HAL
open science

Etude numérique de l'auto-inflammation des solides par simulation numérique directe : application au polyméthacrylate de méthyle

Simon Roblin

To cite this version:

Simon Roblin. Etude numérique de l'auto-inflammation des solides par simulation numérique directe : application au polyméthacrylate de méthyle. Autre. ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechique - Poitiers, 2016. Français. NNT : 2016ESMA0023 . tel-01456880

HAL Id: tel-01456880

https://theses.hal.science/tel-01456880v1

Submitted on 6 Feb 2017

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.

THÈSE

Pour l'obtention du Grade de

DOCTEUR DE L'ÉCOLE NATIONALE SUPÉRIEURE DE MÉCANIQUE ET D'AÉROTECHNIQUE

(Diplôme National – Arrêté du 25 mai 2016)

Ecole Doctorale :
Sciences et Ingénierie en Matériaux, Mécanique, Energétique et Aéronautique

Secteur de Recherche : Fluides, Thermique, Combustion

Présentée par :

Simon ROBLIN

****

Étude numérique de l'auto-inflammation des solides par Simulation Numérique Directe : application au Polyméthacrylate de méthyle.

****

Directeur de thèse : Pr. Thomas Rogaume
Co-encadrant : Dr. Franck Richard

****

Soutenue le vendredi 16 décembre 2016

devant la Commission d'Examen

- JURY -

Rapporteurs	Pr. José Luis Torero	Professeur – Université du Queensland (Australie)
	Pr. Bernard Porterie	Professeur, IUSTI – Aix-Marseille Université (France)
Examinateurs	Pr. Arnaud Trouvé	Professeur – Université du Maryland (Etats Unis d'Amérique)
	Pr. Bart Merci	Professeur – Université de Gand (Belgique)
	Pr. Franck Richard	Maître de conférences – Université de Poitiers (France)
	Pr. Thomas Rogaume	Professeur – Institut Pprime – Université de Poitiers
	Dr. Catherine Sztal-Kutas	Directrice – Calyxis, Pôle d'Expertise du Risque (France)

Remerciements

Ces trois années ont été rythmées par un grand nombre de rencontres qui m'ont beaucoup apporté tant sur le plan professionnel que sur le plan humain. N'ayant pas le talent de Prévert pour dresser des listes, je vais tant bien que mal essayer de mettre en avant ces échanges dans des remerciements à mon image !

Pour commencer, je me dois de remercier les instances qui ont rendu possible ces trois années : Calyxis, moteur du projet ; l'Institut Pprime, support de ma recherche (sous la tutelle tripartite de de l'Université de Poitiers, du CNRS et de l'ENSMA,) ; l'IRIAF, pour sa formation et son support matériel important (notamment au travers de la plateforme Hestia) ; l'ANRT, ayant permis le soutien de la CIFRE ; le programme gouvernemental français « Investissements d'Avenir » , ayant financé mon séjour à l'Université du Maryland (LABEX INTERACTIFS, référence ANR-11-LABX-0017-01) ; le Mésocentre de calcul du Poitou-Charentes, ayant fourni les ressources de calcul nécessaires à mes simulations.

Il me revient également de remercier chaleureusement les membres du Jury pour l'évaluation de mes travaux et leur présence gratifiante. L'effort du déplacement (dont j'essaierai tout de même de rattraper le bilan carbone !) témoigne de l'intérêt porté à mes travaux par ces experts incontestés. Aussi, les discussions abordées à l'issue de ma présentation furent riches et m'ont permis de compléter ce document pour le livrer à la communauté des Sciences de l'Incendie. Je tiens à saluer particulièrement José Torero et Bernard Porterie pour leur travail en tant que rapporteurs. J'ajouterais deux mentions spéciales : l'une pour Bart Merci, pour lequel il est perturbant de trouver les mots justes sans me répéter, et l'autre pour Arnaud Trouvé, merci pour ce moment formateur au sein de l'Université du Maryland. Cette expérience, riche d'enseignements, marqua un tournant décisif dans l'évolution de mon travail.

Catherine, en ta qualité de directrice de Calyxis, je me devais de te consacrer un paragraphe à part dans ces remerciements. Nous nous connaissons depuis plusieurs années maintenant et tu as été à l'origine de ce projet. M'accorder ta confiance pour trois années supplémentaires au sein de l'association m'a été particulièrement plaisant. Aussi, ta présence dans mon jury a permis de correspondre au nouveau critère de parité (certes partielle…) de l'Ecole Doctorale !
Je profite de ce paragraphe dédié à ma structure de rattachement, qui m'a vu évoluer et a participé pleinement à l'aboutissement du travail, pour faire un clin d'œil à toute son équipe : merci pour votre soutien et votre enthousiasme ! Mentions spéciales à Chantal et Emeline pour les innombrables services, et à Audrey A. et Anthony pour votre soutien moral sans failles et votre intérêt constant pour mes travaux.

Je poursuivrai ici par les deux derniers membres du jury, pas encore cités, en l'occurrence mes encadrants : Thomas et Franck. Que dire à l'heure où tellement de choses me viennent à l'esprit ? Dès le départ vous avez su m'orienter sur des problématiques dont je me sentais à 1 000 lieues et qui se sont avérées utiles en fin de thèse. Toujours présents, encourageants et positifs même dans les moments de doute. Brillants, humbles, accessibles : simplement humains... Ma petite expérience dans ce milieu me fait dire que ces qualités s'accordent aux grands chercheurs et aux très bons enseignants. La confiance et la liberté que vous m'avez accordées ont grandement contribuées à mon épanouissement dans le travail et je ne peux que saluer vos compétences

managériales sur ce point. D'un point de vue professionnel et personnel, les amis, je n'ai rien de plus à vous adresser qu'un grand merci !

Comme je viens de le mentionner, la liberté de travail accordée par Calyxis et mon encadrement pédagogique m'a permis de mener à bien des projets annexes en lien direct avec mon parcours. Je tiens donc maintenant à saluer les partenaires de ces projets qui s'avèrent essentiellement être des opérationnels du feu. La recherche en sécurité incendie doit en effet profiter à ses intervenants directs : les sapeurs-pompiers. Marc, Frédéric, Mathieu, Olivier, les collaborations à vos côtés sont toujours un plaisir et j'espère que nos projets à venir aboutiront aux changements que nous espérons.

Par ailleurs, je souhaite ici remercier Thierry, Wilfrid, Yoann et l'ensemble du personnel du Centre de Secours de Vailly sur Sauldre, SDIS du Cher. J'ai grandi à vos côtés depuis mes 13 ans et ce travail vous appartient pour partie.

D'un point de vue plus personnel et au-delà des institutions comme le laboratoire, l'IRIAF et l'ENSMA, je souhaite désormais mentionner des personnes m'ayant apporté leur support au cours de ces trois ans… ce qui risque d'être long !
Tout d'abord, je tiens à saluer l'ensemble des personnels administratifs et techniques : Audrey, Bénédicte, Hélène, Jacques B., Jacques T., Jocelyne, les Karine(s), Marc, Marie-Cannelle, Patricia, Sovan et Vincent… Votre sympathie, vos petites attentions de tous les jours, votre franchise et vos compétences respectives sont indispensables au bon fonctionnement de l'enseignement et de la recherche en France à l'heure actuelle. Tout cela a facilité mon activité et est venu agrémenter mes journées ! Aussi, pour ceux dont le départ de leur structure de rattachement est proche, bonne retraite !

Côté enseignement, je ne peux passer à côté de Florent ! Merci à toi pour ta rigueur et pour m'avoir interpellé dans un couloir à la fin de mon Master : « il faut qu'on parle, j'ai quelque chose à te proposer ». Ce quelque chose, vous en avez le résultat entre les mains et vous vous apprêtez à le lire !
Jocelyn, tu as toujours été là également, avec une réponse à la moindre question chimiquement tournée ! Merci !

Que seraient ces trois ans sans la vie au bureau, au quotidien successivement aux côtés de Talal au tout début, de Benjamin, d'Etienne, de Yen, de Fabien, de Pierre, de Quang, de Tien puis, plus récemment avec la présence de Julien, de Minh et de Xiaowen. Pleine réussite dans les projets en cours ! Pendant ces trois ans, j'ai aussi évolué au sein de l'Université du Maryland. Thus I would like to adress a special thanks to my colleagues in the US (or in Germany now): Sébastien, Vivien, David, Bertrand, Maria, Cong, Pie, Salman, Marylou, Sharonn ! See you soon at the Looney's !

Parmi ces personnes, et avant de remercier ma famille proche, je veux adresser une mention spéciale à ceux qui ont été bien plus que des collègues au cours de ma thèse.

Cher Fabien, en réponse à tes remerciements, je suis devenumoimême.com en finissant ce document ! Je ne te connais ni rond, ni carré mais… chercheur avant tout ! Blague à part, merci pour ton soutien et celui de ta famille ! Place aux projets futurs !
Cher Benji, merci pour tes conseils avisés, ta bonne humeur, ta tarte au citron ! Je suis content d'avoir pu suivre de près bon nombre d'étapes professionnelles importantes pour toi et je suis sûr que ta carrière sera fructueuse !

Dès le début de ma thèse, j'espérais pouvoir vous égaler en assistant à vos soutenances respectives, j'espère avoir été un digne successeur ! Merci à vous deux les amis pour votre aide et votre soutien de chaque instant.
Cher Pierre, merci à toi aussi pour toutes ces discussions toujours intéressantes, en espérant que ces travaux puissent t'être utiles pour la suite de ta thèse ! Tu es le prochain sur la liste et je suis sûr que tu nous suivras avec brio… Bon courage !
Cher Quang, merci pour tous ces conseils sous FDS et pour ta bonne humeur. Ton aide m'a été très précieuse ! Quang, cảm ơn anh rất nhiều vì tất cả những lời khuyên về FDS cũng như sự nhiệt tình của anh. Sự giúp đỡ của anh thật sự rất quý giá đối với em !

Chaire CAPA, cher cheur, chair à saucisse, chair à canon, Cher la chanteuse, Cher département (18), Sher azade… mais je divague : vague !

Camille, merci à toi de m'avoir soutenu malgré les moments parfois difficiles. Tu m'as suivi dans mes projets, à moi de te suivre davantage dans les tiens à présent !

Pour finir, quelques lignes pour mes parents, Nadine et Claude. Vous m'avez toujours encouragé et donné les moyens de réussir au-delà des difficultés. Je vous en serai toujours reconnaissant et je profite de cette petite tribune pour vous remercier du fond du cœur.

Sim'

Avant-propos

En marge du travail de recherche mené au cours de ces trois années, cette partie vise à exposer le cadre général dans lequel ce projet a pu éclore.

Du constat que les propagations d'incendies en zone urbaine sont encore d'actualité, nous verrons comment les feux de compartiments peuvent se développer et mener à des propagations entre locaux à plus grande échelle. Malgré une compréhension aujourd'hui accrue de ces types de feux, nous remarquerons qu'il est aujourd'hui complexe de concevoir des modèles détaillés de propagation à l'échelle urbaine tant le bâti et son ameublement sont hétérogènes. Par ailleurs, cette partie permettra de dresser un constat des approches actuelles et des besoins en termes de prévention et de protection.

SOMMAIRE DE L'AVANT-PROPOS

I.1 - Particularités des feux de compartiments VIII
I.1.1 - Des feux toujours d'actualité VIII
I.1.2 - Phénoménologie, caractéristiques de l'incendie d'habitation IX
I.2 - Un développement conditionné au conditions initiales et ambiantes X
I.2.1 - Hétérogénéité du bâti X
I.2.2 - Hétérogénéité du mobilier XIII
I.2.3 - Hétérogénéités des scenarios XIV
I.3 - Besoins scientifiques inhérents aux modèles existants XIV
I.3.1 - Besoins et réponse actuelle XIV
I.3.2 - Réponse alternative et complémentaire XIV
I.4 - Conclusion XV

I.1 - Particularités des feux de compartiments

I.1.1 - Des feux toujours d'actualité

De tous temps, la problématique des incendies urbains fut récurrente et de grands feux sont encore aujourd'hui à déplorer. La ville de Bourges, témoin d'un grand incendie l'ayant ravagée au XVème siècle (l'incendie de la Madeleine), a connu en 2015 un incendie majeur entraînant une propagation entre locaux et à l'origine d'une perte économique plusieurs pour entreprises locales (deux restaurants, une confiserie, un cabinet d'avocats, une boutique de chaussures) (Figure 1). Au-delà de ces aspects économiques, des logements ont également été touchés mais aucune victime ne fut à déplorer.

Figure 1 : Incendie à Bourges, avril 2015 (photos : le Berry Républicain)

Pourtant, ce type de situation de propagation d'un ensemble à un autre était déjà au cœur des préoccupations des Berruyers au XVème siècle, comme en témoigne la Figure 2. Dans cette même ville de Bourges, il est en effet possible d'observer les premiers murs coupe-feu, construits après l'incendie de la Madeleine pour stopper la propagation entre les maisons à colombages.

Figure 2 : Mur coupe-feu entre des maisons à colombages (datant du Moyen Age)

D'autres exemples plus ou moins récents et lointains pourraient être évoqués tels que le grand incendie de Londres (1666), ceux de San Francisco (1851, 1906), l'incendie de la Mairie de la

Rochelle (2013), les incendies d'hôtels particuliers parisiens (2013 pour un des derniers en date), ou encore l'incendie de forêt de Fort Mc Murray (2016) au Canada ayant poursuivi sa course en ravageant une grande partie de la ville. L'incendie urbain est donc un risque universel et encore d'actualité.

I.1.2 - Phénoménologie, caractéristiques de l'incendie d'habitation

Un incendie d'habitation correspond aux cas classiques d'incendies confinés, sous ventilés ou non en fonction des conditions. La courbe classique de température ou de montée en puissance d'un tel incendie est donnée ci-dessous (Figure 3). Nous ne reviendrons pas sur cette figure tant elle a été traitée par la communauté de la sécurité incendie.

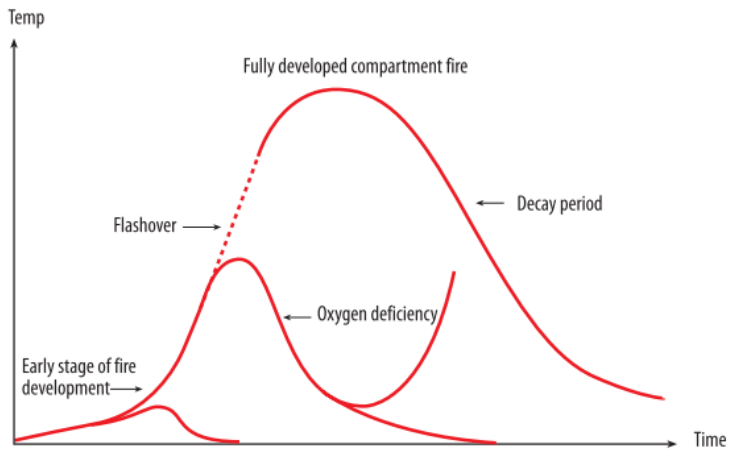


Figure 3 : Courbes représentatives de développement d'un incendie (évolution de la température en fonction du temps et des conditions de ventilation du local) (extrait de Bengtsson (Bengtsson, 2001))

Un des points notables de ce schéma est néanmoins la phase de croissance et la transition vers l'état d'incendie pleinement développé. Ce développement, qualifié d'embrasement généralisé dans la littérature francophone (ou *flashover* dans la littérature anglo-saxonne), correspond à l'inflammation soudaine de l'ensemble du mobilier d'une pièce sous l'effet de l'éclairement énergétique apporté par les fumées chaudes en partie haute, vers le bas, et par la flamme de manière horizontale. Le feu est alors dit « contrôlé par le combustible », par opposition à un feu « contrôlé par la ventilation » lorsque celui-ci est sous ventilé. Ultérieurement à cet état pleinement développé, une propagation est possible au-delà de la pièce de départ du feu, tant sa puissance est importante.

Plusieurs types de propagations horizontales ou verticales sont alors envisageables en fonction des configurations. Les propagations verticales peuvent avoir lieu par les ouvrants ou par des dispositifs traversant les étages. Les propagations verticales peuvent aussi avoir lieu par des dispositifs traversant les pièces attenantes, par la rupture d'une porte, ou par l'exposition directe de la pièce attenante, par une porte ouverte par exemple. Des phénomènes de transitions aux parois peuvent également être observés, notamment sur des navires aux parois métalliques (Giraud, 2016).

Au-delà de l'exposition à un éclairement énergétique suffisant, l'inflammation des matériaux dans la pièce attenante à un incendie va être conditionnée par la nature même de ces composants et leur capacité à s'enflammer. Elle pourra dès lors être pilotée par le déplacement de particules

enflammées, ou spontanée, si le matériau s'échauffe et se décompose suffisamment. Les propriétés thermiques et chimiques de ce dernier sont donc des paramètres cruciaux à la propagation de l'incendie. On parle d'ailleurs de « terme source » pour qualifier sa capacité à se décomposer et à produire des gaz inflammables aussi appelés gaz de pyrolyse. Le schéma donné en Figure 4 résume les deux derniers paragraphes et permet de visualiser une situation type de propagation horizontale dans une pièce attenante à un incendie. La description du phénomène d'inflammation est donc un paramètre clé à la compréhension des propagations.

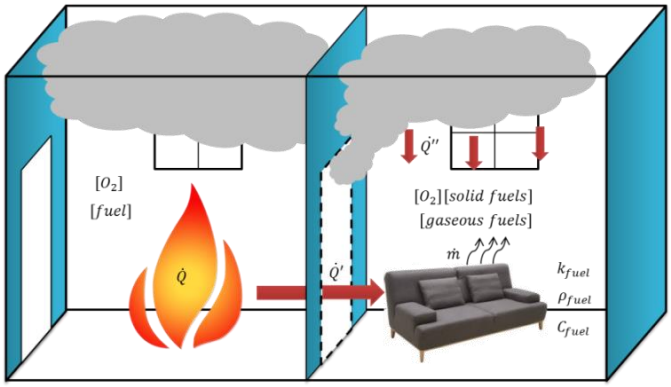


Figure 4 : Propagation horizontale d'un incendie et paramètres importants régissant cette dernière

Au-delà de cet exemple, nous pouvons nous rendre compte que la configuration des locaux et la nature des matériaux aura un impact important sur la propagation ou non de l'incendie. La caractérisation du bâti et de son aménagement est donc une étape importante qu'il nous revient de traiter.

I.2 - Un développement conditionné au conditions initiales et ambiantes

I.2.1 - Hétérogénéité du bâti

a) Cadre juridique

La loi française définie le bâtiment d'habitation comme suit : « Constituent des bâtiments d'habitation […] les bâtiments ou parties de bâtiment abritant un ou plusieurs logements, y compris les foyers, tels que les foyers de jeunes travailleurs et les foyers pour personnes âgées autonomes, à l'exclusion des locaux destinés à la vie professionnelle […]» (Code de la Construction et de l'Habitation).

Un certain nombre de règles sont établies quant au matériaux à utiliser dans les constructions et la loi donne principalement leurs caractéristiques extérieures (espacement des maisons et isolement, accès d'engins). Elle donne également des dispositions pour les locaux communs dans les habitations collectives. L'aménagement est ensuite dépendant du particulier.

Depuis 1988, la directive européenne 89/106/CEE (Union Européenne, 1988) a pour but de rapprocher les dispositions législatives, réglementaires et administratives des Etats membres de l'Union Européenne au sujet des produits de construction. Ceux-ci sont définis comme des éléments destinés à être incorporés de manière durable dans les ouvrages de construction. Dès lors qu'ils répondent à cette directive, les matériaux se voient apposer le marquage CE.

Ce cadre réglementaire permet une uniformisation des matériaux dans l'Union Européenne, règle indispensable à l'échange des produits dans les Etats membres. Au-delà des enjeux commerciaux visés par cette base législative, les impacts sur la santé, la sécurité et l'environnement sont des composantes majeures qui furent prisent en considération dans le travail du législateur. Ainsi, des exigences s'imposent aux ouvrages réalisés avec ces matériaux dans les domaines suivants :

- Résistance mécanique et stabilité
- Sécurité en cas d'incendie
- Hygiène, santé et environnement
- Sécurité d'utilisation
- Protection contre le bruit
- Economie d'énergie et isolation thermique

Des différences de bâtis peuvent exister entre les Etats mais cette directive permet d'harmoniser les matériaux utilisés dans l'Union et plus particulièrement en termes de résistance au feu. Nous pouvons d'ores et déjà comprendre que l'aspect résistance mécanique jouera un rôle considérable lors d'un incendie mais nous savons aujourd'hui que l'isolation thermique peut également avoir un impact sur le développement du feu.

A l'initiative des pouvoirs publics et d'associations, une loi a été votée en 2010 portant sur l'installation de détecteur avertisseurs autonomes de fumée art. R129-12 à 15 (Code de la Construction et de l'Habitation). Laissant un délai de 5 ans pour s'équiper, cette loi doit être appliquée depuis mars 2015 dans chaque foyer français. Cette obligation s'axe sur la notion de protection (réduction de la gravité) mais est aussi un point d'entrée pour réaliser la prévention à l'échelle des particuliers. Actuellement, faute de prévention établie de manière explicite et durable par les pouvoir publics, la France s'axe aujourd'hui sur une politique privilégiant la protection des personnes et des biens à travers de telles lois. Les services de secours et notamment les sapeurs-pompiers représentent le bras armé de l'Etat dans cette mission. L'aspect préventif est d'avantage pris en charge par le milieu associatif et par les mutuelles d'assurances cherchant à réduire le nombre de sinistres et pas seulement leur gravité.

b) Caractérisation effective du bâti

Au-delà des réglementations, il est possible de dresser un portrait du bâti français à travers différentes études. Il conviendra alors de considérer la structure de l'habitat mais aussi sa configuration.

Malgré un cadre juridique régulant les aspects constructifs et définissant des normes de matériaux, il est difficile de contrôler tous les paramètres liés à la sécurité incendie de l'habitat. La sphère privée, la possibilité de réaliser des travaux de manière individuelle, notre histoire sont autant de paramètres qui font l'hétérogénéité de notre bâti (Aviotti, 2011). Néanmoins, dans le cadre d'une étude sur la caractérisation et la réduction de la vulnérabilité du bâti face à un phénomène thermique, Effectif France et le L.N.E. (Laboratoire National de Métrologie et d'Essais) (Auguin, 2008) donnent un tableau synthétique des typologies de construction en France en fonction des années (Cf. Tableau 1).

Tableau 1 : Caractérisation extérieure du bâti en France d'après Auguin (Auguin, 2008)

	Habitations		
	Ancienne (<1975)	*Semi-récente (>1975)*	*Neuve et Récente (>1990)*
Ossature porteuse	Bois	Bois, béton	Bois, béton, acier
Façade opaque lourde			
	Pierre, bois, terre	Blocs de béton creux	Blocs de béton creux, briques creuses
	Enduit, ou rien	Polystyrène, enduit plâtre	Laine de verre, polystyrène
Façade opaque légère			
	-	Bois, fibre ciment	Bois, pierre, terre cuite
	-	Polystyrène	Laine de verre, polystyrène
Couverture/Toiture			
	Bois	Bois	Bois, métal
	-	Laine de verre sur plancher	Laine de verre et polystyrène sous/sur chevrons
	Terre cuite, ardoise	Terre cuite, ardoise	Terre cuite, ardoise
Menuiserie extérieure			
	Bois	Bois, PVC, aluminium	Bois, PVC, aluminium
	Simple	Simple, double	Double, triple
	Bois	Bois	Bois, PVC, aluminium
	Bois	Bois	Bois, PVC

Le Mémento de l'Habitat Privé (Agence National de l'Habitat, 2012) donne également les valeurs suivantes sur les époques de construction des résidences principales en France :

- Avant 1915 : 27%
- 1915-1948 : 8%
- 1949-1974 : 26%
- 1975-1989 : 19%
- 1990 et après : 19%

Sur la base d'observations, on peut cependant remarquer que les grandes villes concentrent d'avantage les habitats collectifs type immeubles (au sens « ensemble d'appartements ») ainsi que des maisons individuelles (souvent mitoyennes). En périphérie de ces villes, des maisons individuelles forment un ensemble pavillonnaire (lotissements, équivalent aux *suburbs*

américaines), ensemble que l'on retrouvera aussi dans les destinations de vacances (au bord de la mer par exemple), comme des résidences secondaires. En campagne, on retrouve essentiellement des maisons individuelles pouvant être mitoyennes dans les villages.

Ainsi, l'Agence de la Qualité de la Construction (Observatoire de la Qualité de la Construction, 2009) divise l'habitat en trois grandes typologies :

- Les maisons individuelles en secteur diffus
- Les maisons individuelles en secteur groupé
- Les appartements en immeubles collectifs

Au-delà des enveloppes bâtimentaires et des configurations extérieures, il est aussi important de noter que la configuration intérieure des logements aura un impact sur les volumes en jeu et donc sur le développement des incendies (la quantité de comburant disponible devenant alors plus importante). Peu de données sont existantes sur la configuration de l'habitat en France. Des travaux sont en cours en vue de mieux connaître les logements français au-delà des données déjà disponibles sur la superficie de ces derniers. L'enquête nationale logement (Agence National de l'Habitat, 2006) donne une superficie moyenne des maisons individuelles de 91 m^2 (en augmentation depuis 1984). La surface moyenne des appartements est quant à elle de 65 m^2.

Les maisons individuelles en secteur diffus sont essentiellement des logements de 4 à 5 pièces de 90 à 130 m^2. Ces habitats sont généralement de plain-pied avec une entrée en façade et un séjour dit « traversant ». Ce type de maison est essentiellement situé en milieu rural (59,5 %).

La catégorie des maisons individuelles en secteur groupé se concentre majoritairement en périphérie urbaine. La surface moyenne des habitats échantillonnés est de 79 m^2. Concernant la répartition des pièces, 38% des logements sont des 3 pièces ou moins et 39% sont des 4 pièces. Par ailleurs, 63% de ces habitats disposent d'un étage.

Les appartements en immeubles collectifs se situent principalement en milieu urbain (70%). Les immeubles se divisent en moyenne en 23 logements mais l'écart type peut être important. En effet, des immeubles de grande hauteur peuvent contenir 50 logements tandis que de petits ensembles de 4 logements sur deux niveaux peuvent aussi exister. La surface moyenne de ces appartements est de 61 m^2 et il s'agit de 3 pièces et moins dans 79% des cas.

D'un point de vue purement constructif, l'habitat peut donc être défini comme une enveloppe bâtimentaire se constituant de plusieurs pièces, assimilables à des compartiments. Il représente une succession de compartiments, ouverts ou non les uns sur les autres, dont la configuration et l'ameublement sont variables.

I.2.2 - Hétérogénéité du mobilier

En plus du bâti et de la configuration, la constitution du mobilier aura un rôle majeur dans le développement du l'incendie. Une nouvelle fois, il est difficile d'évaluer la composition de l'ameublement par logement. La diversité des matériaux utilisés de nos jours pour le mobilier vient ajouter à la complexité de légiférer sur le risque incendie en habitat domestique. Le mobilier en présence dans les habitats français est accessible par un biais détourné que représente le marché de l'ameublement. Il est en effet possible grâce à un rapport du ministère de l'Economie, des Finances et de l'Industrie (Depuydt, 2008) de connaître les tendances des facturations concernant les meubles, l'électroménager et le textile de maison entre autres. Connaissant la

composition type du mobilier et de l'électroménager mentionné dans cette étude, il est possible de dresser un portrait global de la composition d'un logement. Malgré quelques études menées à l'échelon local, la nature des matériaux reste cependant difficile à déterminer de manière très précise.

I.2.3 - Hétérogénéités des scenarios

En plus des difficultés à obtenir des données d'entrées relatives au matériaux présents dans l'habitation, il est également délicat de définir les scénarios menant à l'incendie en France. Les services de secours ainsi que les assureurs sont à même de fournir des données intéressantes sur la mortalité mais l'analyse poussée des causes et des circonstances d'incendie est encore en plein développement dans notre pays. Des travaux sont actuellement en cours (Sieuw, 2015) pour collecter ce type de données au niveau national. Il est important de signaler qu'à l'échelon international, la normalisation des statistiques d'incendies est en cours afin d'utiliser un vocabulaire commun à toutes les études ainsi que les mêmes critères pour prendre en considération les décès imputables au feu (Parisse, 2016).

La définition des circonstances d'incendies est un paramètre d'entrée primordial dans le cadre d'études telles que celle-ci. Il ne faut cependant pas négliger les variations liées à l'environnement qui peuvent modifier l'issue de l'incendie de manière notable. Nous pouvons prendre pour exemple les essais réalisés dans le cadre des travaux de thèse de Suzanne (Suzanne, 2009). Dans ce cas, pour des conditions initiales similaires, deux développements différents de feux de chambres ont pu être observé avec pour cause la rupture d'un ouvrant.

I.3 - Besoins scientifiques inhérents aux modèles existants

I.3.1 - Besoins et réponse actuelle

Comme nous nous pourrons le constater au cours du Chapitre I, les modèles actuels de simulation des incendies à grandes échelle intègrent de plus en plus de paramètres physiques ou empiriques. Des données, telles que des énergies ou des températures critiques, des temps de brûlage, … sont déterminées en laboratoire et sont implémentées dans des réseaux pour étudier la propagation des incendies. Lorsque certaines de ces valeurs seuils sont dépassées, le feu se propage alors de cellule en cellule. L'apport de données d'entrées fiables est donc une composante indispensable au modélisateur.

Au-delà de essais menés en laboratoire, des essais à échelle réelles (Rein et al., 2007; Roblin et al., 2015; Roy et al., 2013) peuvent venir compléter ces sources de données et apporter des cas d'études maîtrisées au modélisateur. Il est intéressant de voir que des bases de données sont aujourd'hui en train de se mettre en place pour combler les besoins des modélisateurs en termes de données et ce notamment à destination des feux de végétation (Marchand et al., 2016).

I.3.2 - Réponse alternative et complémentaire

Au travers des modèles actuels, l'ingénierie de la sécurité incendie permet aujourd'hui des économies substantielles dans l'aide à la conception d'ouvrage. Le recours aux codes de calculs et l'utilisation des résultats doit être contrôlée par l'utilisateur et il revient à la communauté scientifique de valider ces codes dans pour des situations particulières telles que celles qui nous intéressent ici.

Pour ce faire, une connaissance fine de tous les phénomènes est indispensable et un retour à des aspects fondamentaux doit être effectué. Dans notre cas d'étude de propagation des incendies à l'échelle urbaine, nous avons pu voir que l'inflammation (pilotée ou spontanée) jouait un rôle important dans la transition d'une pièce à une autre, d'un bâtiment à un autre. L'inflammation pilotée étant très documentée (notamment au travers de l'utilisation du cône calorimètre), nous nous proposons d'étudier ici l'auto-inflammation de manière précise, afin de comprendre au mieux ses mécanismes.

I.4 - Conclusion

De par son histoire et son caractère privatif, le bâti est très hétérogène et sa caractérisation effective reste encore un défi dans le cadre d'une modélisation fine des feux urbains. Il est cependant possible d'établir des tendances par des biais détournés et avoir ainsi un aperçu global à l'échelle de notre pays.

Par la connaissance actuelle des feux de compartiments et les modes possibles de développement des incendies, nous avons pu identifier que l'inflammation (au sens large) jouait un rôle majeur dans la propagation.

Nous nous proposons donc au cours du premier Chapitre de réaliser un état des pratiques de modélisation à grande échelle afin de voir comment l'inflammation y est prise en compte. Nous décrirons également avec précision ce phénomène bref et local à l'origine de l'établissement de la flamme en surface des matériaux.

Table des matières

Notations XIX
Abréviations XIX
Lettres romaines XX
Lettres grecques XXII
Espèces XXII

Liste des figures XXIII

Liste des tableaux XXIX

Introduction générale 1

Chapitre I : Du bâti urbain à l'échelle de la matière 5
I.1 - Etat de l'art sur la simulation de la propagation des sinistres à grande échelle : modèles existants en incendie 6
I.1.1 - Feux de forêts 6
I.1.2 - Feux urbains, ensembles multi compartimentés 8
I.2 - Inflammation des solides 13
I.2.1 - Préambule langagier 13
I.2.2 - Inflammation pilotée vs. Auto-inflammation 13
I.2.3 - Mécanismes macroscopiques d'inflammation des solides 14
I.2.4 - Critères d'inflammation des solides, état de l'art 16
I.3 - La phase condensée 19
I.3.1 - Décomposition thermique des solides, aspects chimiques 19
I.3.2 - Décomposition thermique des solides, aspects thermiques 23
I.3.3 - Couplage des aspects chimiques et thermiques 25
I.4 - La phase gazeuse 26
I.4.1 - Mécanismes de l'auto-inflammation, approches utilisées en phase gazeuse 26
I.4.2 - Couplage solide/gaz 37
I.5 - Principaux travaux : cas PMMA 42
I.5.1 - Travaux de Tsai et al. 42
I.5.2 - Shi et al. 46
I.5.3 - Peng et al. 47
I.6 - Conclusion de fin de chapitre 49

Chapitre II : Modèles de description des phénomènes physico-chimiques 51
II.1 - Modèles numériques 52
II.1.1 - Rappel des besoins 52
II.1.2 - Modélisation de la turbulence 53
II.1.3 - Fire Dynamics Simulator 56
II.2 - Données d'entrée 60
II.2.1 - Phase condensée 60

II.2.2 - Phase gazeuse 60
II.3 - Configurations testées 61
II.3.1 - Le dispositif du cône calorimètre et son adéquation aux besoins 61
II.3.2 - Approche de faisabilité 1D, captation de l'auto-inflammation 62
II.3.3 - Etude 2D de l'auto-inflammation des solides 65
II.3.4 - Paramètres influents et modifications 73
II.4 - Conclusions de fin de chapitre 75

Chapitre III : Résultats et discussions de la simulation numérique directe de l'auto-inflammation du PMMA 77

III.1 - Utilisation du modèle 78
III.1.1 - Variations de la masse volumique du matériau 78
III.1.2 - Détermination du délai d'inflammation et mentions complémentaires à l'interprétation 79
III.1.3 - Eclairement énergétique : détermination des flux de chaleur à la surface du solide 81
III.1.4 - Caractérisation du mélange MMA/Air 82
III.1.5 - Détermination du nombre de Reynolds local 84
III.1.6 - Taux de dissipation et nombre de Damköhler 85
III.1.7 - Paramètres globaux vs. locaux en surface de solide 85
III.2 - Etude globale : moyennes spatiales et temps caractéristiques 87
III.2.1 - Délai d'inflammation 88
III.2.2 - Densités de flux de chaleur à la surface du solide 89
III.2.3 - Température de surface moyenne, débit massique de pyrolyse moyen 94
III.2.4 - Temps caractéristiques 96
III.2.5 - Taux de dégagement de chaleur 99
III.3 - Etude locale : évolution spatiale et temporelle des variables 100
III.3.1 - Phase condensée 100
III.3.2 - Phase gazeuse 112
III.4 - Conclusions de fin de chapitre 136

Conclusions, perspectives 137

Conclusions générales 138
Perspectives de recherche 140
Perspectives d'application 141

Bibliographie 145

Notations

Abréviations

Acronyme	Unité	Description
CEREMA		Centre d'Etudes et d'Expertise sur les Risques, l'Environnement, la Mobilité et l'aménagement
CEE		Communauté Economique Européenne
CFD (MFN en français)		Computational Fluid Dynamics (Mécanique des Fluides Numérique)
DNS		Direct Numerical Simulation (Simulation Numérique Directe en français)
FDS		Fire Dynamics Simulator
HRR	[kW]	Heat Release Rate (taux de dégagement de chaleur en français)
HRRPUV	[$kW.m^{-3}$]	Heat Release Rate per Unit of Volume (taux de dégagement de chaleur par unité de volume en français)
IUSTI		Institut Universitaire des Systèmes Thermiques et Industriels
LEMTA		Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique Appliquée
LES		Large Eddy Simulation (simulation aux grandes échelles en français)
LII	[% vol.]	Limite Inférieure d'Inflammabilité
LNE		Laboratoire National de métrologie et d'Essais
LSI	[% vol.]	Limite Supérieure d'Inflammabilité
MMA		Méthacrylate de Méthyle
NIST		National Institute of Standard and Technology
PMMA		Polyméthacrylate de méthyle

RANS	Reynolds Averaged Navier Stoke
SDIS	Service Départementaux d'Incendie et de Secours
SPE	Sciences Pour l'Environnement
USFS	United States Forest Service
VTT	Teknologian olut karhu tutkimuskeskus VTT Oy (Centre de Recherche Technique de Finlande VTT SA en français)

