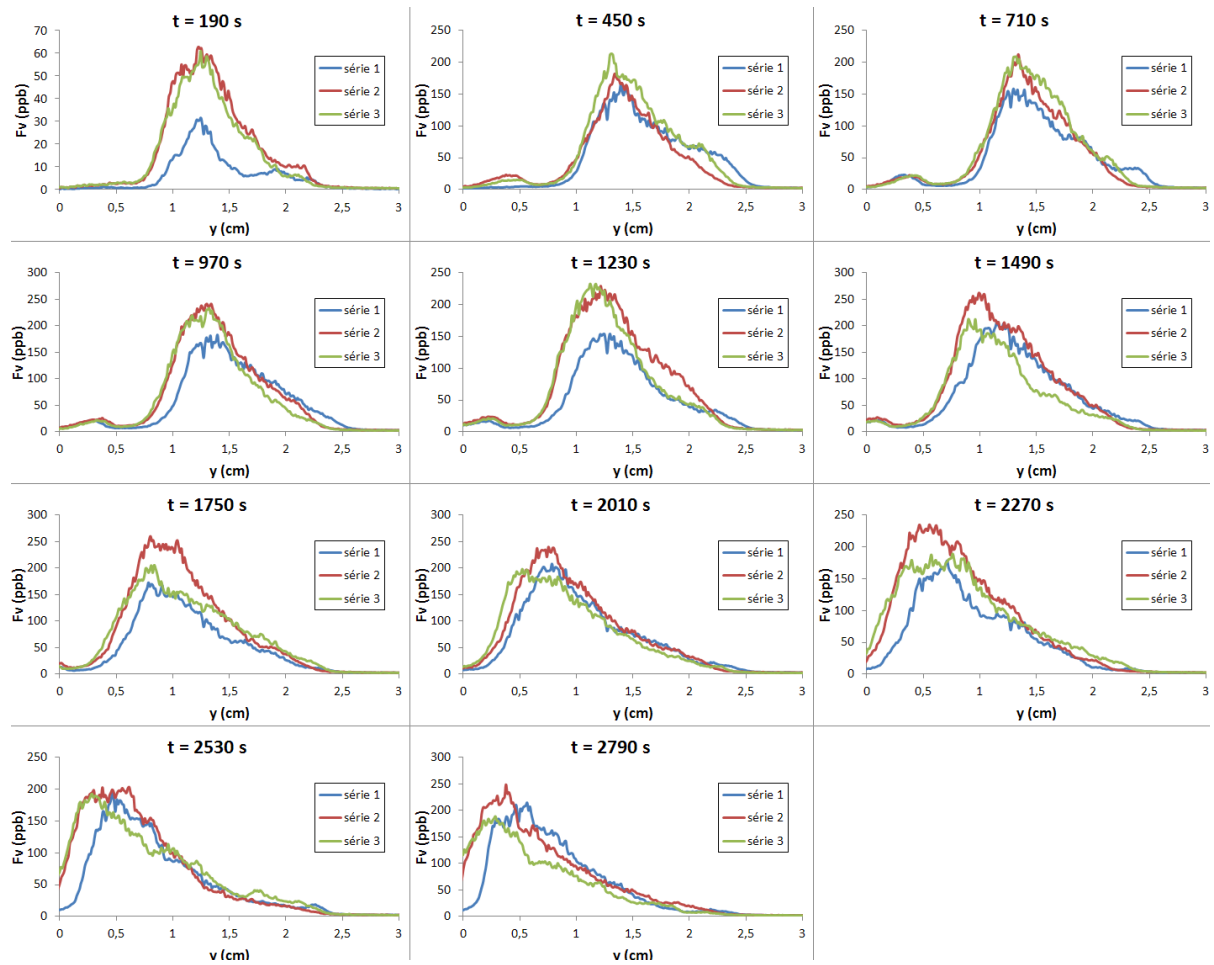


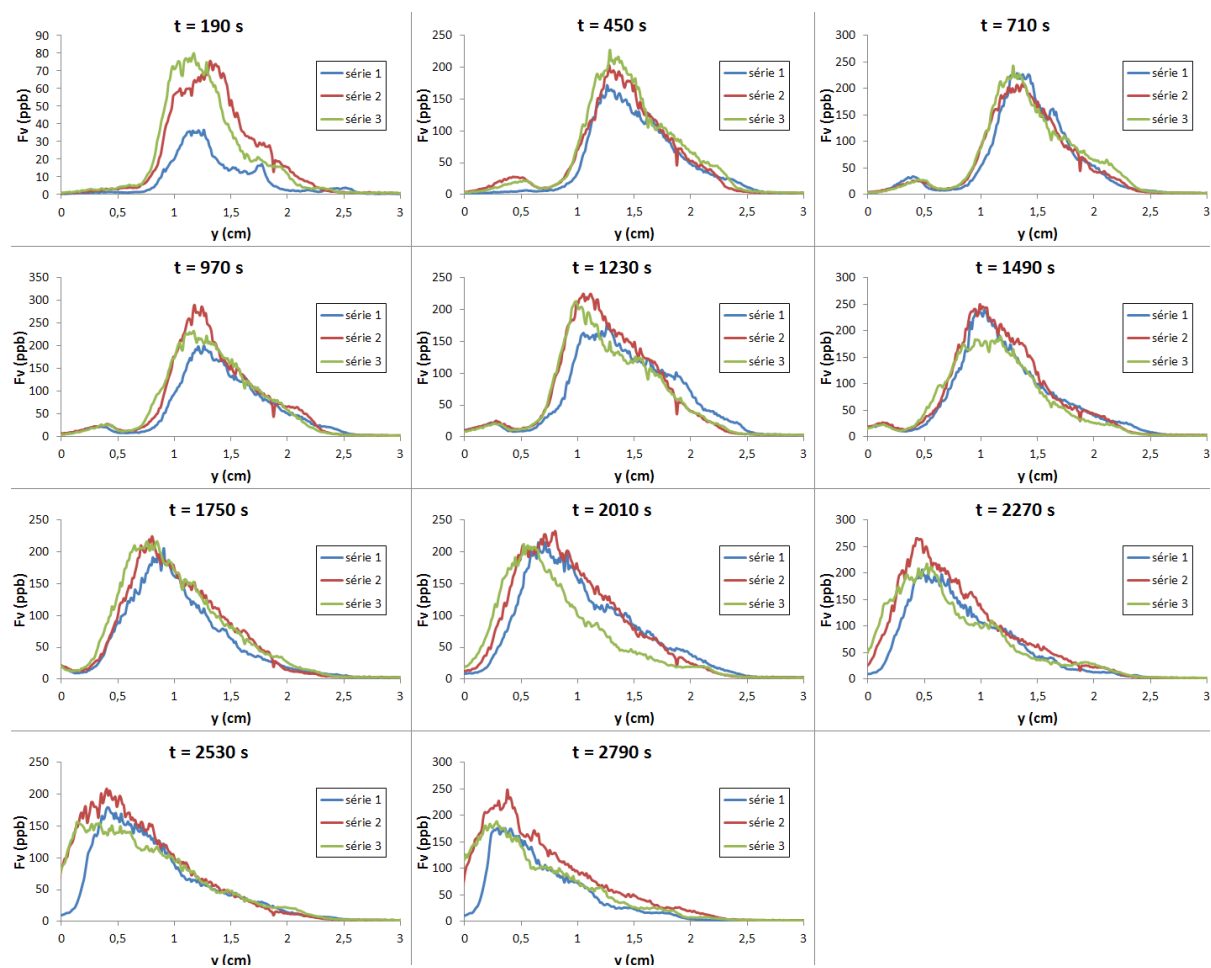
FIGURE A.6 – Champs 2D du signal LII pour la série 6 (bas de la plaque)

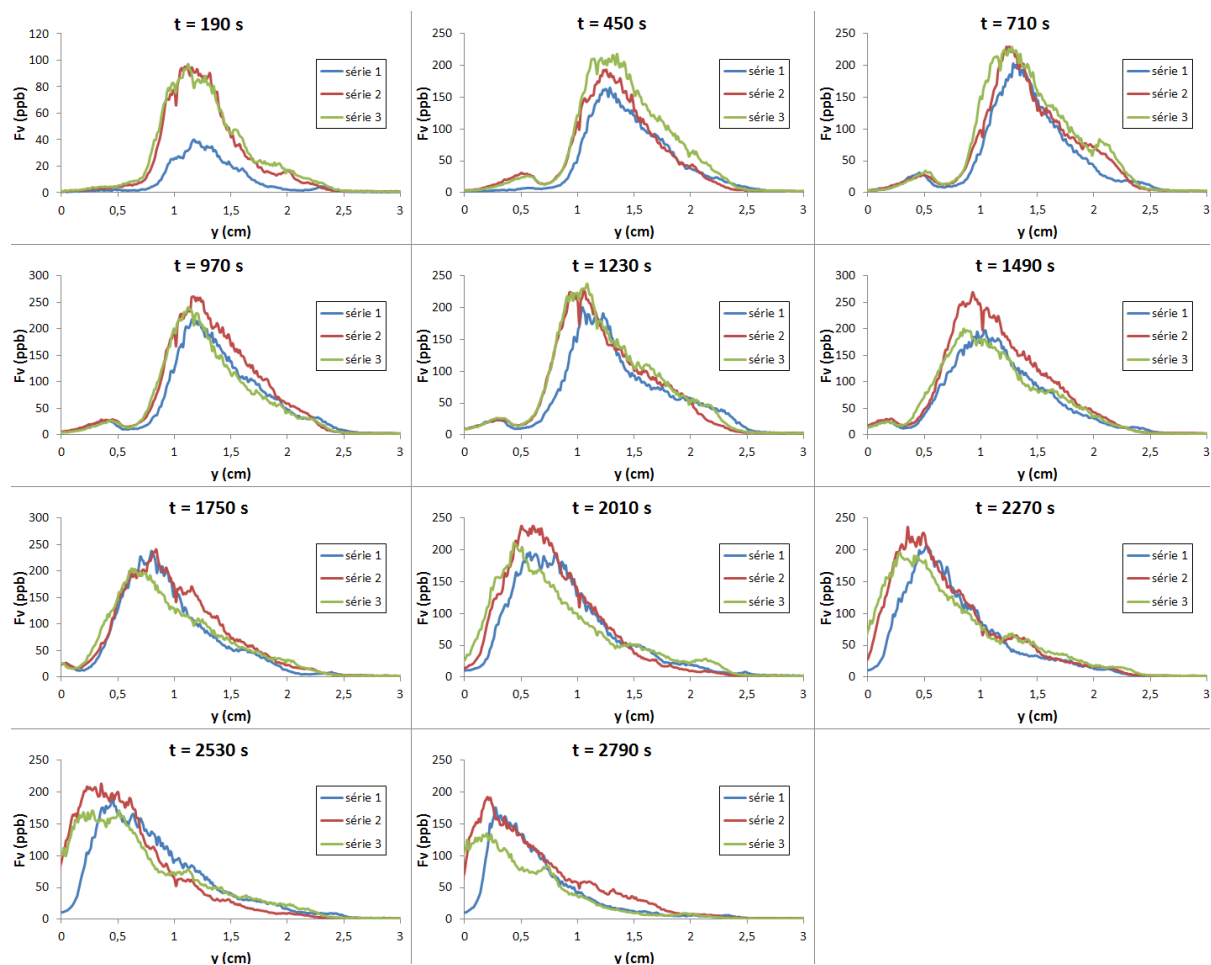
Annexe B

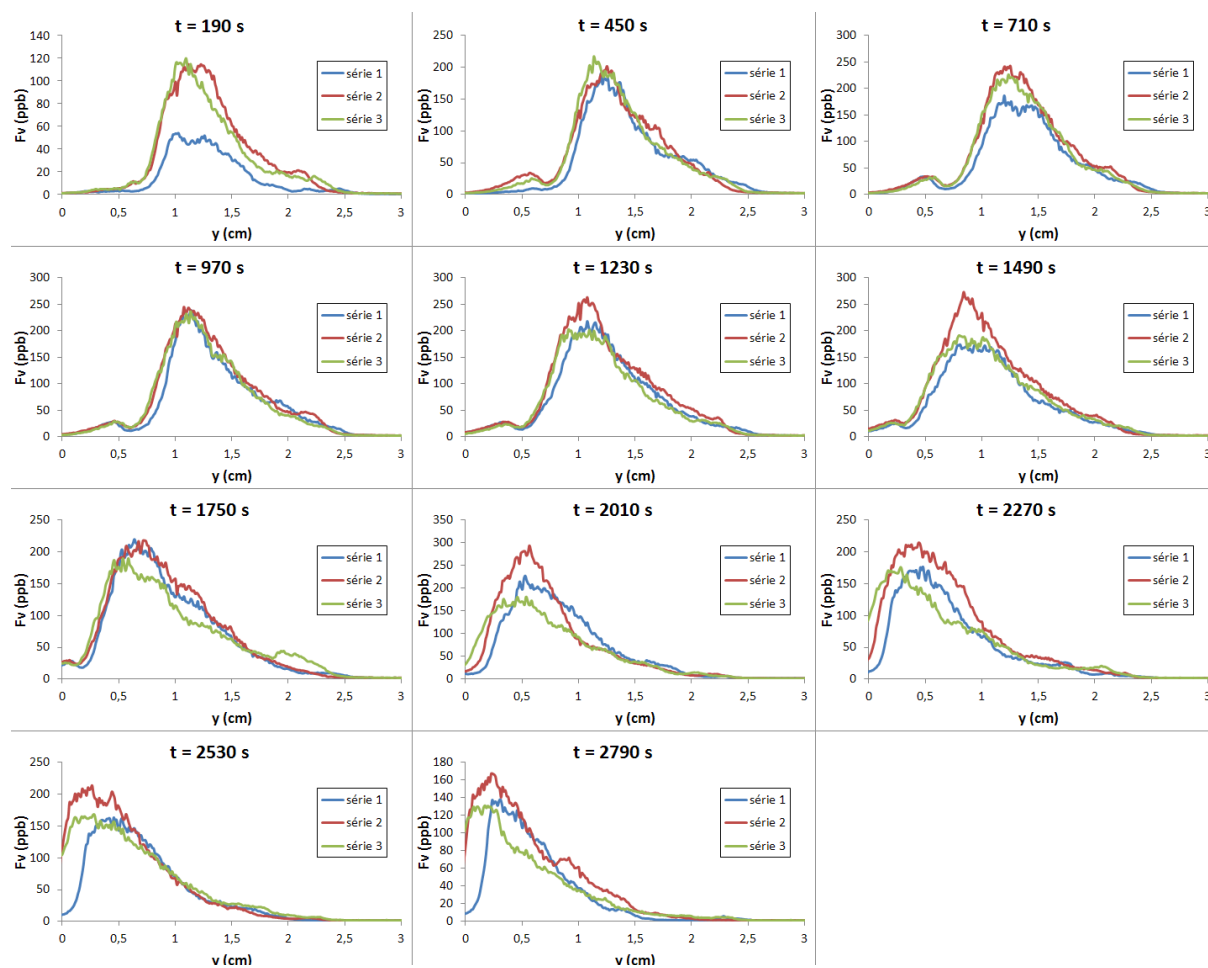
Profils de la fraction volumique de suie à différents temps et hauteurs pour les 6 séries sur la flamme de PMMA