Lettres romaines

Bi		Nombre de Biot
C_a		Concentration en espèce a
C_p	[J.kg^{-1}.K^{-1}]	Capacité thermique massique à pression constante
D		Coefficient de diffusion molaire
Da		Nombre de Damköhler
D_h	[m]	Diamètre hydraulique
E_a	[J.mol^{-1}]	Energie d'activation
h	[W.m^{-2}.K^{-1}]	Coefficient de transfert thermique
k		Constante de vitesse cinétique
L_c	[m]	Longueur caractéristique
l_d	[m]	Longueur de mélange
l_r	[m]	Longueur de réaction
m	[kg]	Masse
$\dot{m}$	[kg.s^{-1}.m^{-2}]	Débit de pyrolyse massique
M,W	[kg.mol^{-1}]	Masse molaire
N_r		Nombre de réaction
$\dot{q}_{conv}$	[kW.m^{-2}]	Flux de chaleur convectif
$\dot{q}_{ext}$	[kW.m^{-2}]	Flux de chaleur externe

q_{inc}	[kW.m^{-2}]	Flux de chaleur incident
q_{net}	[kW.m^{-2}]	Flux de chaleur net
q_{rad}	[kW.m^{-2}]	Flux de chaleur radiatif
$q_{rad,inc}$	[kW.m^{-2}]	Flux radiatif incident
$q_{rad,out}$	[kW.m^{-2}]	Flux radiatif réfléchi
Qv	[kW]	Taux de dégagement de chaleur
R	[kJ.mol^{-1}]	Constante des gaz parfait (8,314.10-3)
Re		Nombre de Reynolds
S	[m^2]	Surface
s		Coefficient stoechiométrique
T	[°C]	Température
t	[s]	Temps
t_{chim}, Tc	[s]	Temps caractéristique de la chimie
t_{cond}	[s]	Temps caractéristique de la conduction
T_g	[°C]	Température phase gazeuse
t_{ig}	[s]	Délai d'inflammation
T_{ig}	[°C]	Température d'inflammation
t_{mix},TX	[s]	Temps caractéristique de mélange
tpy	[s]	Temps caractéristique de la pyrolyse
T_s, T_w	[°C]	Température de surface du solide
t_{turb}	[s]	Temps caractéristique de la turbulence
V	[m^3]	Volume
X		Taux de dissipation scalaire
X_a		Fraction molaire de l'espèce a
Y_a		Fraction massique de l'espèce a
Z		Fraction de mélange
Z_{st}		Fraction de mélange stœchiométrique

Lettres grecques

$\Delta_r H^0$	[kJ.mol^{-1}]	Enthalpie standard de réaction
ε		Emissivité
λ, k	[W.m^{-1}.K^{-1}]	Conductivité thermique
μ	[kg.m^{-1}.s^{-1}]	Viscosité dynamique
ρ	[kg.m^{-3}]	Masse volumique
σ	[W.m^{-2}.K^{-4}]	Constante de Stefan-Boltzman (5,67.10^{-8})
Φ		Richesse de mélange
$\dot{\omega}$, r	[kg.s^{-1}.m^{-3}]	Taux de réaction
ν_a		Coefficient stœchiométrique de l'espèce a

Espèces

Formule chimique	**Composé**
$(C_5H_8O_2)_n$	Polyméthacrylate de méthyle
O_2	Dioxygène
N_2	Diazote
H_2O	Eau
CO_2	Dioxyde de Carbone
CH_4	Méthane
$C_5H_8O_2$	Méthacrylate de méthyle

Liste des figures

Figure 1 : Incendie à Bourges, avril 2015 (photos : le Berry Républicain) VIII
Figure 2 : Mur coupe-feu entre des maisons à colombages (datant du Moyen Age) VIII
Figure 3 : Courbes représentatives de développement d'un incendie (évolution de la température en fonction du temps et des conditions de ventilation du local) (extrait de Bengtsson (Bengtsson, 2001)) IX
Figure 4 : Propagation horizontale d'un incendie et paramètres importants régissant cette dernière X
Figure 5 : Exemple dimensionnement d'ouvrage ; extrait de De Gennaro (De Gennaro et al., 2014) 7
Figure 6 : Test de la même configuration à l'échelle du laboratoire ; extrait de Marchand (Marchand et al., 2016) 7
Figure 7 : Classification des modèles de feux de forêts par échelle d'observation ; modifiée de Porterie (Porterie & Santoni, 2015) 8
Figure 8 : Modélisation de propagation entre bâtiments basée sur le modèle d'Hamada (Scawthorn et al., 2005) 9
Figure 9 : Paramètres physiques intégrés dans le modèle de propagation d'Himoto (Himoto et al., 2008; Himoto & Tanaka, 2008) 10
Figure 10 : Résultats issus des travaux d'Himoto ; (a) et (a') Vision globale du feu étude ((Himoto & Tanaka, 2008) ; (b)(b')(b'') Résultats fournis par le modèle à différents pas de temps (Himoto & Tanaka, 2008) ; (c) Contours des dégâts engendrés par le feu réel ; (c') Contours des dégâts engendrés par le feu simulé en y intégrant l'action des secours (Himoto & Tanaka, 2012) 12
Figure 11 : Mise en évidence des limites supérieure et inférieure d'inflammabilité lors du dégagement de gaz de pyrolyse au-dessus du solide ; extraite, modifiée et traduite de Fernandez Pello (Fernandez Pello, 2011) 15
Figure 12 : Représentation schématique des conditions requises pour l'auto-inflammation d'un solide ; extraite, modifiée et traduite de Lentini (Lentini, 2006) 16
Figure 13 : Représentation du temps d'inflammation d'une plaque de PMMA soumise à un jet d'oxydant chaud en fonction de la vitesse dudit jet ; extraite, modifiée et traduite de Chao, Niioka et Torero (Chao & Fernandez Pello, 1997; Niioka et al., 1981; Torero, 2016) 18
Figure 14 : Schématisation des profils de température et de fractions massiques lors de la décomposition d'un solide soumis à un éclairement énergétique ; extraite de Torero (Torero, 2016) 20
Figure 15 : Schématisation de la décomposition thermique d'un polymère plastique ; extraite de Guillaume (Guillaume, 2013) 20
Figure 16 : (a) Rupture de fin de chaîne ou (b) rupture en milieu de chaine ; extraite de Witkowski (Witkowski et al., 2016) 21
Figure 17 : Processus global de décomposition thermique, d'inflammation et de combustion des polymères plastiques ; extraite et modifiée de Vovelle et Delfau (Vovelle & Delfau, 1997) 22
Figure 18 : Schématisation des différentes typologies de solides selon (Pyle & Zaror, 1984). Pour un même instant t de la dégradation : a) Solide thermiquement fin (pas de gradient de

T), cinétique lente (peu de gaz de pyrolyse) ; b) Solide thermiquement fin (pas de gradient de T), cinétique rapide (quantité importante de gaz de pyrolyse) ; c) Solide thermiquement épais (présence d'un gradient de T), cinétique lente (peu de gaz de pyrolyse) ; d) Solide thermiquement épais (présence d'un gradient de T), cinétique rapide (quantité importante de gaz de pyrolyse) 25
Figure 19 : Représentation schématique d'une réaction en chaîne droite ; extraite et traduite de Pauwels (Pauwels, 2010) 27
Figure 20 : Schématisation d'une réaction en chaine à ramification ; extraite de Guibet (Guibet, 2000) 28
Figure 21 : Schématisation de l'existence d'une température d'inflammation en fonction de la production d'espèces radicalaires ; extraite et modifiée de Borghi et Champion (Borghi & Champion, 2000) 29
Figure 22 : Diagrammes dits "de Semenov" représentant la production de chaleur d'un mélange en fonction de différentes conditions initiales en termes (a) de concentration, (b) de pression et (c) de température ambiante ; extraites et modifiées de Côme, Drysdale, Glassman et Quintiere (Côme, 1999; Drysdale, 2011; Glassman & Yeter, 2008; Quintiere, 2006) 31
Figure 23 : (a) Répartition homogène de la température dans le mélange selon la théorie de Semenov ; (b) Répartition hétérogène de la température de mélange selon la théorie de Frank-Kamenetskii ; (c) Répartition hétérogène de la température, différente de la température ambiante aux parois selon la théorie de Thomas, modifié et complété de Drysdale (Drysdale, 2011) 34
Figure 24 : Evolution du domaine d'inflammabilité en fonction de l'évolution de la température et de la concentration en combustible, modifiée de Dong (Dong, 2013) 35
Figure 25 : Réactions d'un mélange méthane/air porté à 624°C, 8°C sous la température d'inflammabilité, modifiée de Babrauskas (Babrauskas, 2003) 37
Figure 26 : Taux de dégagement de chaleur en fonction du nombre de Damköhler ; traduit de Veynante et Vervisch (Veynante & Vervisch, 2002) 40
Figure 27 : Températures en fonction de la fraction de mélange, longueurs caractéristiques dans l'espace physique et limites du nombre de Damköhler ; traduit de Veynante et Vervisch (Veynante & Vervisch, 2002) 41
Figure 28 : Le cône calorimètre et son maillage d'après l'étude de Tsai (Tsai et al., 2001) 43
Figure 29 : Conditions d'auto-inflammation sous cône calorimètre avec un éclairement énergétique de 35 $kW.m^{-2}$; résultats des simulations de (Tsai et al., 2001) en termes de fractions massiques de MMA et d'O_2, de températures et de vitesses (composante verticale) pour les pas de temps (a) antérieur à l'inflammation ; (b) à l'inflammation ; (c) postérieur à l'inflammation ; extrait de Tsai (Tsai et al., 2001) 44
Figure 30 : Résultats expérimentaux et numériques des mesures de température à la surface du solide et dans la phase gazeuse : (a) 50 $kW.m^{-2}$; (b) 30 $kW.m^{-2}$; extrait de Tsai (Tsai et al., 2001) 45
Figure 31 : (a) Délais d'inflammation théoriques et expérimentaux et (b) racine carrée du temps d'inflammation en fonction de l'éclairement énergétique ; extrait de Tsai (Tsai et al., 2001) 46
Figure 32 : Dispositif expérimental étudié par Peng et al. (Peng et al., 2015) 47
Figure 33 : Configurations d'orientations testées ; extrait de Peng et al. (Peng et al., 2015) 47
Figure 34 : Taux de dégagement de chaleur et température issus de simulations numériques ; extrait de Peng et al. (Peng et al., 2015) 48

Figure 35 : Mesure de température au sein d'un écoulement turbulent et représentation de son évolution en fonction du temps pour les trois méthodes ; RANS, LES, DNS ; extraites et modifiées de Cuenot, Poinsot et Veynante (Cuenot, n.d.; Poinsot & Veynante, 2005) .55
Figure 36 : Spectre d'énergie cinétique turbulente ; extraite et modifiée de Cuenot (Cuenot, n.d.) 55
Figure 37 : (a) DNS, simulation numérique directe, toutes les échelles de la turbulence sont résolues ; (b) LES, simulation des grandes échelles, seules les grandes échelles sont résolues et les petites modélisées ; (c) RANS, modélisation statistique de la turbulence, toutes les grandeurs sont moyennées par rapport au temps 55
Figure 38 : Bas du domaine, (a) maillage et instrumentation (en vert), tous les mm en hauteur ; (b) visualisation de la configuration pseudo-1D 63
Figure 39 : Taux de dégagement de chaleur en fonction du temps en 1D 63
Figure 40 : Evolution du taux de dégagement de chaleur volumique 64
Figure 41 : Cas 1D. En fonction de différents pas de temps et de la hauteur : (a) Profils de températures ; (b) Fractions massiques de MMA ; (c) Fractions massiques d'O_2 65
Figure 42 : Maillages utilisés en phase gazeuse et représentation graphique de la fraction massique de MMA (unité arbitraire) : (a) 1 mm*1mm ; (b) 0,5 mm*0,5mm ; (c) 0,2 mm*0,2mm ; (d) 0,1 mm*0,1mm ; (e) visualisation du domaine pseudo-2D pour le maillage de 0,2 mm (seule la partie basse du domaine est représentée sur chaque figure) 67
Figure 43 : Débit de pyrolyse en fonction du temps et du maillage de la phase condensée 68
Figure 44 : Taux de dégagement de chaleur en fonction du temps et des différents maillages 2D en phase gazeuse 68
Figure 45 : Température moyenne de surface en fonction du temps et des différents maillages 2D en phase gazeuse 69
Figure 46 : Valeurs locales diverses à but de détermination du maillage adéquat dans la phase gazeuse 72
Figure 47 : Echelles de longueurs caractéristiques en combustion turbulente non-pré mélangée, modifiée de Poinsot et Veynante (Poinsot & Veynante, 2005) 73
Figure 48 : Taux de dégagement de chaleur de la zone réactionnelle, unité arbitraire 73
Figure 49 : Résultats comparatifs des études mentionnées au Chapitre I et de notre étude sur l'influence des flux à plus grande échelle sur les délais d'inflammation. 74
Figure 50 : Evolution du taux de dégagement de chaleur en fonction du temps pour un cas à masse volumique initiale – Détermination du délai d'inflammation 80
Figure 51 : Répartition verticale de la température en phase gazeuse au centre de l'échantillon, aux instants de l'inflammation - Cas à masse volumique initiale 81
Figure 52 : Répartition horizontale de la température de la maille en surface du solide, aux instants de l'inflammation - Cas à masse volumique initiale 81
Figure 53 : Evolution du domaine d'inflammabilité du MMA en fonction de la température (voir calcul des limites donné au Chapitre I) 83
Figure 54 : Répartition horizontale de l'éclairement énergétique incident en surface de solide, à différents pas de temps encadrants l'inflammation - Cas à masse volumique initiale. 86
Figure 55 : Répartition horizontale de la température de surface du solide, à différents pas de temps encadrants l'inflammation - Cas à masse volumique initiale 87
Figure 56 : Répartition horizontale du débit de pyrolyse en surface de solide, à différents pas de temps encadrants l'inflammation - Cas à masse volumique initiale 87

Figure 57 : Evolution du délai d'autoallumage en fonction de la densité et comparaison à la formule classique de calcul du délai d'inflammation 89
Figure 58 : Densités de flux de chaleur moyennes à la surface de l'échantillon en fonction de la masse volumique pour les pas de temps encadrant l'inflammation 92
Figure 59 : Température de surface moyenne et débit massique de pyrolyse moyen associé au moment de l'inflammation 94
Figure 60 : Rapport des temps caractéristiques de la conduction et de la pyrolyse pour les deux pas de temps pré-inflammation 98
Figure 61 : Evolution des temps caractéristiques de la conduction et de la pyrolyse en fonction de la densité 99
Figure 62: Taux de dégagement de chaleur en fonction du temps, ρ = 1155 kg.m^{-3} 99
Figure 63 : Taux de dégagement de chaleur en fonction du temps, ρ/50=23,1 kg.m^{-3} 100
Figure 64 : Répartition du flux de chaleur convectif en surface du solide aux instants de l'inflammation, pour les deux masses volumiques considérées 101
Figure 65 : Répartition du flux de chaleur radiatif en surface de solide aux instants de l'inflammation, pour les deux masses volumiques considérées 102
Figure 66 : Répartition du flux de chaleur incident en surface de solide aux instants de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées 102
Figure 67 : Répartition du flux de chaleur net en surface de solide aux instants de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées 103
Figure 68 : Evolution des différents flux de chaleur en fonction du temps au centre de l'échantillon et pour les deux masses volumiques considérées 104
Figure 69 : Répartition de la température en surface de solide aux instants de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées 106
Figure 70 : Evolutions de la température en fonction du temps au centre de l'échantillon et pour les deux masses volumiques considérées 107
Figure 71 : Evolution de la température interne du solide et zoom sur les phénomènes surfaciques (au centre de l'échantillon) 109
Figure 72 : Evolution du taux de réaction interne au solide et zoom sur les phénomènes surfaciques (au centre de l'échantillon) en fonction du temps 111
Figure 73 : Répartition du débit massique de pyrolyse en surface du solide aux instants de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées 112
Figure 74 : Température de la phase gazeuse à t_3 (temps de l'inflammation), unité arbitraire dans un but de localisation de l'inflammation 113
Figure 75 : Répartition de la fraction de mélange dans le domaine ; en noire, la fraction de mélange stœchiométrique ; pour les deux masses volumique considérées 114
Figure 78 : Répartition de la fraction volumique dans l'espace physique au-dessus du solide, le trait blanc représentant la LII et le trait rouge la LSI pour les deux masses volumiques considérées 117
Figure 79 : Evolution de la température des gaz au centre du solide pour les deux masses volumiques considérées et pour les pas de temps de l'inflammation 119
Figure 80 : Répartition de la température des gaz aux instants de l'inflammation et pour les deux masses volumiques considérées 120
Figure 88 : Evolution du taux de réaction en phase gazeuse aux instantes de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées 122
Figure 74 : Températures conditionnelles aux pas de temps encadrants l'inflammation, pour ρ = 1155 kg.m^{-3} 124

Figure 75 : Températures conditionnelles aux pas de temps encadrants l'inflammation, pour ρ = 23,1 kg.m^{-3} 126
Figure 81 : Champs de vitesse verticale aux instants de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées 128
Figure 82 : Vitesse verticale des gaz à 1,4 mm de hauteur au-dessus de la surface du solide, ρ = 1155 kg.m^{-3} 129
Figure 83 : Vitesse verticale des gaz à 1,4 mm de hauteur au-dessus de la surface du solide, ρ = 23,1 kg.m-3 ; (a) ensemble des pas de temps ; (b) Pas de temps pré-inflammation et pas de temps de l'inflammation 129
Figure 85 : Vecteur vitesse résultant des composantes horizontale et verticale de vitesse aux instants de l'inflammation et pour les deux masses volumiques considérées 130
Figure 86 : Nombre de Reynolds local aux instants de l'inflammation et pour les deux masses volumiques considérées 132
Figure 87 : Taux de dissipation scalaire aux instants de l'inflammation et pour les deux masses volumiques considérées 134
Figure 88 : Evolution du nombre de Damköhler aux deux pas de temps pré-inflammation et au pas de temps de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées 135

Liste des tableaux

Tableau 1 : Caractérisation extérieure du bâti en France d'après Auguin (Auguin, 2008) XII
Tableau 2 : Critères d'inflammation identifiés dans la littérature ; extrait, modifié et traduit de Boonmee (Boonmee, 2004) 17
Tableau 3 : Phénomènes de transport moléculaire, modifié de Côme (Côme, 1999) 38
Tableau 4 : Analogie entre les phénomènes de transport, extrait et modifié de Côme (Côme, 1999) 38
Tableau 5 : Délais d'inflammation et débit de pyrolyse moyen dans le cadre des éxprimentations d'auto-inflammation du PMMA, modifié de Shi (Shi & Chew, 2013) 46
Tableau 6 : Propriétés physico-chimiques du PMMA considérées dans le modèle de pyrolyse choisi 60
Tableau 7 : Propriétés physico-chimiques du MMA considérées dans le modèle de combustion choisi 61
Tableau 8 : Densités de matériau étudiées numériquement 78
Tableau 9 : Récapitulatif des densités de flux de chaleur moyennes en surface de l'échantillon pour les pas de temps encadrant l'inflammation et pour les deux masses volumiques considérées 93
Tableau 10 : Températures moyennes de surface pour les pas de temps encadrant l'inflammation et pour les deux densités considérées 96
Tableau 11 : Débits massiques de pyrolyse moyens à la surface pour les pas de temps encadrants l'inflammation et pour les deux densités considérées 96

Introduction générale

En 2014, près de 72 000 feux d'habitations ont été recensés sur le territoire français par les services de secours (Direction Générale de la Sécurité Civile et de la Gestion des Crise, 2015). Les impacts humains, économiques et environnementaux de ces évènements tragiques sont aujourd'hui mesurables et permettent une prise de conscience sociétale face à la capacité de réponse de la cité aux incendies. Services de secours, structures associatives de prévention et professionnels de l'assurance mettent actuellement en commun leurs moyens en vue de réduire la vulnérabilité des personnes, des biens et de l'environnement face à ce risque, et pour en diminuer l'impact en cas d'occurrence.

Une réponse opérationnelle rapide, bien dimensionnée et associée à des actions de prévention, permet de réduire l'impact des incendies de manière notable. La propagation des incendies en zone urbaine pose aujourd'hui des questions quant à l'urbanisme et à la réponse des services de secours. Les caractéristiques du territoire considéré (bâtiments, facteurs sociaux), l'ameublement, la saisonnalité, l'heure de la journée sont autant de variables devant permettre aux services de secours de préparer leur réponse à tous types de sinistres. L'analyse du risque incendie en zone urbaine doit donc permettre d'optimiser la localisation des moyens en fonction de ces variables et de prévenir le risque au travers de sa connaissance. On parle alors de prévention et de planification « à froid ». Lors de l'occurrence de l'incendie, « à chaud », la compréhension de la propagation doit permettre de prédire l'évolution du sinistre et d'y parer via une réponse opérationnelle efficace. La simulation numérique des incendies joue alors un rôle essentiel pour les acteurs de la prévention et les services de secours.

L'évolution des moyens de calculs numériques permet la simulation de sinistres dans de grands ensembles urbains. Ces types de modélisation aboutissent aujourd'hui à des résultats robustes pour des risques tels que les incendies de forêts ou l'inondation. Les feux d'habitations restent néanmoins conditionnés aux matériaux en présence, aux configurations et aux règles constructives, lesquelles sont en perpétuelles évolutions au regard des normes environnementales. Hétéroclite, le bâti est donc difficilement assimilable à un ensemble homogène comme cela est par exemple le cas pour les feux de forêts. Au-delà de cette nécessité de caractérisation, la propagation des incendies doit également être considérée et comprise pour être modélisée avec le maximum de précision.

Cette dernière passe par la transition du feu entre locaux et est initiée par l'inflammation des matériaux dans les pièces adjacentes au sinistre. La réaction de combustion résulte alors de la rencontre des gaz de pyrolyse émis par les solides se décomposant avec l'air ambiant dans des conditions adéquates, et par l'apport d'une énergie d'activation suffisante au mélange. Selon les conditions, cet apport donne lieu à deux types d'inflammations : l'inflammation pilotée (par un point chaud, une étincelle…) et l'auto-inflammation résultant de l'emballement réactionnel en phase gazeuse, conditionné par un apport suffisant en énergie au mélange entre le combustible et le comburant. L'autoallumage des solides est aujourd'hui peu décrit, au-delà de ses conditions d'occurrence théoriques, du fait de sa complexité de captation et de la prépondérance de variables d'environnement parfois difficilement maîtrisables. D'un point de vue expérimental, deux régimes d'auto-inflammation ont cependant pu être observés (Chao & Fernandez Pello, 1997; Niioka, Takahashi, & Izumikawa, 1981). L'initiation de la réaction de combustion peut en effet être

entamée dans la phase gazeuse ou à la surface du solide, ce dernier agissant comme une source de chaleur. L'impact de la phase condensée est alors mise en évidence et il convient de définir des typologies de solides (chimiquement et thermiquement) afin d'évaluer leurs différences de comportement lors de l'auto-allumage. Ce travail, réalisé par Pyle et Zaror (Pyle & Zaror, 1984), permet de définir quatre solides types en fonction de deux temps caractéristiques : celui de la pyrolyse et celui de la conduction. Les solides peuvent donc être caractérisés par une cinétique de pyrolyse rapide ou lente et par une conduction thermique rapide ou lente.

L'enjeu de ce mémoire est alors de présenter une méthode de caractérisation de ces différences de comportement d'inflammation en fonction des propriétés du solide par le biais d'un travail numérique se rapprochant, de par son approche, d'une démarche expérimentale classique.

Pour identifier les mécanismes couplés aux phénomènes se produisant au sein de la phase condensée et de la phase gazeuse, l'écoulement issu du solide en décomposition doit être analysé finement d'un point vue spatial, temporel, thermique et chimique. L'évolution des moyens de calcul universitaires permettent aujourd'hui de mener ce type d'étude via la Simulation Numérique Directe (DNS). La communauté de la sécurité incendie propose par ailleurs des outils permettant ce type de travail et c'est le logiciel Fire Dynamics Simulator qui a été choisi pour mettre en évidence les mécanismes d'auto-inflammation d'un matériau commun et très documenté, le polyméthacrylate de méthyle.

Le polyméthacrylate de méthyle (PMMA) a été très étudié du fait de ses propriétés de décomposition thermique dans la littérature. En effet, la communauté scientifique internationale a fourni de nombreuses données concernant ses paramètres thermiques et cinétiques à la fois dans la phase condensée, lors de sa décomposition thermique, et dans la phase gazeuse, lors de la combustion du méthacrylate de méthyle (MMA). Ces données issues de l'expérience permettent alors d'implémenter le code de calcul FDS via un modèle de pyrolyse à une étape et via un modèle de combustion également à une étape. Ces derniers prennent en considération la variation des différentes variables à la température et permettent une bonne description de la chimie.

Par ailleurs, la masse volumique du matériau apparaît être un levier intéressant pour modifier les temps caractéristiques de la pyrolyse et de la conduction au sein du solide. La densité du PMMA est donc modifiée pour obtenir des matériaux correspondant en partie aux typologies de solides identifiées précédemment par Pyle et Zaror (Pyle & Zaror, 1984).

Les résultats obtenus mettent alors en évidence deux régimes d'autoallumage permettant de mieux cerner les processus couplés entre la phase condensée et la phase gazeuse et ce, en fonction des caractéristiques inhérentes au solide. A plus long terme, ces résultats permettront de caractériser plus finement différentes typologies de solides et leur capacité à s'enflammer. Forts de cette connaissance, les modèles de propagation plus globaux seront améliorés pour tendre vers une approche déterministe du risque incendie au sein des villes.

Pour répondre aux problématiques définies ci-avant, le présent mémoire de thèse se divise en trois parties majeures.

Après l'Avant-propos permettant d'exposer le contexte général dans lequel ce travail a pris place, le premier Chapitre de ce mémoire de thèse constitue un pont entre l'échelle urbaine définie ci-avant et l'échelle des phénomènes, de la matière. Il permet notamment de dresser un état de l'art sur la simulation numérique des incendies à grande échelle en détaillant les différents modèles

utilisés et les hypothèses simplificatrices effectuées. S'en suit une description macroscopique de l'inflammation des solides qui mène à la compréhension du phénomène d'autoallumage. Ce dernier ayant lieu à l'échelle moléculaire, l'échelle microscopique est abordée par la suite. Les processus mis en jeu au sein des deux phases sont considérés et expliqués selon les différentes théories développées au cours des dernières décennies. Différentes études relatives à l'autoallumage des solides sont ensuite présentées afin d'inscrire ce travail dans la continuité des différents travaux de la communauté scientifique.

Le second Chapitre tisse quant à lui le lien entre les phénomènes étudiés au Chapitre I et le modèle utilisé pour décrire ces derniers. Un rappel des besoins y est effectué afin de justifier les choix qui ont été faits tout au long de ces trois années de travail. Ces besoins sont d'ordre numérique mais il est également fait mention des besoins en données d'entrées fiables qu'exigent les logiciels de simulation. Ces dernières sont répertoriées pour la phase condensée et pour la phase gazeuse. Les configurations testées sont alors étudiées dans le détail et une étude de faisabilité est menée quant à la capacité de FDS à répondre à la problématique. Cette étude, conduite dans une dimension, aboutit à la réalisation de cas en deux dimensions, reproduisant à une échelle moindre les conditions de test du cône calorimètre. Une étude de sensibilité au maillage est ensuite menée dans les deux phases (condensée et gazeuse) afin d'optimiser la précision des calculs. Certains résultats notables mais écartés par la suite de l'étude sont également présentés afin de constituer une base de réflexion pour le lecteur souhaitant approfondir les travaux déjà entamés.

Le troisième et dernier Chapitre expose les résultats obtenus au cours de ce doctorat. Etant donné le niveau de précision obtenu en Simulation Numérique Directe, une note est donnée en début de Chapitre III quant à l'utilisation du modèle et quant à l'exploitation des résultats. Ces derniers sont ensuite présentés au lecteur et discutés d'un point de vue scientifique. Les résultats sur l'ensemble des simulations sont détaillés puis deux cas représentatifs sont sélectionnés pour une analyse plus précise. Une comparaison des régimes identifiés est alors menée en vue d'apporter une analyse complète de ce travail au lecteur. Ce cas test permet notamment de valider certaines hypothèses émises quant aux régimes d'autoallumage identifiés.

Pour finir, une Conclusion générale effectue un récapitulatif du sujet traité et des résultats obtenus. Elle permet également de recentrer le sujet théorique au cœur de sa problématique pratique. Les perspectives de recherche en lien avec les thématiques de l'auto-inflammation, de l'utilisation de la DNS dans le domaine de la sécurité incendie et de la simulation à grande échelle sont ensuite exposées. Elles orientent de futurs travaux scientifiques autour de ces thématiques.

Chapitre I : Du bâti urbain à l'échelle de la matière

Nous venons de voir dans quel contexte le présent projet de recherche a pu prendre place et en quoi il est aujourd'hui en phase avec les besoins des différents acteurs du monde de la recherche mais aussi des opérationnels et des professionnels du secteur de l'assurance.

Le présent Chapitre a pour but de passer de cette échelle macroscopique à une échelle plus fine, l'échelle de la matière. L'objectif de ce changement d'échelle est d'apporter au lecteur une compréhension détaillée des phénomènes en jeu avant de les prendre en considération à une échelle plus importante.

L'inflammation constituant un processus inhérent à tout départ de feu, sont présentés dans ce Chapitre les mécanismes liés à l'inflammation des matériaux dans leur ensemble. Nous mettons alors en évidence les critères énoncés par la littérature pour caractériser ce phénomène initiateur d'une flamme établie. Sont étudiés dans un premier temps les phénomènes prenant place en phase condensée et la manière dont celle-ci interagi avec la phase gazeuse. Les aspects thermiques et chimiques de l'inflammation de la phase gazeuse sont alors détaillés. En dernier lieu un état de l'art des études concernant l'auto-inflammation du PMMA, matériau retenu pour nos travaux, est réalisé.

SOMMAIRE DU CHAPITRE I

I.1 - Etat de l'art sur la simulation de la propagation des sinistres à grande échelle : modèles existants en incendie 6
I.1.1 - Feux de forêts 6
I.1.2 - Feux urbains, ensembles multi compartimentés 8
I.2 - Inflammation des solides 13
I.2.1 - Préambule langagier 13
I.2.2 - Inflammation pilotée vs. Auto-inflammation 13
I.2.3 - Mécanismes macroscopiques d'inflammation des solides 14
I.2.4 - Critères d'inflammation des solides, état de l'art 16
I.3 - La phase condensée 19
I.3.1 - Décomposition thermique des solides, aspects chimiques 19
I.3.2 - Décomposition thermique des solides, aspects thermiques 23
I.3.3 - Couplage des aspects chimiques et thermiques 25
I.4 - La phase gazeuse 26
I.4.1 - Mécanismes de l'auto-inflammation, approches utilisées en phase gazeuse 26
I.4.2 - Couplage solide/gaz 37
I.5 - Principaux travaux : cas PMMA 42
I.5.1 - Travaux de Tsai et al. 42
I.5.2 - Shi et al. 46
I.5.3 - Peng et al. 47
I.6 - Conclusion de fin de chapitre 49

I.1 - Etat de l'art sur la simulation de la propagation des sinistres à grande échelle : modèles existants en incendie

Changements climatiques, risques majeurs, menaces dites « non-conventionnelles », villes aux croissances incessantes et enjeux associés sont autant de paramètres poussant le gestionnaire de risques à considérer les aléas de manière globale et à l'échelle de territoires : l'échelle dite « urbaine ». Ce concept de résilience est un enjeu national et transparait notamment dans des documents gouvernementaux (CEREMA, 2015). Pour effectuer son analyse, il doit faire appel à des modèles répondant aux problématiques auxquelles il fait face. Depuis plusieurs années maintenant, la démocratisation des moyens de calculs puissants permet de conduire ce type d'étude en vue d'optimiser la sécurité et la réponse opérationnelle de la cité. Il est possible d'illustrer ces propos au travers de risques tels que celui d'inondation (Laboratoire ICube, UMR CNRS 7357) et des travaux japonais sur les impacts de séismes (Himoto & Tanaka, 2012).

Fort de ces constats, la communauté de l'ingénierie de la sécurité incendie a également été à l'initiative de projets de recherche autour des problématiques de propagation de feux à grande échelle. Les feux de milieux naturels ont notamment été les premiers à être modélisés sur des surfaces importantes.

Dans leur étude sur la simulation de la propagation du feu en milieu urbain, Breton adopte une démarche similaire à la nôtre pour dresser un état de l'art des modèles existants (Breton & Duthen, 2008). Ce travail a également été mené à l'international par Weber et Perry (Perry, 1998; Weber, 1991).

Toutefois, la description des modèles de propagation en zone urbaine passe avant tout par la description des premiers modèles développés pour de grandes échelles, ceux des feux en milieux naturels.

I.1.1 - Feux de forêts

Les feux de forêts sont sources de nombreuses approches de simulations. En se basant sur l'article (de référence) de Weber relatif à la propagation du feu dans des lits des combustibles, Breton décrit trois types de modèles abordés sur ces thématiques depuis les années 70. Tout d'abord, Il s'attarde sur des modèles purement statistiques (ou probabilistes), ne prenant pas en considération les aspects physico-chimiques de la propagation du front de flamme. Ces modèles sont construits à partir de cas tests et leur efficacité est limitée par le manque de données accessibles ainsi que par la particularité des feux en milieu naturel. Ils reposent sur la construction de relations mathématiques entre des variables explicatives, telles que la végétation ou le vent, et des résultats observés, tels que la position du front de flamme. Les modèles probabilistes permettent de prédire les valeurs moyennes des caractéristiques des évènements et restent utiles dans le cadre d'une analyse de risque par exemple (Brunelle, 2007; Colin et al., 2001).

Les modèles semi-empiriques (ou semi-physiques) prennent en considération des données d'entrée telles que la masse volumique du combustible et son enthalpie pour définir une vitesse du front de flamme en fonction des conditions énergétiques. Le modèle de Rothermel (Rothermel, 1972) est à la base de cette typologie de modèles semi-empiriques. Ces données d'entrées sont définies à l'échelle du laboratoire. C'est notamment le cas des codes de calculs BEHAVE et FARSITE. La représentativité des données issues de l'expérience à l'échelle du laboratoire est discutable pour des feux de grande ampleur et les résultats de ces codes doivent être considérés

avec précaution par les utilisateurs du fait de leur validité sous certaines conditions. Peu coûteux en temps de calcul, ils restent très utiles aux services de secours. De plus en plus, ces modèles viennent à être couplés à des relevés de terrain relatifs à la position du front de flamme (repérages aériens par avion ou drone) et à la météo (le lecteur est invité à se rapprocher des travaux des Universités de Lorraine, d'Aix-Marseille, de Corse et du Maryland pour plus d'informations). Un exemple de ce type de modèle est donné ci-dessous via les travaux de l'Institut Universitaire des Systèmes Thermiques Industriels (IUSTI) (Figure 5) et du Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (LEMTA) (Figure 6) afin de déterminer les distances de débroussaillement autour d'un bâtiment via le modèle de Petit Monde développé par l'IUSTI. La flamme est alors assimilée à un cylindre qui vient impacter son milieu en fonction de la direction du vent, de l'inclinaison de la flamme, etc.

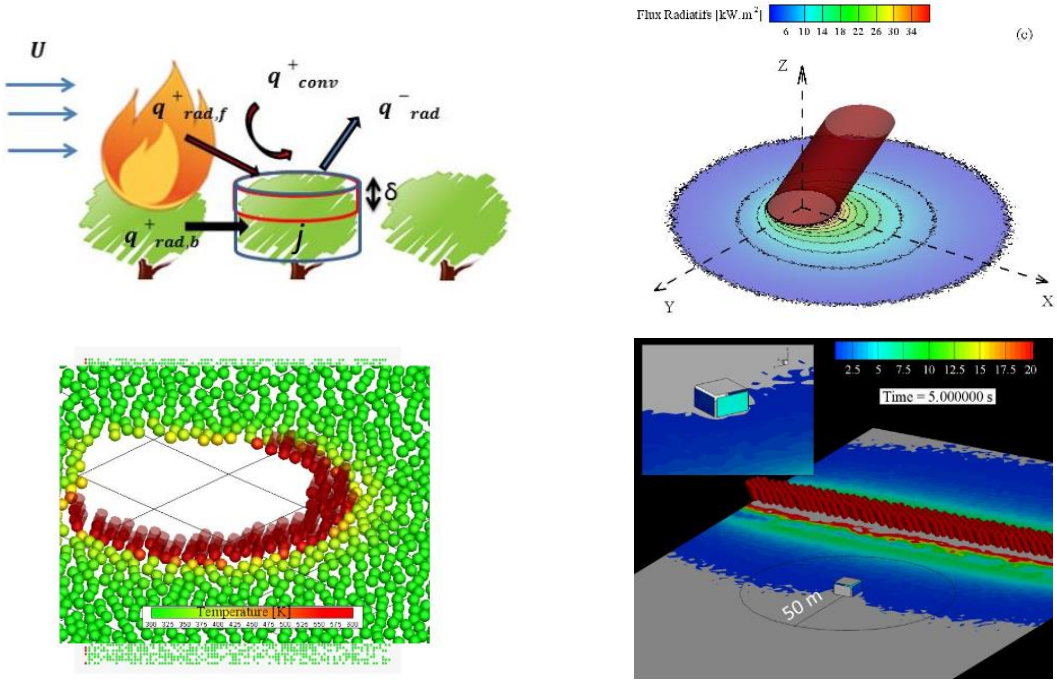


Figure 5 : Exemple dimensionnement d'ouvrage ; extrait de De Gennaro (De Gennaro et al., 2014)

Figure 6 : Test de la même configuration à l'échelle du laboratoire ; extrait de Marchand (Marchand et al., 2016)

L'évolution des connaissances et des moyens de calculs s'oriente depuis quelques années alors vers des modèles physiques (ou déterministes) qui considèrent les transferts de chaleurs entre la zone de combustion et la zone non brûlée. Certains modèles multiphasiques ont également été développés (Morvan, 2015). Ces derniers prennent en considération la pyrolyse des solides et les réactions se produisant en phase gazeuse. A l'heure actuelle, ces modèles sont d'avantage utilisés

d'un point de vue de la recherche que d'un point de vue opérationnel mais les ressources de calculs croissantes peuvent laisser espérer des applications directes d'ici quelques dizaines d'années[1].

Les travaux de thèse de Margerit (Margerit, 2003) mettent en avant le niveau de détail de chaque type de modèle, tout en prenant en considération les besoins en fonction des différentes échelles d'étude. Cette classification est également donnée par Porterie et Santoni (Porterie & Santoni, 2015) sur la Figure 7 ci-dessous.

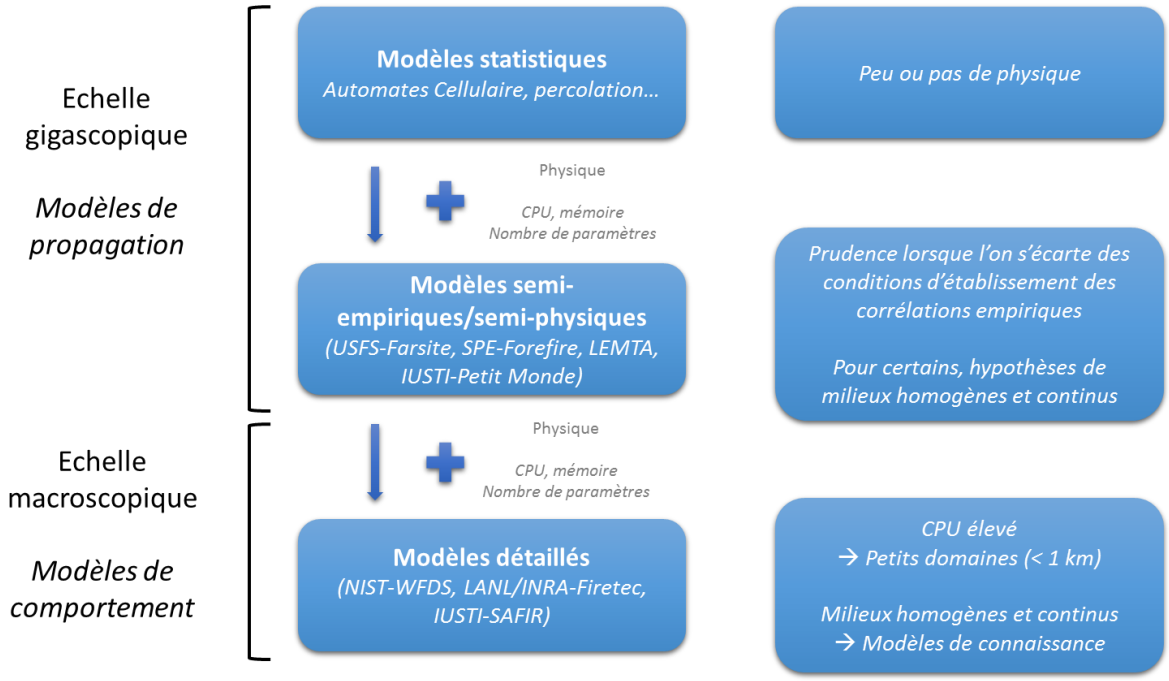


Figure 7 : Classification des modèles de feux de forêts par échelle d'observation ; modifiée de Porterie (Porterie & Santoni, 2015)

Certains modèles prennent également en considération les interfaces entre zones forestières et zones urbaines. Le récent feu de Fort McMurray en Alberta (Canada) est un exemple tragique de la nécessité d'application de ce type de modèle.

I.1.2 - Feux urbains, ensembles multi compartimentés

Fort de l'expérience acquise dans la simulation à grande échelle pour les feux de milieux naturels, le monde de la recherche en sécurité incendie s'est orienté depuis plusieurs dizaines d'années vers le développement de modèles simulant la propagation dans des ensembles multi compartimentés, comme les zones urbaines. La ville est alors divisée en compartiments, avec des maillages réguliers ou non et pour certains modèles, des propagations horizontales et verticales sont prises en considération.

Beaucoup de ces modèles ont notamment été développés au Japon afin de gérer au mieux les incendies post-séismes sur de grandes superficies urbanisées. Par ailleurs, une certaine quantité de bâtiments sont encore en bois dans les villes de ce pays, ce qui peut favoriser la propagation du sinistre. Pour ce type de modélisations, deux approches sont également adoptées et rejoignent celles développées pour les feux de milieux naturels. Des modèles empiriques macroscopiques (C.

[1] Nous reviendrons sur ce point dans nos conclusions et perspectives.

Scawthorn, Yamada, & Iemura, 1981) existent et sont basés sur les équations d'Hamada. Beaucoup de ces travaux ont été reportés dans la littérature anglo-saxonne (Charles Scawthorn, Eidinger, & Schiff, 2005) mais ne sont pas accessibles à cette étude car non-traduits du japonais (il s'agit notamment des études d'Horiuchi et de Terada). Hamada a construit ce modèle sur ses observations de grands feux urbains suite à des séismes ou en temps de guerre avant 1945. Ce type de modèle tend aujourd'hui à surestimer les risques de propagation aux vues de l'évolution des matériaux et des normes de construction (Namba & Yasuno, 1986). Le développement typique du feu dans ces approches est donné par la Figure 8 ci-dessous.

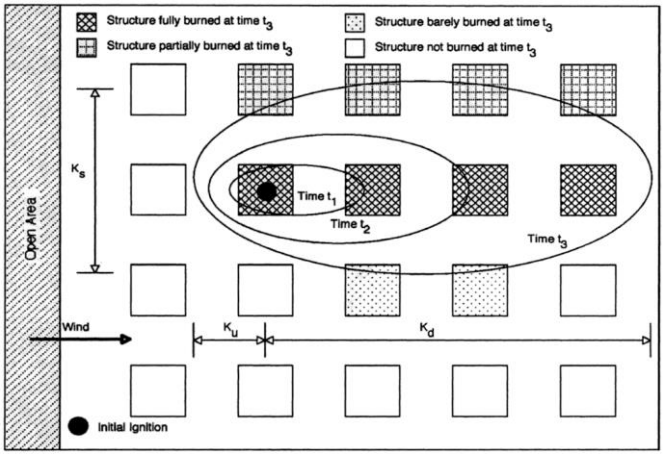


Figure 8 : Modélisation de propagation entre bâtiments basée sur le modèle d'Hamada (Scawthorn et al., 2005)

Dans leurs travaux de modélisation de la propagation de feu dans des bâtiments via des réseaux Bayésiens, Cheng et Hadjisophocleous dressent un état des lieux des différentes méthodes existantes actuellement (Cheng & Hadjisophocleous, 2009). Pour ce faire, ils se basent notamment sur les travaux de Ramachanandran et sa description des modèles stochastiques de propagation. Plusieurs approches probabilistes sont alors décrites et analysées par les auteurs :

- Les théories épidémiologiques.
- Les théories de marche aléatoires.
- Les processus de Markov.
- Les processus de percolation.
- Les réseaux probabilistes.

Selon les auteurs, toutes ces méthodes présentent des inconvénients en termes de représentativité de la physique des phénomènes. Ils proposent alors une approche via un réseau bayésien, prenant en considération l'évolution du feu au cours du temps, ainsi que sa propagation horizontale et verticale au sein du bâtiment. Ces travaux ont été complétés par des expérimentations sur le rayonnement émis sur des cibles adjacentes à un feu afin de compléter le modèle.

Les automates cellulaires sont aussi très souvent utilisés dans le domaine de la simulation des feux en milieux urbains (Ohgai et al. , 2007; Thomas & Baker, 2008; Zhao, 2011). En effet, ces derniers permettent de reproduire le maillage d'une ville en attribuant des caractéristiques de combustibilité à une cellule et différents états possibles. Au temps $t + 1$, les états de ces cellules évoluent en fonction des états considérés au temps t. Certains modèles d'automates, couplés à des systèmes d'information géographique, permettent de générer des maillages irréguliers, utiles

dans la représentation d'une ville (Ohgai et al., 2007; Zhao, 2011). Ces modèles intègrent pour certains l'action des services de secours ainsi que les impacts humains et économiques pour les villes (Zhao, 2011). Aujourd'hui, ces outils sont utilisés pour l'évaluation des risques à l'échelle d'un territoire mais ils prennent peu en considération la physique des incendies.

Avec les avancées des outils informatiques, des modèles basés sur la physique des phénomènes peuvent être utilisés à grande échelle comme nous avons pu le voir dans le domaine d'application des feux de forêts. C'est également le cas pour les incendies en milieux urbains. Nous entrerons ici dans le détail de ces travaux afin de comprendre le fonctionnement des modèles et l'intégration de l'inflammation dans ces derniers.

Himoto et Tanaka sont à l'origine de plusieurs articles incluant d'avantages les phénomènes physiques dans leur simulation d'incendies à grande échelle (Himoto et al., 2008; Himoto & Tanaka, 2008, 2012). Deux sous modèles sont utilisés :

- Un modèle propre à la propagation dans les bâtiments.
- Un modèle lié à la propagation entre édifices.

Chaque compartiment est alors considéré comme un volume de contrôle pour lequel les équations de conservation sont appliquées. Ils sont considérés comme uniformes.

Le modèle de propagation entre bâtiments intègre trois facteurs :

- Le rayonnement des bâtiments atteints vers les non-atteints.
- L'augmentation de la température due au panache de fumées.
- Le transport de brandons d'un bâtiment à un autre.

La propagation a alors lieu si une des trois conditions suivantes est réunie :

- Dépassement d'une valeur critique d'éclairement énergétique.
- Dépassement d'une valeur critique de température des murs extérieurs.
- Chute de brandons avec un état énergétique élevé.

Les facteurs physiques intégrés dans ce modèle sont schématisés sur la Figure 9 ci-après.

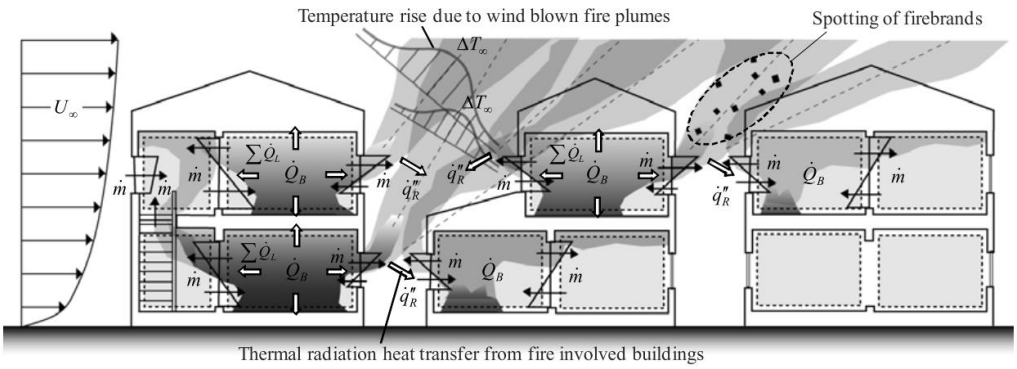
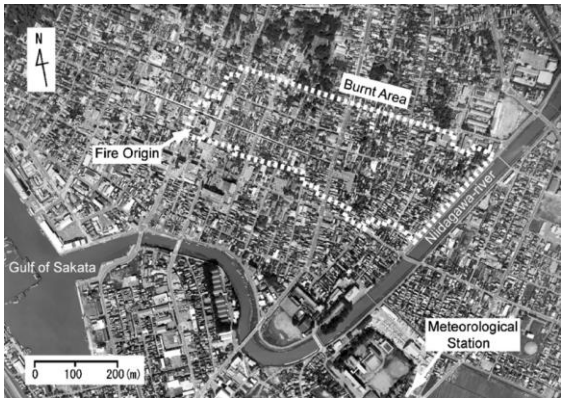


Figure 9 : Paramètres physiques intégrés dans le modèle de propagation d'Himoto (Himoto et al., 2008; Himoto & Tanaka, 2008)

Après une validation de cette étude sur un cas d'incendie réel, une analyse du risque d'incendie a pu être menée à l'échelle d'un quartier d'une ville Japonaise ayant connu un grand incendie dans les années 70, via une méthode de Monte Carlo (Figure 10 (a) et (a')). Plusieurs hypothèses ont été cependant faites dans ce modèle. Comme nous l'avons mentionné pour la France en

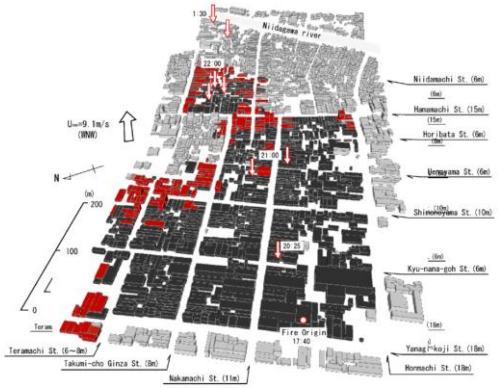
préambule, il est impossible sans étude statistique précise, de connaitre les matériaux de construction, la configuration et l'aménagement de chaque local. Si ses premières prédictions ont montré des résultats surévalués par rapport à l'incendie réel (Figure 10 (b), (b') et (b'')), Himoto est également allé plus loin dans le développement de son modèle en y ajoutant l'impact de l'action des forces de secours (Himoto & Tanaka, 2012) (Figure 10 (c), (c') et (c'')). C'est également le cas du modèle proposé par Li et Davidson (S. Li & Davidson, 2013; S. Li, Davidson, & Lee, 2011) intégrant trois sous-modèles : un lié à l'inflammation, un lié à la propagation et un lié à la mitigation du feu par les services d'incendie et de secours. Des figures issues des travaux d'Himoto sont présentées ci-après afin de mieux appréhender le type de résultats obtenus.

(a)

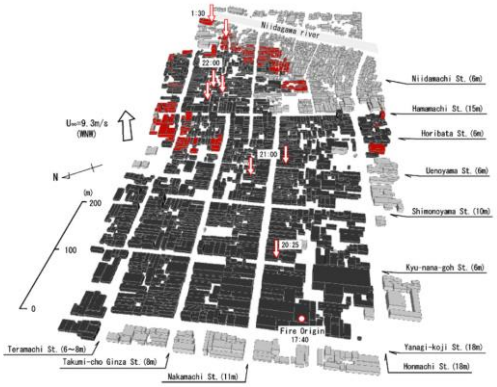


(a')

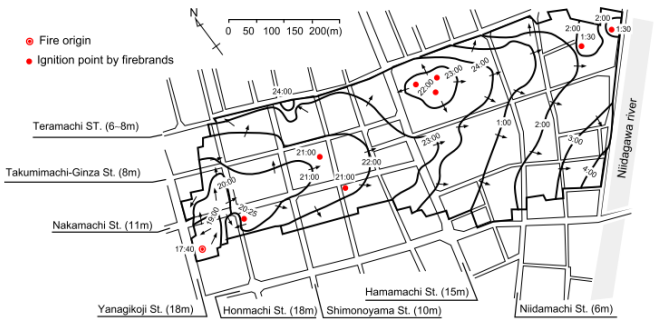
(b)



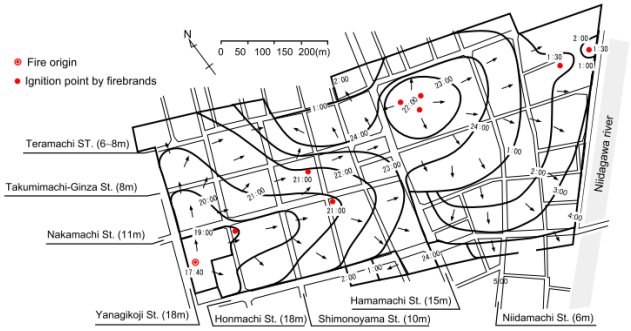
(b')



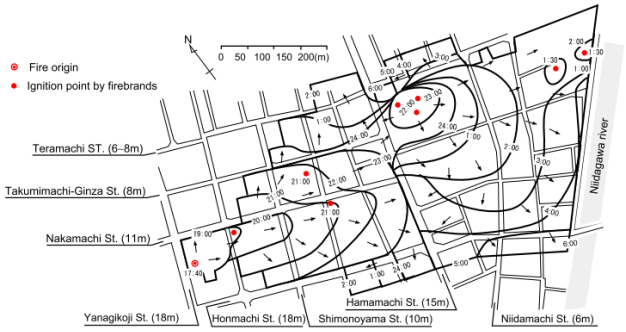
(b'')



(c)



(c')



(c'')

Figure 10 : Résultats issus des travaux d'Himoto ; (a) et (a') Vision globale du feu étude ((Himoto & Tanaka, 2008) ; (b)(b')(b'') Résultats fournis par le modèle à différents pas de temps (Himoto & Tanaka, 2008) ; (c) Contours des dégâts engendrés par le feu réel ; (c') Contours des dégâts engendrés par le feu simulé en y intégrant l'action des secours (Himoto & Tanaka, 2012)

Comme nous avons pu le constater, l'évolution de ces modèles et leur précision est aujourd'hui en pleine évolution dans un contexte de résilience des villes face aux risques majeurs. Tout comme pour les feux de milieux naturels, l'évolution des moyens de calculs a permis de faire évoluer les modèles purement probabilistes vers des modèles d'avantage déterministes intégrant des aspects physiques de l'incendie. Ils restent cependant basés sur des simplifications et des hypothèses qui nécessitent une considération importante du territoire et de son aménagement. Les normes en vigueur, les matériaux utilisés et les configurations des locaux restent des variables importantes à prendre en considération. Par ailleurs, la propagation des incendies est conditionnée par l'inflammation des matériaux adjacents, toutefois ce phénomène n'est souvent pris en considération qu'à travers une valeur seuil de température, de temps d'exposition ou d'éclairement énergétique. Ce phénomène est cependant complexe et répond aux lois de la

physique et de la chimie à une échelle microscopique. Il doit donc être étudié en détail pour pouvoir ensuite être simplifié dans ce type de modèle.

I.2 - Inflammation des solides

I.2.1 - Préambule langagier

La norme NF EN ISO 13943 (Organisation Internationale de Normalisation, 2008) apporte des éléments de langage qui pourront être utilisés tout au long de ce mémoire de thèse. Pour une meilleure compréhension du lecteur, certaines définitions sont abordées ici avec quelques précisions complémentaires propres à ce document.

La combustion se définie comme une réaction chimique d'oxydoréduction en phase gazeuse, globalement et généralement exothermique, autonome, susceptible de s'accélérer et d'être accompagnée d'émission de rayonnements.

L'ingénierie de la sécurité incendie repose sur la compréhension du phénomène « feu » dans son ensemble. On parle notamment chez les opérationnels de « système feu », impliquant, entre autres, la dégradation thermique de matériaux solides. La notion de système est intéressante dans le sens où ce domaine d'étude implique différents sous-domaines en interaction et qu'il convient d'étudier de manière couplée. On parlera d'incendie lorsque le feu revêt un caractère accidentel. La norme différencie feu et incendie au caractère délibéré ou non de la mise en place du phénomène pour produire des effets utiles et par le contrôle de l'extension du phénomène dans l'espace et dans le temps.

Si la combustion est associée à la notion d'homogénéité des phases entre combustible et comburant (gaz/gaz), dans le cas du feu, le terme de combustion hétérogène est souvent utilisé par abus de langage, signifiant que l'émanation gazeuse de combustible nécessaire à la réaction résulte de la décomposition thermique d'un composé liquide ou solide.

La présente étude porte sur l'inflammation (ou l'allumage) des solides, menant à l'établissement d'une flamme stable en surface du matériau. Cette inflammation résulte donc de la réaction entre le combustible gazeux provenant de la dégradation du solide et l'air ambiant (Quintiere, 2006). La norme définie l'inflammation comme la première apparition de flamme. On parle également d'auto-inflammation ou d'autoallumage pour qualifier une inflammation résultante d'une augmentation de température sans apport d'une source de chaleur. Le temps nécessaire entre le début de la décomposition du matériau et son autoallumage est qualifié de délai d'autoallumage ou de délai d'auto-inflammation. La température d'autoallumage correspond alors à la température minimale au-dessus de laquelle l'inflammation est obtenue lors d'un essai feu.

La thermodynamique et la cinétique chimique sont de ces sous domaines qui entrent en jeu au cours de la combustion et plus particulièrement lors de l'inflammation (Glassman & Yetter, 2008). Ces notions sont donc étudiées dans les parties suivantes de ce chapitre.

I.2.2 - Inflammation pilotée vs. Auto-inflammation

L'étude de la combustion a très vite conduit à l'étude des phénomènes menant à l'inflammation. Cette étape du processus de combustion est notamment décrite en combustion des solides dans des travaux de recherche appliqués à l'aéronautique (Kashiwagi et al., 1971; Kashiwagi, 1994), mais aussi dans des applications liées à l'inflammation des mélanges dans les moteurs. L'auto-

inflammation est ainsi importante dans le cas des motorisations diesel, fonctionnant sur le principe de l'augmentation de la pression causée par le piston.

Deux types d'inflammations d'un mélange combustible/comburant sont définis par la littérature en fonction de la présence ou non d'une source d'allumage (Atreya, 1998). On parle d'inflammation pilotée (ou forcée) ou d'auto-inflammation (ou spontanée). Dans le cas d'une inflammation pilotée, le mode d'allumage pourra être une étincelle, un point chaud ou une flamme pilote. L'auto-inflammation résulte quant à elle de l'échauffement du mélange lié à une production d'énergie supérieure aux pertes de chaleur inhérentes au système et à son environnement.

I.2.3 - Mécanismes macroscopiques d'inflammation des solides

Des auteurs tels que Quintiere (Quintiere, 1998, 2006) décrivent dans leurs ouvrages l'inflammation et ses processus au travers d'une dimension temporelle : le délai d'inflammation, noté t_{ig}. Cette approche macroscopique prend en compte trois temps caractéristiques au travers des trois étapes nécessaires à l'inflammation du solide.

Premièrement, un temps de pyrolyse (t_{py}) lié à l'échauffement et à la production du gaz est défini. Ce temps est directement lié au taux de réaction du solide répondant à une loi d'Arrhenius qui sera définie ultérieurement dans ce mémoire.

Deuxièmement, Quintiere aborde la notion de temps de mélange (t_{mix}) qui dépend de deux processus :

- Le processus de transports des gaz de pyrolyse de la zone solide en surface de matériau. Ce temps caractéristique de transport peut être non-négligeable dans le cas de matériaux solide poreux par exemple. En effet, les réactions de pyrolyse étant des réactions en volume, elles peuvent avoir lieu dans l'épaisseur de la phase condensée et pas seulement à la surface du solide. Les gaz ainsi produits sont transportés à la surface du solide en migrant à travers les pores.
- Le processus de transport de la surface à la zone réactionnelle en phase gazeuse. Les gaz sont en général transportés par les grosses structures turbulentes au sein de la phase gazeuse de combustion : c'est le processus d'advection. Par la suite, les gaz de pyrolyse et le comburant sont mélangés localement par les processus de diffusion moléculaire et de diffusion turbulente si l'écoulement n'est pas pleinement laminaire.

L'inflammation pourra donc se produire lorsque la Limite Inférieure d'Inflammabilité (LII) du mélange sera atteinte.

On peut noter ici que les conditions de tests et les perturbations des conditions aérauliques pourront impacter cette étape de manière non négligeable.

Troisièmement, un temps chimique (t_{chim}) est défini. Cette notion correspond à l'échelle de temps caractéristique du processus chimique qui correspond au temps de réalisation de la réaction et peut être directement corrélé à la vitesse de réaction. Nous reviendrons sur la phénoménologie en phase gazeuse dans la partie suivante.

Cette phénoménologie en trois étapes montre que le temps d'inflammation résulte de la somme de ces trois temps caractéristiques décrits par Quintiere :

$$t_{ig} = t_{py} + t_{mix} + t_{chim} \qquad \text{Eq. I.1}$$

La formation de la zone inflammable gazeuse au-dessus de la phase condensée est résumée par Fernandez-Pello sur la Figure 11 (Fernandez Pello, 2011).

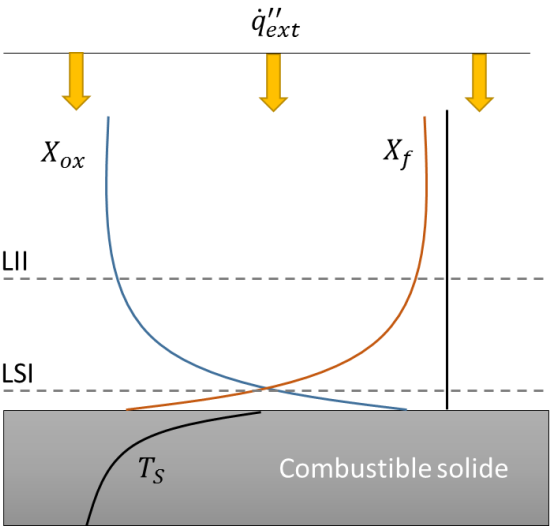


Figure 11 : Mise en évidence des limites supérieure et inférieure d'inflammabilité lors du dégagement de gaz de pyrolyse au-dessus du solide ; extraite, modifiée et traduite de Fernandez Pello (Fernandez Pello, 2011)

Sur cette figure, deux valeurs seuils sont mentionnées, et correspondent aux limites inférieure et supérieure d'inflammabilité (LII et LSI). Ces deux grandeurs seront décrites ultérieurement de manière plus approfondie mais nous pouvons les introduire ici. Souvent utilisées dans l'ingénierie de la sécurité, ces limites (directement reliées à la notion de richesse d'un mélange[2]) permettent de fixer un pourcentage volumique en dessous et au-dessus duquel aucune combustion n'est possible.

Au-delà de cette phénoménologie, Lentini propose une approche très simplifiée des conditions requises pour conduire à l'inflammation d'un solide à travers le schéma présenté en Figure 12 (Lentini, 2006). Ces conditions sont effectivement nécessaires à l'établissement de la flamme en surface de l'échantillon et elles sont abordées au Chapitre II. Pour des surfaces trop petites à des éclairements énergétiques trop faibles, nous avons notamment pu constater qu'aucune auto-inflammation n'avait lieu.

[2] Par convention, en combustion, la richesse d'un mélange, souvent notée ϕ, fait référence à la quantité de combustible présente dans le mélange et ce par rapport aux proportions stœchiométriques. Lorsque la quantité en combustible dans le mélange est supérieure à la stœchiométrie, le mélange est dit « riche », à l'inverse, il sera dit « pauvre ». Elle est définie par la relation : $\phi = \left(\frac{[Combustible]}{[Comburant]}\right)_r / \left(\frac{[Combustible]}{[Comburant]}\right)_{st}$.

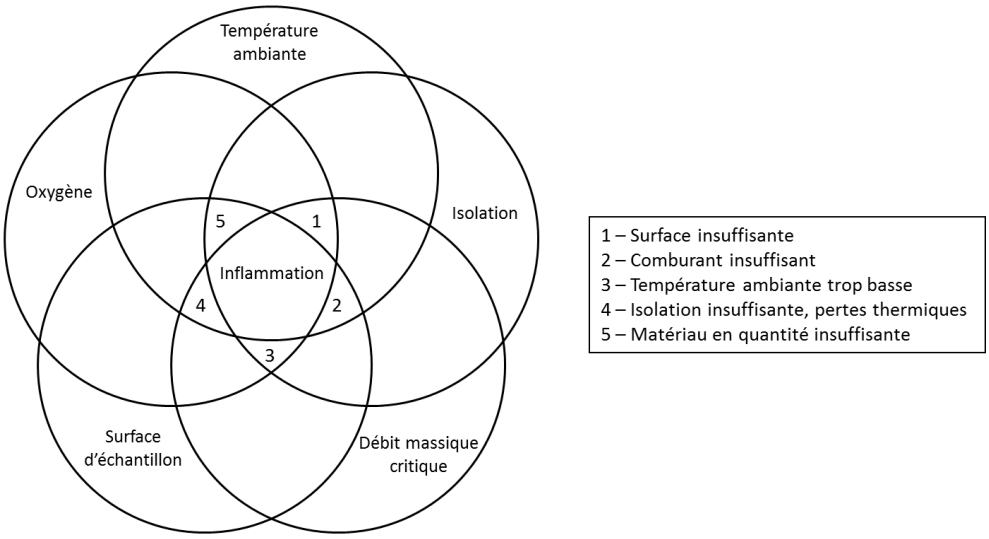


Figure 12 : Représentation schématique des conditions requises pour l'auto-inflammation d'un solide ; extraite, modifiée et traduite de Lentini (Lentini, 2006)

D'un point de vue macroscopique, différents auteurs donnent des techniques d'estimation des délais d'inflammation des solides via des formules empiriques. Ces dernières sont notamment issues de Quintiere (Quintiere & Harkleroad, 1984), Janssens (Janssens, 1991) et Tewarson (Tewarson, 2002) et ne seront pas détaillées ici. Pour plus d'information sur les méthodes de détermination du temps d'inflammation via ces méthodes séparant solides thermiquement fins et thermiquement épais, nous invitons le lecteur à se référer aux travaux de synthèse bibliographique de Babrauskas (Babrauskas, 2003).

I.2.4 - Critères d'inflammation des solides, état de l'art

Dans le domaine de l'ingénierie de la sécurité incendie, de nombreuses études ont été menées sur l'inflammation avec l'apparition d'installations expérimentales telles que le cône calorimètre et le dispositif de vitesse de propagation latérale de flamme (IMO LIFT) (Babrauskas & Grayson, 1992; Deepak & Drysdale, 1983; Lyon & Quintiere, 2007; Rasbash et al., 1983; Spearpoint & Quintiere, 2001; Zhou & Fernandez-Pello, 2000). Ces auteurs mettent en avant l'importance de critères, donnés dans le Tableau 2 (Boonmee, 2004). L'auto inflammation est quant à elle moins explorée de nos jours, malgré des travaux expérimentaux conduits dans les années 70/80 (Chao & Fernandez Pello, 1997; Kashiwagi et al., 1971; Kashiwagi, 1994; Niioka et al., 1981). Différents auteurs se sont attardés à trouver des critères permettant de mieux prédire ce phénomène. Ces derniers sont aussi répertoriés dans le Tableau 2 (Boonmee, 2004).

Tableau 2 : Critères d'inflammation identifiés dans la littérature ; extrait, modifié et traduit de Boonmee (Boonmee, 2004)

Références	Critère d'inflammation	Expression mathématique	Contexte de l'étude
Bamford	Débit massique critique	$\dot{m}''_{g,S} \geq 2{,}5\ g.m^{-2}.s^{-1}$	Inflammation pilotée du bois
Zhou et al.	Température de la phase gaz à un maximum critique	$T_{g,\,max} \geq T^{*}_{g,max}$	Inflammation pilotée du PMMA
Kanury	Débit massique critique	$\dot{m}''_{g,S} \geq 1 \sim 4\ g.m^{-2}.s^{-1}$	Auto-inflammation et inflammation pilotée
Simms	Température critique moyenne du solide	$\bar{T}_{Solide} = 525\ °C$	Auto-inflammation de la cellulose
Martin, Alavares et al.	Température critique de surface	$T_S = 600 \sim 650\ °C$	Auto-inflammation de la cellulose
Kashiwagi	Taux de réaction total critique	$\int \dot{\omega}'''_g\, dx \geq \left(\int \dot{\omega}'''_g\, dx\right)^{*}$	Auto-inflammation de combustibles solides
Gandhi	Inversion du gradient de température du gaz à l'interface solide/gaz	$\left(\frac{\partial T_{g,\,max}}{\partial x}\right)_{Surface} = 0$	Auto-inflammation de la cellulose
Tsai et al.	Augmentation de la température de la phase gaz à un maximum critique	$\frac{\partial T_{g,\,max}}{\partial x} = 0$	Auto-inflammation et inflammation pilotée du PMMA
Nakamura et Takeno	Taux de réaction critique	$\dot{\omega}'''_g \geq 0{,}1 \sim 0{,}3\ kg.m^{-3}.s^{-1}$	Auto-inflammation de la cellulose

On peut remarquer que tous ces auteurs définissent des critères d'inflammation se basant soit sur un bilan d'énergie, soit sur un bilan de masse à l'interface solide/gaz.

Au fil des années, une théorie a néanmoins été admise par la communauté scientifique concernant l'auto inflammation des solides. Cette théorie, observée pour la première fois dans le cadre d'études militaires, a été reprise et approfondie dans les travaux expérimentaux de Niioka (Niioka et al., 1981) puis de Fernandez Pello (Chao & Fernandez Pello, 1997) et de Torero (Torero, 2016). Dans son dispositif, Niioka expose une plaque de polyméthacrylate de méthyle à un jet d'oxydant chaud dont la vitesse peut être modifiée par l'expérimentateur. L'importance de la phase condensée dans l'auto-inflammation a ainsi été mise en avant comme décrit sur la Figure 13 ci-après.

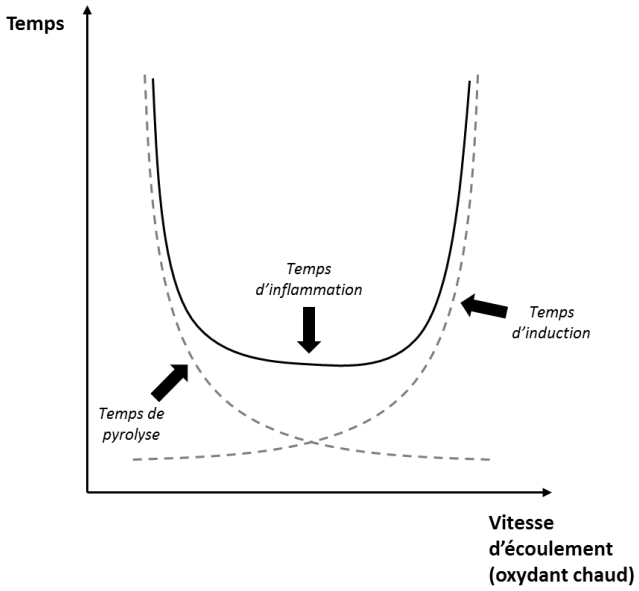


Figure 13 : Représentation du temps d'inflammation d'une plaque de PMMA soumise à un jet d'oxydant chaud en fonction de la vitesse dudit jet ; extraite, modifiée et traduite de Chao, Niioka et Torero (Chao & Fernandez Pello, 1997; Niioka et al., 1981; Torero, 2016)

Cette figure, adaptée de Niioka par Fernandez Pello a permis de mettre en évidence l'impact de la phase solide sur l'auto-inflammation (en phase gazeuse) et deux typologies d'auto-inflammation y sont exposées. Dans la première partie de cette courbe, le temps d'inflammation décroit en augmentant la vitesse d'écoulement de l'oxydant chaud. Niioka définit alors que cette diminution temporelle est liée à l'augmentation du transfert de chaleur entre l'oxydant chaud et la plaque de PMMA qui s'échauffe de plus en plus rapidement. Il met alors en avant que le temps de pyrolyse, correspondant au temps nécessaire afin que le mélange atteigne les limites d'inflammabilité, diminue lorsque le transfert de chaleur augmente. L'auto-inflammation se situe alors dans une zone qualifiée de « zone de pyrolyse » et est pilotée essentiellement par la phase condensée jusqu'à une certaine limite où le temps d'inflammation augmente à nouveau. Cette nouvelle zone est alors qualifiée de « zone de réaction » ou « zone d'induction ». Niioka la définit comme une zone où les phénomènes en phase gazeuse vont piloter l'inflammation. En effet, à partir d'une vitesse critique d'écoulement, le temps d'induction, représentant le temps nécessaire afin que le mélange atteigne une température suffisante pour s'enflammer, augmente largement en raison de la diminution du temps de séjour des gaz dans la zone de réaction.

Selon Niioka, le temps d'inflammation résulte de la compétition entre la vitesse du processus de mélange entre les gaz issus de la pyrolyse du solide et le comburant (dépendant en partie de la vitesse des gaz de pyrolyse à l'interface solide/gaz donc du débit de pyrolyse) et du temps de résidence du mélange réactif dans la zone de réaction, propice à l'inflammation.

En plus de cette distinction des auto-inflammations, l'analyse de ces travaux montre également l'importance des temps de la chimie et du transport dans la phase gazeuse, décrits par le nombre de Damköhler. Ce nombre adimensionné compare en effet le temps caractéristique de résidence des gaz à celui de la chimie (de manière analogue à ce qui peut être observé pour la phase condensée). Dans le SPFE Handbook of Fire Protection Engineering, Torero, s'appuyant sur ces travaux et ceux de Fernandez Pello, décrit finement ces typologies d'auto-inflammation. Dans certains cas, il décrit que l'auto-inflammation se situe à proximité du solide et dans un autre cas, plus haut dans la phase gazeuse. Cette différence est directement liée à la manière dont s'échauffe

le solide. Si ce dernier s'échauffe de manière très rapide, alors la phase gazeuse s'enflamme à partir du solide qui devient dès lors la source de l'inflammation. A l'inverse, si les gaz s'échauffent plus vite que le solide, alors l'inflammation a lieu dans la zone gazeuse.