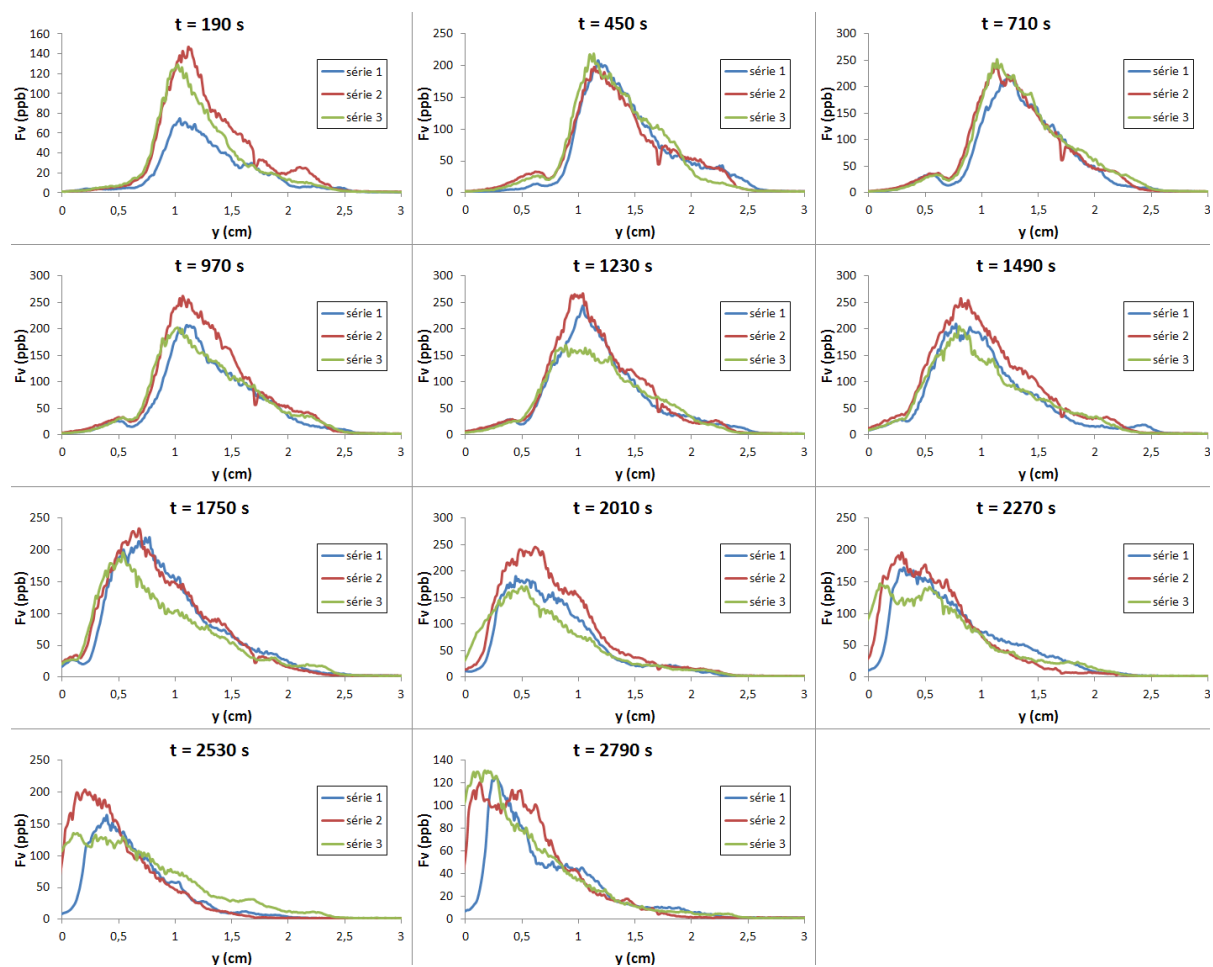
Cette annexe présente les profils de la fraction volumique de suie obtenus à différents temps (de $t = 190$ s à 2790 s) et à différentes hauteurs (de $z = 38$ cm à 10 cm) pour les 6 séries faites sur la flamme de PMMA.

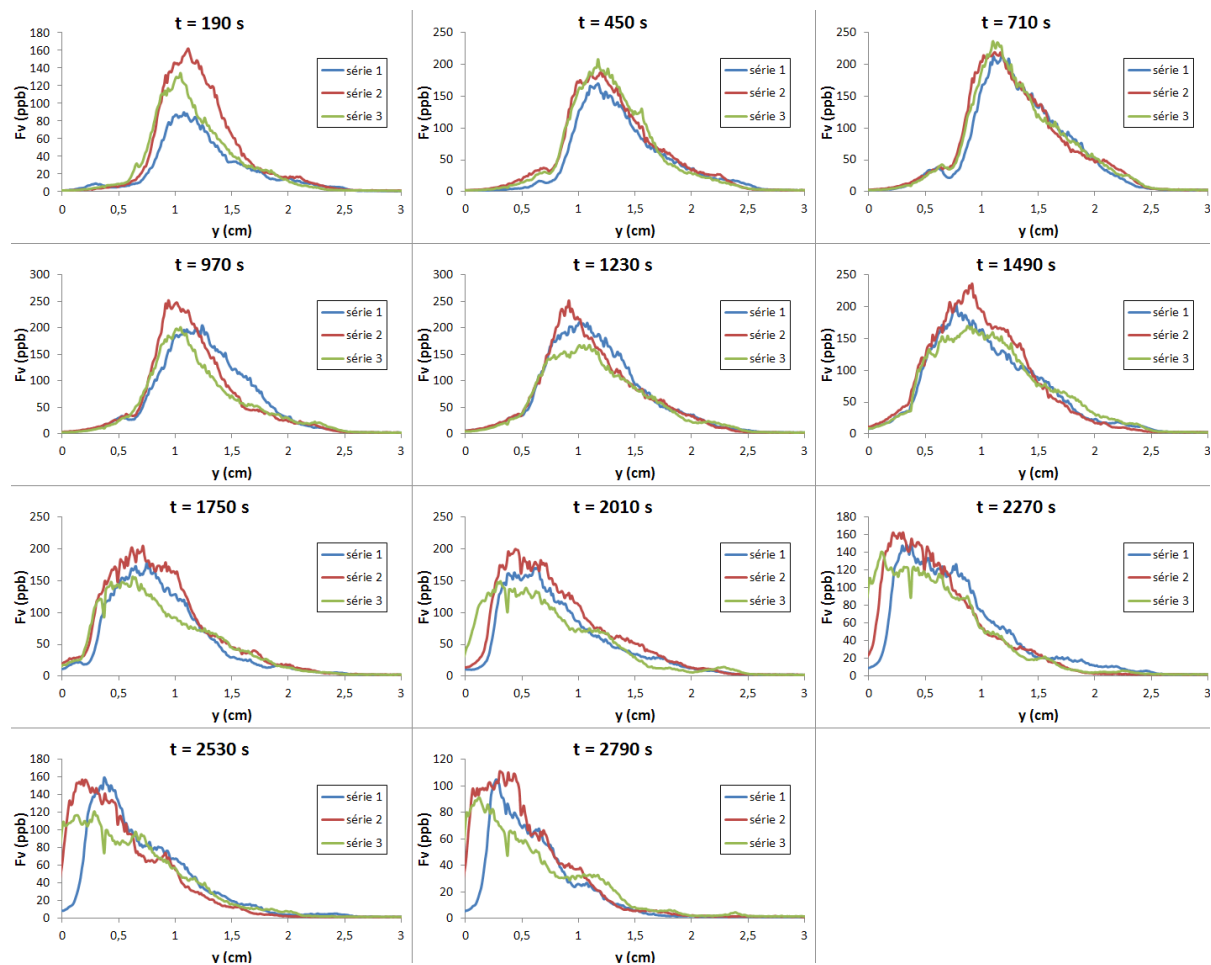
FIGURE B.1 – Profils pour $z = 38$ cm (séries 1, 2 et 3)

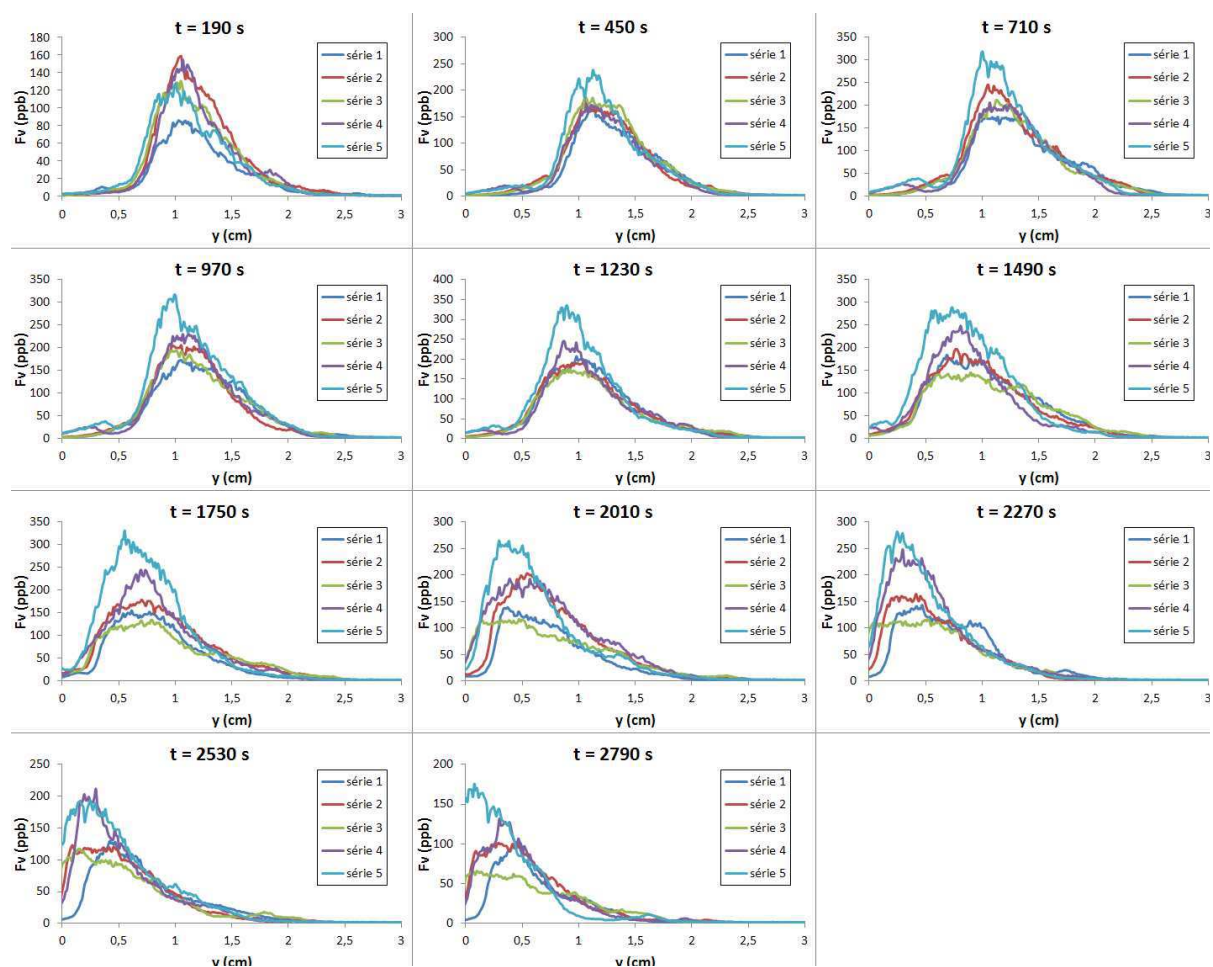
FIGURE B.2 – Profils pour $z = 36$ cm (séries 1, 2 et 3)

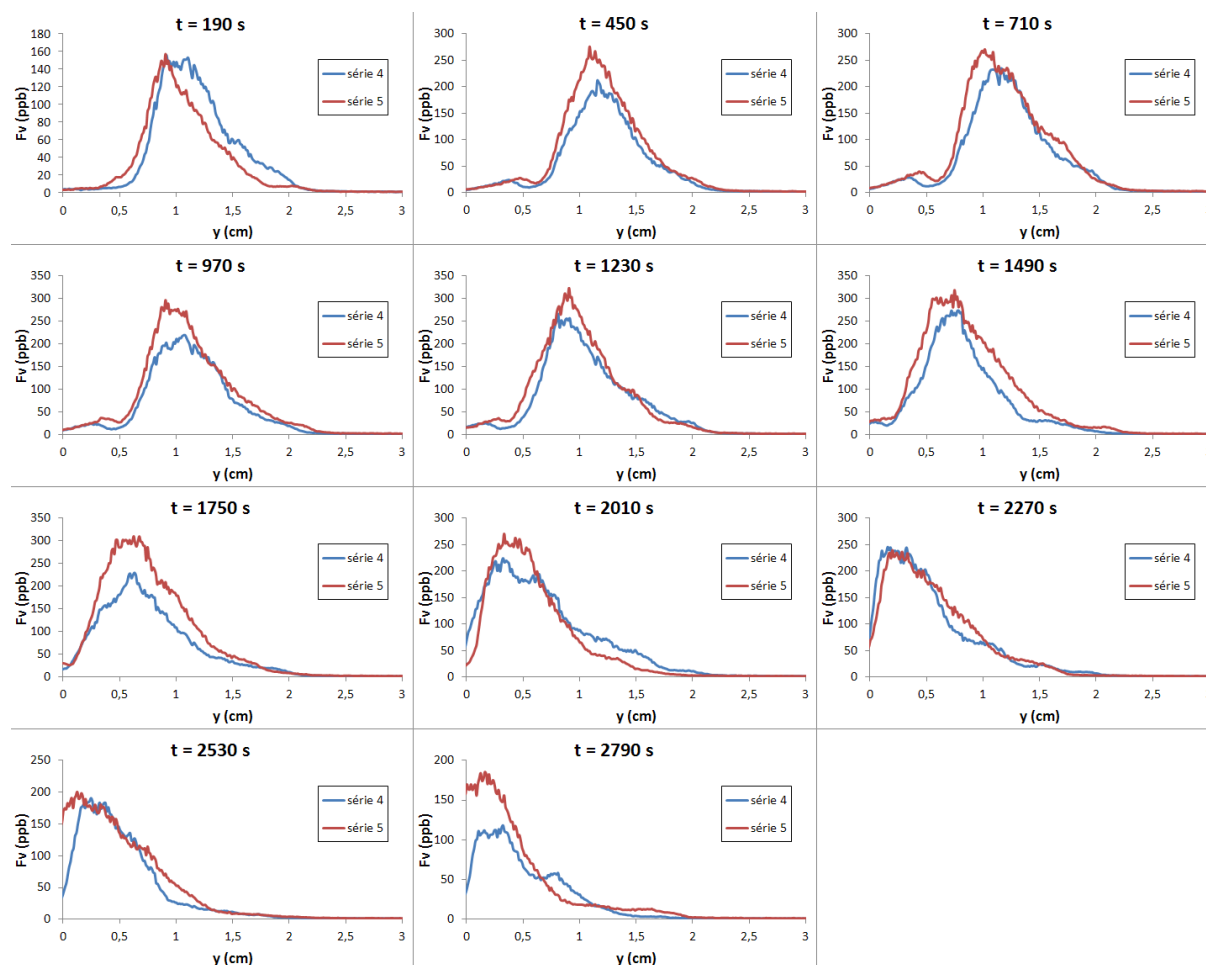
FIGURE B.3 – Profils pour $z = 34$ cm (séries 1, 2 et 3)

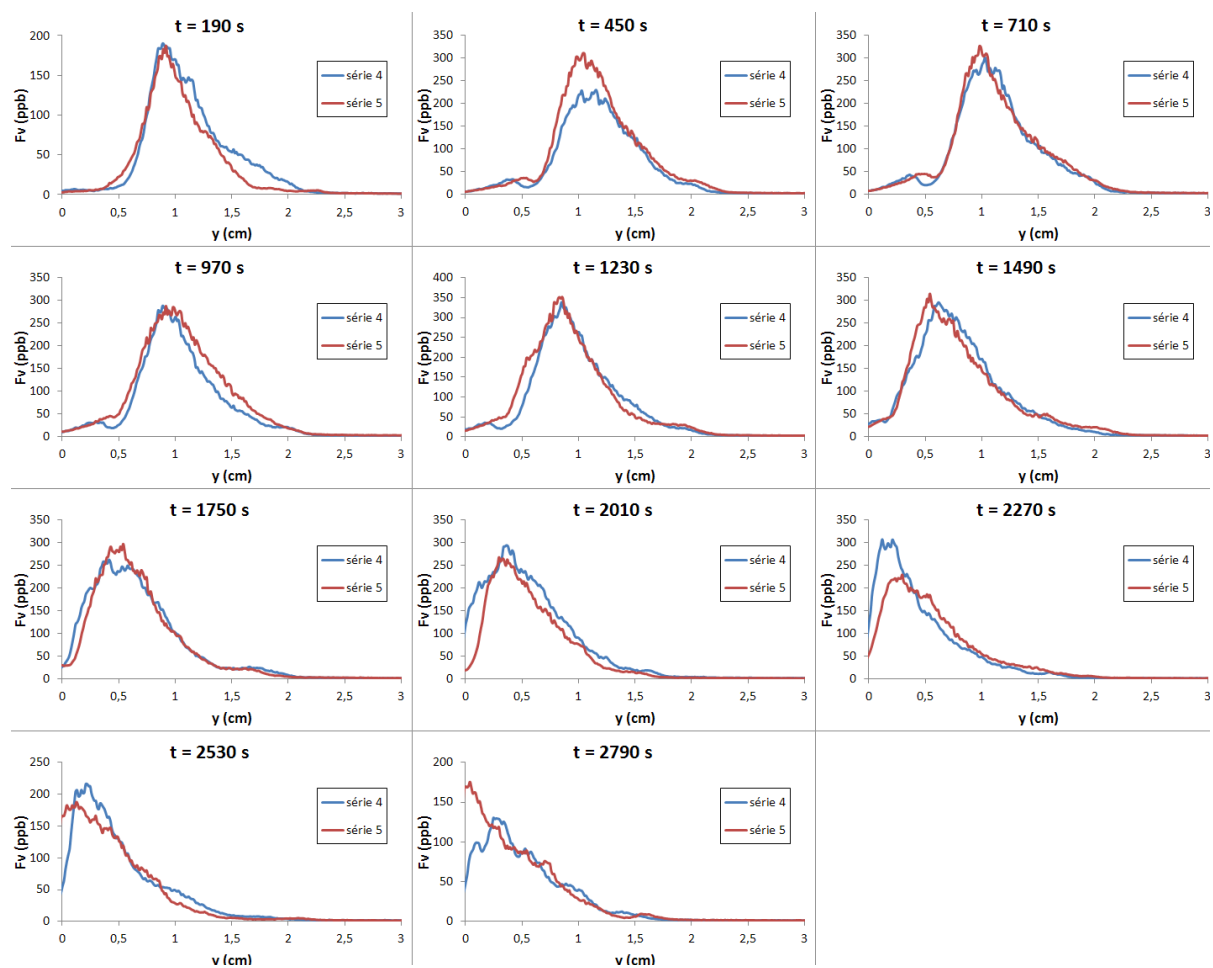
FIGURE B.4 – Profils pour $z = 32$ cm (séries 1, 2 et 3)

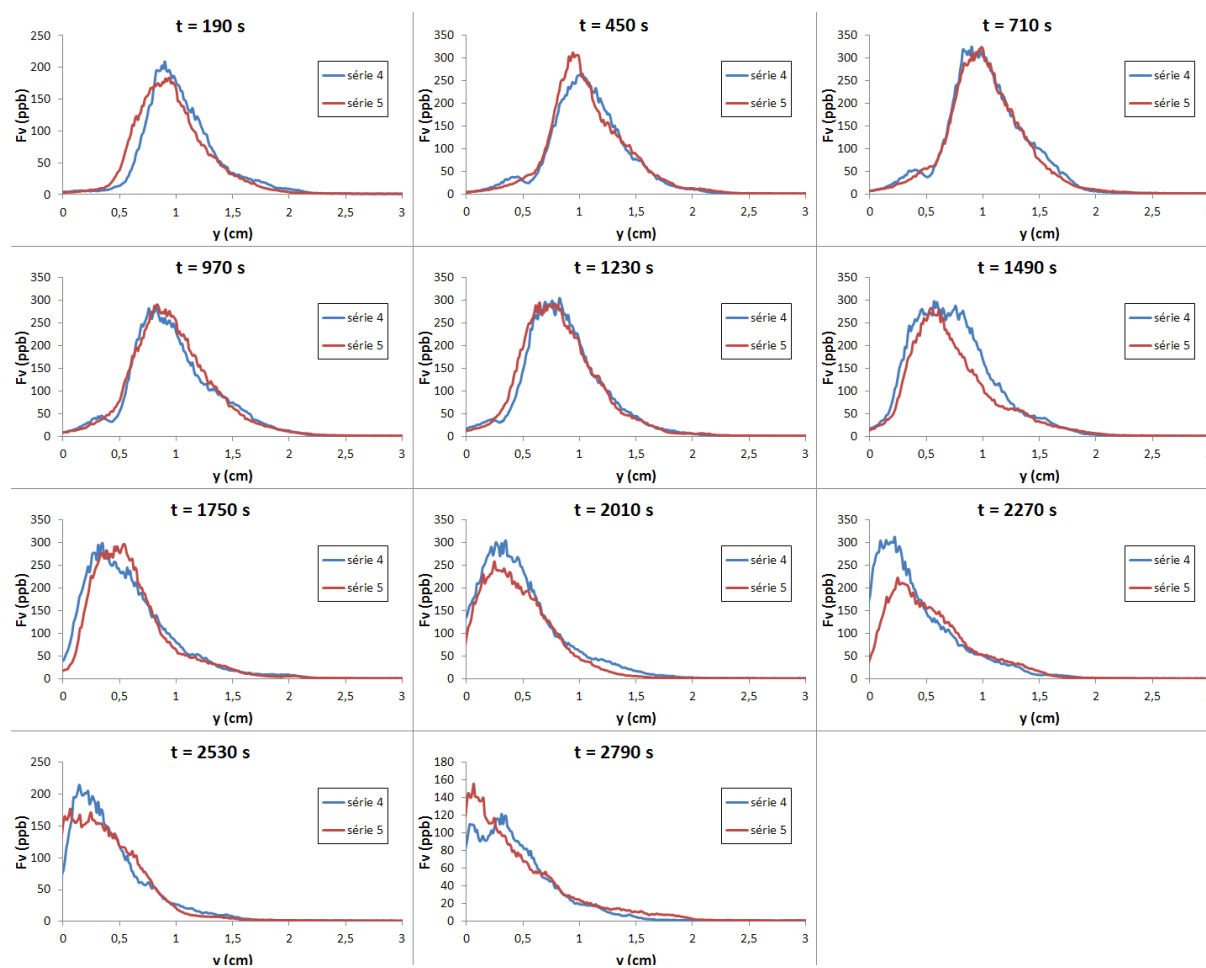
FIGURE B.5 – Profils pour $z = 30$ cm (séries 1, 2 et 3)

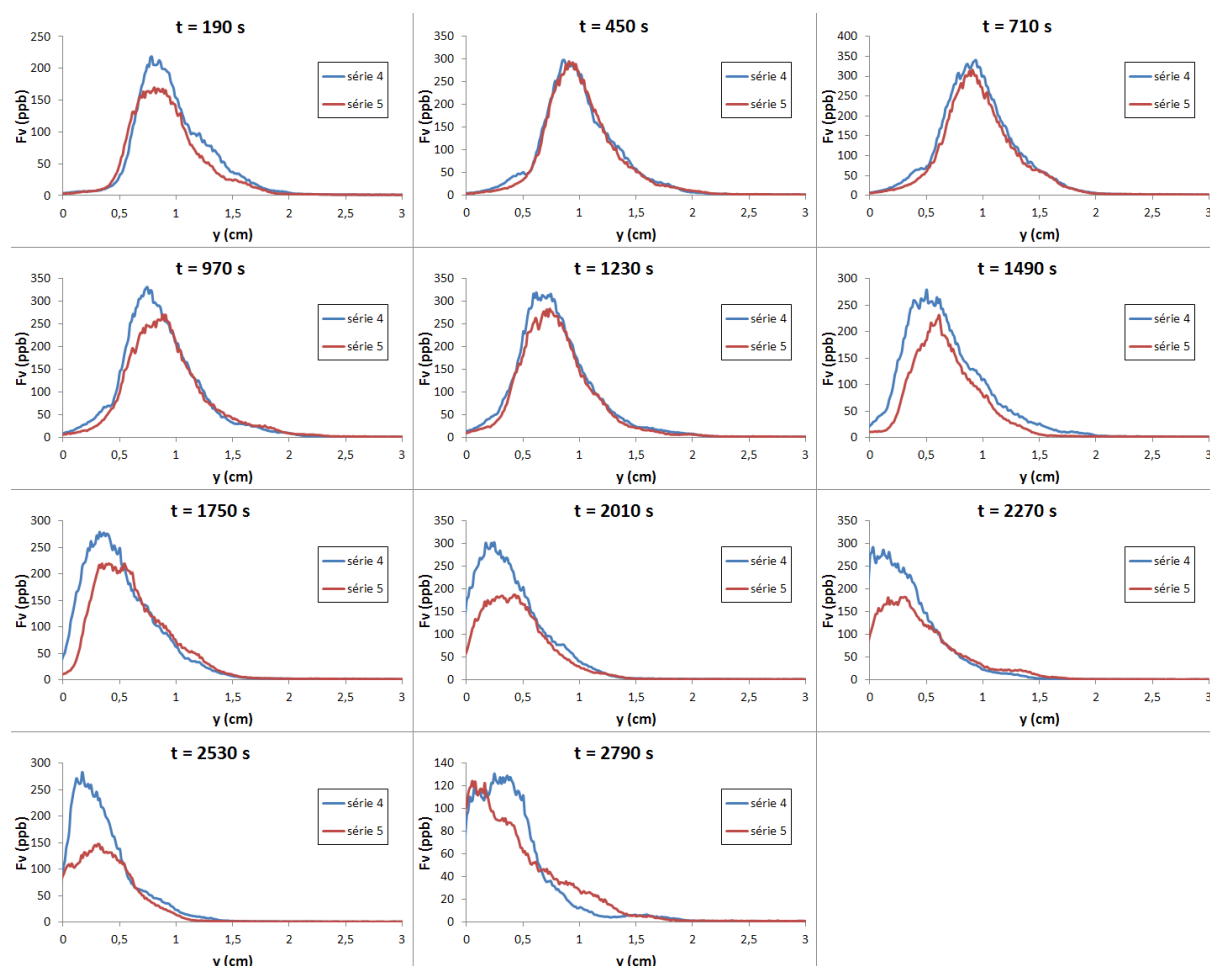
FIGURE B.6 – Profils pour $z = 28$ cm (séries 1, 2 et 3)

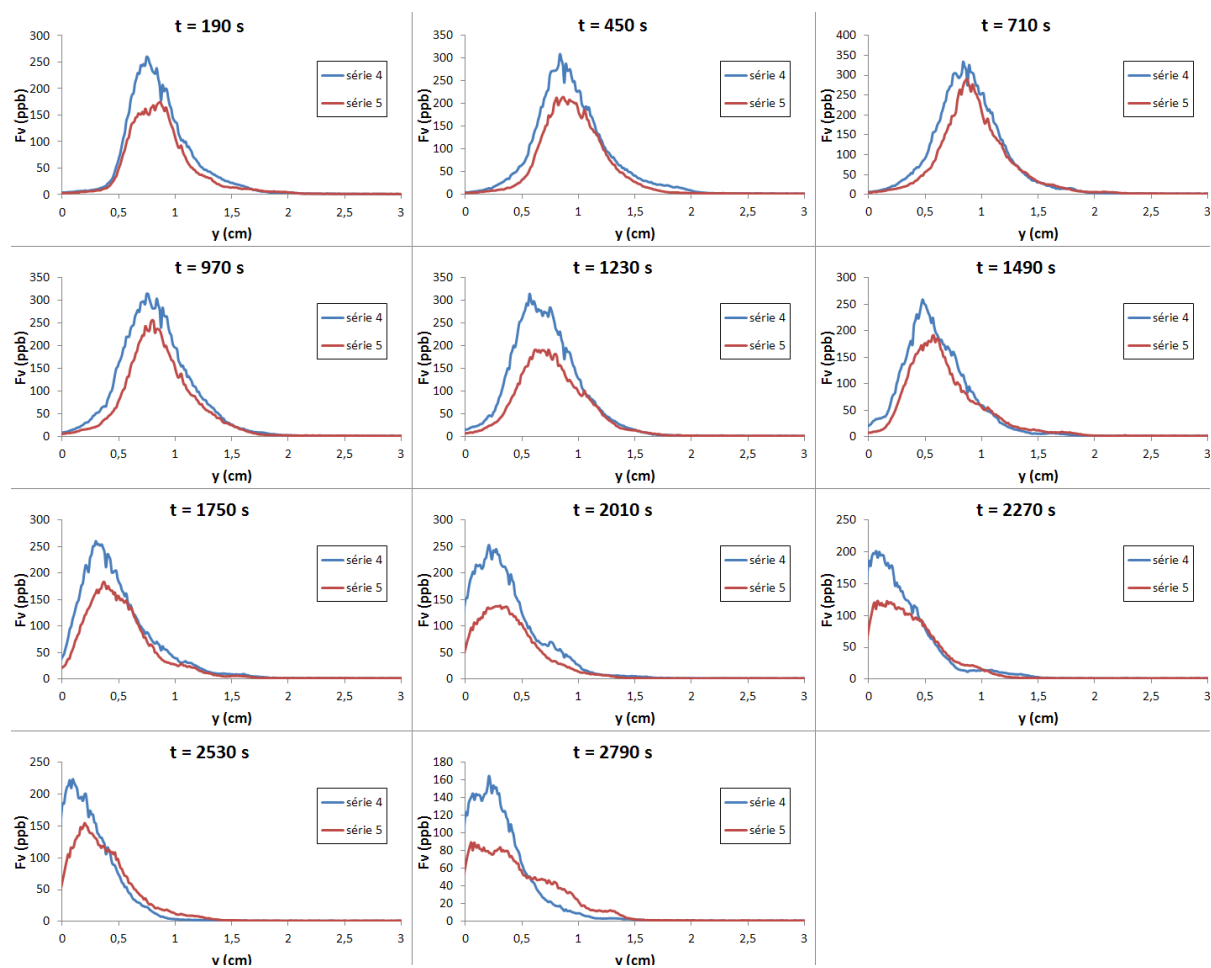
FIGURE B.7 – Profils pour $z = 27$ cm (séries 1, 2, 3, 4 et 5)

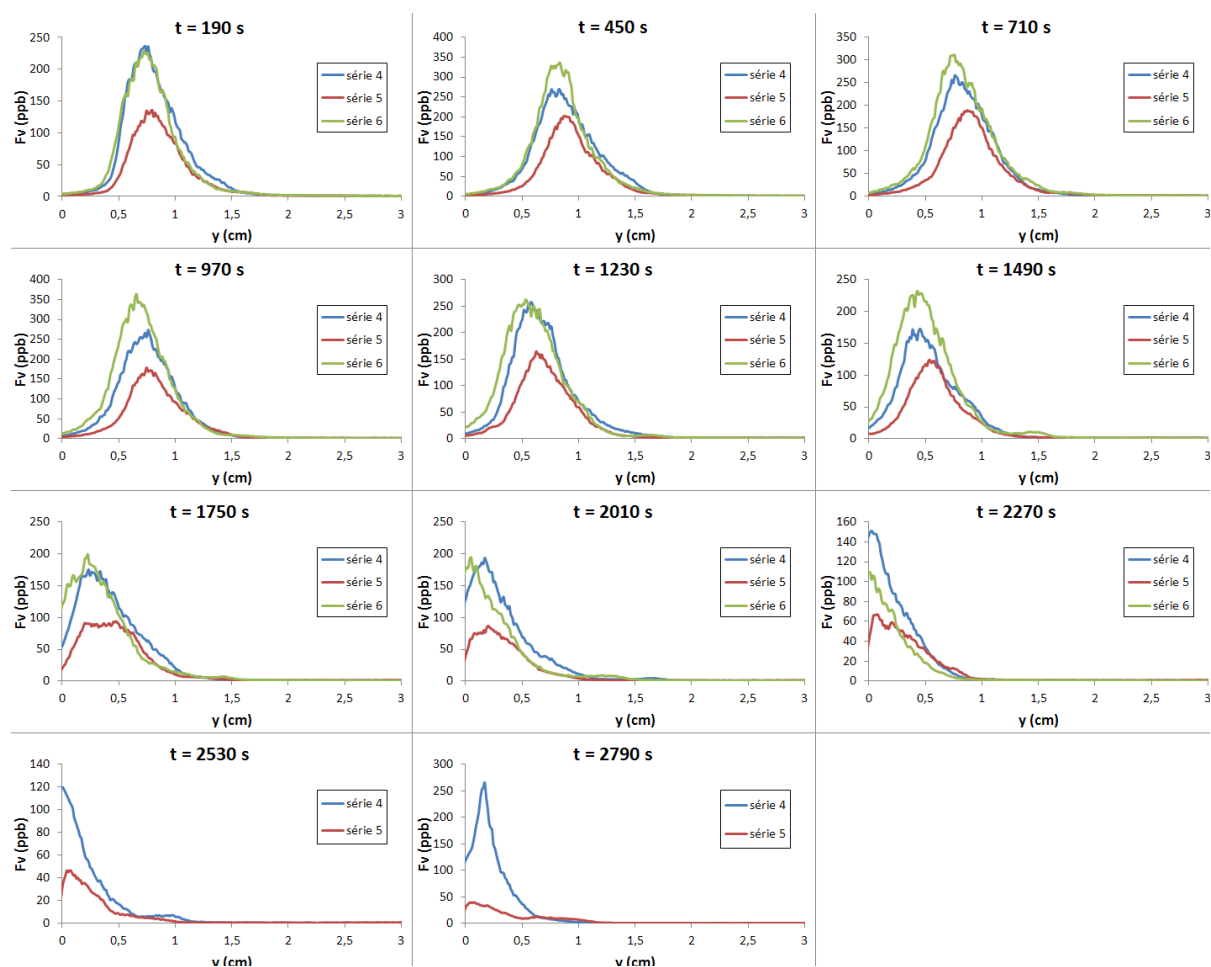
FIGURE B.8 – Profils pour $z = 26$ cm (séries 4 et 5)