Tous ces travaux mènent aujourd'hui à différents constats sur l'auto inflammation, lesquels ont été à l'origine de ce travail de thèse. Le premier est relatif à la nature même des critères trouvés dans la littérature : tous sont différents.

- Dans le Tableau 2, sont en effet exposées des grandeurs telles que des températures moyennes ou locales, des taux de réaction, des débits surfaciques, etc.
- Le deuxième constat est que tous ces paramètres ne sont pas facilement identifiables par l'expérimentateur. Il est par exemple difficile de déterminer un taux de réaction critique.
- Troisièmement, beaucoup de ces critères concernent la phase condensée ce qui peut laisser présumer un rôle important du solide dans le processus d'auto inflammation des matériaux.
- Quatrième et dernier constat, les matériaux et les conditions de tests sont très différents. Certains matériaux sont en effet thermiquement fins, d'autres épais et leur nature varie de feuilles de cellulose à des plaques de PMMA.

La nécessité d'homogénéité, de critères mesurables et de lois fiables a poussé cette étude vers une approche numérique. Les tests ne sont alors dépendants que des conditions aux limites et des données d'entrée des simulations, chaque paramètre étant défini par le modélisateur. Des données d'entrées fiables ont donc été sélectionnées à travers différentes études menées sur le polyméthacrylate de méthyle.

Les paragraphes précédents ont montré le rôle indissociable de la phase condensée et de la phase gazeuse sur le processus d'inflammation, en raison du fort couplage des phénomènes physico-chimiques issus de ces deux phases et de leur impact sur l'inflammation d'un solide. Il est donc proposé d'étudier dans le paragraphe suivant les processus physico-chimiques menant à l'inflammation des deux phases précédemment citées.

I.3 - La phase condensée

Cette partie se veut être une base de compréhension des phénomènes inhérents à la chimie du solide sous l'effet d'un éclairement énergétique. Les grandes notions de la décomposition thermique des solides sont abordées dans le même temps que des notions nécessaires à la compréhension des phénomènes d'auto-inflammation des solides. Pour d'avantage d'information sur les modèles de décomposition, le lecteur est invité à se référer aux travaux de Di Blasi, Stoliarov, Batiot, Bustamente Valencia, Hermouet (Batiot, 2014; Bustamante Valencia, 2009; Di Blasi, 2008; Hermouet, 2015; Li & Stoliarov, 2013).

I.3.1 - Décomposition thermique des solides, aspects chimiques

Comme décrit dans différents travaux de référence (Guillaume, 2013; Marquis, 2010; Torero, 2016), les solides se décomposent thermiquement en produisant des gaz combustibles couramment appelés gaz de pyrolyse. Ces gaz combustibles, mélangés à l'air ambiant dans des frontières de richesses adéquates, sont susceptibles de s'enflammer à l'aide ou non d'un pilote. On parle dès lors d'inflammation pilotée ou d'auto inflammation. La représentation des phénomènes décrits ci-dessus est donnée dans la Figure 14 (Torero, 2016).

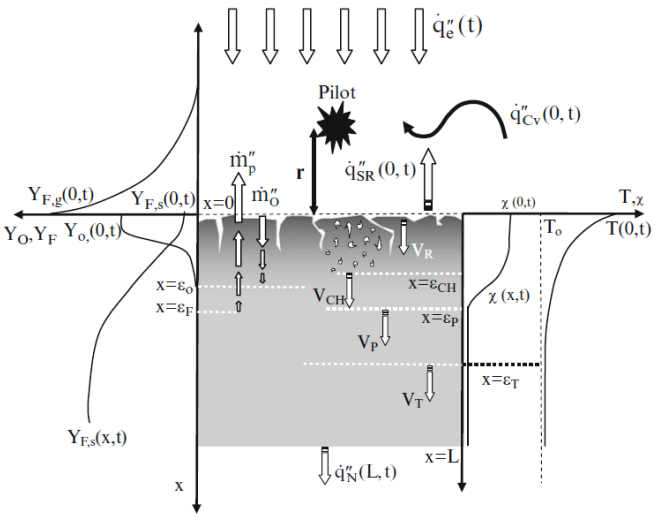


Figure 14 : Schématisation des profils de température et de fractions massiques lors de la décomposition d'un solide soumis à un éclairement énergétique ; extraite de Torero (Torero, 2016)

La décomposition thermique d'un matériau résulte de deux phénomènes couplés que représentent la pyrolyse et la thermo-oxydation. Sous l'effet d'un éclairement énergétique et par conduction principalement, la température au sein du matériau augmente lorsque le bilan d'énergie au sein d'un « volume solide » est positif. Les pertes d'énergie sont alors inférieures à l'apport externe d'énergie, éventuellement additionné à celle provenant des réactions exothermiques au sein même du volume solide. Dès lors, les réactions au sein du solide produisent des composés gazeux émis en surface. Concernant notre étude, le PMMA a été étudié et la décomposition générale des thermoplastiques est schématisée par Figure 15 ci-dessous (Guillaume, 2013).

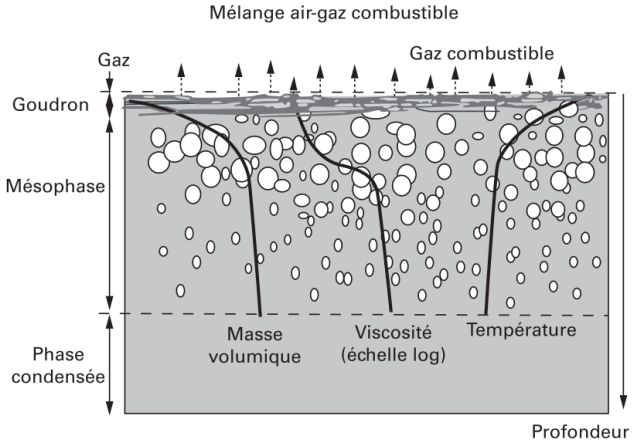


Figure 15 : Schématisation de la décomposition thermique d'un polymère plastique ; extraite de Guillaume (Guillaume, 2013)

Les phases décrites dans cette figure correspondent à différentes zones de décomposition dans le solide. La zone de surface exposée à l'éclairement énergétique est appelée zone de décomposition. La « mésophase » correspond à une zone thermiquement affectée. Dans le cas d'un polymère plastique comme le PMMA, elle correspond à une zone de changement d'état. La dernière zone correspond quant à elle à une partie non affectée du solide, encore en phase condensée. Ces aspects ont été traités en détail dans les travaux de thèse de Marquis (Marquis, 2010). Soumis à une quantité d'énergie supérieure à leurs énergies de liaison, les macromolécules composant le polymère subissent des ruptures. Différentes réactions, également décrites par Marquis,

provoquent une dépolymérisation du solide transformant ce dernier en gaz. Des exemples de ruptures de chaîne du polyméthacrylate de méthyle sont donnés ci-dessous, Figure 16 (Witkowski et al., 2016).

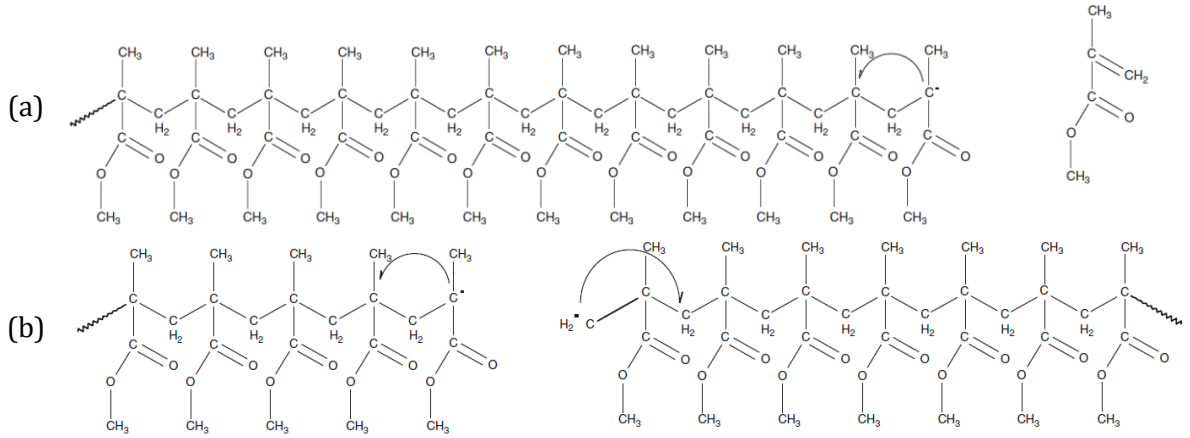


Figure 16 : (a) Rupture de fin de chaîne ou (b) rupture en milieu de chaine ; extraite de Witkowski (Witkowski et al., 2016)

Ces réactions, au niveau microscopique, sont difficilement captables de manière fine à l'heure actuelle et à l'échelle du domaine de l'ingénierie de la sécurité incendie. Des travaux en chimie tels que ceux de Soustelle pourraient néanmoins permettre une meilleure approche de la chimie des solides. L'étude de ces réactions repose donc aujourd'hui sur l'observation de réactions dites « apparentes » (Batiot, 2014), mises en avant par des dispositifs expérimentaux comme l'analyse thermogravimétrique, la calorimétrie différentielle à balayage et les diverses analyses de gaz. Dans ses travaux de thèse, Batiot définit la réaction apparente comme « un ensemble de réactions microscopiques élémentaires qui, prises ensemble, semblent former une réaction macroscopique spécifique et indivisible ». Par analogie aux études menées en phase gazeuse, les réactions apparentes sont modélisées mathématiquement par l'utilisation d'une loi d'Arrhenius globale, dont la constante de vitesse k prend la forme générale (Drysdale, 2011; Quintiere, 1998; Torero, 2016) :

$$k = Ae^{-\frac{E_a}{RT}} \qquad \text{Eq. I.2}$$

Avec A, le facteur pré-exponentiel, E_a l'énergie d'activation, T la température et R la constante des gaz parfaits. Plus d'informations quant à cette relation et ses conditions d'applications aux solides sont présentées dans les travaux de Batiot (Batiot, 2014).

Toujours par analogie aux travaux menés en théorie cinétique des gaz, il est communément admis de définir un taux de réaction chimique en phase condensée comme suit :

$$\dot{\omega} = -\rho . e^{-\frac{E_a}{RT}} \qquad \text{Eq. I.3}$$

Ce taux de réaction dépend donc de la masse volumique ρ du matériau et de la constante de vitesse de réaction de dégradation mettant en jeu le matériau défini.

Cette équation du taux de réaction permet de définir deux concepts fondamentaux que sont la dépendance à la température de ce dernier mais aussi un temps caractéristique de la chimie. Celui-

ci est défini entre autres au sein des travaux de (Pyle & Zaror, 1984) comme l'inverse de la constante de vitesse k ou du taux de réaction :

$$t_{chim} = \frac{1}{k} = \frac{1}{Ae^{-\frac{E_a}{RT}}} \qquad \text{Eq. I.4}$$

Cette valeur permet donc de quantifier le temps caractéristique lié à la réaction considérée. Par analogie aux régimes de combustion en phase gazeuse, et en introduisant des échelles de temps caractéristique de transfert de chaleur à l'interface solide/gaz et interne au solide, il est possible de définir quatre régimes de décomposition thermique selon Pyle et Zaror qui seront discutés dans les paragraphes suivants (Pyle & Zaror, 1984).

De manière globale, il est possible de résumer la décomposition des matériaux plastiques à travers la Figure 17. Ce récapitulatif permet aussi de mettre en avant les paramètres importants à prendre en considération dans le modèle.

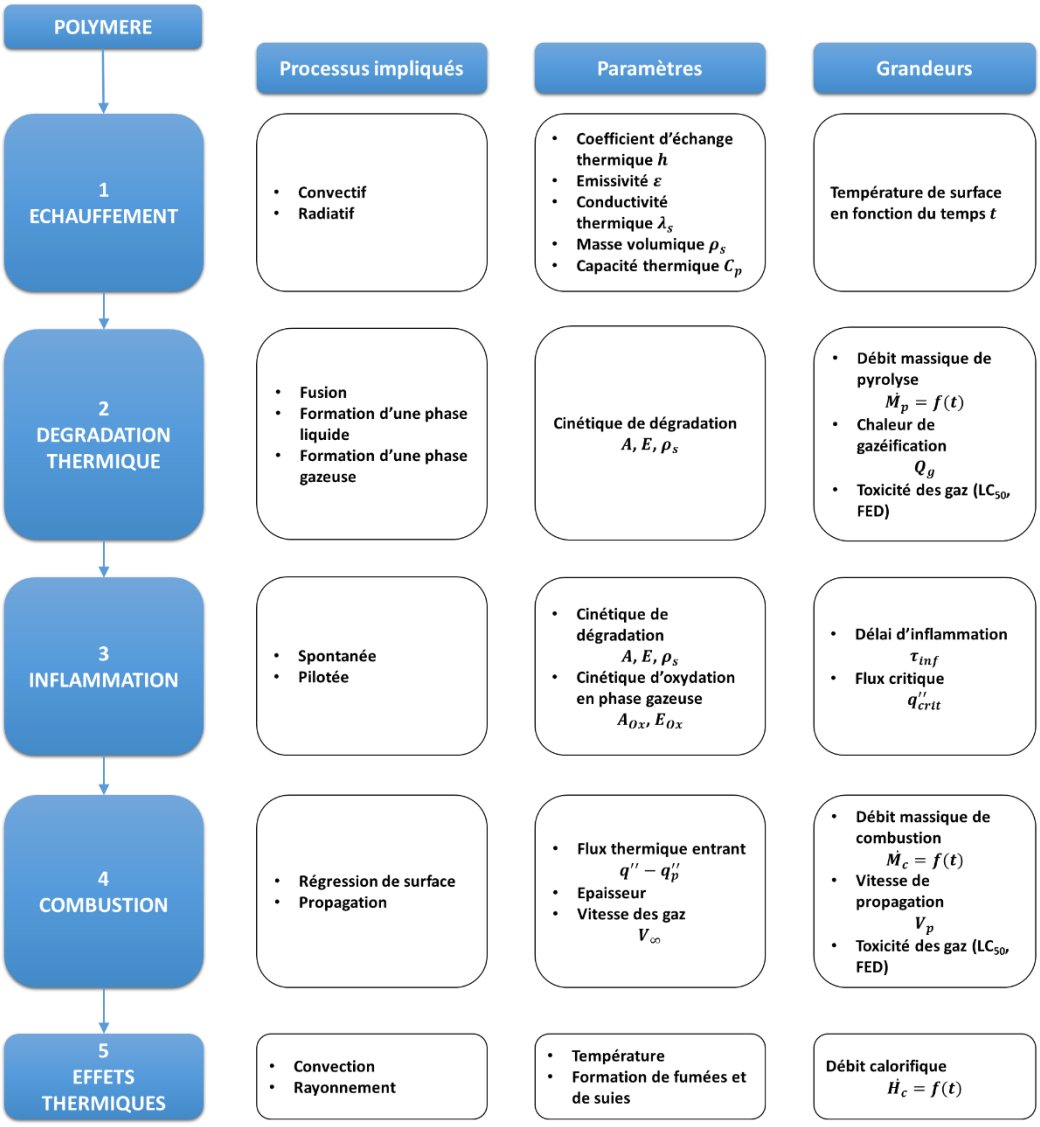


Figure 17 : Processus global de décomposition thermique, d'inflammation et de combustion des polymères plastiques ; extraite et modifiée de Vovelle et Delfau (Vovelle & Delfau, 1997)

I.3.2 - Décomposition thermique des solides, aspects thermiques

Alors que les propriétés chimiques, et plus particulièrement cinétiques, des solides ont été mises en avant au travers des équations précédentes, il convient aussi d'étudier les transferts de chaleur au sein de la phase condensée par conduction. Ce mécanisme est en effet le principal en jeu dans le solide avant le début de la décomposition (Pyle & Zaror, 1984). Ce phénomène de transport et d'augmentation de l'énergie interne est produit par l'hétérogénéité de l'agitation moléculaire dans le solide (Marquis, 2010). Cette dernière provoque une transmission de proche en proche de l'énergie thermique. La loi de Fourier mise en avant mathématiquement par Biot décrit la conduction thermique comme une densité de flux de chaleur proportionnelle au gradient de température :

$$\vec{\varphi} = \lambda \overrightarrow{grad}(T) \qquad \text{Eq. I.5}$$

La constante de proportionnalité notée ici λ correspond à la conductivité thermique du matériau considéré. Elle représente la quantité de chaleur transférée par unité de surface et de temps sous un gradient de température de 1 Kelvin par mètre. Cette conductivité, considérée ici comme constante est un paramètre important qu'il convient de prendre en compte dans notre étude. En effet, des auteurs tels que (Korver, 2015; J. Li & Stoliarov, 2013) ont montré une dépendance de la conductivité à la température, notamment pour le PMMA au moment de sa transition vitreuse. Cette évolution est considérée dans nos modèles comme cela est exposé dans les chapitres suivants.

Si on effectue un bilan d'énergie sur un élément de volume, l'augmentation d l'énergie interne est proportionnelle au flux de chaleur entrant et sortant de ce dernier et au flux de chaleur produit par l'élément de volume. Dans le cas d'un système non réactif et unidimensionnel, on peut établir l'équation de chaleur comme suit :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda_s \Delta T \qquad \text{Eq. I.6}$$

La variation de température d'un élément solide est donc proportionnelle au laplacien de la température et à une grandeur intrinsèque au matériau appelée diffusivité thermique (notée α).

$$\alpha = \frac{\lambda_s}{\rho C_p} \qquad \text{Eq. I.7}$$

Deux nouveaux termes sont introduits ici, ρ la masse volumique du matériau considéré ainsi que sa capacité thermique massique, C_p (ou chaleur spécifique pour correspondre à la dénomination anglo-saxonne). Cette chaleur spécifique représente à la quantité d'énergie à apporter à une masse de matériau considéré pour élever sa température d'un kelvin. Cette dernière est également dépendante de la température et nous verrons par la suite que cette dépendance est prise en considération dans nos modèles.

Dans le cas de combustions comme elles sont étudiées ici, la pression est constante lors de la transformation thermodynamique, ce qui conduit à l'expression suivante de la chaleur spécifique via l'enthalpie H_r^0 et la masse m du matériau considéré :

$$C_p = \frac{1}{m}\left(\frac{\partial H_r^0}{\partial T}\right) \qquad \text{Eq. I.8}$$

Ces paramètres globaux, apparents, permettent de caractériser macroscopiquement le transfert de chaleur. Ce dernier s'établit au sein du solide et il convient donc de prendre en considération son régime instationnaire. Plusieurs autres grandeurs sont ainsi nécessaires pour caractériser la conduction dans le solide.

La première d'entre elle est le nombre de Biot. Cette grandeur adimensionnée mesure le rapport de la résistance interne du solide à la résistance de contact du solide avec le milieu qui lui est adjacent. Lorsque la valeur de ce nombre est supérieure à 1, la conduction de la chaleur à l'intérieur du corps est plus lente qu'à sa surface. Un gradient de température s'établit donc au sein du corps et on le dit « thermiquement épais ». A l'inverse, si le nombre de Biot est très inférieur à 1 (on considère de manière générale $Bi < 0{,}1$), la résistance thermique du matériau est faible, aucun gradient de température ne s'établit entre la surface et la face arrière et le matériau est dit « thermiquement fin ».

De manière générale, le nombre de Biot est défini de la manière suivante :

$$Bi = \frac{\mathrm{h}L_C}{\lambda} \qquad \text{Eq. I.9}$$

Avec h le coefficient global de transfert thermique, L_C la longueur caractéristique et λ la conductivité thermique du corps.

En condition d'incendie, le mode de transfert de chaleur externe est principalement le rayonnement. Benkoussas a étudié les différents régimes de dégradation thermique de particules de bois (Benkoussas et al., 2007) et a défini un nombre de Biot radiatif indépendant de la géométrie de la particule comme suit :

$$Bi = \frac{\dot{q}_{inc}}{\lambda_s \sigma_s (T_{s,ig} - T_0)} \qquad \text{Eq. I.10}$$

Avec $\dot{q}_{inc}$ le flux de chaleur incident à la surface du solide, λ_s la conductivité thermique du solide, σ_s sa surface spécifique, $T_{s,ig}$ la température de surface à l'inflammation et T_0 la température ambiante.

Il est a noté que la validité en l'état et l'interprétation du nombre de Biot devient questionnable dès lors qu'il y a présence d'une dégradation thermique rendant les paramètres intrinsèques du matériau, telles que l'émissivité et la conductivité, dépendant localement et temporellement de la température du milieu mais aussi de sa composition en termes d'espèces chimiques.

Comme pour la chimie et en raison de la non-stationnarité des phénomènes, il est intéressant de définir un temps caractéristique lié au transfert de chaleur. Dans notre cas, le matériau est considéré comme opaque et le principal mode de transfert de chaleur interne au solide est la

conduction. Le temps caractéristique correspondant à la conduction a été étudié au travers des travaux de Pyle et Zaror (Pyle & Zaror, 1984) et est donné par la relation suivante :

$$t_{cond} = \frac{\rho C_p}{\lambda_s \sigma_s^2} \qquad \text{Eq. I.11}$$

I.3.3 - Couplage des aspects chimiques et thermiques

A partir des temps caractéristiques de la conduction et de la chimie définis par les relations données dans cette partie, il est alors possible d'identifier quatre régime de dégradation. En effet, poursuivant ce raisonnement, un solide peut réagir très lentement ou très rapidement, tout en étant thermiquement fin ou épais. Cela se résume de la manière suivante :

a) Thermiquement fin, cinétique lente.
b) Thermiquement fin, cinétique rapide.
c) Thermiquement épais, cinétique lente.
d) Thermiquement épais, cinétique rapide.

Ces cas sont représentés schématiquement par la Figure 18 ci-dessous, la cinétique du solide étant représentée par sa capacité à émettre des gaz de pyrolyse ($\dot{m}$). Le phénomène qui pilote correspond alors au temps caractéristique le plus long.

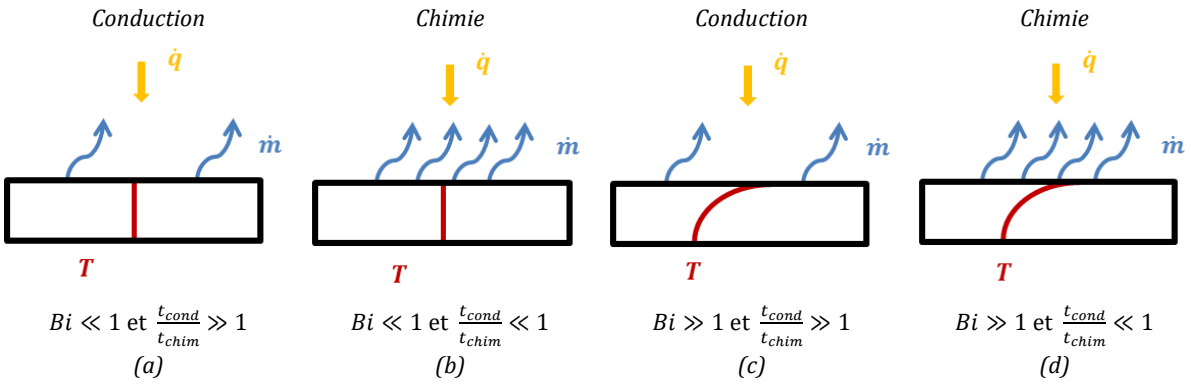


Figure 18 : Schématisation des différentes typologies de solides selon (Pyle & Zaror, 1984). Pour un même instant t de la dégradation : a) Solide thermiquement fin (pas de gradient de T), cinétique lente (peu de gaz de pyrolyse) ; b) Solide thermiquement fin (pas de gradient de T), cinétique rapide (quantité importante de gaz de pyrolyse) ; c) Solide thermiquement épais (présence d'un gradient de T), cinétique lente (peu de gaz de pyrolyse) ; d) Solide thermiquement épais (présence d'un gradient de T), cinétique rapide (quantité importante de gaz de pyrolyse)

a) Cas (a), $Bi \ll 1$ et $\frac{t_{cond}}{t_{chim}} \gg 1$

Dans le cas d'un nombre de Biot faible, le temps caractéristique du transfert de chaleur (externe) à la surface du solide est plus grand que celui au sein du solide (par conduction). Les gradients de température au sein du solide sont donc faibles. La réaction étant très rapide devant le transfert de chaleur au sein du solide, si la température du solide, uniforme dans ce cas, atteint la température de pyrolyse, alors la réaction a lieu instantanément dans tout le volume de la particule solide et la zone de réaction est indépendante de la position dans le solide. La réaction est donc uniforme spatialement.

Ce régime de dégradation est gouverné par le processus de transfert de chaleur externe au solide.

b) Cas (b), $Bi \ll 1$ et $\frac{t_{cond}}{t_{chim}} \ll 1$

Comme pour le régime précédent, les gradients de température sont très faibles au sein du solide. En revanche, le temps caractéristique de la réaction est grand devant celui du transfert de chaleur au sein du solide. Le processus est donc piloté par la cinétique qui a lieu à la température du solide, uniforme et égale à la température extérieure en raison du faible nombre de Biot.

Dans ce régime de dégradation, le processus chimique est isotherme.

c) Cas (c), $Bi \gg 1$ et $\frac{t_{cond}}{t_{chim}} \gg 1$

Dans ce régime, le temps caractéristique du transfert de chaleur au sein du solide est plus grand que celui du transfert de chaleur externe à la surface du solide. Les gradients de température au sein du solide sont donc importants. Le temps caractéristique de la réaction est quant à lui faible devant celui du transfert de chaleur interne. La zone de réaction peut être assimilée à un « front de pyrolyse mince » se déplaçant à la même vitesse au sein du solide que l'onde de transfert de chaleur.

Dans ce cas, le processus de dégradation est piloté par le transfert de chaleur au sein du solide. Si la réaction de pyrolyse est complète lorsque le solide atteint la température de pyrolyse, alors le front de pyrolyse se propage à la même vitesse que la « propagation de la température » de pyrolyse au sein du solide.

d) Cas (d), $Bi \gg 1$ et $\frac{t_{cond}}{t_{chim}} \ll 1$

Dans ce dernier régime, les gradients de température sont toujours importants au sein du solide en raison d'un nombre d'un nombre de Biot grand devant 1. La vitesse de réaction est faible par rapport à la vitesse de propagation de l'onde thermique au sein du solide : le front de pyrolyse ne peut plus être considéré comme étant « mince » et possède une épaisseur caractéristique finie. Au sein du front de pyrolyse, l'avancement de la réaction n'est pas homogène.

Au sein de ce régime, la réaction dépend de l'espace et du temps et ne peut plus être considérée comme étant « infiniment rapide ».

I.4 - La phase gazeuse

I.4.1 - Mécanismes de l'auto-inflammation, approches utilisées en phase gazeuse

a) Approche chimique

Loin de ceux de la chimie fine, les codes aujourd'hui utilisés en sécurité incendie sont limités quant au nombre de réactions pouvant être implémentées dans les fichiers d'entrée. Cependant, dans le cadre de cette étude et pour comprendre les hypothèses simplificatrices faites par la suite, il est important de se concentrer sur les aspects chimiques régissant l'inflammation de manière fine.

Malgré la représentation souvent globale des équations de combustion (équation I.12), ces réactions impliquent un grand nombre de réactions intermédiaires au cours de la réaction d'oxydo-réduction se produisant en phase gazeuse. Ces réactions sont appelées réactions élémentaires et peuvent se compter par millier. On parle alors de réactions en chaîne. En

combustion, le recours aux mécanismes cinétiques détaillés est primordial pour mieux appréhender la formation des produits gazeux ainsi que les mécanismes tels que ceux de l'inflammation ou de l'extinction.

$$Combustible_g + Comburant_g \rightarrow Produits_g \qquad \text{Eq. I.12}$$

Une réaction en chaîne peut se définir comme une réaction au cours de laquelle un petit nombre d'étapes élémentaires sont répétées un très grand nombre de fois à la suite les unes des autres grâce à un petit nombre d'espèces intermédiaires constamment formées et détruites (Soustelle, 2011).

Le Groupement Français de Combustion donne également une définition de la réaction en chaîne comme étant une réaction complexe à séquence réactionnelle fermée se caractérisant par la régénération d'espèces intermédiaires à très courte durée de vie appelées "centres actifs". Les centres actifs peuvent alors être de nature radicalaire, moléculaire, ionique... Selon le type de phase dans laquelle s'effectue la réaction. En fonction du comportement global de la réaction, deux grandes catégories de réactions en chaînes sont distinguées :

- Les réactions en chaînes linéaires (ou droites).
- Les réactions en chaînes ramifiées.

La séquence fermée est représentée par la réaction globale suivante :

$$Réactifs + 1\ centre\ actif \rightarrow produits + \eta\ centres\ actifs \qquad \text{Eq. I.13}$$

Le nombre de centres actifs est caractérisé par un facteur η appelé facteur de multiplication et détermine la catégorie de réaction en chaine.

Dans le cas de réactions linéaires, un centre actif réagit avec un réactif pour donner un autre centre actif dont les propriétés sont similaires au précédent ainsi que des produits finaux. Le facteur de multiplication est alors égal à un. Une réaction en chaîne droite est schématisée en Figure 19.

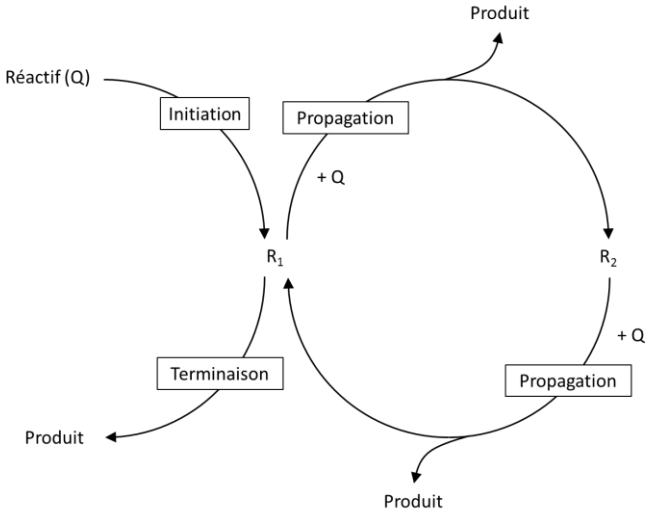


Figure 19 : Représentation schématique d'une réaction en chaîne droite ; extraite et traduite de Pauwels (Pauwels, 2010)

Plusieurs grandes étapes sont constitutives de ces réactions en chaîne. On remarque notamment les réactions :

- D'initiation (ou amorçage), permettant la création de radicaux libres (rupture des molécules à leur plus faible liaison).
- De propagation, consommant des réactifs et formant des centres actifs et des produits.
- De ramification (ou branchement), multipliant le nombre de centres actifs.
- De terminaison (ou rupture), consommant les centres actifs.

Dès lors que ce facteur (de multiplication) est supérieur à un, on parle de réaction en chaîne ramifiée. Ces réactions ramifiées peuvent alors être directes ou indirectes. Les caractéristiques de ces types de réactions sont également données par Soustelle (Soustelle, 2011).

Les combustions correspondent, dans leurs cas les plus simples, à des réactions à ramifications directes. La plupart du temps, dans des processus non contrôlés d'un point de vue cinétique, les réactions entrant en jeu sont des réactions en chaînes à ramification indirecte.

Les initiations de ces réactions de combustion peuvent être de trois ordres : thermique, catalytique et photochimique. Dans les cas étudiés au cours de ce travail, l'initiation thermique est prépondérante du fait des niveaux de températures impliqués dans les incendies et de par le caractère souvent inerte des matériaux présents dans l'habitat. Au niveau microscopique, l'énergie thermique correspond à l'énergie cinétique d'agitation d'un objet. Elle est notamment liée à l'agitation désordonnée des molécules et des atomes. Sous l'effet de la chaleur, les faibles liaisons moléculaires peuvent se dissocier et la production de centres actifs (radicaux) est initiée et poursuivie via les réactions de propagation et de ramification. La terminaison de la chaîne est effective lorsque le radical propagateur est transformé en une espèce stable. Cela est clairement explicité par la Figure 20 (Guibet, 2000).

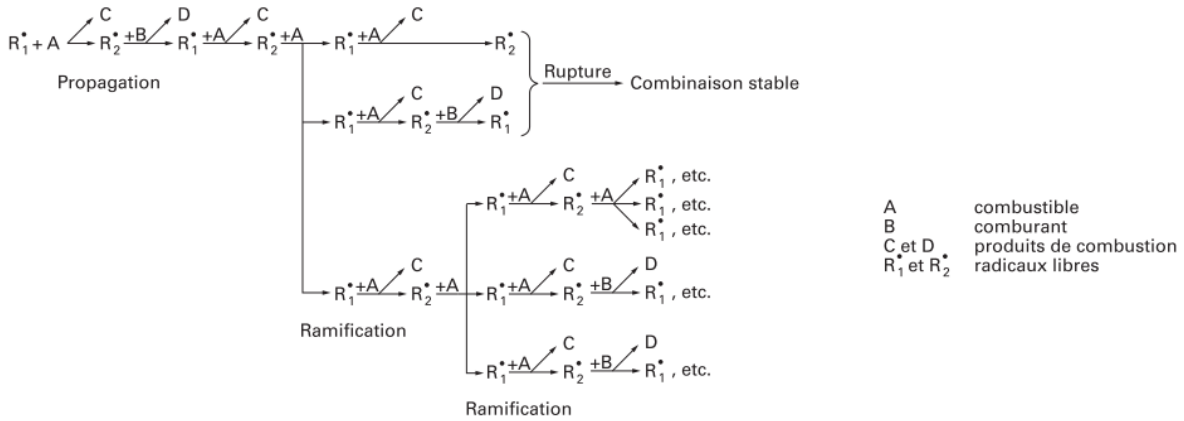


Figure 20 : Schématisation d'une réaction en chaine à ramification ; extraite de Guibet (Guibet, 2000)

L'emballement des réactions en chaîne est lié à la production de radicaux, donc aux étapes de propagation/ramification. Loin des considérations accidentelles admises dans le langage commun, cet emballement est appelé explosion (au sens chimique du terme).

Comme cela est illustré par Borghi (Borghi & Champion, 2000), l'existence d'une température d'inflammation peut être déterminée par le biais de cette évolution de la concentration de radicaux.

Si l'on considère l'équation I.13 sous une forme simplifiée :

$$A + X \rightarrow 2X + B \qquad \text{Eq. I.14}$$

A et *B* étant les espèces principales et *X* l'espèce radicalaire.

La constante de vitesse $k_1(T)$ de cette réaction est proportionnelle à l'augmentation de la température. Cette réaction est en compétition avec les réactions de terminaison produisant une espèce stable X_2.

$$2X + M \rightarrow X_2 + M \qquad \text{Eq. I.15}$$

M est alors un troisième corps. Considérant alors que ces réactions de terminaison ne sont pas dépendantes de la température (Glassman & Yetter, 2008), l'évolution de la concentration de l'espèce radicalaire X au cours du temps peut s'écrire comme la soustraction de son taux de production par son taux de consommation :

$$\frac{d[X]}{dt} = [X][A]k_1(T) - [X]^2[M]k_2 \qquad \text{Eq. I.16}$$

A une température donnée *T* et pour [A] et [M] constants (en tout début de réaction), l'intégrale de la relation I.16 donne :

$$[X] = \frac{1}{\frac{k_2[M]}{k_1[A]} + \left(\frac{1}{[X]_0} - \frac{k_2[M]}{k_1[A]}\right)\exp(-[A]k_1 t)} \qquad \text{Eq. I.17}$$

$[X]_0$ est la quantité initiale du radical X. L'augmentation de la quantité de radicaux, donc l'inflammation, se fait lorsque la condition ci-après est vérifiée :

$$\frac{1}{[X]_0} - \frac{k_2[M]}{k_1(T)[A]} > 0 \qquad \text{Eq. I.18}$$

Ce qui conduit à la représentation graphique suivante :

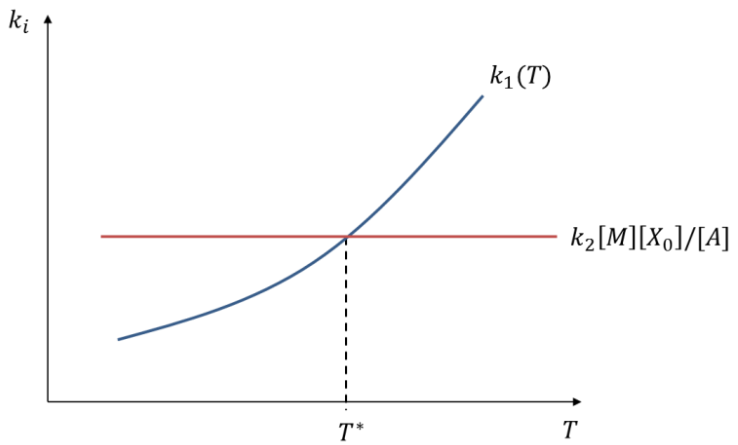


Figure 21 : Schématisation de l'existence d'une température d'inflammation en fonction de la production d'espèces radicalaires ; extraite et modifiée de Borghi et Champion (Borghi & Champion, 2000)

La démonstration illustrée par la Figure 21 traduit l'existence d'une température d'inflammation dès lors que la production de radicaux devient supérieure à leur consommation. Les réactions de ramification créent une croissance exponentielle des concentrations radicalaires qui peuvent être

à l'origine d'explosions dites isothermes. Semenov et Hinshelwood ont obtenu le prix Nobel en 1956 pour cette explication chimique (Semenov, 1935).

b) Approche thermique

Comme dans d'autres cas en combustion, les approches chimiques et thermiques coïncident pour comprendre et modéliser les phénomènes. Comme pour les modèles radicalaires et thermiques de propagation de flamme, le processus d'inflammation peut être décrit en se basant sur des bilans énergétiques.