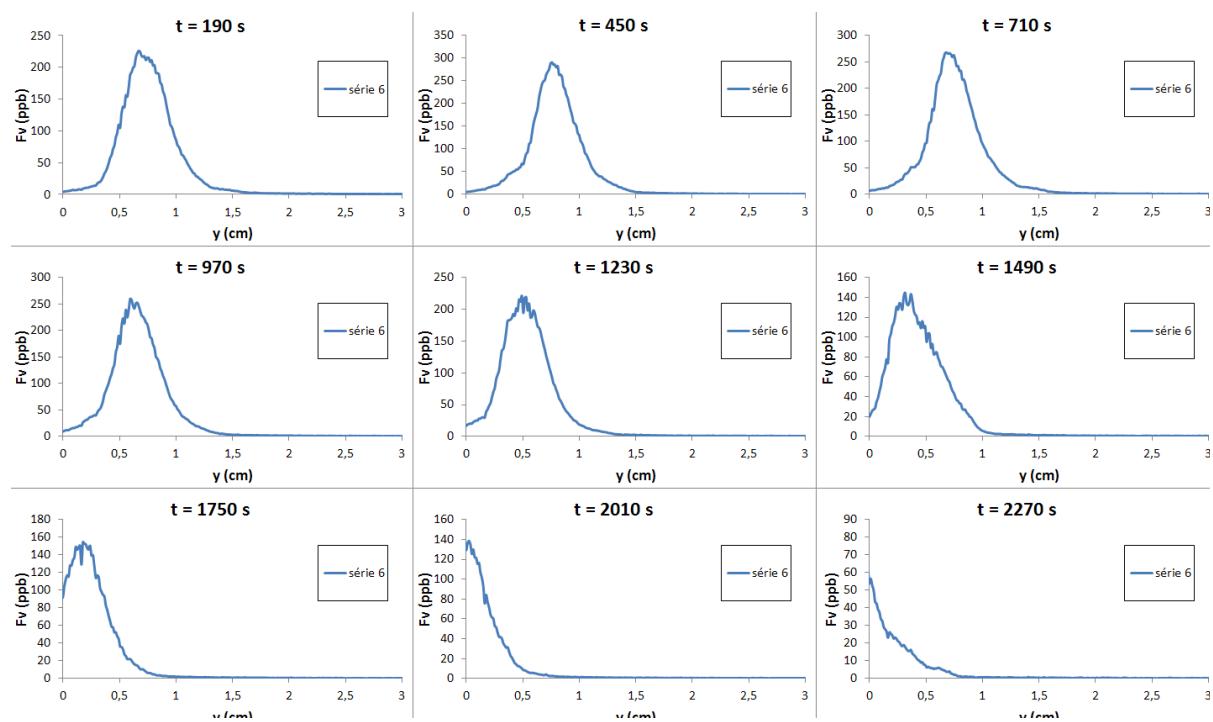
FIGURE B.9 – Profils pour $z = 24$ cm (séries 4 et 5)

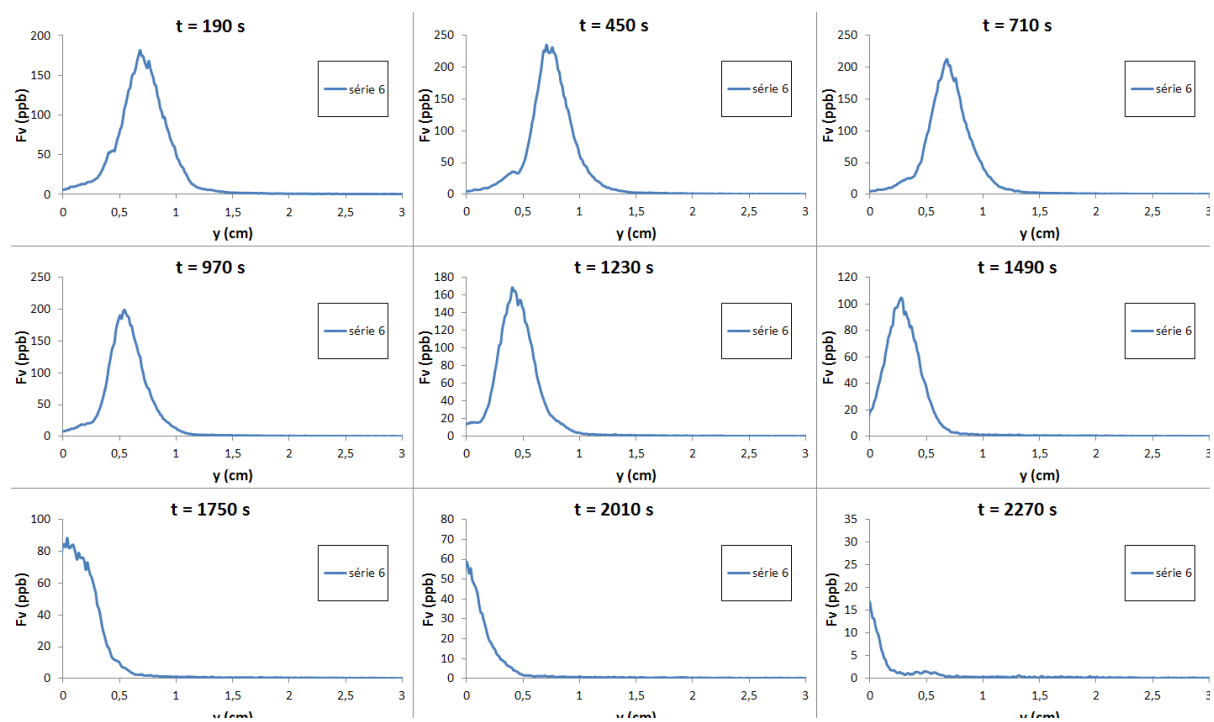
FIGURE B.10 – Profils pour $z = 22$ cm (séries 4 et 5)

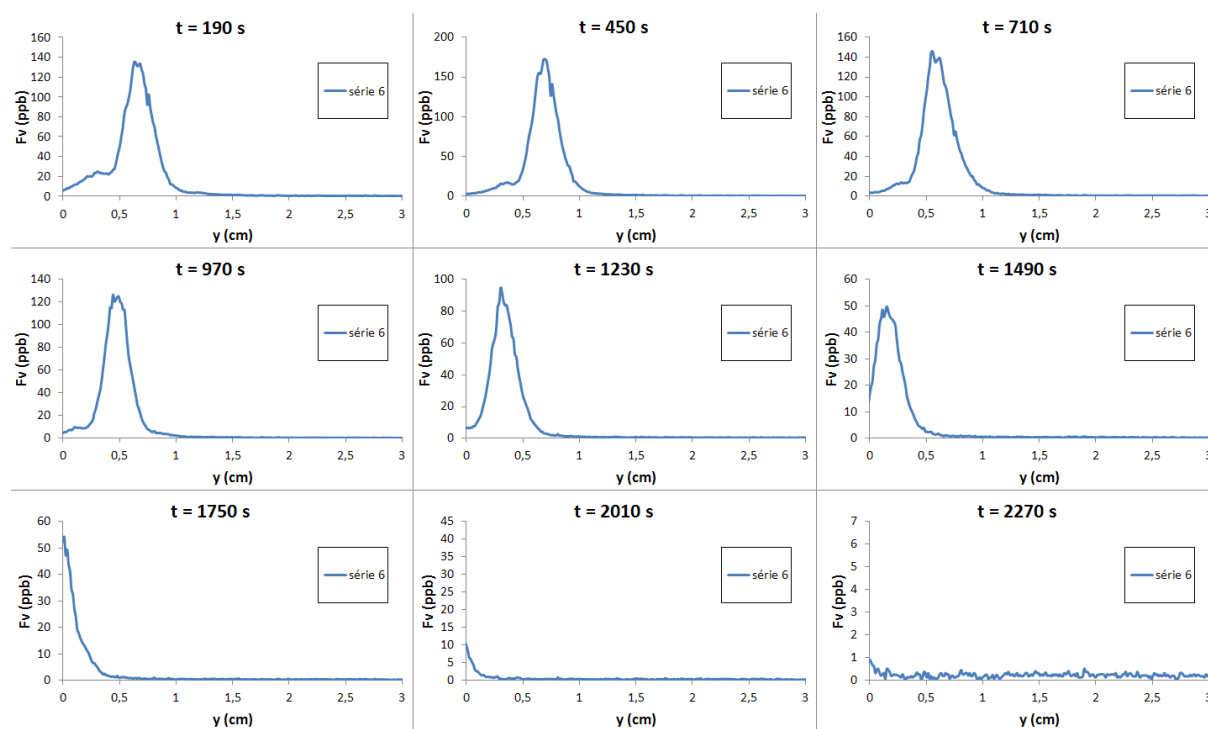
FIGURE B.11 – Profils pour $z = 20$ cm (séries 4 et 5)

FIGURE B.12 – Profils pour $z = 18$ cm (séries 4 et 5)

FIGURE B.13 – Profils pour $z = 16$ cm (séries 4, 5 et 6)

FIGURE B.14 – Profils pour $z = 14$ cm (séries 6)

FIGURE B.15 – Profils pour $z = 12$ cm (séries 6)

FIGURE B.16 – Profils pour $z = 10$ cm (séries 6)

Annexe C

Combustion d'une plaque de PMMA ensemencée avec de l'Alumine

Cette annexe présente un essai qui a été entrepris pour ensemencer une plaque de PMMA avec des particules d'Alumine. Cette plaque a été fabriquée grâce au savoir-faire et aux équipements du laboratoire PBS (Polymères, Biopolymères, Surfaces). Elle est ensuite brûlée pour voir si la présence des particules d'Alumine modifie la réaction au feu de la plaque. L'objectif de cet essai est de pouvoir ensuite faire une mesure de la vitesse de l'écoulement dans la flamme par PIV.

C.1 Fabrication de la plaque

C.1.1 Réaction de polymérisation

Pour fabriquer une plaque de PMMA à partir du MMA, la présence d'un amorceur est nécessaire pour permettre le déclenchement de la polymérisation. On passe donc d'un MMA liquide à un PMMA solide. L'amorceur utilisé ici est le peroxyde de benzoyle (POB) mais il doit être décomposé pour permettre la polymérisation. Cette décomposition peut se faire sous l'effet de la chaleur mais l'utilisation d'un co-amorceur permet d'augmenter la vitesse de décomposition et cela à basse température. Le co-amorceur utilisé ici est le N,N-diméthyl-p-toluidine (DmpT). L'équation réactionnelle avec le POB est la suivante

est présenté sur la figure C.1.

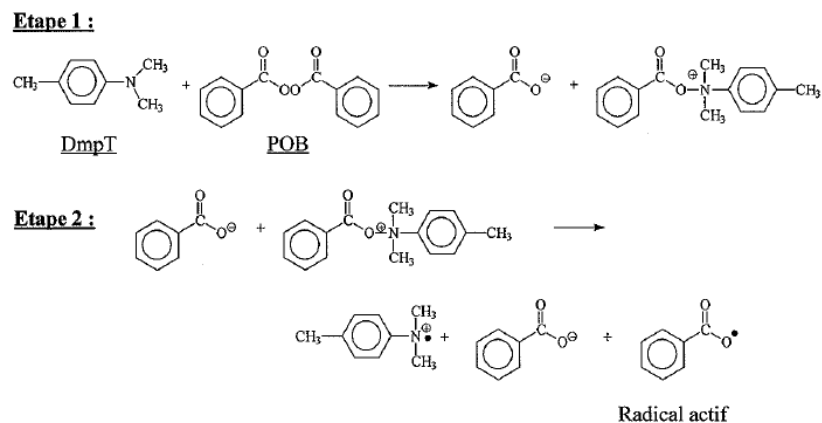


FIGURE C.1 – Schéma réactionnel de la décomposition du POB avec le DmpT

Cette décomposition du POB en présence de DmpT permet la formation de radicaux benzolique. Ce sont donc ces radicaux qui en présence de monomère (MMA) amorcent la polymérisation.

C.1.2 Produits et quantités utilisées

Les produits utilisés sont le MMA (liquide), le PMMA (granulé broyé en poudre), l'Alumine (poudre), le POB (poudre) et le DmpT (liquide). Les quantités de chaque produit (pour le remplissage d'un pot) sont présentées dans le tableau C.1.

PMMA (g)	Alumine (g)	POB (g)	MMA (g)	DmpT (g)
70	3	0,77	30,9	0,64

TABLE C.1 – Quantité des produits utilisés pour le remplissage d'un pot

L'Alumine a donc une quantité égale à 3 % de la masse totale MMA + PMMA. Un moule est utilisé pour fabriquer la plaque, ses dimensions permettent d'obtenir une plaque de 15,5 cm de longueur, 10,5 cm de largeur et 3 cm d'épaisseur. Il faut 6 pots pour remplir ce moule.

C.1.3 Protocole pour la réalisation de la plaque

Tout d'abord les poudres sont mélangées ensemble (PMMA, Alumine et POB), de même pour les liquides (MMA et DmpT). Les deux préparations sont ensuite mélangées dans un pot de façon grossière (manuellement avec une spatule) puis avec le speedmixer (30 s à 2000 tr.min⁻¹). Une pâte très visqueuse est ainsi obtenue. Cette pâte est ensuite rapidement versée dans le moule (car la polymérisation est rapide, de l'ordre de 2 à 3 minutes). L'opération est répétée 6 fois afin de remplir le moule qui est ensuite refermée. Après démoulage de la plaque (après une demi-journée pour être sûr que la réaction est finie), la plaque est placée sous étuve à 60° C pendant une journée.

C.2 Combustion de la plaque

C.2.1 Protocole expérimental

Une comparaison est effectuée entre la combustion de la plaque de PMMA chargée en Alumine (PMMA_A) et celle d'une plaque normale (type G) de même taille (PMMA_G). Un support est mis en place afin de maintenir ces plaques en position verticale et de limiter la zone de combustion à la face avant. Les plaques sont allumées à l'aide d'un barreau chauffant et un chronomètre est lancé dès l'apparition de la flamme ($t = 0$ s). La propagation de la flamme est filmée avec un caméscope. Une nappe laser est envoyée dans la flamme et une caméra ICCD enregistre les signaux émis (gate delay de 0 ns et gate width de 70 ns).

C.2.2 Combustion des deux plaques

Tout d'abord deux photos des deux flammes obtenues après 5 min de combustion sont présentées sur la figure C.2 (PMMA_A à gauche et PMMA_G à droite). On observe une plus forte émission pour la flamme de la plaque chargée en Alumine.