Le dégagement de chaleur d'une réaction exothermique est susceptible d'élever le niveau de température du mélange réactionnel et d'accélérer les réactions qui s'y produisent (qui élèvent à leur tour la température et ainsi de suite). C'est Van't Hoff (Van't Hoff, 1884) qui met en évidence cet aspect et qui le relie directement aux mécanismes de l'inflammation. Cet emballement est alors qualifié d'explosion au sens chimique, comme décrit précédemment.

Dans les années 30, Semenov (Semenov, 1935) met en évidence ces aspects thermiques de l'emballement grâce à un modèle, repris et complété plus tard par Frank-Kamenetskii (Frank-Kamenetskii, 1955).

Les théories étant relativement similaires dans leurs approches, nous détaillons ici la théorie de Semenov qui permet une très bonne approche qualitative des phénomènes, et nous n'abordons que succinctement celle de Frank-Kamenetskii.

Théorie de Semenov (Semenov, 1935)

L'étude considère un réacteur fermé muni d'un échangeur de chaleur de volume V et de surface S, parfaitement agité et dans lequel une réaction chimique exothermique a lieu.

La réaction répond à une loi cinétique classique sous la forme d'Arrhenius :

$$r = Aexp\left(-\frac{E_a}{RT}\right).c^{\omega} \qquad \text{Eq. I.19}$$

Avec c la concentration du réactif, ω l'ordre de la réaction, T la température du milieu réactionnel, R la constante des gaz parfaits, E_a l'énergie d'activation et A le facteur pré-exponentiel.

Considérant l'enthalpie de cette réaction $\Delta_r H^0$, la quantité de chaleur produite par unité de temps par cette dernière est :

$$Q_V = -r.\Delta_r H^0.V \qquad \text{Eq. I.20}$$

$$Q_V = V|\Delta_r H^0|Aexp\left(-\frac{E_a}{RT}\right).c^{\omega} \qquad \text{Eq. I.21}$$

A la paroi de l'échangeur, la quantité de chaleur évacuée par unité de temps est donnée par la loi de Newton :

$$Q_S = \mathrm{h}S(T - T_0) \qquad \text{Eq. I.22}$$

Avec h le coefficient de transfert thermique, S la surface d'échange (décrite précédemment) et T_0 la température du fluide caloporteur.

Il est alors possible de tracer des diagrammes (dits « de Semenov ») représentant la chaleur produite et perdue en fonction de la concentration initiale en réactifs, de la température initiale ou de la pression initiale au sein du réacteur.

Ces trois types de courbes sont donnés ci-dessous et sont issus de différents ouvrages (Côme, 1999; Drysdale, 2011; Glassman & Yeter, 2008; Quintiere, 2006). Au travers de ces trois exemples, il est toujours possible de distinguer trois situations similaires :

- Concentration (Figure 22 (a)).
- Pression (Figure 22 (b)).
- Température ambiante (Figure 22 (c)).

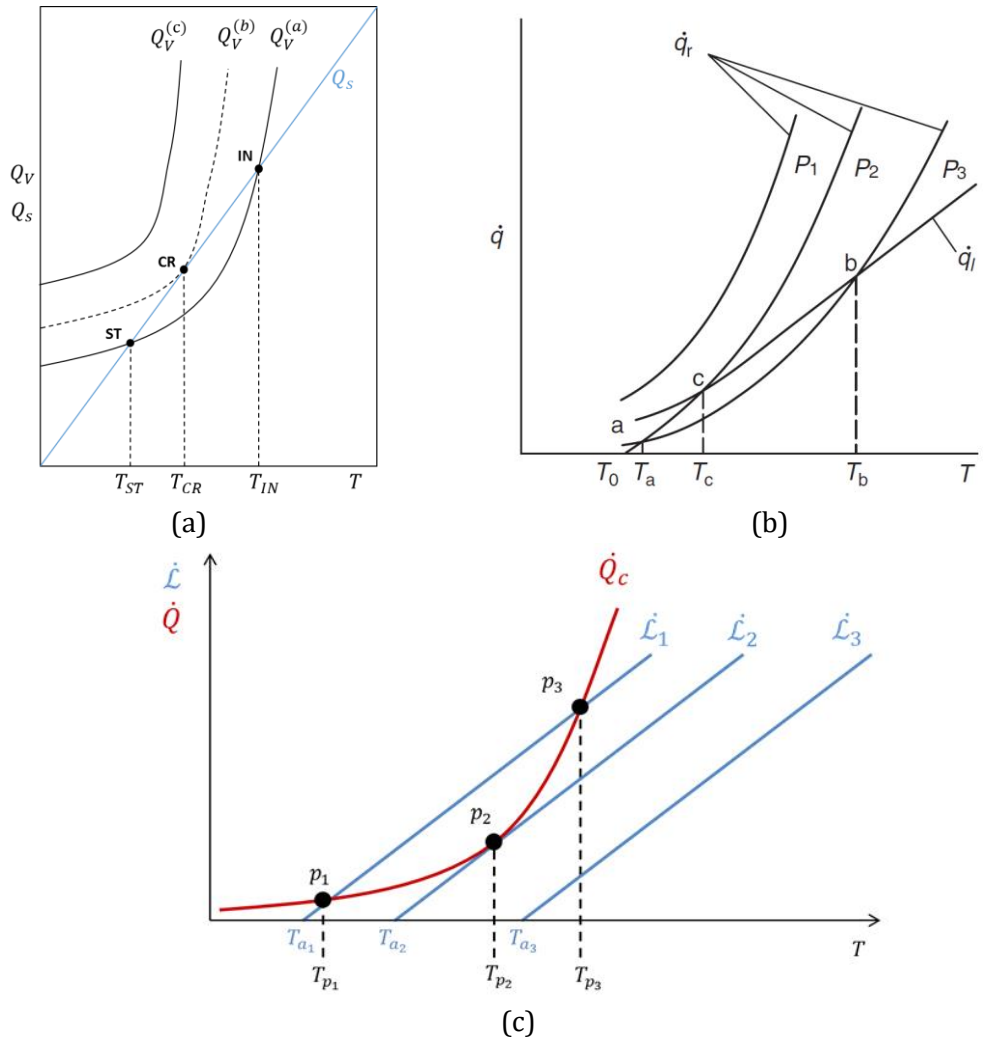


Figure 22 : Diagrammes dits "de Semenov" représentant la production de chaleur d'un mélange en fonction de différentes conditions initiales en termes (a) de concentration, (b) de pression et (c) de température ambiante ; extraites et modifiées de Côme, Drysdale, Glassman et Quintiere (Côme, 1999; Drysdale, 2011; Glassman & Yeter, 2008; Quintiere, 2006)

Concentration

Dans le cas présenté sur la Figure 22 (a), la concentration en réactifs est croissante. Trois situations sont alors considérées :

- La première correspond à la production de chaleur issue de la réaction (a), $Q_V^{(a)}$, pour une concentration c^a en réactif. Dans ce premier cas, la réaction est initiée et une production de chaleur est entamée. La courbe $Q_V^{(a)}$ coupe alors la courbe Q_S aux points ST et IN correspondant respectivement aux températures T_{ST} et T_{IN}.
    - Le point ST est un point stable pour lequel aucune inflammation n'est possible. Dans ce cas précis, $Q_V^{(a)} = Q_S : T = T_{ST}$ et la température reste constante. En effet, lorsque $T < T_{ST} : Q_V^{(a)} > Q_S$ et T croit jusqu'à T_{ST} ; lorsque $T > T_{ST} : Q_V^{(a)} < Q_S$ et T décroit jusqu'à T_{ST}.
    - Le point IN est quant à lui un point instable même si $Q_V^{(a)} = Q_S$. En effet, si $T < T_{IN} : Q_V^{(a)} < Q_S$ et la température diminue à T_{ST}. En revanche, si $T > T_{IN} : Q_V^{(a)} > Q_S$, la température croit indéfiniment, il s'agit de la température d'auto-inflammation.
- La deuxième situation correspond à la production de chaleur issue de la réaction (b), $Q_V^{(b)}$, pour une concentration critique c^b en réactif. La courbe $Q_V^{(b)}$ est alors tangente à la courbe Q_S au point CR correspondant à la température critique T_{CR}. Il s'agit de la température maximum au-dessus de laquelle il n'est plus possible d'observer de point stable (le point CR étant lui-même instable puisque $Q_V^{(b)} > Q_S$).
- Le dernier cas possible est alors celui d'une concentration suffisamment forte où $Q_V^{(c)} > Q_S$ et où l'inflammation se produit dès l'introduction du réactif dans le réacteur.

Selon Côme, le point CR sépare donc les régimes de réaction lente ou d'inflammation de ceux des réactions explosives.

Dans ce cas précis, les concentrations ont un rôle majeur et il est possible de relier l'approche thermique à l'approche chimique, dont Semenov a été l'initiateur. Le regroupement de ces deux approches (avec des mécanismes détaillés de cinétique chimique) définit la « théorie unifiée » de l'inflammation détaillée par Côme (Côme, 1999).

Pression

La même analyse peut être effectuée pour la courbe donnée en Figure 22 (b) mais avec des conditions initiales de pression différentes. Les courbes $\dot{q}_r$ (P_1, P_2, P_3) et $\dot{q}_L$ représentent respectivement la production et la déperdition de chaleur du mélange. Trois cas sont alors possibles en fonction de la pression initiale :

- Pour la pression initiale P_3, les deux courbes se coupent aux points a et b. Le point a est alors l'équivalent du point ST mentionné pour la Figure 22 (a) et le point b celui du point IN.
- Pour la pression initiale P_2, le point c est le point pour lequel $\dot{q}_r$ est tangente à $\dot{q}_L$. Il correspond ainsi au point critique CR décrit dans l'analyse précédente.
- La pression initiale P_1 correspond à une pression suffisamment élevées pour donner lieu à une inflammation spontanée du mélange.

Température

Sur la même base de compréhension du phénomène, la Figure 22 (c) présente une courbe de production de chaleur $\dot{Q}_C$ en présence de trois droites de déperdition de chaleur $\dot{\mathcal{L}}_{1,2,3}$, correspondant chacune à trois températures initiales du milieu. Trois points caractéristiques apparaissent alors et correspondent à :

- Un point stable pour p_1, pour lequel la condition ambiante de température ne permet pas un auto-échauffement du mélange. En effet à ce point, production et perte de chaleur sont égales (courbes $\dot{Q}_C$ et $\dot{\mathcal{L}}_1$), et une augmentation de température conduirait à la des pertes de chaleur plus conséquentes que sa production par l'intermédiaire de la réaction.
- Un point instable pour p_3, pour lequel une légère baisse de la température ambiante conduira au retour à la stabilité du mélange réactionnel. En effet dans ce cas, les pertes ($\dot{\mathcal{L}}_1$) sont supérieures aux gains de chaleur ($\dot{Q}_C$) et l'état p_1 est retrouvé. A l'inverse, une modification à la hausse de la température ambiante à ce point, conduira à l'inflammation. Le mélange pouvant alors entamé son auto-échauffement ($\dot{Q}_C > \dot{\mathcal{L}}_1$).
- Un point critique pour p_2 correspondant à une température critique pour laquelle la production de chaleur est toujours supérieures aux pertes ($\dot{Q}_C > \dot{\mathcal{L}}_2$).

La courbe $\dot{\mathcal{L}}_3$correspond quant à elle à une température ambiante au-delà de la température critique ($\dot{Q}_C \gg \dot{\mathcal{L}}_3$). Comme cela est mentionné par (Côme, 1999), ce régime peut se différence des autres de par la modification des vitesses réactionnelles, également influencée par la quantité d'énergie apportée initialement au mélange.

Il est à noter alors que les conditions ambiantes affectent de manière notable l'inflammation des mélanges gazeux et cela devrait être pris en considération dans des modèles globaux de propagation. En effet, les concentrations en espèces et les températures au cours d'un incendie sont très élevées et peuvent influer l'apparition de la flamme.

Ces travaux font aujourd'hui référence dans le domaine de la sécurité (plus particulièrement dans l'industrie chimique) et sont repris dans les ouvrages de Quintiere et de Drysdale (Drysdale, 2011; Quintiere, 2006) pour des applications d'ingénierie de sécurité incendie. Elles permettent une compréhension qualitative des phénomènes en négligeant les pertes aux parois du réacteur qui furent prises en considération par Frank-Kamenetskii (Frank-Kamenetskii, 1939).

Théorie de Frank-Kamenetskii (Frank-Kamenetskii, 1939)

Comme cela a été mentionné, la théorie de Frank-Kamenetskii est plus complexe mais plus réaliste que la théorie de Semenov. En effet, Frank-Kamenetskii considère une loi de Fourier permettant de tenir compte de la diffusion de la chaleur aux parois. La température dans le système n'est ainsi plus considérée comme uniforme (avec la théorie de Semenov, le transfert aux parois se fait sans gradient de température (parois thermiquement fines) alors qu'un gradient s'établit dans la théorie de Frank-Kamenetskii). Plus tard, cette dernière a été complétée par (P. H. Thomas, 1972, 1973) pour corriger le fait que la température de surface n'est pas forcément identique à l'ambiante lorsque le coefficient de transfert convectif n'est pas assez élevé (et ce notamment pour l'auto-échauffement des solides).

Les différentes hypothèses initiales faites dans ces trois théories peuvent être représentées par la Figure 23 ci-après.

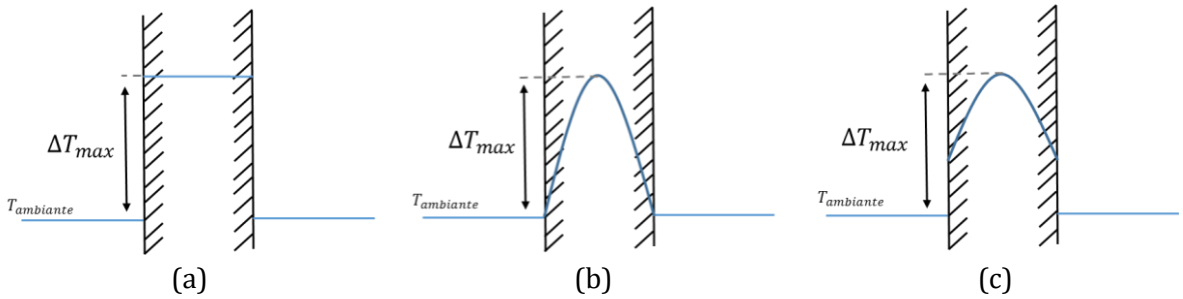


Figure 23 : (a) Répartition homogène de la température dans le mélange selon la théorie de Semenov ; (b) Répartition hétérogène de la température de mélange selon la théorie de Frank-Kamenetskii ; (c) Répartition hétérogène de la température, différente de la température ambiante aux parois selon la théorie de Thomas, modifié et complété de Drysdale (Drysdale, 2011)

c) Limites d'inflammabilités

Définitions

Les limites d'inflammabilité ont été présentées au sein de la partie I.2.3 concernant les mécanismes macroscopiques d'inflammation des solides. Elles sont abordées ici en lien avec les phénomènes microscopiques se déroulant en phase gazeuse. Pour rappel, ces limites sont des pourcentages volumiques inhérents à chaque gaz en dessous et au-dessus desquels l'inflammation dudit gaz est impossible. On parle alors de Limite Inférieure d'Inflammabilité (L.I.I.) pour la limite basse et de Limite Supérieure d'Inflammabilité (L.S.I.) pour la limite haute. Le domaine qu'elles forment dans l'espace (voir Figure 24) est appelé domaine d'inflammabilité. Un mélange trop pauvre en dehors de ce domaine ne peut pas s'enflammer et il en est de même pour un mélange trop riche. Le domaine est délimité par la courbe de vapeur saturante en bas et par la courbe d'auto-inflammation en partie haute. La jonction entre la LII et la courbe de vapeur saturante correspond au point éclair.

Ces limites sont déterminées de manière empirique mais nous nous attardons ici également sur leur signification physico-chimique et leur dépendance à la température.

Dépendance à la température

Plusieurs facteurs sont à même d'influencer ces limites, comme la pression et la température. Nous nous plaçons ici dans des conditions d'incendies en milieux ouverts ou semi-ouverts et nous considérons la pression égale à la pression atmosphérique. Seule l'influence de la température est ainsi étudiée dans cette partie.

La Figure 24 ci-dessous est très répandue à des fins pédagogiques dans l'industrie et le monde de la sécurité. Elle présente les deux limites ainsi que leur dépendance à la température. Il est alors possible de remarquer l'élargissement du domaine d'inflammabilité avec l'augmentation de la température du gaz et il nous reviendra de prendre en considération ce phénomène dans le cadre de notre étude.

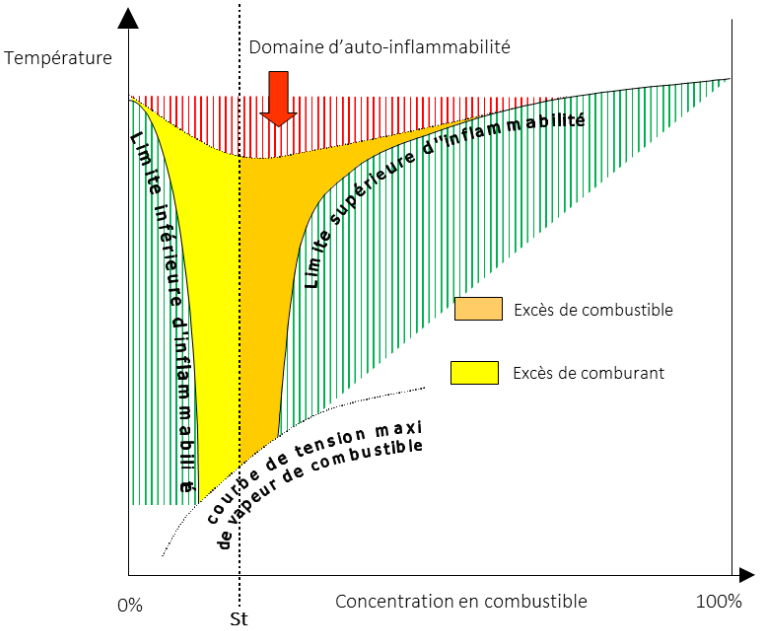


Figure 24 : Evolution du domaine d'inflammabilité en fonction de l'évolution de la température et de la concentration en combustible, modifiée de Dong (Dong, 2013)

Plusieurs lois ont été proposées empiriquement afin de caractériser cette dépendance à la température des limites d'inflammabilité. Citons par exemple les travaux de Zabetakis (Zabetakis, 1965) en la matière. Nous utilisons ici les lois fournies dans les travaux de thèse de Dong (Dong, 2013). Ces dernières sont issues de Babrauskas (Babrauskas, 2003) et s'expriment sous la forme suivante :

$$LII(T_2) = LII(T_1)\left[1 - \frac{T_2 - T_1}{1300 - T_1}\right] \qquad \text{Eq. I.23}$$

$$LSI(T_2) = LSI(T_1)\left[1 - \frac{T_2 - T_1}{1412 - T_1}\right] \qquad \text{Eq. I.24}$$

Des équations de cette forme sont parfois qualifiées de « Loi de Burgess-Wheeler ».

Représentativité

LII et LSI sont observées et déterminées de manière expérimentale mais la réalité de l'existence de telles limites d'un point de vue théorique a suscité de nombreuses discussions entre chercheurs dans les années 50 et 60. Ces dernières sont résumées par Van Tiggelen (Van Tiggelen, 1968) et reprennent les théories thermiques et chimiques étudiées dans les précédentes parties de ce mémoire. Les conditions opératoires de détermination de ces limites sont prépondérantes et peut se poser la question de l'existence de telles limites d'un point de vue théorique. Cette représentativité est abordée dans une partie de l'ouvrage de Van Tiggelen, traitant des conditions de non-propagabilité des flammes. Trois théories sont énoncées concernant les limites :

- Hypothèse de l'instabilité : cette première hypothèse traduit l'existence de limites par la non-propagation de la flamme après le début de la réaction du fait d'instabilités liées aux changements aérauliques. Cette hypothèse explique notamment qu'une légère modification du profil de température au niveau de la réaction pourrait conduire à

l'établissement de la flamme ou au contraire à l'inhibition de la réaction si la perturbation est trop importante.

- Hypothèse des pertes thermiques : cette deuxième hypothèse repose sur l'analyse numérique et expérimentale de différents auteurs. Numériquement, Van Tiggelen (Van Tiggelen, 1968) explique qu'une valeur minimale de vitesse de flamme peut être calculée et donne alors naissance à une limite. Il est alors nécessaire d'intégrer les pertes thermiques aux calculs de vitesses. Il mentionne notamment l'effet des parois sur les pertes thermiques par convection et notamment au travers du phénomène de coincement. Les pertes radiatives sont également mentionnées. Selon Van Tiggelen, la détermination de ces valeurs limites reste cependant imprécise, les vitesses minimales allant 1 $cm.s^{-1}$ à 20 $cm.s^{-1}$ en fonction des auteurs et les températures critiques allant de 1100°C à 1600°C.

- Hypothèse cinétique : cette troisième et dernière hypothèse rend compte au mieux des phénomènes microscopiques et permet de montrer l'existence de limites au travers des espèces radicalaires et de leurs réactions de ramification et de rupture décrites précédemment. Globalement, l'inflammation est rendue possible lorsque la probabilité de ramification est supérieure à la probabilité de rupture. La limite correspond donc à l'égalité entre ces deux probabilités. Il est également nécessaire de tenir compte des aspects thermiques en considérant que la condition d'exothermicité des réactions est supérieure à l'endothermicité.

La vérification par l'expérience de ces hypothèses est complexe tant les mesures sont intrusives pour capter ce type de phénomène bref et local. Van Tiggelen conclut sur une possible existence de limites intrinsèques de par l'existence de phénomènes concurrents dans la phase gazeuse :

- Des phénomènes accélérateurs tels que le dégagement de chaleur ou la création d'espèces.
- Des phénomènes retardateurs tels que les pertes thermiques ou la destruction d'espèces actives.

Aux vues des mécanismes réactionnels en jeu dans la flamme, cette concurrence de phénomènes est probable et il sera nécessaire d'analyser nos résultats liés à l'inflammation en conséquence.

Les limites d'inflammabilité sont définies de manière expérimentale et permettent de donner des valeurs seuils très utiles et justifiées d'un point de vue sécuritaire. Toutefois, les limites intrinsèques d'un mélange sont difficilement calculables pour des cas s'éloignant du cas test standard.

Par ailleurs, l'existence de ces limites traduit l'apparition de la flamme mais des phénomènes d'oxydation lente et de dégagement de chaleur peuvent avoir lieu avant cette apparition en fonction des conditions ambiantes. Les flammes dites « froides » en sont un exemple (Babrauskas, 2003). Ces oxydations lentes sont exposées sur la Figure 25 ci-dessous qui présente l'évolution en concentration d'espèces pour un mélange méthane air porté à 624°C, soit 8°C avant sa température d'auto-inflammation. Une diminution en concentrations du méthane et de l'oxygène et une augmentation des concentrations en produits sont observées (Babrauskas, 2003).

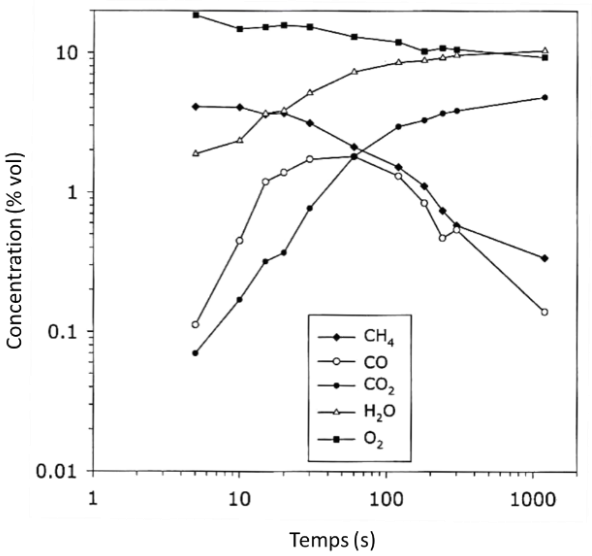


Figure 25 : Réactions d'un mélange méthane/air porté à 624°C, 8°C sous la température d'inflammabilité, modifiée de Babrauskas (Babrauskas, 2003)

Il est nécessaire de garder à l'esprit cette analyse bibliographique concernant les limites d'inflammabilité dans l'analyse des données. En effet, les conditions thermiques et de non stationnarité de l'écoulement lors de l'inflammation d'un solide impactent très certainement l'inflammation dont l'amorçage peut avoir lieu dans des zones hors du domaine d'inflammabilité classique du MMA.

I.4.2 - Couplage solide/gaz

L'inflammation d'un solide fait intervenir une large gamme de processus couplés. Dans les paragraphes précédents, nous avons pu aborder les phénomènes de transports de masse et de chaleur à la surface et au sein d'un solide ainsi que le processus de réaction chimique en phase condensée. Sous certaines conditions, des gaz de pyrolyse peuvent être émis. Même si le processus global de génération des gaz est une condition préalable à l'inflammation, d'autres mécanismes en phase gazeuse régissent l'allumage. Les prochains paragraphes proposent de dresser un état des différents processus physico-chimiques régissant le phénomène d'inflammation.

a) Transport moléculaire

Nous avons vu que les solides, sous l'effet de leur dégradation dégagent des gaz chauds, couramment appelés gaz de pyrolyse, dans l'air et sous la forme d'un écoulement. Des gradients de concentration, de température et de vitesse donnent alors lieu à des flux de matière, de chaleur et de quantité de mouvement (via le mouvement brownien des particules qui tend à réduire ces différences). Nous présentons alors les phénomènes intervenant dans le transport moléculaire ainsi que les lois les régissant.

Dans un premier temps, le gradient de concentration donne lieu au phénomène de diffusion. La matière est alors transportée des zones de fortes concentrations vers les zones de faibles concentrations. La loi de Fick régit ce flux de matière via les différences de concentrations. Deux autres phénomènes peuvent être couplés à ce flux de matière et sont liés :

- Au gradient de température : c'est l'effet Soret.
- Au gradient de pression : c'est la barodiffusion.

Dans un deuxième temps, le gradient de température est quant à lui à l'origine du phénomène de conduction de la chaleur. Cette dernière est transportée des zones de température élevée à des zones de plus faible température selon la loi de Fourier. Un gradient de concentration peut également causer un transport d'énergie : il s'agit de l'effet Dufour.

Pour finir, il y a transport de quantité de mouvement des régions à fortes vitesses vers des régions à plus faibles vitesses (dans le sens opposé au gradient de vitesse). La viscosité des gaz est à l'origine de ce phénomène décrit par la loi de Newton.

Ces phénomènes peuvent être résumés dans le Tableau 3 ci-dessous.

Tableau 3 : Phénomènes de transport moléculaire, modifié de Côme (Côme, 1999)

	Gradient		
Flux	*Concentration*	*Température*	*Vitesse*
Matière	Loi de Fick	Effet Soret	-
Chaleur	Effet Dufour	Loi de Fourier	-
Quantité de mouvement	-	-	Loi de Newton

Les paramètres tels que la conductivité, la viscosité ainsi que les fractions massiques de gaz doivent être résolus finement dans le modèle. Par ailleurs, il est nécessaire d'intégrer la dépendance à la température de ces variables afin de prédire au mieux l'auto-inflammation.

Sont définies ici les lois identifiées en noir dans les Tableau 3 et Tableau 4 et qui correspondent aux processus majorants. Toujours d'après Côme (Côme, 1999), il est possible de dresser le Tableau 4 suivant, indiquant les analogies dans les phénomènes de transport moléculaire.

Tableau 4 : Analogie entre les phénomènes de transport, extrait et modifié de Côme (Côme, 1999)

Conductivités

Loi	**Extensité transportée**	**Potentiel**	**Conductivité**
Fick	Matière (mol)	Concentration ($mol.m^{-3}$)	Coefficient de diffusion D ($m^2.s^{-1}$)
Fourier	Chaleur (J)	Température (K)	Conductivité thermique λ ($J.m^{-1}.K^{-1}.s^{-1}$)
Newton	Quantité de mouvement ($kg.m.s^{-1}$)	Vitesse ($m.s^{-1}$)	Viscosité dynamique η ($kg.m^{-1}.s^{-1}$)

Diffusivités

Loi	Extensité transportée	Concentration d'extensité	Diffusivité
Fick	Masse (kg)	Masse volumique ρ (kg.m^{-3})	D (m^2.s^{-1})
Fourier	Chaleur (J)	$\rho c_p^o T$ (J.m^{-3})	$\alpha = \lambda / \rho c_p^o$ (m^2.s^{-1})
Newton	Quantité de mouvement (kg.m.s^{-1})	ρv (kg.m^{-2}.s^{-1})	$\nu = \eta \rho$ (m^2.s^{-1})

b) Echelles caractéristiques

Comme présenté précédemment, la présente étude s'axe sur l'inflammation des solides. L'inflammation telle que décrite jusqu'alors se focalisait sur des cas statiques et des conditions de pré-mélange combustible/comburant en phase gazeuse. Pour un solide, l'inflammation en phase gazeuse se produit en intégrant un aspect dynamique résultant de l'écoulement des gaz de pyrolyse au-dessus de la surface de la phase condensée.

Après l'inflammation des gaz de pyrolyse, la zone de réaction où l'énergie est produite sépare ces derniers du comburant. Le taux de réaction est en partie contrôlé par la diffusion moléculaire des gaz de pyrolyse vers la zone de réaction. Le processus d'inflammation ainsi que la structure de flamme de diffusion issue de ce phénomène dépendent principalement des temps caractéristiques de diffusion moléculaire et de la cinétique. Les longueurs caractéristiques respectives de la zone de mélange et de la zone de diffusion dépendent de ces temps caractéristiques.

Le mélange à l'échelle locale peut être défini entre autre par la fraction de mélange et son taux de dissipation scalaire. La fraction de mélange est définie tel que :

$$Z = \frac{\phi \frac{Y_F}{Y_{F,0}} - \frac{Y_O}{Y_{O,0}} + 1}{\phi + 1} \qquad \text{Eq. I.25}$$

$Y_{F,0}$ et $Y_{O,0}$ représentant les fractions massiques initiales de produit de pyrolyse et de comburant. ϕ représente la richesse du mélange et s'exprime comme suit :

$$\phi = s\left(\frac{Y_F}{Y_O}\right) \qquad \text{Eq. I.26}$$

Avec s, le rapport stœchiométrique défini par :

$$s = \left(\frac{Y_F}{Y_O}\right)_{st} \qquad \text{Eq. I.27}$$

Le taux de dissipation scalaire χ est calculé par :

$$\chi = D(\frac{\partial Z}{\partial x_j}\frac{\partial Z}{\partial x_j}) \qquad \text{Eq. I.28}$$

Avec D, le coefficient de diffusion moléculaire.

Le taux de dissipation scalaire de la fraction de mélange mesure l'inverse d'un temps, $\mathcal{T}_\chi = \chi^{-1}$. Le taux de dissipation scalaire contrôle le mélange puisqu'il fait intervenir les gradients de fraction de mélange.

De manière analogue à ce qui a été développé dans le paragraphe sur la phase condensée, plusieurs régimes pré-inflammation et post-inflammation peuvent être identifiés en phase gazeuse au travers du nombre de Damköhler (Da), rapport entre un temps caractéristique de diffusion des espèces et un temps caractéristique de réaction. De nombreuses études asymptotiques ont montré que l'échelle de temps caractéristique de mélange pouvait être estimée par :

$$\mathcal{T}_\chi = \frac{1}{\chi_{st}} \qquad \text{Eq. I.29}$$

D'où :

$$Da = \frac{\mathcal{T}_\chi}{\mathcal{T}_C} \approx \frac{1}{\mathcal{T}_C \cdot \chi_{st}} \qquad \text{Eq. I.30}$$

Avec :

$$\mathcal{T}_C = \frac{1}{Ae^{-\frac{E_a}{RT}}} \qquad \text{Eq. I.31}$$

La dépendance du taux de dégagement de chaleur au nombre de Damköhler peut être matérialisée par la courbe dite « en S » de la Figure 26 extraite de Veynante (Veynante & Vervisch, 2002).

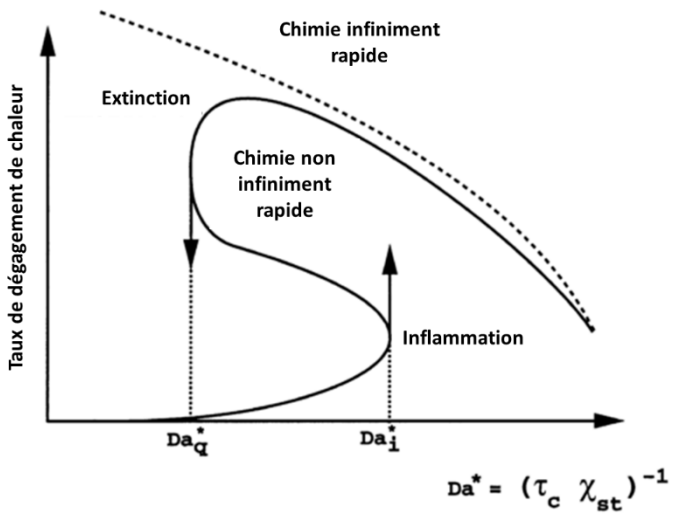


Figure 26 : Taux de dégagement de chaleur en fonction du nombre de Damköhler ; traduit de Veynante et Vervisch (Veynante & Vervisch, 2002)

Dans le cas d'une chimie infiniment rapide, l'accroissement du taux de dissipation scalaire augmente le transport vers la zone de stœchiométrie ce qui facilite la réaction. Ce processus possède une limite, la limite d'extinction, lorsque la réaction ne peut plus se poursuivre en raison du transport trop important. Cela génère en effet un temps de résidence des réactifs trop faible pour que la réaction ait lieu. Avant l'inflammation, le temps de résidence doit être suffisant pour que la réaction ait lieu et permette l'allumage. Cela conduit à la deuxième limite, appelée limite d'inflammation. Entre ces deux valeurs du nombre de Damköhler, le système est dans un état instable.

En combustion non-prémélangée, on peut faire apparaître deux cas limites du nombre de Damköhler :

- La limite de mélange pur sans réaction.
- La limites de chimie infiniment rapide.

En raisonnant dans l'espace de la fraction de mélange, on peut représenter ces limites sur de manière graphique comme présenté en Figure 27.

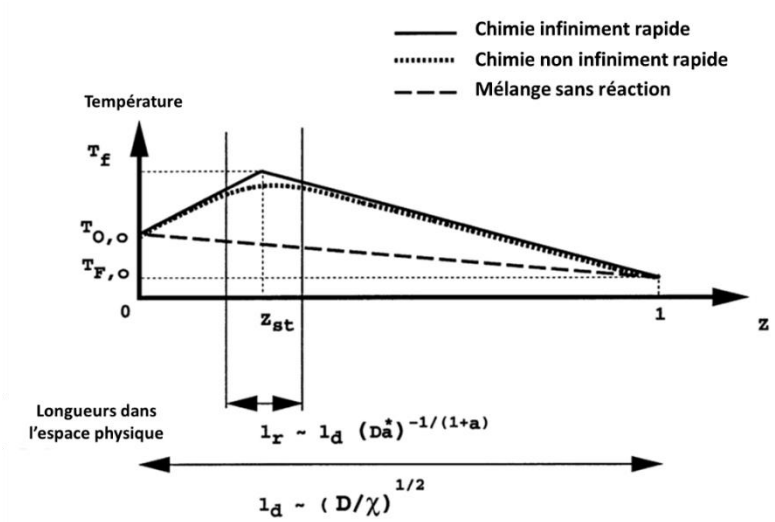


Figure 27 : Températures en fonction de la fraction de mélange, longueurs caractéristiques dans l'espace physique et limites du nombre de Damköhler ; traduit de Veynante et Vervisch (Veynante & Vervisch, 2002)

Le cas d'une chimie non infiniment rapide se situe entre ces deux limites.

En raisonnant dans l'espace physique, une longueur caractéristique du mélange peut être définie (Veynante & Vervisch, 2002) :

$$l_d = \left(\frac{D}{\chi_{st}}\right)^{1/2} \qquad \text{Eq. I.32}$$

En se basant sur les travaux de différents auteurs, Veynante note que par développement asymptotique, la longueur de la zone de réaction dépend du nombre de Damköhler et de la longueur de mélange (Veynante & Vervisch, 2002) :

$$l_r = l_d(Da)^{-1/(a+1)} \qquad \text{Eq. I.33}$$

a étant l'ordre de la réaction globale.

Lorsque la chimie est non-infiniment rapide, l'épaisseur de la zone de réaction ne peut être considérée comme infiniment mince devant la zone de diffusion des espèces.

Alors, lorsque :

- $Da \gg 1$, alors la chimie est très rapide et la turbulence a peu d'impact sur la structure de la zone réactionnelle (la flamme).
- $Da \ll 1$, alors la chimie est lente et la turbulence défait la structure de la flamme.

Un nombre de Damkölher critique est décrit par Chao, Torero et Williams (Chao & Fernandez Pello, 1997; Torero, 2016; Williams, 1985) concernant l'auto-inflammation. En effet, cette dernière ne peut se produire uniquement que lorsque le taux de dissipation des espèces est faible et dans une zone où les températures sont élevées.

I.5 - Principaux travaux : cas PMMA

Les études dans le domaine de la sécurité incendie relatives à l'auto-inflammation sont peu nombreuses et relativement dispersées quant aux matériaux étudiés et aux conditions expérimentales. Un état de l'art des travaux menés en relation avec l'auto-inflammation des polymères plastiques et du PMMA en particulier a alors été réalisé. Ces travaux expérimentaux servent de base afin de comparer les résultats de notre modèle à des cas réels ainsi qu'à d'autres études numériques.

Les travaux de Fernandez Pello faisant suite à ceux de Niioka (Chao & Fernandez Pello, 1997; Niioka et al., 1981) sont notables au regard de leurs avancées en termes de compréhension des phénomènes, avec l'introduction du nombre de Damköhler pour caractériser l'inflammation des solides. Le matériau étudié par ces deux auteurs est le PMMA.

Les configurations expérimentales nous intéressant dans le cadre de cette étude sont celles du cône calorimètre et trois études majeures peuvent actuellement apporter des données pour cette configuration précise :

- Tsai, sur l'étude expérimentale et numérique de l'auto-inflammation et de l'inflammation pilotée de plaques de PMMA en cône calorimètre (Tsai, Li, Shih, Jih, & Wong, 2001).
- Shi, sur le comportement de différents polymères dans des conditions d'auto-inflammation au cône calorimètre (Shi & Chew, 2013).
- Peng, sur l'étude expérimentale et numérique des effets d'orientation d'un échantillon de PMMA en auto-inflammation et en inflammation pilotée (Peng, Zhou, Zhao, Wu, & Yang, 2015).

I.5.1 - Travaux de Tsai et al.

La première étude mentionnée ici est une base de données très importante dans le cadre de ce travail de thèse. Elle a en effet été réalisée dans des conditions très similaires aux nôtres et comporte un travail expérimental parallèle qui permet d'appréhender certaines grandeurs clés, telles que le délai d'inflammation. La configuration du cône calorimètre et du maillage utilisés dans cette étude est présentée en Figure 28 (Tsai et al., 2001). La simulation se fait en deux dimensions axisymétriques.

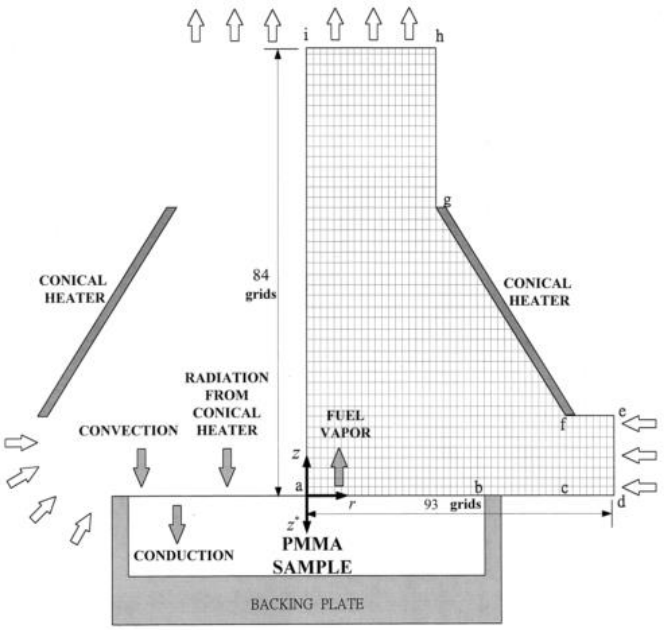


Figure 28 : Le cône calorimètre et son maillage d'après l'étude de Tsai (Tsai et al., 2001)

Le maillage du cône est présenté sur la Figure 28. La taille de maille n'est en revanche pas précisée dans l'étude mais l'auteur mentionne la présence de 93 mailles au maximum en largeur (à partir de la moitié de l'échantillon jusqu'à quelques centimètres après la spirale) et 84 mailles en hauteur au maximum. L'échantillon mesure 10 cm de large. Aux vues du schéma donné ci-dessus, la taille de maille peut être estimée à environ 1 mm^2.

Deux modèles à une étape sont utilisés pour modéliser la cinétique de dégradation thermique du solide et la cinétique de combustion du mélange gazeux (ces derniers sont issus d'études antérieures de Di Blasi et al. (Di Blasi et al., 1991)). Ces modèles constituent une première source d'information importante. Les figures ci-après permettent une vision phénoménologique globale de l'inflammation, à trois temps caractéristiques. Elles exposent la vitesse des gaz, leur température, la concentration en MMA et la concentration d'oxygène. L'échantillon est alors soumis à un éclairement énergétique de 35 $kW.m^{-2}$ et les pas de temps des trois figures suivantes sont :

- Figure 29 (a) : 183,602 s
- Figure 29 (b) : 183,804 s
- Figure 29 (c) : 184,148 s

Ces temps caractéristiques très courts montrent à quel point le pas de temps de calcul doit être faible dans ce type d'étude.

Le premier pas de temps donné se situe juste avant l'inflammation (qui a lieu deux millièmes de seconde après selon les critères de l'auteur[3]). Aucune augmentation de vitesse n'a lieu dans les gaz (excepté dans la zone conique de l'appareil) et la fraction massique de MMA est de 0.7. L'auteur mentionne que lors de l'inflammation, un point chaud de 1000 K apparaît 5 mm au-dessus de la surface du solide. Nous pouvons remarquer l'apparition de cette zone sur le premier

[3] Nous reviendrons au Chapitre II sur la notion de détermination du temps d'inflammation qui peut varier en fonction des auteurs. Nous exposerons alors le critère de choix retenu.

pas de temps. Elle se situe au centre de l'échantillon et donne ainsi une information importante quant à la localisation du phénomène dans un cas standard. L'auteur précise alors dans ses travaux que le taux de réaction augmente d'un facteur mille en 2 ms. Le front de flamme s'étend alors très rapidement, comme cela est suggéré par la Figure 29 (b) du deuxième pas de temps. Les champs de vitesses sont modifiés tant le gaz est accéléré par l'expansion thermique du au dégagement de chaleur. La flamme est alors parfaitement établie au dernier pas de temps (Figure 29 (c)).

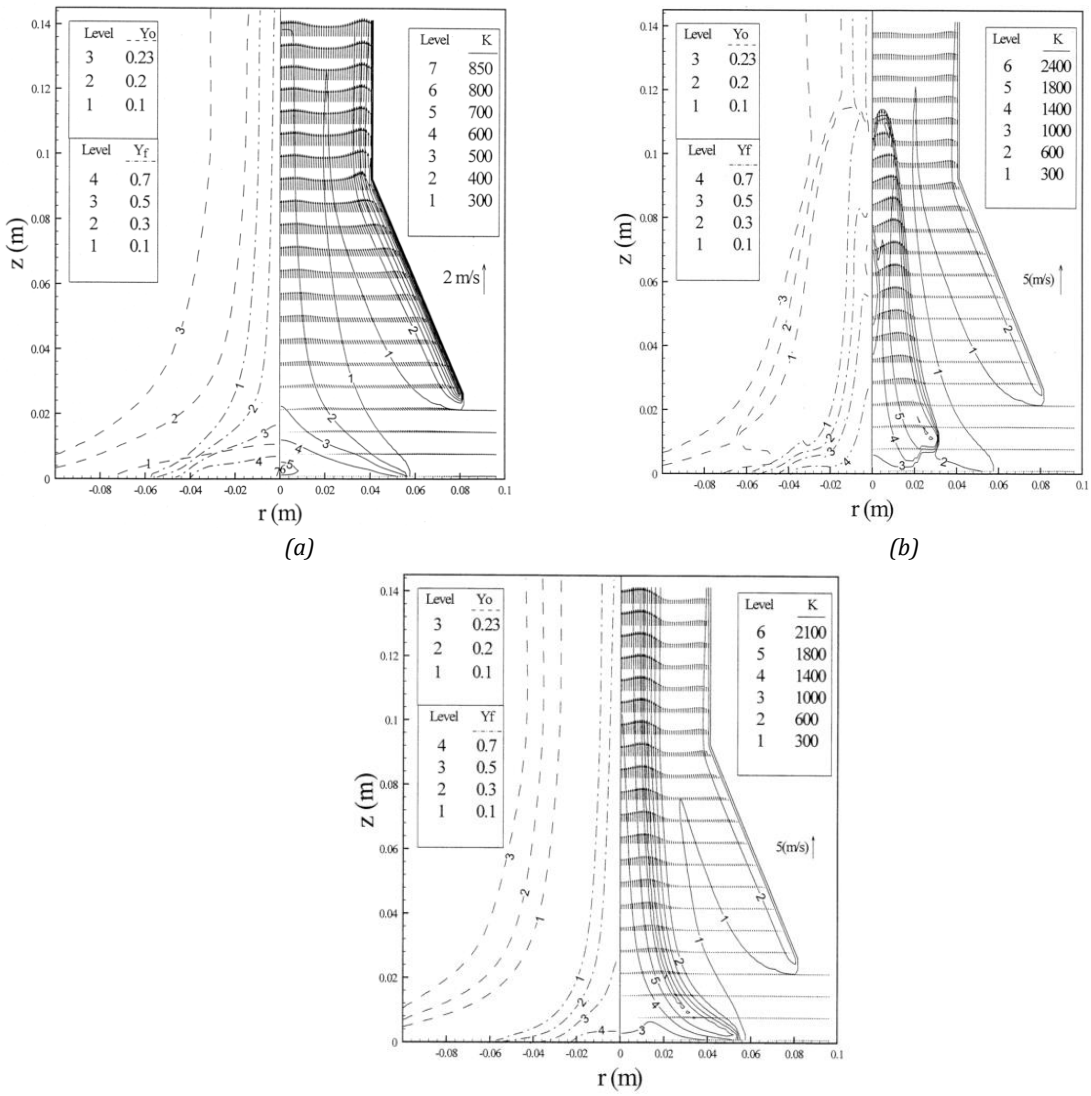


Figure 29 : Conditions d'auto-inflammation sous cône calorimètre avec un éclairement énergétique de 35 kW.m^{-2} ; résultats des simulations de (Tsai et al., 2001) en termes de fractions massiques de MMA et d'O_2, de températures et de vitesses (composante verticale) pour les pas de temps (a) antérieur à l'inflammation ; (b) à l'inflammation ; (c) postérieur à l'inflammation ; extrait de Tsai (Tsai et al., 2001)

Tsai présente ensuite l'historique de la température de surface pour deux cas tests à 30 et 50 kW.m^{-2}. Les courbes ci-dessous permettent d'extraire trois facteurs importants à notre étude :

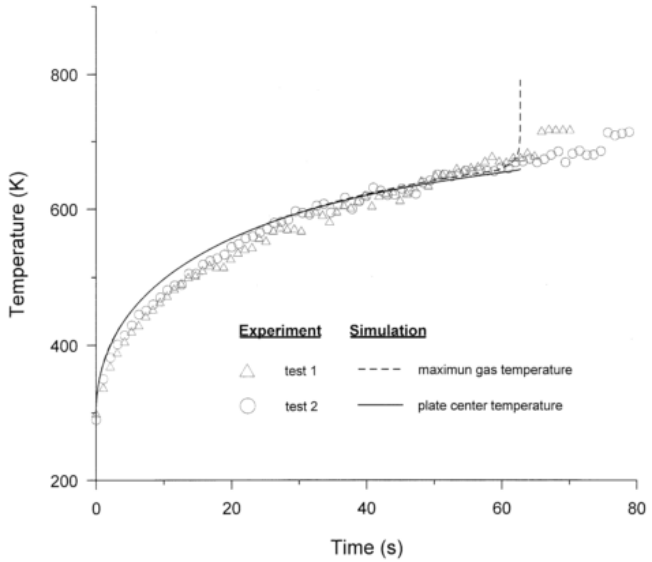
- La cohérence du modèle avec les cas expérimentaux.
- L'importance des conditions aérauliques aux faibles éclairements énergétiques.
- L'occurrence de la réaction dans la phase gazeuse.

Dans un premier temps, les prédictions de températures données par les modèles avant l'inflammation sont proches des mesures expérimentales.

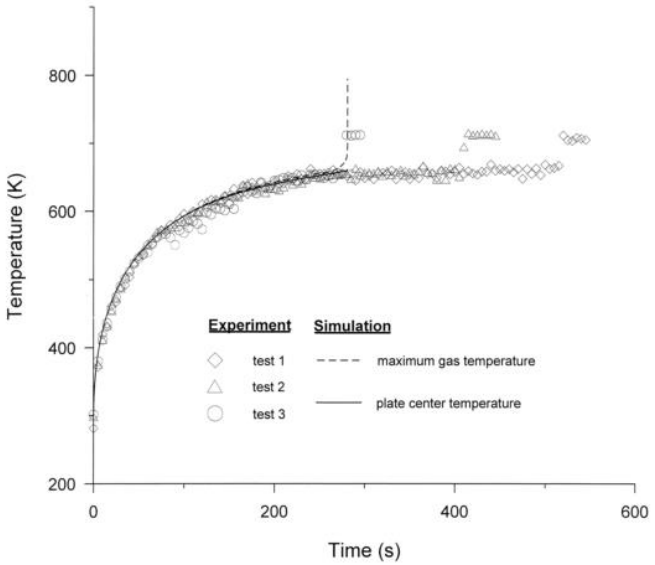
Dans un deuxième temps, pour un éclairement énergétique de 30 kW.m^{-2}, l'inflammation a lieu à différents temps en fonction des tests. L'auteur précise alors l'influence des conditions aérauliques et la dépendance de l'inflammation à ces dernières. Il est alors possible de noter l'impact du nombre de Damköhler mentionné dans les parties précédentes.

Pour finir, l'auteur note l'importance des réactions en phase gazeuse et notamment aux faibles éclairements énergétiques. En effet, sur les courbes données en Figure 30, l'échauffement des gaz a lieu avant celui de la surface et ce malgré l'atteinte de températures de surface élevées.

Ces paramètres importants sont à prendre en considération, avec un affinement, en plus du pas de temps, de l'instrumentation de la phase solide et de la phase gazeuse.



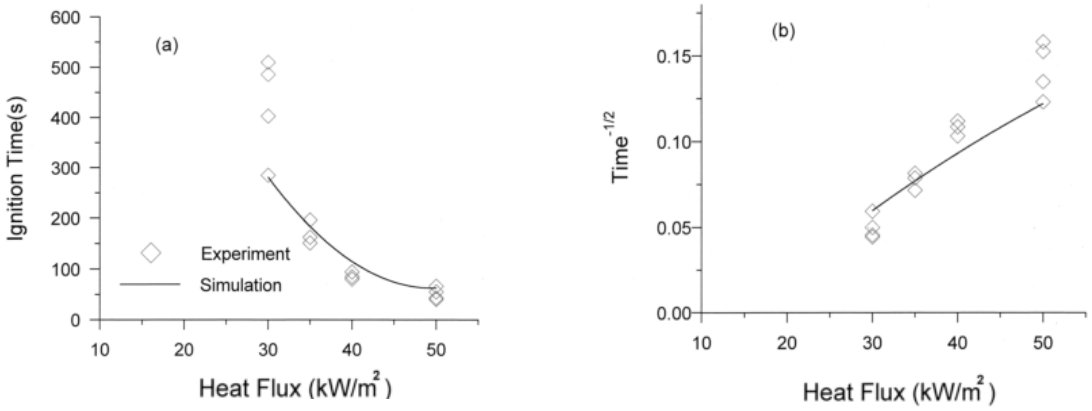
(a)



(b)

Figure 30 : Résultats expérimentaux et numériques des mesures de température à la surface du solide et dans la phase gazeuse : (a) 50 kW.m^{-2} ; (b) 30 kW.m^{-2} ; extrait de Tsai (Tsai et al., 2001)

En se basant sur le critère unique du temps d'inflammation sans pilote, la Figure 31 montre que ce dernier est bien reproduit par le modèle en fonction des différents éclairements énergétiques. Une divergence est cependant observée pour les faibles flux, ce qui souligne alors les limites d'un modèle à une étape. En effet, aucune inflammation n'est observée numériquement pour des éclairements énergétiques inférieurs à 30 kW/m², alors que l'expérience montre que celle-ci est possible. Il est à noter l'importance de la cinétique en phase gazeuse et les limites d'un modèle de combustion simple. Nous devrons prendre en considération cet aspect pour la suite de notre étude qui se base également sur un modèle cinétique à une étape.



(a) *(b)*

Figure 31 : (a) Délais d'inflammation théoriques et expérimentaux et (b) racine carrée du temps d'inflammation en fonction de l'éclairement énergétique ; extrait de Tsai (Tsai et al., 2001)

I.5.2 - Shi et al.

L'étude expérimentale de Shi (Shi & Chew, 2013) sur l'auto-inflammation des polymères plastiques en cône calorimètre est particulièrement intéressante. Le Tableau 5 ci-après permet notamment d'obtenir des grandeurs de délai d'inflammation en fonction de l'éclairement énergétique. Ces travaux permettent également de détailler le débit de pyrolyse moyen du solide mais également son taux dégagement de chaleur, la valeur de son pic et son délai d'atteinte. Nous invitons le lecteur à s'y référer pour plus d'information.

Tableau 5 : Délais d'inflammation et débit de pyrolyse moyen dans le cadre des éxprimentations d'auto-inflammation du PMMA, modifié de Shi (Shi & Chew, 2013)

Matériau	**Epaisseur** (mm)	**Eclairement énergétique** ($kW.m^{-2}$)	**Débit de pyrolyse moyen** ($g.m^{-2}.s^{-1}$)	**Temps d'inflammation** (s)
PMMA	10	50	18	52
	20	50	20	37
	30	50	21	32
	10	75	26	24
	20	75	27	19
	30	75	31	17

A noter que les valeurs de temps d'inflammations sont cohérentes avec les résultats de (Tsai et al., 2001).

I.5.3 - Peng et al.

Peng et al. proposent une étude expérimentale et numérique de l'auto-inflammation (et de l'inflammation pilotée) du PMMA dans une configuration proche du cône calorimètre via un panneau radiant (Peng et al., 2015). Cette configuration est présentée ci-dessous en Figure 32.

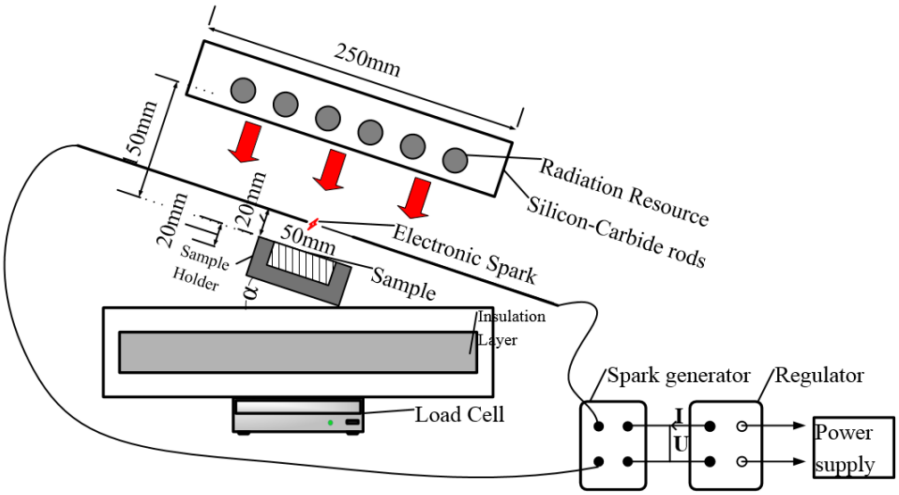


Figure 32 : Dispositif expérimental étudié par Peng et al. (Peng et al., 2015)

L'impact de la variation de l'orientation de l'échantillon est ensuite étudié dans les deux configurations (inflammation pilotée et auto-inflammation), selon les angles décrits par la Figure 33.

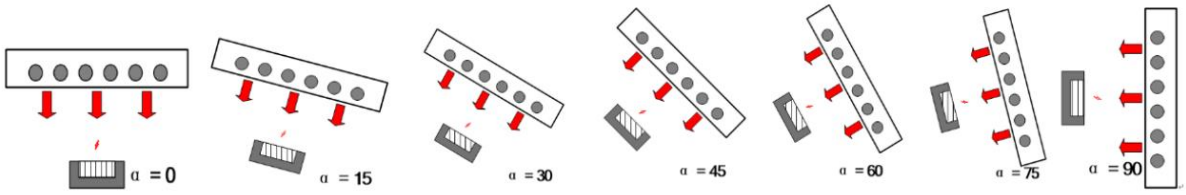


Figure 33 : Configurations d'orientations testées ; extrait de Peng et al. (Peng et al., 2015)

Outre le fait que cette étude concerne l'auto-inflammation du PMMA, elle représente également une étude faisabilité car le logiciel de modélisation utilisé est Fire Dynamics Simulator[4]. Une configuration en deux dimensions du banc expérimental est alors proposée et l'orientation de l'échantillon est modifiée en modulant les composantes verticale et horizontale du vecteur gravité. Comme pour les travaux de Tsai (Tsai et al., 2001), un modèle de décomposition du PMMA à une étape a été choisi ainsi que pour le modèle de combustion. La taille de maille utilisée est de 1 mm et reste relativement élevée pour une Simulation Numérique Directe, celle-ci devant normalement être inférieure à l'échelle de dissipation. Même si la taille de maille est discutable aux vues de travaux en DNS tels que ceux menés dans le domaine de la combustion moteur (et même dans le domaine de l'incendie (Xie & DesJardin, 2009)), la Figure 34 ci-après montre que l'inflammation a lieu quelques millimètres au-dessus du solide, ce qui vient confirmer l'étude numérique de Tsai et l'importance des phénomènes en phase gazeuse.

[4] Nous verrons au Chapitre II que c'est ce logiciel, dans son même mode (Simulation Numérique Directe), qui a été choisi pour notre étude.

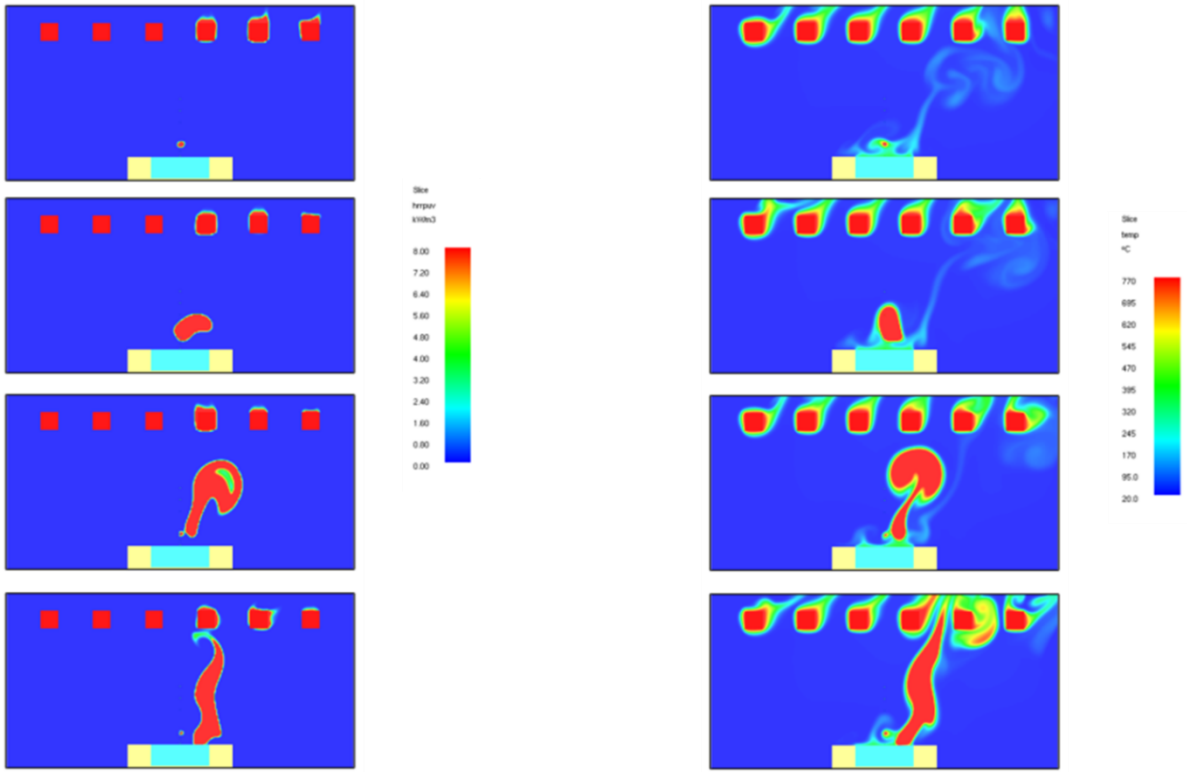


Figure 34 : Taux de dégagement de chaleur et température issus de simulations numériques ; extrait de Peng et al. (Peng et al., 2015)

Pour conclure sur cette dernière étude et sur l'état de l'art de l'auto-inflammation du PMMA, les travaux de Xie (Xie & DesJardin, 2009) traitant de la propagation de flamme sur des plaques de PMMA au travers de la Simulation Numérique Directe sont considérés. Les résultats de ces travaux ouvrent une première approche d'utilisation de la DNS dans des applications de sécurité incendie afin de mieux comprendre le comportement et la structure de la flamme. Les auteurs étudient alors différentes orientations de matériaux avec un maillage de 0,5 mm × 0,5 mm qui, après une étude sensibilité, leur permet de s'affranchir de variations trop importantes entre les différentes variables locales et globales mesurées. Ce travail a constitué une base de réflexion pour la suite de ce mémoire mais ne sera pas détaillé car l'autoallumage n'y est pas traité.

I.6 - Conclusion de fin de chapitre

Ce premier chapitre a pour but d'apporter au lecteur une vision globale sur les enjeux à décrire de manière précise l'auto-inflammation des solides.

De par l'évolution des moyens de calculs, les modèles macroscopiques ou gigascopiques se développent pour aller vers des outils de plus en plus détaillés, notamment concernant les feux de milieux naturels. L'état de l'art montre cependant une avancée plus lente concernant les feux urbains. Pour la plupart de ces derniers, le paramètre clé que représente l'inflammation dans la propagation n'est pas détaillé de manière fine. L'auto-inflammation des matériaux reste moins étudiée que l'inflammation pilotée, malgré son implication dans différentes situations de propagation.

Au travers des approches développées par la communauté scientifique, nous avons pu décrire finement ce phénomène et en adapter sa compréhension pour des cas de feux. Si certaines notions sont directement applicables entre la combustion « pure » et le phénomène feu, d'autres paramètres sont plus discutables en dehors des conditions opératoires qui sont souvent bien différentes entre les deux domaines de recherche.

Cette étude est complétée par une recherche bibliographique sur l'auto-inflammation du PMMA, solide étudié dans la suite de ce mémoire de thèse. Elle permet notamment de comparer et valider notre modèle par des données expérimentales et numériques.

La compréhension phénoménologique de l'auto-inflammation et la connaissance des paramètres clés à ne pas négliger en phases condensée comme gazeuse, permet maintenant de passer à l'étape de sa modélisation dans une configuration simple et connue. Pour ce faire, le Chapitre suivant permet d'aborder le choix de l'outil de modélisation, son contenu et ses données d'entrées pour terminer sur sa phase de test.

Chapitre II : Modèles de description des phénomènes physico-chimiques

Le Chapitre I a permis une description précise des processus liés à l'auto-inflammation des solides, et en particulier du PMMA. Au sein du Chapitre II, la modélisation de ces phénomènes en prenant en considération les particularités associées à la décomposition thermique du solide est réalisée.

Pour ce faire, le Chapitre II rappelle brièvement les besoins et les typologies de modélisation possibles pour décrire l'auto-inflammation des solides. Le choix effectué, les sous-modèles composant le code de calcul sélectionné sont présentés ainsi que les configurations modélisées. La capacité du code à capter une auto-inflammation ainsi que le choix du maillage sont détaillés alors.

Dans un second temps, les paramètres influant l'auto-allumage du solide, notamment en termes de surface d'échantillon, sont traités. Mise à la marge de ce rapport, cette étude offre une base de travail permettant de valider en partie le modèle utilisé et met à disposition de la communauté des résultats pour des études futures.

Comme constaté au sein du Chapitre I, la densité du matériau est un paramètre clé modifiant ses propriétés thermiques. Sa variation est alors abordée, car influente sur l'auto-allumage du solide.

SOMMAIRE DU CHAPITRE II

II.1 - Modèles numériques 52
II.1.1 - Rappel des besoins 52
II.1.2 - Modélisation de la turbulence 53
II.1.3 - Fire Dynamics Simulator 56
II.2 - Données d'entrée 60
II.2.1 - Phase condensée 60
II.2.2 - Phase gazeuse 60
II.3 - Configurations testées 61
II.3.1 - Le dispositif du cône calorimètre et son adéquation aux besoins 61
II.3.2 - Approche de faisabilité 1D, captation de l'auto-inflammation 62
II.3.3 - Etude 2D de l'auto-inflammation des solides 65
II.3.4 - Paramètres influents et modifications 73
II.4 - Conclusions de fin de chapitre 75

II.1 - Modèles numériques

II.1.1 - Rappel des besoins

Deux types de besoins sont identifiés pour mener à bien cette étude. Les premiers sont d'ordre numérique et doivent intégrer des outils de résolution fine, tant d'un point de vue spatial que temporel. Par ailleurs, ces moyens numériques doivent se baser sur des données d'entrées fiables, représentatives de la physique et de la chimie des phénomènes étudiés.

a) Besoins numériques :les processus physico-chimiques mis en jeu

La partie précédente décrivant un état de l'art des travaux menés sur l'auto-inflammation des solides, a mis en avant différents temps caractéristiques. Ces temps sont liés à la phase condensée (temps caractéristique de la pyrolyse, de la conduction) et à la phase gazeuse (temps de transport, d'induction). De manière couplée, les temps caractéristiques des phénomènes thermiques et chimiques sont à prendre en considération et doivent être résolus finement.

Par ailleurs, la brièveté du phénomène d'inflammation et son aspect local exigent un outil capable de capter toutes les échelles de temps et d'espace. Torero mentionne notamment que l'inflammation telle qu'il en décrit le processus (via le nombre de Damköhler critique) nécessite une résolution complète de l'écoulement, des champs de températures, ainsi qu'une bonne compréhension de la cinétique chimique de combustion (Torero, 2016).

Pour comprendre les phénomènes, il est nécessaire de les isoler et de les étudier dans des configurations où toutes les variables sont maîtrisées pour ensuite analyser finement les résultats. La configuration choisie doit donc être connue et reconnue au niveau international. A partir de cette configuration académique, des conclusions pourront être tirées quant aux phénomènes observés.

De par ces constats, il est possible d'identifier plusieurs processus physico-chimiques devant être modélisés :

- Les transferts de chaleur dans la phase condensée et la phase gazeuse.
- La pyrolyse des matériaux.
- L'écoulement et la diffusion des produits de décomposition dans l'air.
- La composition du mélange.
- La combustion des gaz de pyrolyse.

Les transferts de chaleur jouent un rôle prépondérant dans le processus de décomposition des matériaux comme cela a pu être illustré au Chapitre I. Dès lors que l'énergie apportée au solide est supérieure à l'énergie de liaison de ses molécules, sa décomposition est entamée et mène à la génération de produits sous différentes formes et en particulier, de gaz de pyrolyse. Il en va de même pour l'importance des transferts de chaleur entre ces gaz et l'air ambiant. L'écoulement et ses perturbations se doivent aussi d'être captés via des modèles de résolution de la turbulence. Cette dernière favorise en effet le mélange entre combustible et comburant qui est décrit en terme de fractions volumiques, massiques ou en encore en terme de fraction de mélange. Mélangés, et par le biais des transferts de chaleur, combustible et comburant réagissent et donnent lieu à l'apparition de la flamme. La réaction de combustion doit être modélisée au même titre que la réaction de pyrolyse.

b) Besoins en données d'entrée

Les données d'entrée d'une simulation sont capitales pour l'analyse des phénomènes. Il revient donc de s'attarder sur les études menées, tant dans la phase condensée que dans la phase gazeuse. Les propriétés des deux phases, d'un point de vue chimique mais également thermique doivent être identifiées et implémentées au sein du modèle d'auto-inflammation. Ces propriétés doivent aussi prendre en considération les éventuels changements d'états et les variations à la température.

Le polyméthacrylate de méthyle est un matériau très répandu et étudié dans le domaine de la sécurité incendie du fait de sa décomposition quasi-complète en son monomère, le méthacrylate de méthyle (MMA). L'étude d'un solide de ce type permet donc d'obtenir un grand nombre de sources dans la littérature.

Nous verrons au II.2 que les travaux expérimentaux de Li et Stoliarov constituent une base de données importante sur le PMMA (J. Li & Stoliarov, 2013). Par ailleurs, ces travaux multi échelle permettent une approche globale de la décomposition du PMMA, de l'échelle de la matière à celle du matériau. L'étude de Korver permet quant à elle de disposer de données dans la phase gazeuse (Korver, 2015).

La récence de ces travaux permet d'intégrer notre étude au plus près de l'avancée actuelle de la recherche en matière de sécurité incendie. L'implémentation de ces données dans FDS autorise également la comparaison entre résultats numériques et expérimentaux.

De manière concrète, les données physiques nécessaires à la modélisation de la décomposition du solide sont son émissivité, sa chaleur spécifique, sa conductivité et sa densité. D'un point de vue chimique, il est également important de considérer la réaction apparente de décomposition avec les paramètres cinétiques que sont le facteur pré-exponentiel, l'énergie d'activation et l'enthalpie de réaction.

Pour la phase gazeuse, au même titre que pour le solide, la chaleur spécifique du MMA doit être considérée ainsi que sa conductivité, sa viscosité dynamique et sa diffusivité moléculaire. La cinétique de combustion doit également être considérée au travers du facteur pré-exponentiel et de l'énergie d'activation de la réaction considérée.

II.1.2 - Modélisation de la turbulence

a) Généralités

La turbulence est un domaine de la physique représentant encore un défi à l'heure actuelle. Elle se définit comme un mode naturel d'écoulement d'un fluide visqueux où des mécanismes internes d'échange d'énergie assurent la création et le maintien de toute hiérarchie de mouvements chaotiques répartis continûment sur une large gamme d'échelles macroscopiques (Marchesse, 2010).

L'écoulement représente en effet un glissement des particules fines les unes sur les autres, conduisant, au niveau moléculaire, à des échanges entre les couches et à une diffusion de l'écoulement. Ce régime d'écoulement présente par ailleurs des mouvements désordonnés et tridimensionnels.

La turbulence se caractérise notamment par :

- Une taille supra-moléculaire.
- Un comportement aléatoire.
- Un dénombrement infini.
- Des structures tri-dimensionnelles.
- De l'intermittence.
- Une cinématique rotationnelle.
- Une dynamique non linéaire.
- La dissipation de l'énergie.

On parle alors de cascade de Kolmogorov, principe énonçant que les grands tourbillons générés par le rapport des forces de viscosité et de l'inertie se divisent en tourbillons plus petits. En dessous d'une certaine taille, la viscosité dissipe l'énergie cinétique des tourbillons et devient de l'énergie interne au fluide.

Le caractère laminaire ou turbulent d'un écoulement est défini par le nombre de Reynolds, induisant le rapport entre inertie et viscosité. Le comportement des fluides est quant à lui décrit par les équations de Navier-Stokes, à la base des méthodes de modélisation présentées ci-après.

b) Méthodes RANS (Reynolds Averaged Navier-Stokes)

Si l'on décompose la vitesse d'écoulement d'un fluide comme la somme d'une vitesse moyenne et des fluctuations de vitesse, les méthodes RANS ne prennent en considération que l'écoulement moyen. Il s'agit d'une approche statistique de la turbulence, exprimant les équations du champ moyen.

Le coût de calcul de ce type de modélisation est faible mais la perte en précision est importante. Ces méthodes sont très utilisées dans l'industrie pour des applications ne nécessitant pas un niveau de détail important.

c) Méthodes LES (Large Eddy Simulation) ou simulation des grandes échelles

En reprenant l'exemple de décomposition de la vitesse, les méthodes LES permettent de considérer les grandes fluctuations (tourbillons) et de modéliser les petites. Un filtre spatial est alors appliqué à l'ensemble du domaine afin de fixer la taille des tourbillons à simuler.