Ensuite deux photos de l'état de surface après extinction (après environ 12 min de combustion) sont présentées sur la figure C.3 (toujours PMMA_A à gauche et PMMA_G à

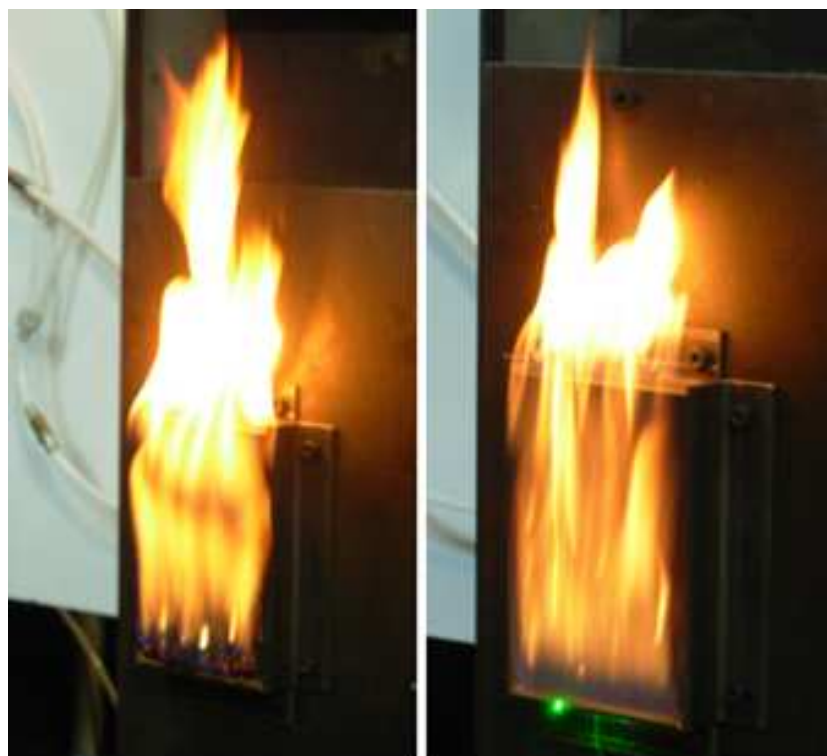


FIGURE C.2 – Comparaison des flammes obtenues avec les deux types de plaque (PMMA_A à gauche et PMMA_G à droite)

droite). On observe des coulures beaucoup plus présentes avec la présence d'Alumine ce qui empêche la surface d'avoir une régression normale (sur son épaisseur) dû à la pyrolyse et à la combustion.



FIGURE C.3 – Comparaison de l'état de surface après combustion des deux types de plaque (PMMA_A à gauche et PMMA_G à droite)

C.2.3 Comparaison de la hauteur de flamme

Afin d'avoir une meilleure comparaison entre les deux flammes, la hauteur de flamme est mesurée. La figure C.4 présente les résultats obtenus (la hauteur est moyennée sur plusieurs images consécutives). On observe que la propagation est plus rapide sur la plaque ensemencée, mais que la hauteur des deux flammes dans la phase stationnaire est similaire.

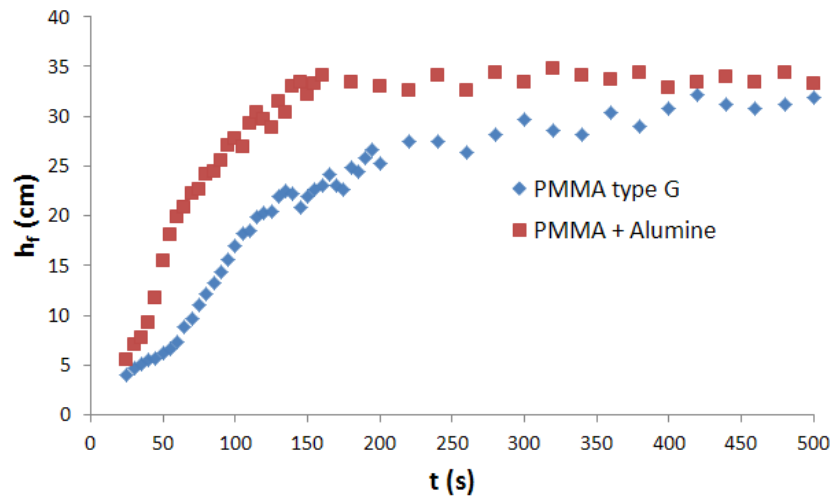


FIGURE C.4 – Comparaison des hauteurs de flamme mesurées au cours du temps pour les deux types de plaque

C.2.4 Diffusion sur les particules d'Alumine

Des séries de 400 images sont enregistrées pour les deux types de flamme. Les champs enregistrés ont une hauteur de 10,24 cm (suivant z) et débute à $z = 4,26$ cm ($z = 0$ correspond au bas de la plaque). Deux images instantanées (zoomées) sont présentées sur la figure C.5 (PMMA_G à gauche et PMMA_A à droite). Les signaux sont assez proches et on n'observe pas de diffusion sur les particules d'Alumine potentiellement présentes dans la flamme. Cela est probablement dû à la résolution de la caméra qui est de $100 \mu\text{m}/\text{pixel}$ alors que les particules d'Alumine ont une taille de $15 \mu\text{m}$. De la poudre d'Alumine a été retrouvée sur le miroir situé en dessous de la plaque en combustion, ce qui montre qu'une partie des particules libérées par la plaque n'a pas suivi l'écoulement de la flamme. Il n'est

donc pas possible de déterminer sur cet essai si des particules d'Alumine sont présentes dans la flamme pour servir de traceur à une future mesure de PIV.

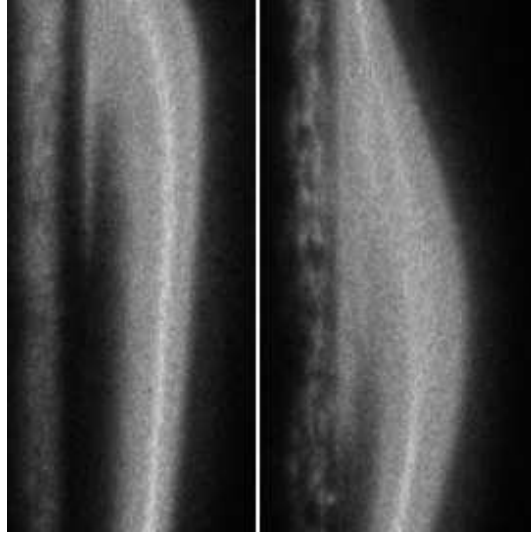


FIGURE C.5 – Comparaison du signal instantané pour les deux types de plaque (PMMA_G à gauche et PMMA_A à droite)

Afin de vérifier que l'on obtient un signal de diffusion plus important pour la plaque ensemencée, des images moyennes pour chaque série sont faites (figure C.6). Sur ces images, les champs moyens pour les deux plaques (pour un temps équivalent) sont mis côte à côte (toujours PMMA_G à gauche et PMMA_A à droite). Les échelles de niveau de gris ne sont pas identiques entre les champs des deux plaques. Mais globalement on obtient un signal plus élevé pour la plaque chargée en Alumine. On observe aussi des différences sur la forme moyenne des signaux, notamment proche de la surface (compte tenue de la non régression de celle-ci). La bande de signal située à gauche sur chaque champ correspond à une lumière parasite qui provient d'une réflexion sur la surface des plaques.

Pour effectuer une meilleure comparaison entre les champs moyens, des profils sont tracés pour $z = 10$ cm et pour trois temps ($t = 250$ s, $t = 365$ s et $t = 480$ s) et présentés sur la figure C.7. La position $y = 0$ cm correspond à la surface de la plaque avant l'allumage. On observe, comme dit précédemment, un signal plus élevé pour la plaque ensemencée. Cette hausse de signal peut être dû à de la diffusion (sur les particules d'Alumine potentiellement présente dans la flamme) mais peut être aussi dû à une différence entre la

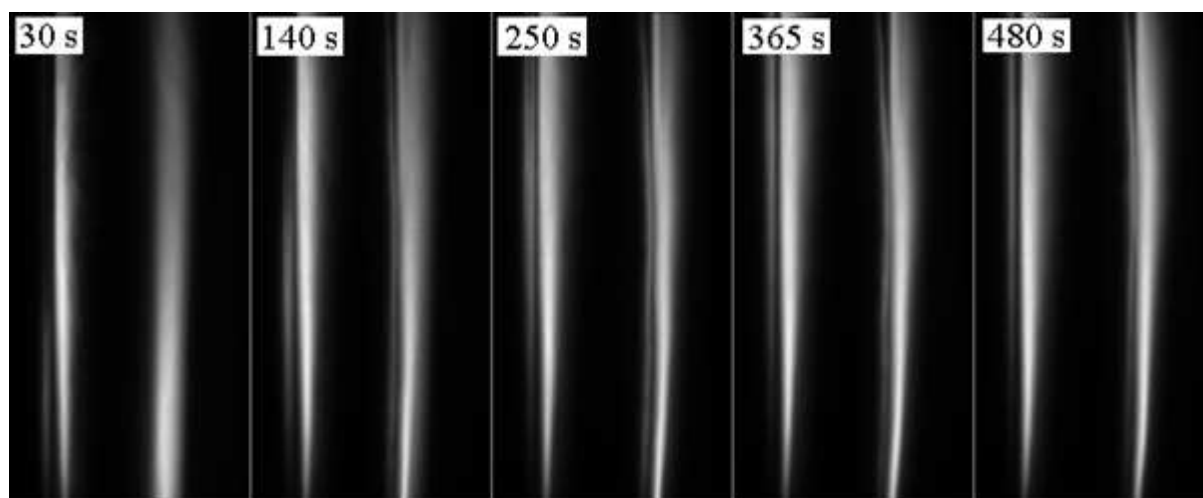


FIGURE C.6 – Comparaison des signaux moyens au cours du temps pour les deux types de plaque ($PMMA_G$ à gauche et $PMMA_A$ à droite)

forme et la luminosité des deux flammes. La présence d'Alumine dans la flamme est donc toujours incertaine. Enfin on observe un décalage pour la position suivant y de la flamme. Au lieu d'avoir une régression de la surface, on obtient un épaissement de celle-ci lié aux coulures.

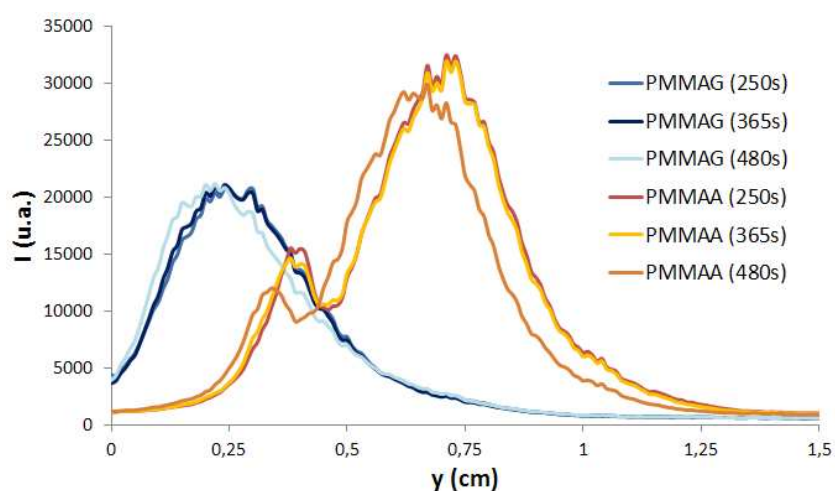


FIGURE C.7 – Comparaison des profils des signaux moyens au cours du temps pour $z = 10$ cm pour les deux types de plaque

Pour conclure, ces tests ne sont pas encourageant pour l'utilisation de cette plaque chargée en Alumine dans le but de faire des mesures de PIV sur la combustion de celle-ci.

Annexe D

Publication de l'auteur

Publication :

- D. Hebert, A. Coppalle, and M. Talbaut. 2d soot concentration and burning rate of a vertical pmma slab using laser-induced incandescence. Proceeding of the Combustion Institute, 34 : 2575-2582, 2013 [89].

Available online at www.sciencedirect.com**SciVerse ScienceDirect**

Proceedings of the Combustion Institute 34 (2013) 2575–2582

**Proceedings
of the
Combustion
Institute**www.elsevier.com/locate/proci

2D soot concentration and burning rate of a vertical PMMA slab using Laser-Induced Incandescence

Damien Hebert*, Alexis Coppalle, Martine Talbaut

Laboratoire CORIA – UMR 6614, CNRS – Université et INSA de Rouen, France

Available online 5 September 2012

Abstract

In the field of fire studies, it is interesting to provide useful data for the validation of soot production and radiation models. 2D soot concentration in the flame and burning rate of the solid surface have been determined in the case of the combustion of a vertical PMMA slab. The local soot concentration has been measured with the Laser-Induced Incandescence method. This one has been calibrated with in situ extinction measurements performed simultaneously (at 1064 nm). The interference signals of LII caused by laser scattering and Laser-Induced fluorescence have been considered and eliminated by a well suited detection. The flat field effect caused by the ICCD camera has also been corrected. The trapping effect on the LII signal has also been considered. The flame grows on the slab after the ignition, and after 1500 s a steady state of combustion appears. During this period, the soot profiles in the boundary layer have been measured at two heights in the flame and their main features will be discussed. It has been possible to determine the burning rate of the PMMA slab from the observation of the displacement of soot profiles in the camera field. The values at both heights are respectively 5.55 and 6.95 g/s/m². These values will be compared with results obtained in other studies.

© 2012 The Combustion Institute. Published by Elsevier Inc. All rights reserved.

Keywords: PMMA combustion; Flame spread; Laser-Induced Incandescence; Soot volume fraction; Burning rate

1. Introduction

In the area of fire prevention and protection, it is important to understand fire propagation. Fire spread processes on solid surfaces need to be understood in order to optimize prevention and extinction methods. During the flame propagation, transport and chemical processes play a great part and interact: the fuel pyrolysis depends on the heat transfer between the burning region

and the unburnt material, this transfer being linked to radiation and convection from the flame. Flame radiation increases heat flux toward the solid slab which pyrolyzes and produces fuel vapors, thus maintaining the combustion [1,2].

Soot contributes greatly to flame radiation. Measurements of soot concentration are important in order to deduce radiation and provide data for the validation of soot production and radiation models. Many works have studied parameters like flame height, flame spread rate, total burning rate or mass loss rate of solid samples [3–5] but without soot concentration measurements. The Laser-Induced Incandescence allows to determine soot concentration in flames [6–11]. Many have used this technique in turbulent

* Corresponding author. Address: Laboratoire CORIA – UMR 6614, CNRS – Université et INSA de Rouen, Campus du Madrillet – BP 8, 76801 Saint Etienne du Rouvray cedex, France. Fax: +33 (0)2 32 95 37 94.

E-mail address: hebert@coria.fr (D. Hebert).

axisymmetric flames generated by gaseous burners [12–14] but never in flames produced by solid combustibles.

Consequently, the objective of this work is to measure the soot concentration in a flame generated by a vertical slab of solid combustible. The most used solid fuel is PMMA (poly(methyl methacrylate)) because it does not melt, it does not produce char and its thermo-physical properties are well known [4,15,16]. This fuel has also been chosen in the present work. The experimental method used to obtain soot concentration is the Laser-Induced Incandescence technique performed with extinction measurements in order to calibrate the LII signals. After the presentation of the experimental setup and the calibration procedure, 2D LII fields and soot concentration profiles in the reactive boundary layer are given and discussed. The 2D fields have been obtained at different

moments after the ignition of the PMMA slab and this allows to highlight the different stages of flame propagation on the PMMA surface. Furthermore, the flame displacement rate and thus the burning rate can be deduced from the transversal profiles of soot concentration and they are compared with other studies [4,5].

2. Experimental

2.1. Wall fire configuration

A vertical slab has been chosen in this experiment because it corresponds to a well-known fire configuration. In this case, the flapping of the flame is not strong, which is more convenient for the LII signal analysis process. Before doing measurements on a vertical PMMA slab, a preliminary study has been carried out on a non-spreading flame produced by a gaseous burner in a vertical configuration (Fig. 1). This has made it possible to determine the best configuration of measurements and to calibrate the LII technique. This burner is a 20×40 cm bronze porous wall [17] and is fed with a mix of methane (0.243×10^{-3} kg/s) and ethylene (0.512×10^{-3} kg/s). It is cooled with water kept at 338 K to avoid condensation of water combined with soot which dirties the porous. In order for the flame to remain and to be stable in the lower part of the burner, a gaseous line fed with methane at 0.017×10^{-3} kg/s is placed just below the burner. A steel wall cooled with water has been installed around the burner to allow the flame to be more stable along the experiment.

The vertical PMMA slab is 45 cm in height, 25 cm in width and 3 cm thick [4]. To avoid the

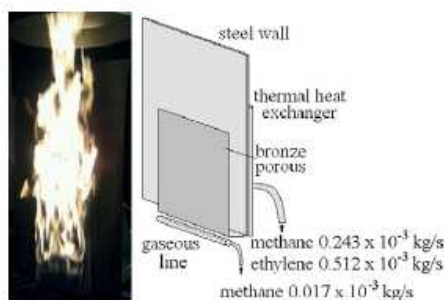


Fig. 1. The flame obtained with a vertical bronze porous burner (40×20 cm) fed with a mix of methane (0.243×10^{-3} kg/s) and ethylene (0.512×10^{-3} kg/s).



Fig. 2. PMMA slab configuration with steel frame to limit the combustion area (40×20 cm) and location of y and z axes. On the right, pictures of flame spread at 60, 300 and 1500 s.

flame propagation, the front side of the slab is covered with a 0.5 cm thick steel frame (Fig. 2), with a 40 cm in height and 20 cm in width central opening. Edges of the PMMA slab have been carved by 1 cm to incrust the steel frame used to hold the slab. So this one juts out 0.5 cm at the beginning of the experiment (see the side view in Fig. 2). This allows visibility of the flame for a longer time, because after a while the flame goes inside the recess created by the pyrolysis. The coordinate system and its origin are shown in Fig. 2. The PMMA ignition is made with a stainless steel rod, provided with a 2 kW electrical device. This rod is of the same width as the PMMA and installed at the bottom of the slab: a homogeneous ignition is therefore obtained. The rod is preheated before the experiment to obtain a surface temperature of 1123 K. The departure time ($t = 0$ s) corresponds to the flame appearance which is the beginning of PMMA combustion.

2.2. LII setup, calibration

Figure 3 presents the experimental setup for LII and extinction measurements. For LII, a Nd:Yag laser (Quantel Brio) generating 5 ns pulses at 532 nm (2ω) with a 20 Hz repetition rate is used. The maximum laser pulse energy is 65 mJ. A 532 nm laser sheet is used for LII rather than at 1064 nm because: (i) a lower energy density is required to achieve soot incandescence at 532 nm [14], (ii) the second harmonic has a more stable power output [12]. To form the laser sheet, two lenses, cylindrical ($f = -10$ cm) and spherical ($f = 100$ cm), are installed at the laser output. The laser sheet is 24 mm in width and 0.9 mm in thickness. Its inhomogeneity is approximately 5%, so it is considered as homogeneous and no correction is made on its intensity variations. A mirror has been used to redirect the laser sheet in the vertical direction and parallel to the PMMA surface (or to the wall of the burner). An intensified CCD camera (Princeton IMAX 2) is located perpendicularly to the laser sheet, allowing the best view of 2D LII images. A 50 mm zoom lens is used to record signal (S_{LII}). The study field is

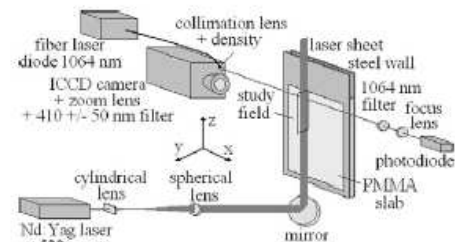


Fig. 3. LII and extinction measurement setup.

13 cm in height (in the z direction) and 3 cm in width (in the y direction). The resolution on the studied field is $125 \mu\text{m}/\text{pixel}$ (on a maximum of 1024×1024 pixels). The camera is synchronized with the laser pulse. The LII signal has a long temporal decrease and therefore a 30 ns delay after laser pulse permits to eliminate light scattered by soot particles and other signals (like fluorescence) [7,14]. Furthermore, in order to reinforce the elimination of spurious signals and to obtain a better signal to noise ratio, a 410 ± 50 nm pass band filter, in a spectral region free from C_2 Swan bands [7], is placed in front of the camera. A 70 ns gate width was chosen to have enough LII signal. As shown by Vander Wal [6], a gate width up to 100 ns does not change so much the LII signal. It is well known that a too long integration time can bias the LII measurements toward large particle sizes. So, two tests were made on the gaseous burner using 70 and 100 ns for the gate width. The results have been similar, which indicates that this effect is not important in our case. The laser sheet is not placed on the centerline of the PMMA slab (or gaseous burner) but at 5 cm from the left edge to reduce the trapping effect.

It is a well-known fact that the LII signal first increases with the laser fluence and then reaches a plateau. The laser fluence is optimum for LII measurements when its value is located at the beginning of the plateau [8]. LII variations as a function of the laser fluence have been observed on the gaseous burner flame for $z = 34$ cm by varying the fluence value with a beam attenuator module (Fig. 4). In this curve, a plateau beginning is obtained at $0.08 \text{ J}/\text{cm}^2$ followed by a low decrease. This value is lower than typical values available in the literature ($0.2 \text{ J}/\text{cm}^2$ at 532 nm [14]). A comparison, presented below, will be made with a fluence of $0.13 \text{ J}/\text{cm}^2$ to see if the $0.08 \text{ J}/\text{cm}^2$ value is ample to bring necessary energy to soot particle even if the laser sheet is absorbed by the flame before reaching the measured point.

The LII signal, S_{LII} , is proportional to soot volume fraction $f\dot{v}_{\text{soot}}$ (ppb) and its temperature dependence follows the Planck law [9] with the equation:

$$S_{LII} = C(E(m), \lambda) \left[\exp\left(\frac{hc}{\lambda k T_p}\right) - 1 \right]^{-1} f\dot{v}_{\text{soot}} \quad (1)$$

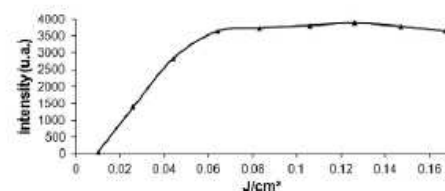


Fig. 4. Fluence curve on the gaseous burner for $z = 34$ cm.

with $C(E(m), \lambda)$ a constant which depends on the wavelength λ and the refractive index function $E(m)$, temperature of soot particle T_p and different constants (light celerity c , Planck constant h and Boltzmann constant k). Considering that the particle temperature and refractive index function are constant, the previous Eq. (1) simplifies itself by:

$$S_{LII} = C_{cal} f_{v,soot} \quad (2)$$

with C_{cal} a calibration constant which it is necessary to determine.

To calibrate the LII signal, an extinction measurement through the flame is made. A fibered laser diode at 1064 nm (Keopsys) coupled with a photodiode with a 1064 nm filter and a focus lens permits to obtain the laser extinction setup for the calibration. The laser beam is parallel to the burner surface (or to the slab in the PMMA case) as shown in Fig. 3. Its position is 36.1 cm in height (z direction) and 0.3 cm from the PMMA slab surface before this one starts burning (i.e. $y = 0.8$ cm), or 1 cm from the gaseous burner surface (in the case of the preliminary study). The ratio between this intensity I transmitted through the flame and the initial laser intensity I_0 allows to know the soot volume fraction $f_{v,soot}$, thanks to the Beer–Lambert law [10]:

$$\frac{I}{I_0} = \exp(-K_{ext}L) = \exp\left(-K_e \frac{f_{v,soot}}{\lambda} L\right) \quad (3)$$

with K_{ext} the extinction coefficient, K_e the dimensionless extinction coefficient fixed equal to 6.4 [18] and L the optical depth. If we assume that averaged properties of the flame are homogeneous along its width (20 cm) at a given height, the temporal average on the optical depth provides the time-average value of the local soot volume fraction which is used for the calibration of the averaged LII fields.

2.3. LII image processing

First of all, various tests have shown that the CDD sensor respond is not homogeneous. As an example, a 20% decrease is obtained on the top of the sensor (Fig. 5). So the camera has been enlightened by a homogeneous source to obtain a reference image that will be used to correct recorded images. To create the homogeneous source, a remote halogen lamp illuminates a tracing paper (of a higher size than the camera field) and which scatters the light. The reference image is shown on Fig. 5. All images have been corrected afterwards by this reference image.

Examples of instantaneous images of LII signal are given in Fig. 6. They allow to see soot particles contained in turbulent structures. But in these images, the flame emission is also recorded. The 410 nm pass band filter reduces the flame emission while the LII signal decreases weakly, but for the PMMA combustion it remains an averaged flame

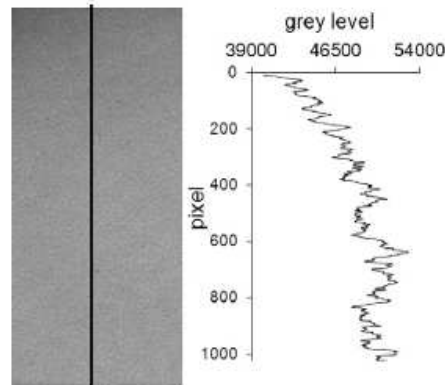


Fig. 5. Reference image for camera sensor correction and an example of camera sensor profile.

emission about 5% which has been eliminated in the time-average LII images with the following method. A series of 400 flame emission images followed by series of 400 images containing both LII signal and flame emission are recorded and then they are used to calculate averaged images as presented in Fig. 6. Four hundred images, which takes 120 s, have been necessary in order to get an accurate average (test made on the flame of the gaseous burner). Fields of LII signal are obtained by the subtraction of the two previous images, an example is shown on the right of Fig. 6.

3. Results and discussion

3.1. LII calibration on gaseous burner

In the present study, propagation and flame movement (due to the surface regression by pyrolysis) prevent from having a reliable value of the calibration coefficient $C_{cal,PMMA}$ in the PMMA flame. The extinction laser beam location is fixed during the experiment. This measurement is therefore made in different flame zones. It is carried out at the beginning and at the end of the experiment in zones with very fluctuating concentrations and little soot particles. With the flame generated by the gaseous burner, it has been possible to determine a more reliable value, $C_{cal,gb}$, by using the same camera and laser conditions [19]. As for the PMMA, the LII fields on the gaseous burner, which allow to obtain the calibration coefficient, are averaged on 120 s, like for the extinction measurement. With 32 different measurements and by using a fluence of 0.08 J/cm², a mean value $C_{cal,gb} = 20.3$ has been obtained, with a standard deviation of 30%. In order to check that this calibration value is usable for the PMMA flame, a calibration coefficient, $C_{cal,PMMA}$, has also been determined during five PMMA experiments

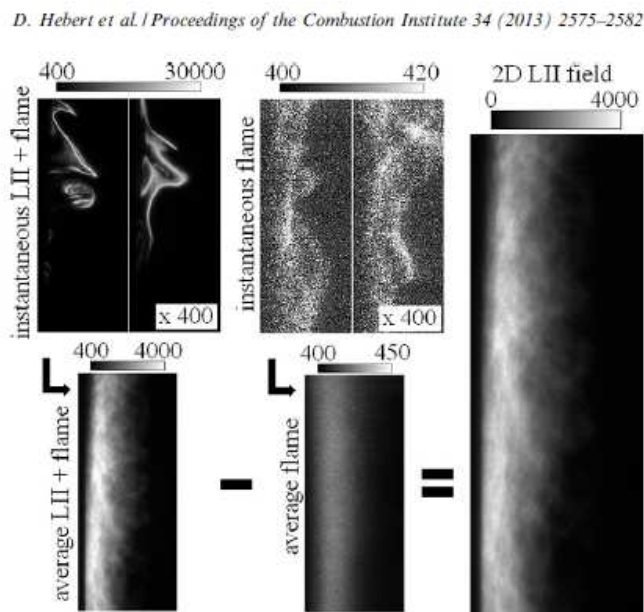


Fig. 6. Image processing for 2D LII field. At the left, example of instantaneous and averaged images obtained for LII signal and flame emissivity on the gaseous burner and subtraction process to obtain averaged 2D LII field.

(called series 1–5 hereafter). Values have been obtained for two different laser fluences, 0.08 J/cm^2 (series 1–3) and 0.13 J/cm^2 (series 4 and 5). When the extinction laser beam is located in the zone of maximum concentration (corresponding to times between 1000 and 1700 s), the results are 25.9 and 25.8 for the fluences 0.08 J/cm^2 and 0.13 J/cm^2 , respectively. The values are very close, so the fluence increase from 0.08 to 0.13 J/cm^2 does not modify the value of the calibration coefficient $C_{\text{cal,PMMA}}$. The comparison between $C_{\text{cal,gb}}$ and $C_{\text{cal,PMMA}}$ shows that they are in close agree-

ment between 1000 and 1700 s, which corresponds to the beginning of the steady state stage of PMMA combustion (see Fig. 7). In conclusion, the $C_{\text{cal,gb}}$ value of 20.32 has been taken to calibrate LII signal and to calculate soot volume fraction.

3.2. Flame spread

Concerning the flame evolution in time, Pizzo et al. [4] have shown, with the mass loss rate evolution in time, that the combustion of a

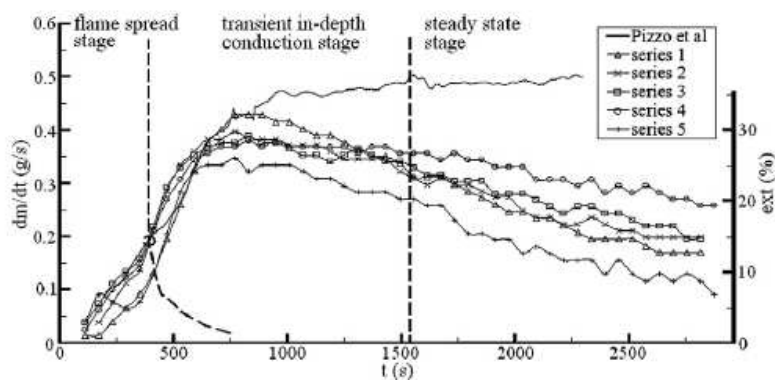


Fig. 7. Comparison between mass loss rate obtained by Pizzo et al. [4] and light extinction in PMMA flame as a function of time.

vertical slab of PMMA follows 3 stages: flame spread, transient in-depth conduction and steady state stages. For the same width of slab (20 cm), the time evolution of extinction coefficient and mass loss rate have been reported in Fig. 7 to see if the extinction coefficient allows to highlight the different spread stages, like shown by Pizzo with the mass loss rate. The time evolution is the same for the two first stages. In the final stage, extinction percentage should be constant (the flame being stationary), but it decreases while the mass loss rate remains constant. This is due to the flame movement in comparison with to the fixed location of the extinction beam, so this last measure is made in areas where there are less and less soot.

Before each experiment as well as at the end, the PMMA slab is weighed to obtain the mass loss rate averaged on the total duration of the experiment (3000 s). A value of 0.42 g/s is obtained and

this value is in agreement with Pizzo's results [4], as shown in Fig. 7.

3.3. Soot volume fraction and burning rate

In Fig. 6, instantaneous fields reveal turbulent structures of LII signal that are isolated, highly intermittent, anisotropic and often thin in the vertical direction. In Fig. 8, each image corresponds to LII fields averaged during 120 s and for one particular experiment (series 2). The small black point reported on each image gives the position of the laser beam used for extinction measurements. Time above fields is taken in the middle of the 120 s recording time. The averaged LII images reported in Fig. 8 present patterns that are more regular than in Fig. 6. The instantaneous streaky structures are completely smeared in the averaging process, but the structure of the reactive boundary layer is highlighted.