En fonction des tailles de domaines et des durées souhaitées, ces simulations sont de moins en moins coûteuses en temps de calcul du fait de l'évolution des moyens actuels, mais restent tout de même non négligeables sans machine dédiée au calcul.

d) Méthode DNS (Direct Numerical Simulation) ou simulation numérique directe

La DNS permet une résolution complète des équations de Navier-Stokes. Toutes les quantités instantanées de l'écoulement sont alors accessibles. La taille de maille doit être inférieure à l'échelle de dissipation.

Ces méthodes nécessitent des temps de calcul élevés du fait de leur grand nombre de maille. Elles sont aujourd'hui encore réservées à des applications de recherche et nécessitent des calculateurs. De manière académique, la DNS permet l'étude de cas simples en vue de capter et d'analyser des phénomènes précis. Celle-ci revêt donc un caractère intéressant dans le cadre de l'étude de l'auto-inflammation des solides, comme cela est mentionné par (Torero, 2016).

Afin d'illustrer ce propos, il est commun d'utiliser les représentations données en Figure 35, Figure 36 et Figure 37 pour comparer ces trois méthodes de calcul.

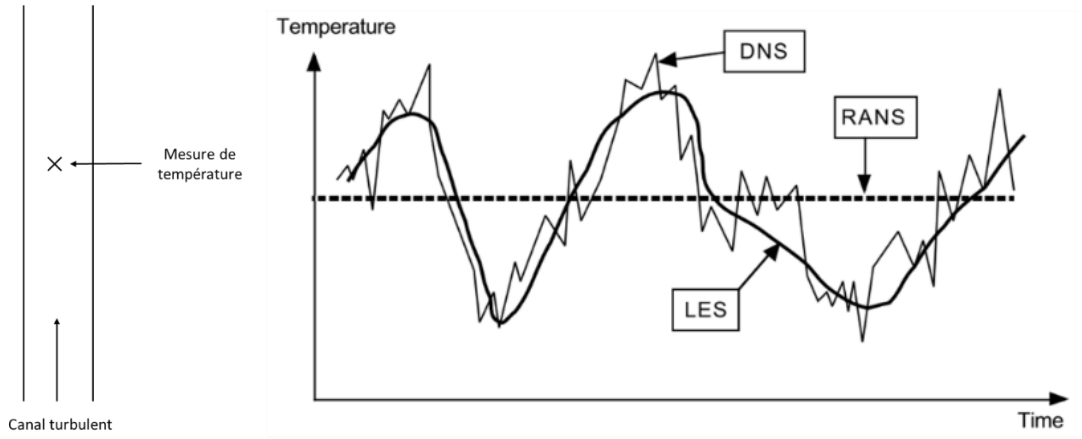


Figure 35 : Mesure de température au sein d'un écoulement turbulent et représentation de son évolution en fonction du temps pour les trois méthodes ; RANS, LES, DNS ; extraites et modifiées de Cuenot, Poinsot et Veynante (Cuenot, n.d.; Poinsot & Veynante, 2005)

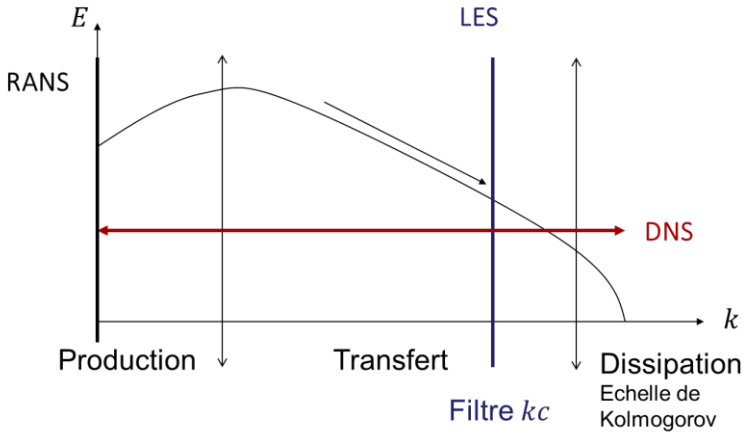
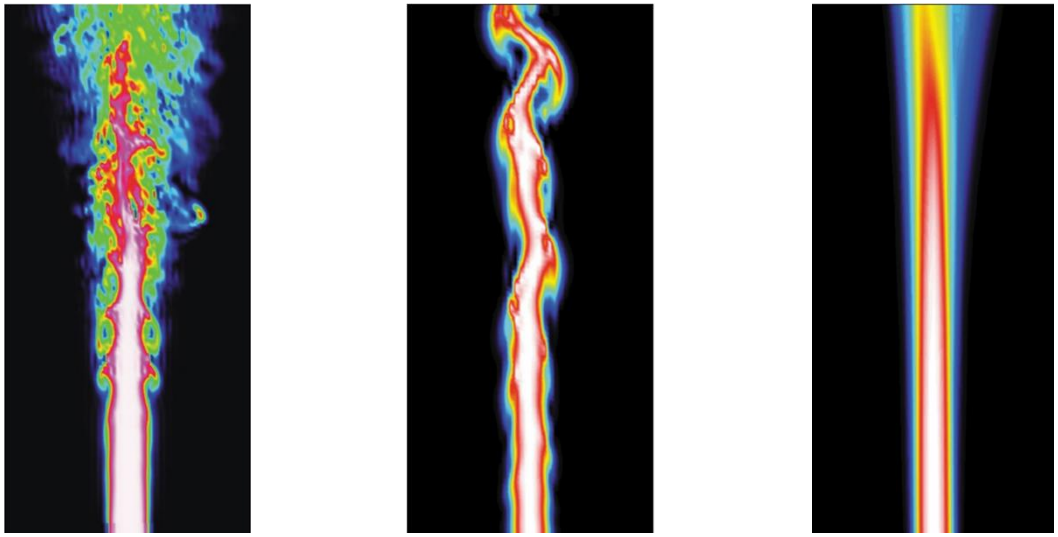


Figure 36 : Spectre d'énergie cinétique turbulente ; extraite et modifiée de Cuenot (Cuenot, n.d.)



(a) (b) (c)

Figure 37 : (a) DNS, simulation numérique directe, toutes les échelles de la turbulence sont résolues ; (b) LES, simulation des grandes échelles, seules les grandes échelles sont résolues et les petites modélisées ; (c) RANS, modélisation statistique de la turbulence, toutes les grandeurs sont moyennées par rapport au temps

Particulièrement précise, c'est vers une méthode DNS que s'oriente notre choix en vue de modéliser l'auto-inflammation du PMMA. En effet, ce phénomène implique des processus nécessitant une résolution fine de l'écoulement et de la chimie ce qui sera le cas avec ce type de méthode.

II.1.3 - Fire Dynamics Simulator

Fire Dynamics Simulator est un outil de simulation CFD (pour *« Computational Fluids Dynamics »*), basé sur une forme des équations de Navier-Stokes. Ce code de calcul fut introduit dans la communauté des sciences de l'incendie en février 2000 et est désormais à sa sixième version. Il est développé par le National Institute of Standards (NIST, USA) en collaboration avec VTT Technical Research Centre of Finland (Finlande).

Plusieurs raisons ont poussé à choisir FDS afin de modéliser l'inflammation des solides. Ce logiciel propose actuellement un mode DNS correspondant à nos besoins. Il est par ailleurs très répandu dans le domaine de la sécurité incendie, aujourd'hui bien connu et maîtrisé par les équipes de recherche comme dans l'industrie.

FDS est aujourd'hui disponible dans sa version 6.5.2. Dans le cadre de cette étude, une version 6 antérieure à cette dernière a été choisie : la version 6.0.2. Cette dernière a été sélectionnée pour des raisons liées aux parutions de version au moment du début des travaux mais également et surtout pour parer à des problématiques de disponibilité de compilateurs au sein des organismes dans lesquel j'ai pu évoluer.

Comme tout code de calcul, FDS est constitué de sous modèles. Comme cela a été étudié au cours du Chapitre I, il est indispensable de représenter les phénomènes physico-chimiques inhérents à la phase condensée comme ceux de la phase gazeuse. Pour ce faire, les parties suivantes décrivent le sous-modèle de pyrolyse implémenté dans FDS, ainsi que le sous-modèle de combustion. Le lecteur est invité à se référer aux documentations du NIST pour plus d'informations relatives aux modèles aérauliques et de rayonnement (McGrattan et al., 2013; Mc Grattan, Hostikka, Floyd, & Mcdermott, 2012) ainsi qu'aux travaux francophones de Marquis (Marquis, 2010).

a) Modèle de pyrolyse

Fire Dynamics Simulator donne le choix à l'utilisateur entre deux approches afin de décrire la pyrolyse des solides. Cette dernière peut être spécifiée par le modélisateur (en fixant des rampes) ou calculée par le code en fonction des données d'entrée thermiques et chimiques du solide. Dans tous les cas, les transferts de chaleur et la pyrolyse sont traités en une dimension. La volonté d'analyser finement l'inflammation des solides impose le choix d'une pyrolyse calculée. Les paramètres d'entrée de ce modèle sont donnés dans les parties suivantes de ce mémoire.

FDS permet d'intégrer des réactions multiples et simultanées au sein des combustibles solides : le PMMA se décomposant dans sa quasi-totalité en son monomère, le MMA, un modèle de dégradation du PMMA à une étape est choisi. L'utilisateur définit également les produits de dégradation qui peuvent être gazeux (gaz de pyrolyse) ou solides (charbon).

Pour aller plus finement dans la description des sous-modèles utilisés par FDS, nous nous basons sur la littérature officielle du NIST (McGrattan et al., 2013).

L'évolution de la densité du matériau α est résolue selon l'équation de conservation des espèces suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{\rho_s, \alpha}{\rho_s(0)}\right) = -\sum_{\beta=1}^{N_{r,\alpha}} r_{\alpha\beta} + S_\alpha \qquad \text{Eq. II.1}$$

$N_{r,\alpha}$: nombre de réactions pour le matériau α
$r_{\alpha\beta}$: taux de réaction
$\rho_s(0)$: densité initiale du matériau
S_α : taux de production d'un composant de matériau α

Cette variation de densité est un paramètre important qu'il nous revient de prendre en considération dans l'exploitation de nos données. En effet, les commandes usuelles de FDS ne permettent pas de capter de manière directe les taux de réaction dans la phase condensée. La densité est donc utilisée pour recalculer ce dernier en post-traitement, comme cela est présenté au sein du Chapitre III.

Le taux de réaction est fonction de l'évolution de la densité dans la phase condensée mais prend également en considération la phase gazeuse pour les réactions d'oxydation de surface, en intégrant la concentration locale d'oxygène, tel que décrit par Torero (Torero, 2016). Il combine des fonctions de puissances et la relation d'Arrhenius sous la forme suivante :

$$r_{\alpha\beta} = \left(\frac{\rho_s, \alpha}{\rho_s(0)}\right)^{n_{s,\alpha\beta}} A_{\alpha\beta} \exp\left(-\frac{E_{\alpha\beta}}{RT_s}\right) \left[X_{O_2}(x)\right]^{n_{O_2,\alpha\beta}} \max[0, S_{thr,\alpha,\beta}\left(T_s - T_{thr,\alpha\beta}\right)^{n_{t,\alpha\beta}}] \qquad \text{Eq. II.2}$$

Le premier terme de cette équation (incluant la variation de densité) décrit la dépendance du taux de réaction sur la concentration du réactif avec $n_{s,\alpha\beta}$, l'ordre de réaction partiel. Le second terme est quant à lui une fonction d'Arrhenius, utilisée communément en cinétique chimique pour décrire les vitesses de réactions.

Comme cela a été mentionné précédemment, le troisième terme correspond à la dépendance de la concentration locale d'oxygène $X_{O_2}(x)$ et l'ordre de réaction hétérogène $n_{O_2,\alpha\beta}$. Cette valeur est calculée en fonction de la fraction volumique d'oxygène :

$$X_{O_2}(x) = X_{O_2,g} \exp\left(-\frac{x}{L_{g,\alpha\beta}}\right) \qquad \text{Eq. II.3}$$

$L_{g,\alpha\beta}$: profondeur caractéristique de diffusion de l'oxygène

Le PMMA est un matériau peu poreux et la conduction prédomine lors des transferts de chaleur. Par ailleurs, la diffusion de l'oxygène au sein du solide lors de la décomposition du solide est rendue difficile par l'émission des gaz de pyrolyse (Hermouet, 2015). La porosité peut alors être négligée au cours de nos calculs.

Le quatrième terme de l'équation II.2 est une fonction de puissance correspondant à la température dite « seuil » $T_{thr,\alpha\beta}$ pouvant être utilisée pour fixer l'occurrence de la réaction à $S_{thr,\alpha,\beta} = +1$ ou $S_{thr,\alpha,\beta} = -1$. Cette température peut être fixée par l'utilisateur, mais ce terme

est désactivé par défaut et n'est pas utilisé dans le cadre de cette étude. La pyrolyse est entièrement résolue selon le modèle d'entrée décrit ultérieurement.

La dégradation du matériau ayant été étudiée en détail, voyons maintenant comment sont résolues les problématiques d'émissions gazeuses et la production de résidu solide lors de la pyrolyse. Ainsi, le taux de réaction calculé en fonction de la densité et de la température pourra être vérifié en comparant des débits de pyrolyse calculés aux débits mesurés dans la simulation. Est alors introduit un terme de production S_α représentant la somme de toutes les réactions pour lesquelles le résidu solide est le matériau α.

$$S_\alpha = \sum_{\alpha'=1}^{N_m} \sum_{\beta=1}^{N_{r,\alpha'}} \nu_{\alpha,\alpha'\beta}\, r_{\alpha'\beta} \qquad \text{Eq. II.4}$$

$\nu_{\alpha,\alpha'\beta}$ est le rendement de composant α de la réaction β de composant α.

Pour les gaz de pyrolyse, le taux de production volumique de chaque espèce γ émise sur toute la profondeur affectée par la réaction, s'exprime :

$$\dot{m}_\gamma''' = \rho_s(0) \sum_{\alpha=1}^{N_m} \sum_{\beta=1}^{N_{r,\alpha}} \nu_{\gamma,\alpha\beta}\, r_{\alpha\beta} \qquad \text{Eq. II.5}$$

Dès lors, FDS considère que les gaz sont transportés de manière instantanée à la surface où le débit massique est donné, par :

$$\dot{m}_\gamma'' = \int_0^L \dot{m}_\gamma'''(x)\, dx \qquad \text{Eq. II.6}$$

L est l'épaisseur du solide. Le terme source chimique dans l'équation de conduction de la chaleur est :

$$\dot{q}_{s,c}'''(x) = -\rho_s(0) \sum_{\alpha=1}^{N_m} \sum_{\beta=1}^{N_{r,\alpha}} r_{\alpha\beta}(x) H_{r,\alpha\beta} \qquad \text{Eq. II.7}$$

Avec $H_{r,\alpha\beta}$, la chaleur de réaction.

Le calcul du taux de production d'espèces gazeuses est un moyen de vérification simple pour valider le calcul du taux de réaction dans la phase condensée, qui, nous le rappelons, est calculé en post traitement. Par le calcul, il est en effet possible de mettre en avant un débit de gaz qui doit théoriquement être similaire à ceux des diagnostics disposés dans le domaine. Les taux de réactions présentés pour la phase condensée au Chapitre III ont tous été vérifiés par cette méthode.

b) Modèle de combustion

Le modèle de combustion utilisé est celui de chimie à taux fini (également basé sur une formulation d'Arrhenius). Ce modèle permet une meilleure représentation de la réalité avec des espèces indépendantes, non groupées comme cela peut être spécifié dans un modèle de chimie

infiniment rapide. FDS permet la captation de schémas cinétiques à plusieurs étapes, toutefois notre étude considère un modèle à une étape de type :

$$aA + bB \rightarrow cC + dD \qquad \text{Eq. II.8}$$

Dans notre cas, cette équation de bilan est celle de la combustion du MMA, à savoir :

$$C_5H_8O_2 + 6O_2 \rightarrow 5CO_2 + 4H_2O \qquad \text{Eq. II.9}$$

Classiquement, la loi de vitesse pour une espèce A de concentration C_A (mol/cm^{-3}), avec k la constante de vitesse, s'exprime de la façon suivante :

$$\frac{dC_A}{dt} = -kC_A^a C_B^b \qquad \text{Eq. II.10}$$

De manière analogue, si l'on considère un ensemble de N_r réactions impliquant un combustible F, le taux de réaction (mol.cm^{-3}.s^{-1})) de F au cours de la réaction i (n^{ième}) est :

$$r_{F,i} = -k_i \prod C_\alpha^{a_{\alpha,i}} \qquad \text{Eq. II.11}$$

Comme pour la phase condensée, la constante de vitesse k peut s'exprimer via la formulation d'Arrhenius et va dépendre de la température, d'un facteur pré-exponentiel, d'une énergie d'activation et de l'exposant n_i :

$$k_i = A_i T^{n_i} \exp\left(-\frac{E_{a,i}}{RT}\right) \qquad \text{Eq. II.12}$$

Le taux de réaction pour une espèce α de cette même réaction est basé sur le quotient des coefficients stœchiométriques :

$$r_{\alpha,i} = \left(\frac{\nu_{\alpha,i}}{\nu_{F,i}}\right) r_{F,i} \qquad \text{Eq. II.13}$$

L'évolution de concentration de l'espèce α dans la zone de mélange est donc :

$$\frac{dC_\alpha}{dt} = \sum_i r_{\alpha,i} \qquad \text{Eq. II.14}$$

FDS prend en compte les fractions massiques Y_α. Le facteur pré-exponentiel devient donc :

$$A_i' = A_i \prod (W_\alpha \times 1000)^{-a_{\alpha,i}} \times \left(\frac{1\ \text{kmol}}{10^3\ \text{kmol}}\right) \times \left(\frac{10^6 \text{cm}^3}{1\ \text{m}^3}\right) \times W_F \qquad \text{Eq. II.15}$$

Et le taux de réaction :

$$r_{F,i}' = -A_i' \rho^{\sum a_{\alpha,i}} T^{n_i} \exp\left(-\frac{E_i}{RT}\right) \prod Y_\alpha^{a_{\alpha,i}} \quad [=] \quad \left(\frac{\text{kgF}}{\text{m}^3.\text{s}}\right) \qquad \text{Eq. II.16}$$

Pour une espèce α à une réaction i, ce taux devient :

$$r_{\alpha,i}' = \left(\frac{\nu_{\alpha,i} W_\alpha}{\nu_{F,i} W_F}\right) r_{F,i}' \quad [=] \quad \left(\frac{\text{kg}\alpha}{\text{m}^3.\text{s}}\right) \qquad \text{Eq. II.17}$$

Et le taux d'évolution de la fraction massique de α dans la zone de mélange est alors :

$$\frac{d\hat{Y}_\alpha}{dt} = \frac{1}{\rho}\sum_i r'_{\alpha,i} \qquad [=] \qquad \left(\frac{\text{kg}\alpha}{\text{kg. s}}\right) \qquad \text{Eq. II.18}$$

II.2 - Données d'entrée

II.2.1 - Phase condensée

Les données d'entrée relatives à la phase condensée sont issues des travaux des équipes de Stoliarov de l'Université du Maryland (Korver, 2015; J. Li & Stoliarov, 2013). Ces travaux intègrent une description précise de l'évolution des propriétés thermiques du PMMA en fonction de la température et proposent un modèle cinétique à une étape. On note un changement de conductivité thermique à 378 K, correspondant à la température de transition vitreuse du PMMA. Au cours de sa dégradation en une étape, le PMMA produit du MMA à 98,5% et 1,5% de résidu ayant les mêmes propriétés que le PMMA vierge. Ces propriétés sont données dans le Tableau 6 ci-dessous.

Tableau 6 : Propriétés physico-chimiques du PMMA considérées dans le modèle de pyrolyse choisi

Propriétés	**Valeurs**	**Unités**
Emissivité	0,95	-
Chaleur spécifique	$0{,}6 + 3{,}6.10^{-3}T$	$kJ.kg^{-1}.K^{-1}$
Conductivité thermique	$(T < 378\ K)\ 0{,}45 - (3{,}8.10^{-4})T$	$W.m^{-1}.K^{-1}$
	$(T > 378\ K)\ 0{,}27 - (2{,}4.10^{-4})T$	
Densité initiale	1155	$Kg.m^{-3}$
Facteur pré-exponentiel	$8{,}6.10^{12}$	s^{-1}
Energie d'activation	$1{,}88.10^{5}$	$J.mol^{-1}$

II.2.2 - Phase gazeuse

Le MMA gazeux produit par la phase condensée suit un processus réactif par un modèle de combustion également à une étape. Les propriétés thermiques du gaz sont également issues des travaux des équipes de Stoliarov. Ce modèle, élaboré par Korver (Korver, 2015) a été affiné par le groupe de recherche de l'Université du Maryland (Leventon, Li, & Stoliarov, 2015; J. Li, Gong, & Stoliarov, 2014). Encore une fois, les propriétés du gaz évoluent avec la température selon différentes lois.

La dépendance à la température de la chaleur spécifique a été établie en se basant sur la méthode Joback. La conductivité thermique et la viscosité dynamique du gaz ont quant à elles été définies par les ouvrages de référence relatifs aux matériaux de Yaws (Yaws, 1995). La diffusivité du MMA dans l'air a été calculée par la méthode de Fuller (Poling, Prausnitz, & O'Connell, 2001). L'énergie d'activation et le facteur pré-exponentiel sont issus d'un modèle proposé par Tsai (Tsai et al., 2001), lui-même extrait de Di Blasi (C. Di Blasi et al., 1991). Ces propriétés sont données dans le Tableau 7 ci-après.

Tableau 7 : Propriétés physico-chimiques du MMA considérées dans le modèle de combustion choisi

Propriétés	Valeurs	Gamme de température (K)	Unités
Chaleur spécifique	$(3{,}66.10^{-9})T^3 + (1{,}47.10^{-4})T^2 + (3{,}6754.10^{-1})T - 18{,}68$	-	$kJ.kg^{-1}.K^{-1}$
Conductivité thermique	0,015	$T < 373$	$W.m^{-1}.K^{-1}$
	$(1{,}85.10^{-8})T^2 + (5{,}64.10^{-5})T - 0.0086$	$373 < T < 1000$	
	0,066	$T > 1000$	
Viscosité dynamique	$9{,}44.10^{-6}$	$T < 373$	$kg.m^{-1}.s^{-1}$
	$(5{,}09.10^{12})T^2 + (3{,}11.10^{-8})T - 1{,}45.10^{-6}$	$373 < T < 1000$	
	$2{,}45.10^{-5}$	$T > 1000$	
Diffusivité	$(3{,}796.10^{-6})T^{1{,}75}$	-	$m^2.s$
Facteur pré-exponentiel	175,5	-	s^{-1}
Energie d'activation	$4{,}9.10^{17}$	-	$J.mol^{-1}$

II.3 - Configurations testées

II.3.1 - Le dispositif du cône calorimètre et son adéquation aux besoins

Le cône calorimètre est un dispositif expérimental normalisé (ISO 5660) très connu et étudié dans la littérature. L'inflammation peut y être pilotée (via l'allumeur piézo-électrique) mais il peut également être utilisé sans initiateur et ainsi permettre l'étude de l'auto-inflammation. C'est notamment le cas des études menées par Tsai (Tsai et al., 2001) et présentées au Chapitre I. La norme ISO 5660 garantissant des conditions d'utilisations similaires pour toutes les études, il est possible de se référer aux travaux de différentes équipes. Les temps d'inflammation mesurés ainsi que les débits de pyrolyse et les températures de surface à l'inflammation sont autant de paramètres repères utiles pour valider le modèle.

Le cône calorimètre est utilisé avec de nombreux matériaux au sein de l'équipe et notamment pour le PMMA (Luche et al., 2011). L'orientation horizontale de l'échantillon permet l'étude d'une configuration académique souvent représentée dans la littérature (schémas de référence de Torero et de Fernandez Pello présentés au sein du Chapitre I (Fernandez Pello, 2011; Torero, 2016)).

Des modifications doivent cependant être effectuées pour modéliser le cône calorimètre dans le cadre d'une approche de simulation DNS. En effet, les temps de calculs sont prohibitifs et une modélisation du cône à la même échelle et en 3D est trop coûteuse. Par ailleurs, pour bien comprendre les mécanismes, une étude à plus petite échelle est nécessaire ce qui conduit alors à réduire la taille de l'échantillon.

Dans ce cadre, notre démarche de travail a consisté à étudier la faisabilité de ce type de modélisation puis à analyser la capacité de FDS en mode DNS à capter une auto-inflammation.

II.3.2 - Approche de faisabilité 1D, captation de l'auto-inflammation

Dans un premier temps, une étude 1D a été réalisée afin de vérifier la capacité de FDS à décrire le processus d'auto-inflammation du PMMA. Nous la décrivons brièvement dans ce mémoire afin d'expliquer notre démarche.

Celle-ci s'inscrit en parallèle des études de (Peng et al., 2015) traitant de l'auto-inflammation de plaques de PMMA en fonction de leur orientation (voir Chapitre I) et confirmant la faisabilité de captation de l'inflammation via le logiciel FDS Ce type de configuration 1D, avec inflammation pilotée, a également déjà été étudiée dans la littérature au travers les travaux de Tzeng et al. (Tzeng, Atreya, & Wichman, 1990). L'inflammation pilotée est alors décrite dans une dimension et se poursuit par la propagation de la flamme en partie haute (au-dessus du pilote) (qui s'éteint faute de combustible) et en partie basse (en dessous du pilote) pour s'établir à la surface du solide.

a) Conditions initiales et aux limites

La taille de maille utilisée dans ce premier cas d'étude est de 0,2 mm × 0.2 mm. La taille du domaine est de 1 mm de largeur et de 36 mm en hauteur.

Le but de cette étude préliminaire étant d'examiner les capacités du code à capter l'auto-inflammation en phase gazeuse, la pyrolyse du PMMA a été exclue et remplacée par un brûleur poreux disposé sur toute la largeur du domaine. Les propriétés thermiques du brûleur ont cependant été conservées identiques à celles du PMMA. Le débit de méthacrylate de méthyle imposé est de 5.10^{-5} $kg.s^{-1}.m^{-2}$, l'éclairement énergétique prescrit à sa surface est de 100 $kW.m^{-2}$ et la température initiale est de 20°C. Le MMA est injecté dans de l'air. Le choix de la valeur de débit repose sur le constat de l'impossibilité d'inflammation pour des valeurs trop élevées de débit (ou lors de l'intégration de la pyrolyse dans ce modèle 1D). En effet, lorsqu'un débit trop fort est imposé (ou que la pyrolyse est intégrée), on observe un remplissage total du domaine par le MMA. La richesse en combustible étant supérieure à la LSI, aucune inflammation n'a lieu. Différents tests ont donc été menés afin d'obtenir cette valeur de débit.

Des conditions aux limites périodiques sont fixées sur les côtés droit et gauche du domaine et une condition ouverte vers l'extérieur en partie haute. D'un point de vue aéraulique, cette condition implique un gradient de vitesse nul et une pression fixée à l'ambiante. La Figure 38 représente en trois dimensions le domaine de calcul. FDS n'est en effet pas à même de gérer des domaines à une ou deux dimensions « réelles ». Il a alors été nécessaire d'avoir recours au pseudo-1D, avec une seule et unique maille en profondeur, et il en sera de même pour les futurs cas traités en 2D.

Figure 38 : Bas du domaine, (a) maillage et instrumentation (en vert), tous les mm en hauteur ; (b) visualisation de la configuration pseudo-1D

b) Résultats et discussions

La Figure 39 ci-après présente le taux de dégagement de chaleur en fonction du temps. La capacité du code à capter l'auto-inflammation est illustrée grâce au pic de dégagement de chaleur (aussi appelé Heat Release Rate dans la littérature anglo-saxonne, ou HRR). Il est également possible de distinguer que la réaction entre le MMA et l'air produit de la chaleur avant ce pic. De manière précise et grâce aux courbes données en Figure 39, il est possible de définir un délai d'inflammation[5] à t = 8,77 s. Ce résultat ne peut pas encore être comparé à ceux des études expérimentales et numériques présentées au Chapitre I car le débit de gaz est imposé. Un ordre de grandeur cohérent est toutefois remarqué au regard de l'éclairement énergétique et du délai d'allumage.

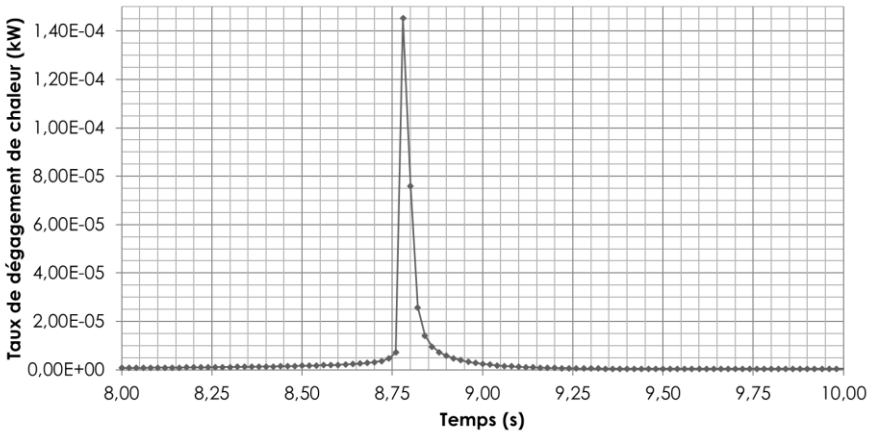


Figure 39 : Taux de dégagement de chaleur en fonction du temps en 1D

La Figure 40 représente quant à elle le taux de dégagement de chaleur volumique (HRRPUV) pour les pas de temps encadrant celui de l'inflammation. Une évolution lente avant l'inflammation à proprement parlé est observée à $t = 8{,}76\,s$. Nous remarquons également à $t = 8{,}78\,s$ une diminution de la zone de réaction à la base du domaine et une inflammation en haut de celui-ci.

[5] Nous reviendrons sur la méthode de définition du délai d'inflammation au début du Chapitre III. Pour le moment, nous définissons celui-ci comme le pas temps correspondant à un écart brutal de température et de taux de dégagement de chaleur entre deux pas de temps.

Elles résultent d'un mélange de gaz qui n'ont pas réagi dans la première zone de réaction avec l'air frais du domaine. Ce phénomène est observable sur la Figure 41 (a) et (b), avec une augmentation de température accompagnée d'une diminution de la fraction massique de MMA (et d'une diminution de la fraction massique d'oxygène, Figure 41 (c)).

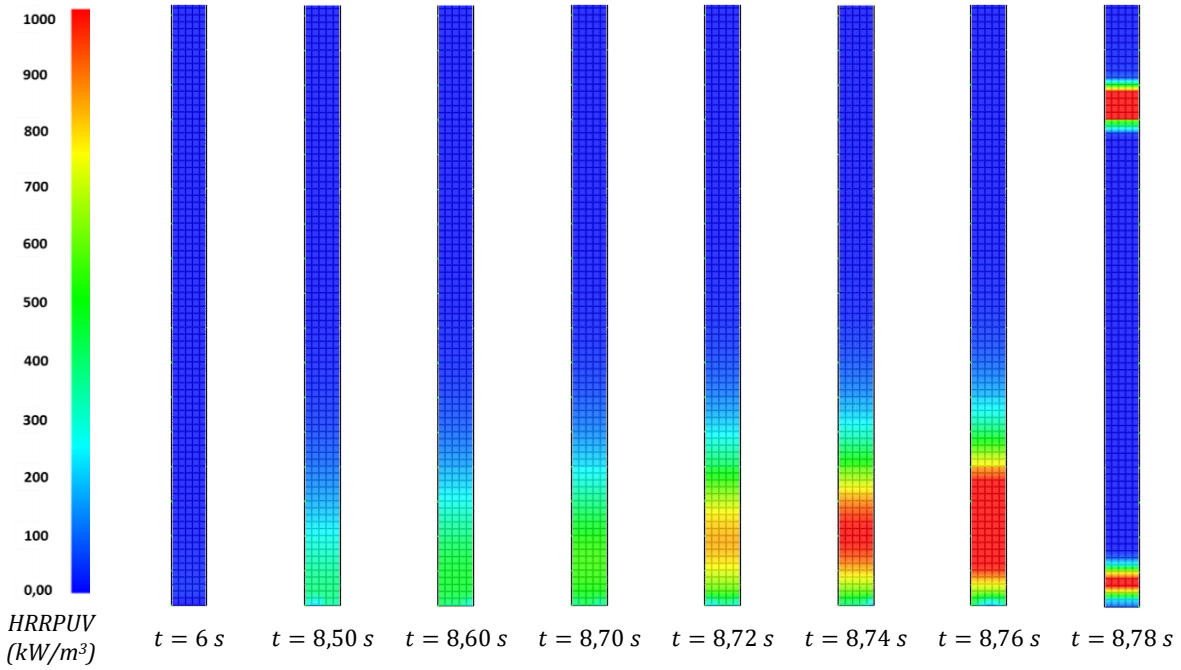
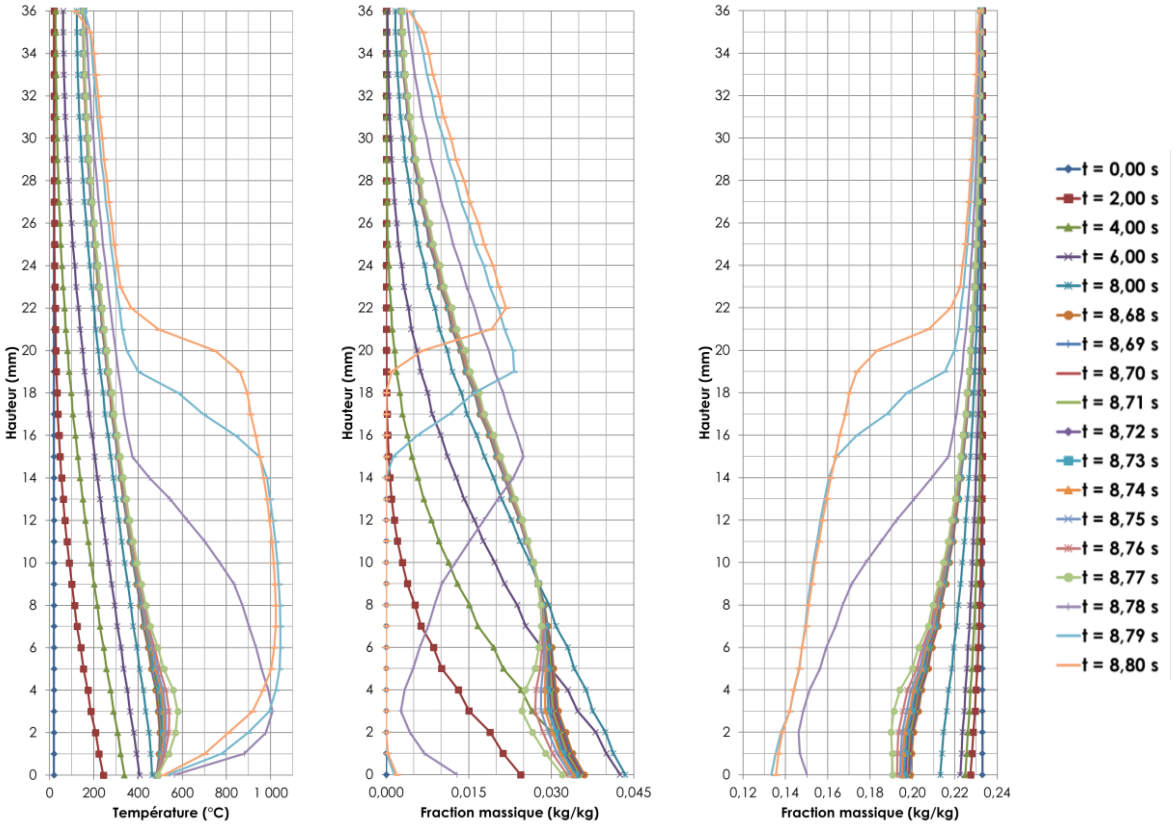


Figure 40 : Evolution du taux de dégagement de chaleur volumique

Les extraits Smokeview exposés en Figure 40 et les courbes de la Figure 41 montrent qu'il est nécessaire de se questionner quant au pas de temps d'acquisition des données. Dans la suite, le pas de temps d'acquisition devra être inférieur à celui utilisé ici. En effet, l'inflammation est un phénomène bref qui s'accompagne de grandes variations qu'il est impossible de capter par l'utilisation d'un pas de temps très court. Le maillage d'instrumentation doit également être affiné à la même échelle que le maillage du domaine, notamment à proximité du solide, car l'inflammation est également un phénomène très local.