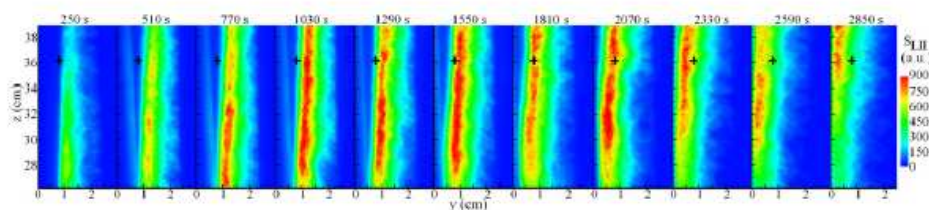


Fig. 8. Averaged 2D LII field (in the plane (y, z)) after subtraction of flame emissivity for series 2. The PMMA slab is on the left. The small black point gives the position of the laser beam used for extinction measurement.

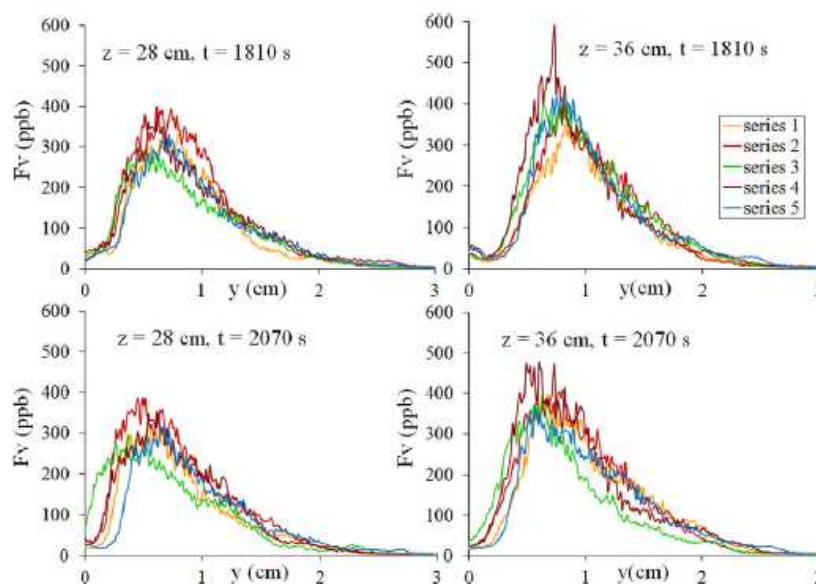


Fig. 9. Soot volume fraction profiles in y direction obtained at 2 times (1810 and 2070 s) and at 2 h (28 and 36 cm).

The field observed by the camera remains at the same location during measurements. The zero position corresponds to the steel frame which is used to hold the PMMA slab, as detailed above in Fig. 2. So during one experiment, the mass loss of the PMMA slab induces that the exposed surface and the flame image are moving in this field (from right to left in Fig. 8). At the end of the experiment ($t = 2850$ s) a part of the flame is hidden by the steel frame. The soot volume fraction f_{soot} (ppb) is simply calculated by multiplying the LII signal with the calibration coefficient $C_{\text{cal,lg}}$, so the averaged soot volume fraction 2D distributions are qualitatively the same as the LII images shown in Fig. 8.

For a more quantitative analysis, soot volume fraction profiles are given in Fig. 9 at two times and at two heights during the steady state stage. The height $z = 36$ cm corresponds to the location of the extinction measurements and is at the top of the studied field (see Fig. 8) and the second height is more located at the bottom ($z = 28$ cm). As explained previously, three different experiments (series 1 to 3) have been carried out in order to look at the reproducibility of the experimental method (with the same laser fluence 0.08 J/cm^2), and results reported in Fig. 9 show that it is quite good. The series 4 and 5 have been obtained with a higher fluence (0.13 J/cm^2). As previously shown in the determination of the calibration coefficient in the PMMA flame, the series 4 and 5 are not different from series 1 to 3. It again indicates that a fluence of 0.08 J/cm^2 is a sufficient value even at the top of the studied field, in spite of the laser sheet absorption by the flame.

From the PMMA slab surface and in the y direction, the soot concentration increases quickly, reaches a maximum and then decreases more slowly. The width of the profile, defined at half height, is about 1 cm, which represents the boundary layer thickness. For each height, the maximum concentration of soot is not different at the two times. This result was expected because measurements have been performed in the steady state stage of the PMMA combustion. However, the maximum value is slightly greater for $z = 36$ cm compared to $z = 28$ cm, suggesting that the flame soot content in the reacting zone increases with the height in this part of the flame. The maximum soot volume fraction is between 250 to 450 ppb which is comparable to values observed in turbulent axisymmetric flames, in a methane and buoyancy-driven flame [14], or in a propane jet flame [12] but which is less than values found in ethylene jet flames [13].

Some comments about signal trapping effects have to be discussed [20]. The LII signals are generated at $x = 5$ cm from the flame edge. Soot particles absorb the LII emission in the x direction (with a 5 cm optical path) resulting in an attenuation of the LII signals. In the present work, an

estimation of this effect is calculated using the measured soot volume fractions and Beer–Lambert law of extinction (see Eq. (3)). For an optical depth equal to 20 cm, the measured maximum extinction coefficient K_{ext} is 1.93 m^{-1} at 1064 nm. Assuming that K_{ext} is inversely proportional to the wavelength, the maximum extinction coefficient at the LII wavelength detection, $\lambda = 410 \text{ nm}$, is equal to 5.0 m^{-1} . So the minimum optical transmission of the LII signal is found to be equal to 78%. That means that the soot volume fractions are underestimated, and the maximum error on the 2D field presented above is about 22%.

From the LII or soot volume fraction profiles, as shown in Fig. 9, it is possible to estimate the local burning rate R (g/s/m^2) of the PMMA surface. As explained before, the images of the flame are moving in the camera field during the experiment. Figure 10 presents, as an example, the LII profiles obtained at different times (at $z = 36$ cm for series 2). In this graph, the profile portions close to the solid surface are zoomed in order to better analyze the movement of the flame, since the variations of the soot concentration are abrupt in this part of the flame. At the beginning of the combustion, for time periods inferior to 770 s, the slope slightly changes. However, later in time the slope of each profile is well defined and the different curves are parallel and can be obtained by translation. If we define the flame position by a specific LII value, it can be determined at each time as shown in Fig. 10 (with $\text{LII}_r = 4000$ a.u.), and the flame displacement rate v (mm/s) can be calculated. The time evolution of v is given also in Fig. 10, and it first increases to a limit equal to $6 \times 10^{-3} \text{ mm/s}$ when the steady state stage is reached. Assuming that the flame follows the regression of the PMMA surface, the burning rate R (g/s/m^2) of the slab is given by $R = v \rho_{\text{PMMA}}$, with ρ_{PMMA} the solid material density. For the 5 series, the averaged value during the steady state

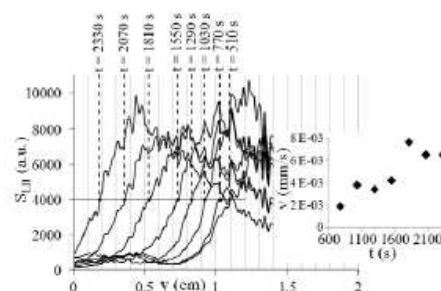


Fig. 10. LII profile (in the y direction) evolution of the series 2 for $z = 36$ cm. Determination of flame displacement rate (v).

stage is found equal to $R = 6.95$ and 5.55 g/s/m^2 at $z = 36$ and 28 cm , respectively (with $\rho_{\text{PMMA}} = 1150 \text{ kg/m}^3$).

Pizzo et al. [4] have determined the burning rate R with another experimental method. They have shown that, along the center line of slabs with widths greater than or equal to 5 cm , the burning rates are identical. They have found R equal to 5.5 g/s/m^2 along the center line and 20 cm above the bottom edge. Another experimental value has also been obtained by Orloff et al. [5] for a PMMA slab, 40 cm in width, 157 cm in height and 4.5 cm thick. This value is equal to 6.69 g/s/m^2 at 22.86 cm above the bottom edge. These two values obtained with different experimental methods are in good agreement with the present results. This shows that our optical method can be used to obtain reliable values of the burning rate R . The main advantage of this method is to provide local values of R .

4. Conclusion

2D soot concentration and burning rate have been determined with Laser-Induced Incandescence in the flame of a PMMA vertical slab (20 cm in width, 40 cm in height). The LII signal has been detected in the direction parallel to the flame width, so the flame luminosity is not negligible and the time-average LII 2D images have to be corrected. The calibration of the LII signals into soot volume fractions has been carried out with light extinction measurements in a methane/ethylene flame produced by a vertical plane burner, then confirmed in the PMMA flame.

The flame grows on the slab after the ignition, and after 1500 s a steady state of combustion appears. The following results have been obtained during this period:

- (i) In the middle of the slab, the soot boundary layer profile varies slowly in the vertical direction. In the perpendicular direction, it increases strongly near the solid surface to reach a maximum at about $0.5\text{--}1 \text{ cm}$. Then it decreases slowly.
- (ii) The maximum values of soot volume fraction are in the range $250\text{--}450 \text{ ppb}$, which is comparable to values observed in turbulent axisymmetric flames for methane and propane.
- (iii) It has been possible to determine the burning rate of the PMMA slab from the observation of the displacement of the soot profiles in the field of view of the camera. The values are 5.55 and 6.95 g/s/m^2 at two

heights in the middle of the slab, and they are in agreement with other results obtained with different experimental methods.

The present study shows that LII measurements are useful to analyze soot produced by the combustion of solids and that the experimental setup can be used to provide new data useful for the validation of soot production and radiation models in the case of wall fires.

Acknowledgement

This work was supported by MRT network (GRR SER) of the Haute-Normandie Region.

References

- [1] A.C. Fernandez-Pello, T. Hirano, *Combust. Sci. Technol.* 32 (1983) 1–31.
- [2] A. Tewarson, S.D. Ogden, *Combust. Flame* 89 (1992) 237–259.
- [3] J.L. Consalvi, Y. Pizzo, B. Porterie, J.L. Torero, *Fire Saf. J.* 42 (2007) 384–392.
- [4] Y. Pizzo, J.L. Consalvi, P. Querre, et al., *Combust. Flame* 152 (2008) 451–460.
- [5] L. Orloff, J. De Ris, G.H. Markstein, *Proc. Combust. Inst.* 15 (1974) 183–192.
- [6] R.L. Vander Wal, *Appl. Opt.* 35 (1996) 6548–6559.
- [7] C. Schoemaeker-Moreau, E. Therssen, X. Mercier, J.F. Pauwels, P. Desgroux, *Appl. Phys. B* 78 (2004) 485–492.
- [8] R.L. Vander Wal, K.A. Jensen, *Appl. Opt.* 37 (1998) 1607–1616.
- [9] J. Delhay, Y. Bouvier, E. Therssen, J. Black, P. Desgroux, *Appl. Phys. B* 81 (2005) 181–186.
- [10] M. Hofmann, W.G. Bessler, C. Schulz, H. Jander, *Appl. Opt.* 42 (2003) 2052–2062.
- [11] C. Schulz, B.F. Kock, M. Hofmann, et al., *Appl. Phys. B* 83 (2006) 333–354.
- [12] N.H. Qamar, G.J. Nathan, Z.T. Alwahabi, K.D. King, *Proc. Combust. Inst.* 30 (2005) 1493–1500.
- [13] S.Y. Lee, S.R. Turns, R.J. Santoro, *Combust. Flame* 156 (2009) 2264–2275.
- [14] Y. Xin, J.P. Gore, *Proc. Combust. Inst.* 30 (2005) 719–726.
- [15] J.L. Consalvi, Y. Pizzo, B. Porterie, *Fire Saf. J.* 43 (2008) 351–362.
- [16] S.M. Dakka, G.S. Jackson, J. L. Torero, *Proc. Combust. Inst.* 29 (2002) 281–287.
- [17] G. Bertin, J. Most, M. Coutin, *Fire Saf. J.* 37 (2002) 615–630.
- [18] T. Williams, C. Shaddix, K. Jensen, J. Suo-Anttila, *J. Heat Mass Transfer* 50 (2007) 1616–1630.
- [19] J. Delhay, P. Desgroux, E. Therssen, et al., *Appl. Phys. B* 95 (2009) 825–838.
- [20] C.R. Shaddix, K.C. Smyth, *Combust. Flame* 107 (1996) 418–452.

Bibliographie

- [1] N. Ren, Y. Wang, and A. Trouvé. Large eddy simulation of vertical turbulent wall fires. *Procedia engineering*, 2012.
- [2] J. G. Quintiere. *Fundamentals of fire phenomena*. John Wiley & Sons, 2006.
- [3] J. Luche, T. Rogaume, F. Richard, and E. Guillaume. Characterization of thermal properties and analysis of combustion behavior of pmma in a cone calorimeter. *Fire Safety Journal*, 46 :451–461, 2011.
- [4] S. M. Dakka, G. S. Jackson, and J. L. Torero. Mechanisms controlling the degradation of poly(methyl methacrylate) prior to piloted ignition. *Proceedings of the Combustion Institute*, 29 :281–287, 2002.
- [5] R. T. Long, J. L. Torero, J. G. Quintiere, and A. C. Fernandez-Pello. Scale and transport considerations on piloted ignition of pmma. *International Symposium on Fire Safety Science, IAFSS*, 6 :567–578, 1999.
- [6] Y. Pizzo. *Caractérisation de la flamme de diffusion établie le long d’un combustible solide en convection naturelle par le nombre de transfert de masse*. PhD thesis, Université de Provence, 2007.
- [7] F. A. Williams. Mechanisms of fire spread. *Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute*, 16 :1281–1294, 1976.
- [8] A. C. Fernandez-Pello and T. Hirano. Controlling mechanisms of flame spread. *Combustion Science and Technology*, 32 :1–31, 1983.

- [9] J. G. Quintiere. The application of flame spread theory to predict material performance. *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 93 :61–70, 1988.
- [10] E. G. Brehob, C. I. Kim, and A. K. Kulkarni. Numerical model of upward flame spread on practical wall materials. *Fire Safety Journal*, 36 :225–240, 2001.
- [11] M. Modest. *Radiatif heat transfer*. Academic Press Inc, 2003.
- [12] T. Ahmad and G. M . Faeth. Turbulent wall fires. *Proceedings of the Combustion Institute*, 17 :1149–1160, 1979.
- [13] P. Joulain. Convective and radiative transport in pool and wall fires : 20 years of research in poitiers. *Fire Safety Journal*, 26 :99–149, 1996.
- [14] C. Qian. *Turbulent flame spread on vertical corner walls*. PhD thesis, Université du Kentucky, 1995.
- [15] Y. Pizzo, J. L. Consalvi, P. Querre, M. Coutin, L. Audouin, B. Porterie, and J. L. Torero. Experimental observations on the steady-state burning rate of a vertically oriented pmma slab. *Combustion and Flame*, 152 :451–460, 2008.
- [16] J. L. Consalvi, Y. Pizzo, and B. Porterie. Numerical analysis of the heating process in upward flame spread over thick pmma slabs. *Fire Safety Journal*, 43 :351–362, 2008.
- [17] F. X. Ouf. *Caractérisation des aerosols émis lors d'un incendie*. PhD thesis, Université de Rouen, 2006.
- [18] P. J. Pagni and T. M. Shih. Excess pyrolyzate. *Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute*, 16 :1329–1343, 1977.
- [19] R. N. Walters, S. M. Hackett, and R. E. Lyon. Heats of combustion of high temperature polymers. *Fire and Materials*, 24 :245–252, 2000.
- [20] W. D. Woolley and P. J. Fardell. Basic aspects of combustion toxicology. *Fire Safety Journal*, 5 :29–48, 1982.
- [21] H. Arisawa and T. B. Brill. Kinetics and mechanisms of flash pyrolysis of poly(methyl methacrylate) (pmma). *Combustion and Flame*, 109 :415–426, 1997.

- [22] C. Lautenberger and C. Fernandez-Pello. Generalized pyrolysis model for combustible solids. *Fire Safety Journal*, 44 :819–839, 2009.
- [23] T. Kashiwagi and T. J. Ohlemiller. A study of oxygen effects on nonflaming transient gasification of pmma and pe during thermal irradiation. *Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute*, 19 :815–823, 1982.
- [24] T. H. Tsai, M. J. Li, I. Y. Shih, R. Jih, and S. C. Wong. Experimental and numerical study of autoignition and pilot ignition of pmma plates in a cone calorimeter. *Combustion and Flame*, 124 :466–480, 2001.
- [25] F. Jiang, J.L. de Ris, H. Qi, and M.M. Khan. Radiation blockage in small scale pmma combustion. *Proceedings of the Combustion Institute*, 33 :2657–2664, 2011.
- [26] N. Bal and G. Rein. Numerical investigation of the ignition delay time of a translucent solid at high radiant heat fluxes. *Combustion and Flame*, 158 :1109–1116, 2011.
- [27] Y. Nakamura, T. Kashiwagi, S. L. Olson, K. Nishizawa, O. Fujita, and K. Ito. Two-sided ignition of a thin pmma sheet in microgravity. *Proceeding of the Combustion Institute*, 30 :2319–2325, 2005.
- [28] S. McAllister, C. Fernandez-Pello, D. Urban, and G. Ruff. Piloted ignition delay of pmma in space exploration atmospheres. *Proceeding of the Combustion Institute*, 32 :2453–2459, 2009.
- [29] H. Bedir and J. S. Tien. A computational study of flame radiation in pmma diffusion flames including fuel vapor participation. *Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute*, 27 :2821–2828, 1998.
- [30] A. Ishihara, Y. Sakai, K. Konishi, and E. Andoh. Correlation between burning surface temperature and regression rate for polymethylmethacrylate. *Proceeding of the Combustion Institute*, 30 :2123–2130, 2005.
- [31] A. Laachachi, M. Cochez, E. Leroy, M. Ferriol, and J. M. Lopez-Cuesta. Fire retardant systems in poly(methyl methacrylate) : Interactions between metal oxide nanoparticles and phosphinates. *Polymer Degradation and Stability*, 92 :61–69, 2007.

- [32] A. Laachachi, M. Ferriol, M. Cochez, J. M. Lopez Cuesta, and D. Ruch. A comparison of the role of boehmite (al₂o₃) and alumina (al₂o₃) in the thermal stability and flammability of poly(methyl methacrylate). *Polymer Degradation and Stability*, 94 :1373–1378, 2009.
- [33] A. M. Kanury. Modeling of pool fires with a variety of polymers. *Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute*, 15 :193–202, 1974.
- [34] S. L. Olson and J. S. Tien. Buoyant low-stretch diffusion flames beneath cylindrical pmma samples. *Combustion and Flame*, 121 :439–452, 2000.
- [35] B. J. McCaffrey and M. Harkleroad. Combustion efficiency, radiation, co and soot yield from a variety of gaseous, liquid, and solid fueled buoyant diffusion flames. *Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute*, 22 :1251–1261, 1988.
- [36] F. Jiang, J. L. de Ris, and M. M. Khan. Absorption of thermal energy in pmma by in-depth radiation. *Fire Safety Journal*, 44 :106–112, 2009.
- [37] L. Orloff, J. de Ris, and G. H. Markstein. Upward turbulent fire spread and burning of fuel surface. *Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute*, 15 :183–192, 1974.
- [38] L. Orloff, A. T. Modak, and R. L. Alpert. Burning of large-scale vertical surfaces. *Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute*, 16 :1345–1354, 1976.
- [39] M. B. Ayani, J. A. Esfahani, and R. Mehrabian. Downward flame spread over pmma sheets in quiescent air : experimental and theoretical studies. *Fire Safety Journal*, 41 :164–169, 2006.
- [40] A. K. Kulkarni and C. I. Kim. Heat loss to the interior of a free burning vertical wall and its influence on estimation of effective heat of gasification. *Combustion Science and Technology*, 73 :493–504, 1990.
- [41] K. M. Tu and J. G. Quintiere. Wall flame heights with external radiation. *Fire Technology*, pages 195–203, 1991.

- [42] A. Tewarson and S. D. Ogden. Fire behavior of polymethylmethacrylate. *Combustion and Flame*, 89 :237–259, 1992.
- [43] M. A. Delichatsios, M. Delichatsios, Y. Chen, and Y. Hasemi. Similarity solutions and applications to turbulent upward flame spread on noncharring materials. *Combustion and Flame*, 102 :357–370, 1995.
- [44] R. Ananth, C. C. Ndubizub, and P. A. Tatem. Burning rate distributions for boundary layer flow combustion of a pmma plate in forced flow. *Combustion and Flame*, 135 :35–55, 2003.
- [45] J.L. Consalvi, Y. Pizzo, B. Porterie, and J.L. Torero. On the flame height definition for upward flame spread. *Fire Safety Journal*, 42 :384–392, 2007.
- [46] H. Y. Wang, M. Coutin, and J. M. Most. Large-eddy-simulation of buoyancy-driven fire propagation behind a pyrolysis zone along a vertical wall. *Fire Safety Journal*, 37 :259–285, 2002.
- [47] Y. Pizzo, J. L. Consalvi, P. Querre, M. Coutin, and B. Porterie. Width effects on the early stage of upward flame spread over pmma slabs : Experimental observations. *Fire Safety Journal*, 44 :407–414, 2009.
- [48] P. Van-Hulle. *Caractérisation des aerosols émis par la combustion des hydrocarbures : application à la mesure de l'indice de réfraction des suies*. PhD thesis, Université de Rouen, 2002.
- [49] C. Schoemaeker-Moreau. *Diagnostics laser dans une flamme de diffusion : imagerie quantitative de nanoparticules de suies et d'espèces majoritaires et minoritaires*. PhD thesis, Université de Lille, 2002.
- [50] B. S. Haynes and H. G. G. Wagner. Soot formation. *Prog. Energy Combustion Science*, 7 :229–273, 1981.
- [51] R. Julien and R. Botet. *Aggregation and fractal aggregates*. World Scientific, 1987.
- [52] J. Goo. Development of the size distribution of smoke particles in a compartment fire. *Fire Safety Journal*, 47 :46–53, 2012.

- [53] S. C. P. Cheung, R. K. K. Yuen, G. H. Yeoh, and G. W. Y. Cheng. Contribution of soot particles on global radiative heat transfer in a two-compartment fire. *Fire Safety Journal*, 39 :412–428, 2004.
- [54] J. B. Moss and C. D. Stewart. Flamelet-based smoke properties for the field modelling of fires. *Fire Safety Journal*, 30 :229–250, 1998.
- [55] Y. L. Xu. Electromagnetic scattering by an aggregate of spheres. *Applied Optics*, 34 :4573–4588, 1995.
- [56] A. R. Jones. Light scattering for particle characterization. *Progress in Energy and Combustion Science*, 25 :1–53, 1999.
- [57] C. M. Sorensen. Light scattering by fractal aggregates : a review. *Aerosol Science and Technology*, 35 :648–687, 2001.
- [58] J. Yon, R. Lemaire, E. Therssen, P. Desgroux, A. Coppalle, and K. F. Ren. Examination of wavelength dependent soot optical properties of diesel and diesel/rapeseed methyl ester mixture by extinction spectra analysis and lii measurements. *Applied Physics B*, 104 :253–271, 2011.
- [59] D. Joyeux. *Etudes expérimentales et numériques de la production des suies dans des flammes de diffusion turbulentes*. PhD thesis, Université de Rouen, 1993.
- [60] F. X. Ouf, J. Vendel, A. Coppalle, M. Weill, and J. Yon. Characterization of soot particules in the plumes of over-ventilated diffusion flames. *Combustion Science and Technology*, 180 :674–698, 2008.
- [61] R. W. Weeks and W. W. Duley. Aerosol-particle sizes from light emission during excitation by tea co2 laser pulses. *Journal of Applied Physics*, 45 :4661–4662, 1974.
- [62] A. C. Eckbreth. Effects of laser-modulated particulate incandescence on raman scattering diagnostics. *Journal of Applied Physics*, 48(11) :4473–4479, November 1977.
- [63] L. A. Melton. Soot diagnostics based on laser heating. *Applied Optics*, 23 :2201–2208, 1984.

- [64] C. J. Dasch. Continuous-wave probe laser investigation of laser vaporization of small soot particles in a flame. *Applied Optics*, 23(13) :2209–2215, July 1984.
- [65] R. L. VanderWal. Laser-induced incandescence : detection issues. *Applied Optics*, 35 :6548–6559, 1996.
- [66] C. Schoemaeker-Moreau, E. Therssen, X. Mercier, J. F. Pauwels, and P. Desgroux. Two-color laser-induced incandescence and cavity ring-down spectroscopy for sensitive and quantitative imaging of soot and pahs in flames. *Applied Physics B*, 78 :485–492, 2004.
- [67] J. Delhay, Y. Bouvier, E. Therssen, J. D. Black, and P. Desgroux. 2d imaging of laser wing effects and of soot sublimation in laser-induced incandescence measurements. *Applied Physics B*, 81 :181–186, 2005.
- [68] N. H. Qamar, G. J. Nathan, Z. T. Alwahabi, and K. D. King. The effect of global mixing on soot volume fraction : measurements in simple jet, precessing jet, and bluff body flames. *Proceedings of the Combustion Institute*, 30 :1493–1500, 2005.
- [69] Y. Xin and J. P. Gore. Two-dimensional soot distributions in buoyant turbulent fires. *Proceedings of the Combustion Institute*, 30 :719–726, 2005.
- [70] S. Y. Lee, S. R. Turns, and R. J. Santoro. Measurements of soot, oh, and pah concentrations in turbulent ethylene/air jet flames. *Combustion and Flame*, 156 :2264–2275, 2009.
- [71] M. Hofmann, W. G. Bessler, C. Schulz, and H. Jander. Laser-induced incandescence for soot diagnostics at high pressures. *Applied Optics*, 42(12) :2052–2062, 2003.
- [72] R. Lemaire. *Etude de l'impact de la combustion de différents types de carburants sur les caractéristiques physico-chimiques des particules de suie par couplage de l'Incandescence et de la Fluorescence Induite par Laser*. PhD thesis, Université de Lille, 2008.
- [73] M. Coutin. *Etude expérimentale et théorique de l'influence de l'entraînement naturel de l'air sur le comportement d'une flamme représentative d'un incendie*. PhD thesis, Université de Poitiers, 2000.

- [74] L. Audouin, G. Kolb, J. L. Torero, and J. M. Most. Average centreline temperatures of a buoyant pool fire obtained by image processing of video recordings. *Fire Safety Journal*, 24 :167–187, 1995.
- [75] G. Bertin, J. M. Most, and M. Coutin. Wall fire behavior in an under-ventilated room. *Fire Safety Journal*, 37 :615–630, 2002.
- [76] B. J. McCaffrey. Purely buoyant diffusion flames : some experimental results. *NBSIR 79-1910*, 1979.
- [77] M. Maugendre. *Etude des particules de suie dans les flammes de kerosene et de diester*. PhD thesis, INSA de Rouen, 2009.
- [78] K. Ren, F. Xu, X. Cai, and J. M. Dorey. Development of a precise and in situ turbidity measurement system. *Chemical Engineering Communications*, 197 :250–259, 2010.
- [79] B. Hu, B. Yang, and U. O. Koylu. Soot measurements at the axis of an ethylene/air nonpremixed turbulent jet flame. *Combustion and Flame*, 134 :93–106, 2003.
- [80] U. O. Koylu, G. M. Faeth, T. L. Farias, and M. G. Carvalho. Fractal and projected structure properties of soot aggregates. *Combustion and Flame*, 100 :621–633, 1995.
- [81] C. M. Sorensen and G. D. Feke. The morphology of macroscopic soot. *Aerosol Science and Technology*, 25 :328–337, 1996.
- [82] C. R. Shaddix and K. C. Smyth. Laser-induced incandescence measurements of soot production in steady and flickering methane, propane, and ethylene diffusion flames. *Combustion and Flame*, 107 :418–452, 1996.
- [83] R. L. VanderWal and K. A. Jensen. Laser-induced incandescence : excitation intensity. *Applied Optics*, 37 :1607–1616, 1998.
- [84] H. Geitlinger, T. H. Streibel, R. Suntz, and H. Bockhorn. Two-dimensional imaging of soot volume fractions, particle number densities, and particle radii in laminar and turbulent diffusion flames. *Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute*, 27 :1613–1621, 1998.

- [85] T. Ni, J. A. Pinson, S. Gupta, and R. J. Santoro. Two-dimensional imaging of soot volume fraction by the use of laser-induced incandescence. *Applied Optics*, 34 :7083–7091, 1995.
- [86] K. C. Oh and H. D. Shin. The effect of oxygen and carbon dioxide concentration on soot formation in non-premixed flames. *Fuel*, 85 :615–624, 2006.
- [87] J. Delhay, P. Desgroux, E. Therssen, H. Bladh, P. E. Bengtsson, H. Hönen, J. D. Black, and I. Vallet. Soot volume fraction measurements in aero-engine exhausts using extinction-calibrated backward laser-induced incandescence. *Applied Physics B*, 95 :825–838, 2009.
- [88] T. C. Williams, C. R. Shaddix, K. A. Jensen, and J. M. Suo-Anttila. Measurement of the dimensionless extinction coefficient of soot within laminar diffusion flames. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 50 :1616–1630, 2007.
- [89] D. Hebert, A. Coppalle, and M. Talbaut. 2d soot concentration and burning rate of a vertical pmma slab using laser-induced incandescence. *Proceeding of the Combustion Institute*, 34 :2575–2582, 2013.
- [90] K. O. Lee, C. M. Megaridis, S. Zelepouga, A. V. Saleviev, O. Charon, and F. Ammouri. Soot formation effects of oxygen concentration in the oxidizer stream of laminar coannular nonpremixed methane/air flames. *Combustion and Flame*, 121 :323–333, 2000.
- [91] H. X. Zhang, C. M. Soremen, E. R. Ramer, B. J. Olivier, and J. F. Merklin. In situ optical structure factor measurements of an aggregating soot aerosol. *Langmuir*, 4 :867–871, 1988.
- [92] S. S. Krishnan, K. C. Lin, and G. M. Faeth. Optical properties in the visible of overfire soot in large buoyant turbulent diffusion flames. *Journal of Heat Transfer*, 122 :517–524, 2000.
- [93] J. Cai, N. Lu, and C. M. Sorensen. Comparison of size and morphology of soot aggregates as determined by light scattering and electron microscope analysis. *Langmuir*, 9 :2861–2867, 1993.

-
- [94] U. O. Koylu, Y. Xing, and D. E. Rosner. Fractal morphology analysis of combustion-generated aggregates using angular light scattering and electron microscope images. *Langmuir*, 11 :4848–4854, 1995.
- [95] C. M. Megaridis and R. A. Dobbins. Morphological description of flame-generated materials. *Combustion Science and Technology*, 71 :95–109, 1990.
- [96] F. X. Ouf, J. Yon, P. Ausset, A. Coppalle, and M. Maillé. Influence of sampling and storage protocol on fractal morphology of soot studied by transmission electron microscopy. *Aerosol Science and Technology*, 44 :1005–1017, 2010.
- [97] G. W. Mulholland and M. Y. Choi. Measurement of the mass specific extinction coefficient for acetylene and ethene smoke using the large agglomerate optics facility. *Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute*, 27 :1515–1522, 1998.
- [98] G. W. Mulholland and C. Croarkin. Specific extinction coefficient of flame generated smoke. *Fire and Materials*, 24 :227–230, 2000.
- [99] J. S. Newman and J. Steciak. Characterization of particulates from diffusion flames. *Combustion and Flame*, 67 :55–64, 1987.
- [100] M. Schnaiter, H. Horvath, O. Mohler, K. H. Naumann, H. Saathoff, and O. W. Schock. Uv-vis-nir spectral optical properties of soot and soot-containing aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 34 :1421–1444, 2003.
- [101] M. Y. Choi, G. W. Mulholland, A. Hamins, and T. Kashiwagi. Comparisons of the soot volume fraction using gravimetric and light extinction techniques. *Combustion and Flame*, 102 :161–169, 1995.