(a) (b) (c)

Figure 41 : Cas 1D. En fonction de différents pas de temps et de la hauteur : (a) Profils de températures ; (b) Fractions massiques de MMA ; (c) Fractions massiques d'O_2

II.3.3 - Etude 2D de l'auto-inflammation des solides

L'étude 1D ayant permis de confirmer la faisabilité de la captation de l'inflammation sous FDS, le passage en deux dimensions est alors possible. Est détaillée ici la configuration selectionnée ainsi que l'étude de sensibilité au maillage afin de choisir la taille de maille nécessaire à la suite de l'étude. Comme cela a été mis en avant au Chapitre I, cette dernière varie entre les auteurs et elle se doit d'être déterminée sous FDS, à la fois pour la phase gazeuse et pour la phase condensée.

a) Conditions initiales et aux limites

Nous avons choisi une configuration 2D représentant le cône calorimètre, mais en y apportant quelques modifications afin de diminuer les temps de calcul. Les premiers tests effectués pour des échantillons de 10 cm se sont en effet montrés trop coûteux en temps de calcul. La taille de l'échantillon a donc été réduite à 2 cm de largeur afin de diminuer en conséquence la taille du domaine de calcul.

Pour cette étude de sensibilité au maillage, le calcul de la pyrolyse du matériau a été introduit avec les constantes cinétiques décrites dans les données d'entrée en II.2.1.

Le domaine est rectangulaire, mesurant 3 cm de largeur sur 4 cm de hauteur. L'échantillon est situé en son centre, en bas du domaine. Son épaisseur est de 1 cm, il est isolé en face arrière et est soumis à un éclairement énergétique de 100 $kW.m^{-2}$. La température ambiante en début de simulation est de 20°C et le MMA issu de la décomposition thermique diffuse dans de l'air. Des conditions aux limites de type frontière ouverte vers l'extérieur sont prescrites sur les bords et en

partie haute du domaine (permettant ainsi une circulation libre de l'air dans l'ensemble du domaine) et des conditions inertes sont prescrites aux bords du solide en partie basse.

S'il va de soi que le maillage 2D de la phase gazeuse a son importance tant les réactions entre combustible et comburant jouent un rôle important dans le processus d'inflammation, la pyrolyse ne doit pas pour autant être négligée et le maillage 1D de la phase condensée doit également faire l'objet d'une analyse de sensibilité. Cela est d'autant plus nécessaire que FDS génère un artefact numérique qui n'est pas sans impact sur notre étude. En effet, la décomposition entraine la disparition des mailles qui composent le solide au cours du temps et cette disparition engendre des pertes d'information en termes de débits de pyrolyse. Cet artefact apparaît avant l'inflammation et dans un souci d'interprétation, il est nécessaire de s'en affranchir. Le seul moyen à notre disposition afin de résoudre ce problème numérique est de diminuer la taille des mailles. Ceci permet aussi de visualiser avec précision les phénomènes se produisant dans la phase condensée. Pour ce faire, le premier cas d'étude présentée en II.3.3.b est un cas où la combustion a été inhibée pour se focaliser uniquement sur la décomposition du solide.

Quatre maillages ont donc été testés en phase gazeuse (2 dimensions) :

- 1 mm × 1 mm
- 0,5 mm × 0,5 mm
- 0,2 mm × 0,2 mm
- 0,1 mm × 0,1 mm

Et cinq maillages ont été testés dans la phase condensée (1 dimension) :

- 0,2 mm
- 0,1 mm
- 0,04 mm
- 0,02 mm
- 0,01 mm

Les différents maillages de la phase gazeuse sont présentés en Figure 42 ci-après ainsi que la fraction massique de MMA permettant de localiser la position de l'échantillon. Le domaine dispose d'une maille en profondeur, il s'agit d'une simulation pseudo-2D (Figure 42 (e)).

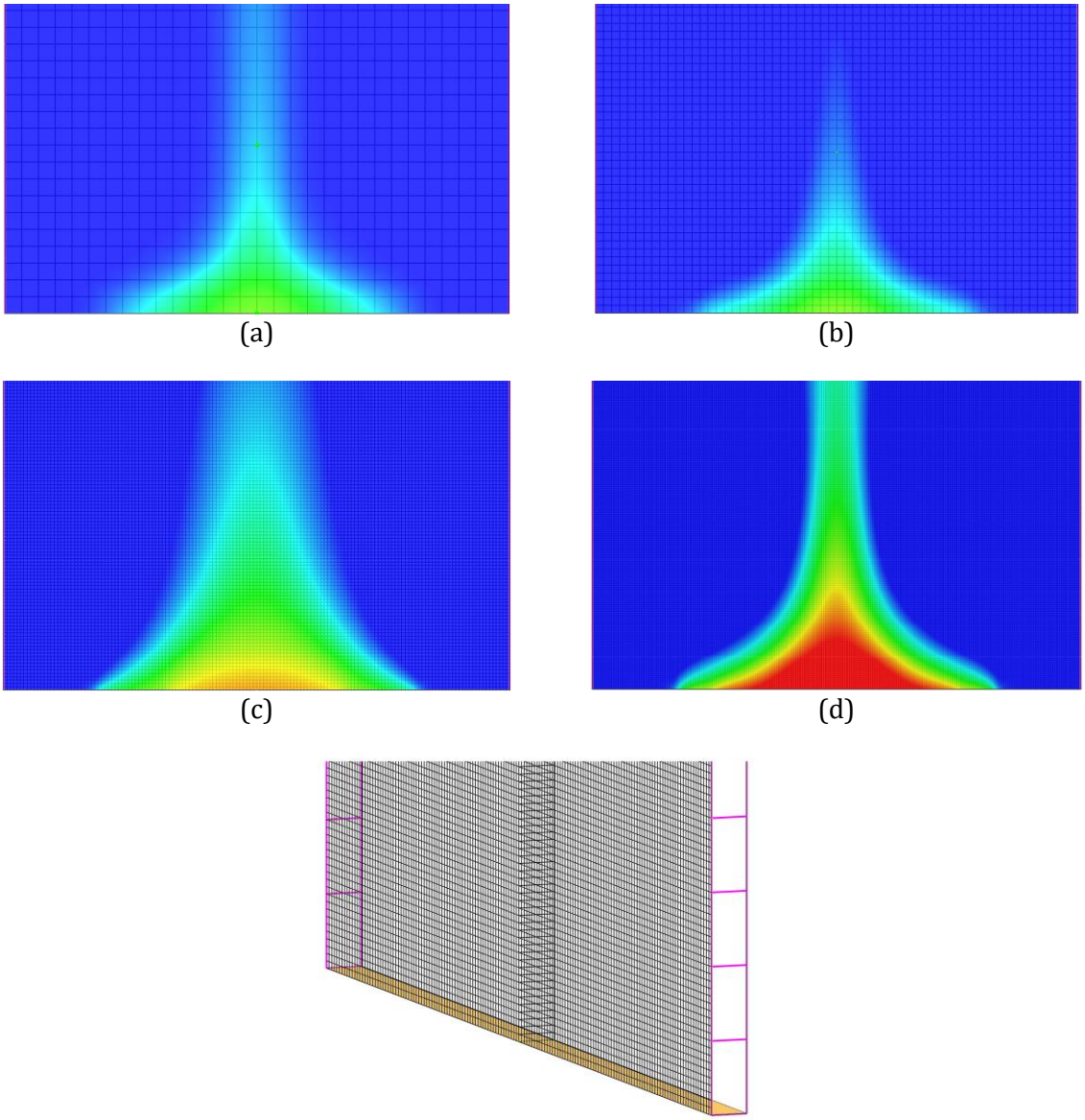


*Figure 42 : Maillages utilisés en phase gazeuse et représentation graphique de la fraction massique de MMA (unité arbitraire) : (a) 1 mm*1mm ; (b) 0,5 mm*0,5mm ; (c) 0,2 mm*0,2mm ; (d) 0,1 mm*0,1mm ; (e) visualisation du domaine pseudo-2D pour le maillage de 0,2 mm (seule la partie basse du domaine est représentée sur chaque figure)*

b) Etude de sensibilité au maillage

Phase condensée – Résultats, discussions

La courbe donnée en Figure 43 permet d'illustrer le propos tenu précédemment sur les artefacts numériques provoqués par la résolution de la pyrolyse et la disparition des mailles sur le débit de gaz. Elle permet également d'observer l'impact de la réduction de la taille de maille sur le débit de pyrolyse. Pour une taille de maille de 0,01 mm, l'artefact est totalement supprimé. On observe également une indépendance du débit de pyrolyse au maillage. Cette variable de débit a été choisie car c'est le principal paramètre en interaction avec la phase gazeuse. Notre choix s'oriente donc vers cette taille de maille pour plus de précision.

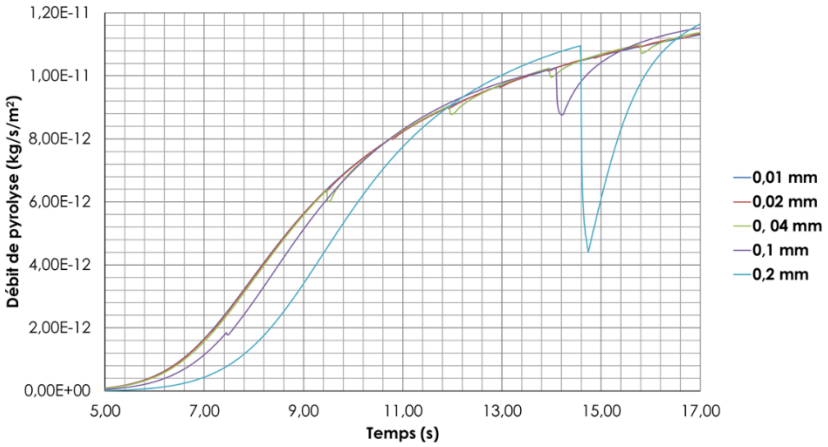


Figure 43 : Débit de pyrolyse en fonction du temps et du maillage de la phase condensée

Phase gazeuse – Résultats, discussions

La courbe du taux de dégagement de chaleur présentée en Figure 44 permet de visualiser l'impact du maillage sur le taux de dégagement de chaleur, et au-delà, sur le temps d'inflammation. Nous pouvons en effet constater que 5 secondes séparent l'inflammation avec un maillage à 1 mm × 1 mm et à 0,1 mm × 0,1 mm. Cet écart majeur conduit à délaisser le maillage le plus grossier pour se concentrer sur des maillages compris en 0,1 mm × 0,1 mm et 0,5 mm × 0,5 mm. Ceci est en accord avec l'étude de (Xie & DesJardin, 2009) mentionnée au Chapitre I. Pour des raisons de lisibilité, le maillage de 1 mm × 1 mm sera donc exclu de l'étude de sensibilité à partir de la Figure 45.

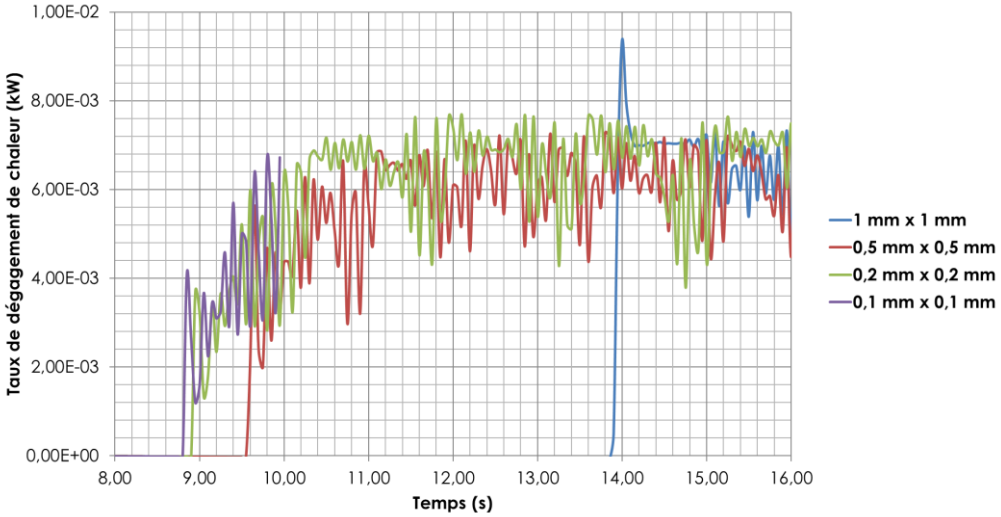


Figure 44 : Taux de dégagement de chaleur en fonction du temps et des différents maillages 2D en phase gazeuse

La Figure 45 présente la température moyenne de surface de l'échantillon au moment de l'inflammation. Les écarts observés entre les délais d'inflammation sont très proches pour les maillages les plus fins (inférieurs à 1 s). Un décalage du temps d'inflammation d'environ une seconde est observé entre les deux maillages à 0,1 mm × 0,1 mm et 0,2 mm × 0,2 mm et celui à 0,5 mm × 0,5 mm. Par ailleurs, la température moyenne de surface lors de l'inflammation est

inférieure pour les maillages les plus fins. On remarque environ 8°C de différences entre le maillage à 0,5 mm × 0,5 mm et les maillages à 0,1 mm × 0,1 mm et 0,2 mm × 0,2 mm. Aux vues des mécanismes en jeu lors de l'autoallumage, la température de surface peut jouer un rôle crucial, il est donc important de ne pas négliger cet aspect et de considérer ce paramètre dans cette étude de sensibilité.

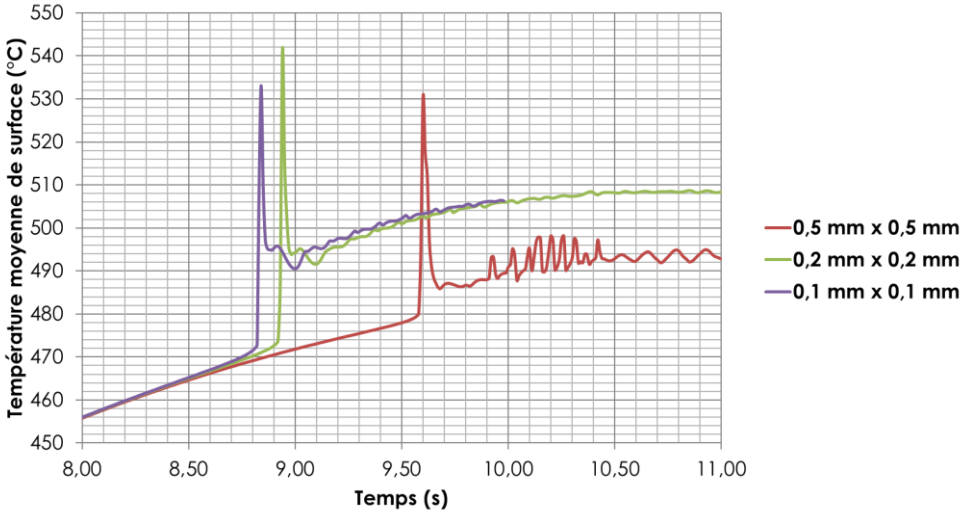
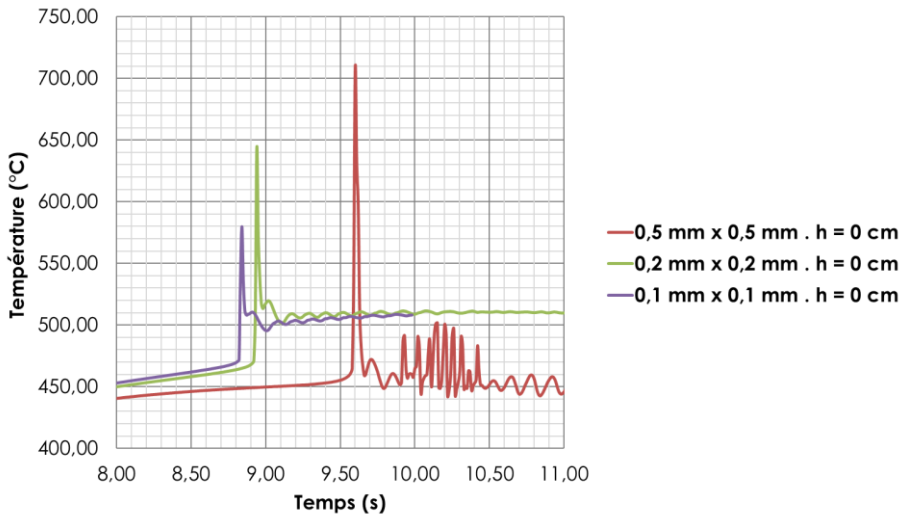


Figure 45 : Température moyenne de surface en fonction du temps et des différents maillages 2D en phase gazeuse

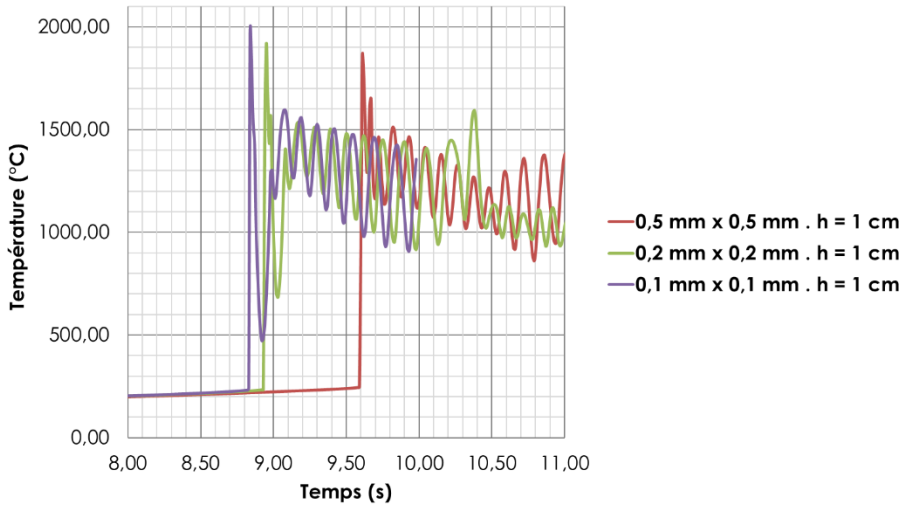
Les grandeurs présentées en Figure 44 et en Figure 45 sont cependant des valeurs globales ou moyennées. Afin d'approfondir la présente étude de sensibilité au maillage, plusieurs valeurs locales sont analysées.

La Figure 46 permet ainsi d'avoir un aperçu des valeurs locales que représentent la température au centre de l'échantillon et à 1 cm au-dessus ((a) et (a')), ainsi que les fractions massiques de MMA et d'O_2 aux mêmes positions ((b), (b'), (c), (c')), puis, l'éclairement énergétique au centre de l'échantillon (d). Le constat est le même que précédemment concernant le maillage à 0,5 mm × 0,5 mm : ce dernier mène à des valeurs sur ou sous évaluées.

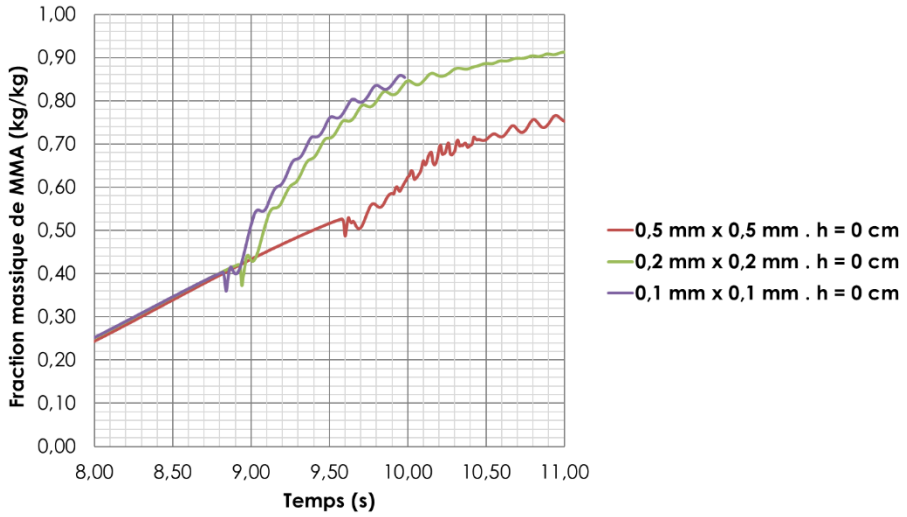
Une convergence entre les maillages à 0,1 mm × 0,1 mm et 0,2 mm × 0,2 mm est observée et le choix s'oriente ainsi vers le maillage à 0,2 mm × 0,2 mm pour la suite de cette étude, ce dernier alliant précision et gain en temps de calcul.


750,00
700,00
650,00
600,00
550,00
500,00
450,00
400,00
Température (°C)
8,00
8,50
9,00
9,50
10,00
10,50
11,00
Temps (s)
0,5 mm x 0,5 mm . h = 0 cm
0,2 mm x 0,2 mm . h = 0 cm
0,1 mm x 0,1 mm . h = 0 cm

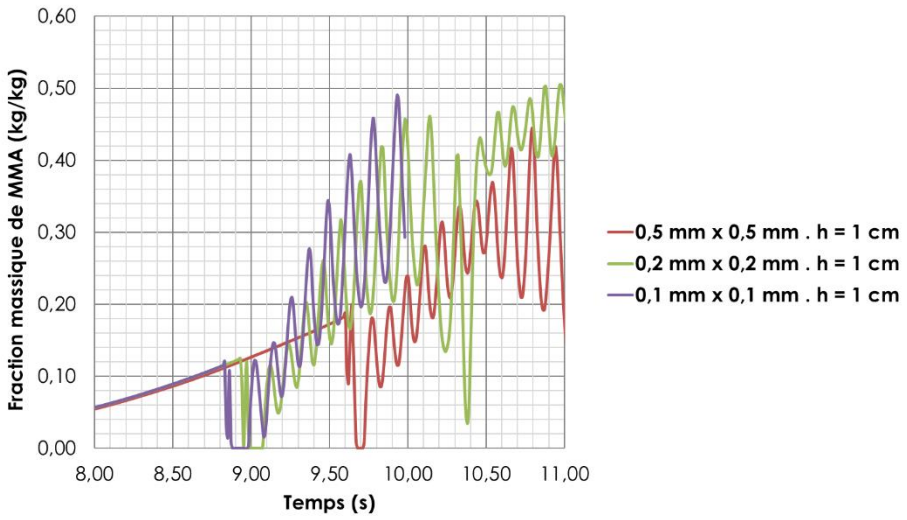
(a)


2000,00
1500,00
1000,00
500,00
0,00
Température (°C)
8,00
8,50
9,00
9,50
10,00
10,50
11,00
Temps (s)
0,5 mm x 0,5 mm . h = 1 cm
0,2 mm x 0,2 mm . h = 1 cm
0,1 mm x 0,1 mm . h = 1 cm

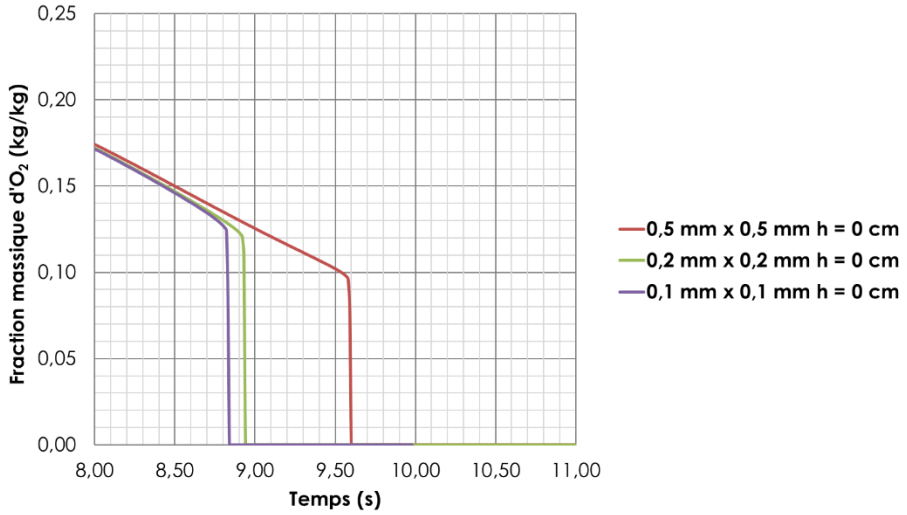
(a')


1,00
0,90
0,80
0,70
0,60
0,50
0,40
0,30
0,20
0,10
0,00
Fraction massique de MMA (kg/kg)
8,00
8,50
9,00
9,50
10,00
10,50
11,00
Temps (s)
0,5 mm x 0,5 mm . h = 0 cm
0,2 mm x 0,2 mm . h = 0 cm
0,1 mm x 0,1 mm . h = 0 cm

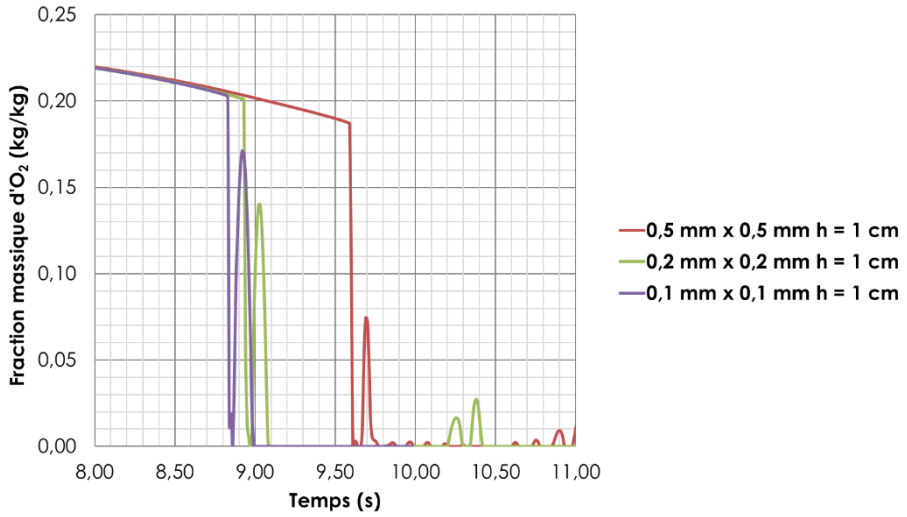
(b)


0,60
0,50
0,40
0,30
0,20
0,10
0,00
Fraction massique de MMA (kg/kg)
8,00
8,50
9,00
9,50
10,00
10,50
11,00
Temps (s)
0,5 mm x 0,5 mm . h = 1 cm
0,2 mm x 0,2 mm . h = 1 cm
0,1 mm x 0,1 mm . h = 1 cm

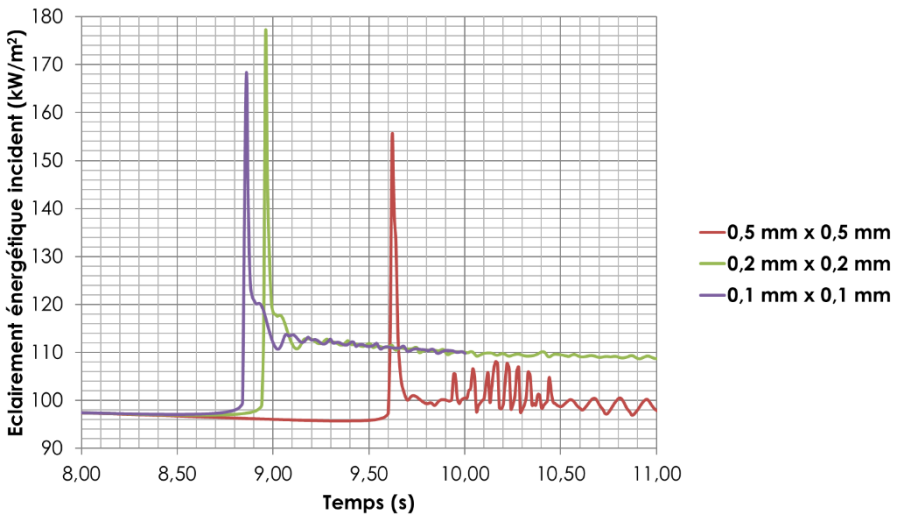
(b')


0,25
0,20
0,15
0,10
0,05
0,00
Fraction massique d'O2 (kg/kg)
8,00
8,50
9,00
9,50
10,00
10,50
11,00
Temps (s)
0,5 mm x 0,5 mm h = 0 cm
0,2 mm x 0,2 mm h = 0 cm
0,1 mm x 0,1 mm h = 0 cm

(c)


0,25
0,20
0,15
0,10
0,05
0,00
Fraction massique d'O2 (kg/kg)
8,00
8,50
9,00
9,50
10,00
10,50
11,00
Temps (s)
0,5 mm x 0,5 mm h = 1 cm
0,2 mm x 0,2 mm h = 1 cm
0,1 mm x 0,1 mm h = 1 cm

(c')



(d)

Figure 46 : Valeurs locales diverses à but de détermination du maillage adéquat dans la phase gazeuse

c) Résolution de la zone de flamme

La résolution de la zone de flamme est un critère majeur qu'il convient de prendre en considération dans un calcul de Simulation Numérique Directe. Au-delà de l'obtention de résultats globaux et locaux convergents, il est également nécessaire de vérifier que le nombre de maille dans la zone de flamme soit suffisante.

Cette dernière est définie par le biais des travaux de Poinsot et Veynante (Poinsot & Veynante, 2005) dont est issue la Figure 47. Les deux principales échelles décrites par ces auteurs sont alors :

- L'épaisseur de la zone de diffusion (l_d), pour laquelle la fraction de mélange est changeante et où combustible et comburant peuvent coexister (chimie non infiniment rapide). Ces derniers sont aussi dillués par les produits de réaction.
- L'épaisseur de la zone de réaction (l_r), où le taux de réaction est différent de 0 et qui entoure la fraction de mélange stœchiométrique.

En première approximation, le taux de dégagement de chaleur volumique (HRRPUV pour reprendre la terminologie de FDS) peut être analysé pour évaluer l'épaisseur de la zone réactionnelle. Ce taux est donné en Figure 48 et permet de visualiser la résolution du front de flamme. Ce dernier est composé de six à sept mailles. En fonction des cas étudiés, ce nombre de descend pas en dessous de quatre.

La littérature relative à la Simulation Numérique Directe indique de manière générale que dix à quinze mailles doivent se situer dans la zone de flamme (Hesse et al., 2009; Kashinath et al., 2013). D'autres auteurs tels que Haghiri et Karami (Haghiri et al., 2015; Karami et al., 2014; Karami et al., 2014) donnent quant à eux la valeur de 8 mailles tandis que pour des applications de combustion liées à l'astrophysique Bell et al. avancent des valeurs suffisantes de cinq à six mailles (Bell et al., 2004; Bell et al., 2004).

Au regard de la physique du phénomène qui sera observé et du modèle réactionnel choisi à une étape, cette résolution de la zone de flamme peut donc être jugée acceptable.

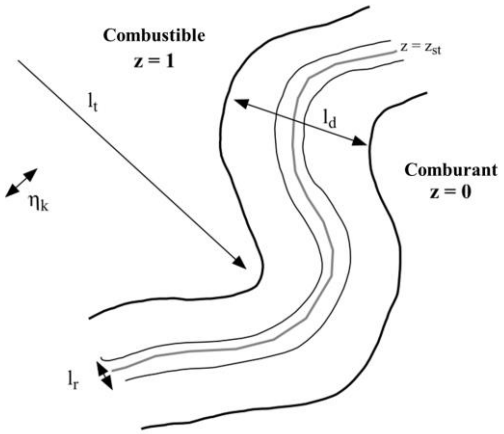


Figure 47 : Echelles de longueurs caractéristiques en combustion turbulente non-pré mélangée, modifiée de Poinsot et Veynante (Poinsot & Veynante, 2005)

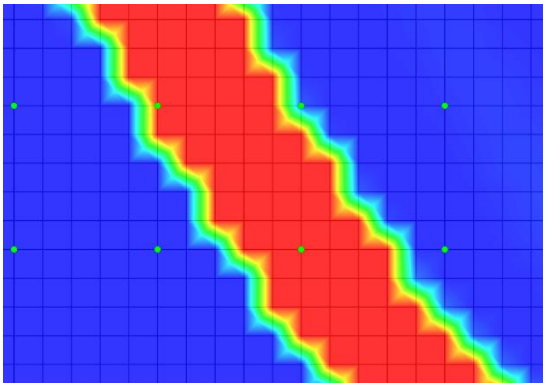


Figure 48 : Taux de dégagement de chaleur de la zone réactionnelle, unité arbitraire

II.3.4 - Paramètres influents et modifications

a) Taille de l'échantillon

Cette partie est une base de discussion destinée à de futurs travaux sur des phénomènes observés lors du calage du modèle. Certains résultats présentés ici sont discutables du fait des maillages utilisés, mais il nous semble important de les mentionner pour apporter ces données à la communauté en vue d'approfondissements.

Au regard des études à notre disposition, nous avons réalisé des simulations à des éclairements énergétiques plus faibles. En effet, comme cela a été mentionné au Chapitre I grâce aux travaux de Tsai (Tsai et al., 2001), la diminution du flux de chaleur implique une résolution plus fine de la chimie pour capter l'auto-inflammation qu'il serait possible d'obtenir dans un cas réel. Dans notre cas d'étude, la diminution de l'éclairement énergétique montre que l'inflammation n'est plus observée en dessous de 80 kW/m^2. Revenant aux fondamentaux de l'inflammation donnés au sein du Chapitre I, nous pouvons également voir qu'une surface de matériaux suffisante doit réagir pour qu'une auto-inflammation soit observée. Nous nous sommes donc questionnés sur l'impact de la réduction de la taille de l'échantillon lors de l'exposition à de faibles éclairements énergétiques.

Pour mettre en évidence cela, nous avons adopté un maillage grossier d'1 mm × 1 mm en phase gazeuse et nous avons mené une étude à différents éclairements énergétiques pour des échantillons dont la taille correspond aux conditions du cône calorimètre, soit 10 cm de large.

Malgré ce maillage plus grossier, des auto-inflammations sont observées à des éclairements énergétiques plus faibles que les flux minimaux obtenus pour un échantillon de 2 cm de large. Lorsque la largeur de l'échantillon augmente, celui-ci est donc enclin à s'auto allumer pour des apports énergétiques moins importants. La concentration en combustible peut alors être mise en évidence comme un facteur déterminant de l'auto-inflammation et cette dernière est à relier à la surface d'échantillon exposée.

Par ailleurs, il est utile de comparer ces données à celles issues de la littérature et présentées au Chapitre I au travers les études de Shi et de Tsai (Shi & Chew, 2013; Tsai et al., 2001).

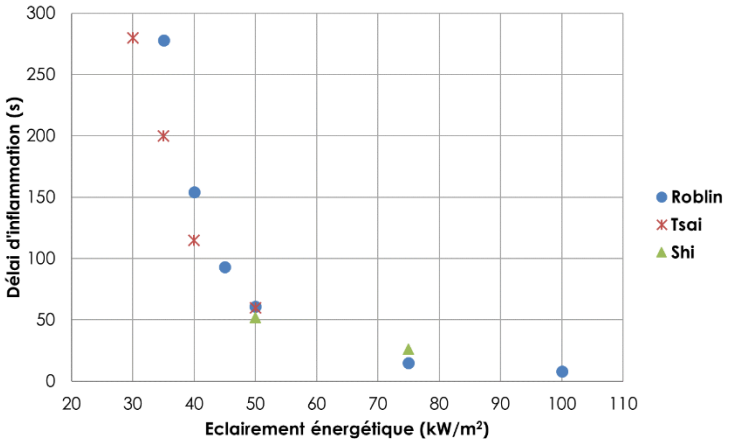


Figure 49 : Résultats comparatifs des études mentionnées au Chapitre I et de notre étude sur l'influence des flux à plus grande échelle sur les délais d'inflammation.

La Figure 49 montre une bonne adéquation des temps d'inflammation entre les résultats expérimentaux et numériques de Tsai (Tsai et al., 2001) et les résultats expérimentaux de Shi (Shi & Chew, 2013) pour des plaque de PMMA d'1 cm d'épaisseur. Ce comparatif souligne la pertinence du modèle mis en place d'autant plus que nous avons pu voir au cours de l'étude de sensibilité que le délai était moindre pour des maillages plus fins.

Nous reviendrons sur ce point en fin de mémoire mais une étude plus approfondie des phénomènes à plus grande échelle pourra être menée entre autres perspectives de ces travaux de thèse.

Dans la suite des travaux, nous nous sommes concentrés sur la simulation de l'échantillon de 2 cm de largeur avec un domaine plus petit, afin de conserver un maillage très fin.

b) Variation de la densité

La modification de la densité d'un matériau va influer sur le temps caractéristique de la conduction. Ce dernier est alors comparé au temps caractéristique de la chimie par le rapport t_{cond}/t_{chim} . Le temps caractéristique de la chimie doit également être étudié dans cette étude car FDS intègre la variation de la densité du matériau dans le calcul du taux de réaction en phase condensée (Eq. II.2). De plus, la phase condensée a un impact non-négligeable sur l'auto-allumage des gaz. Il revient alors de mener une investigation quant à ces temps caractéristiques de la conduction et de la chimie, pour voir quels sont les processus qui dominent au moment de l'allumage lors de la variation de la densité du matériau.

Par ailleurs, la diminution de la densité provoque la diminution du délai d'inflammation (cf. Chapitre III). Il est alors intéressant d'identifier les mécanismes en jeu au sein de la phase condensée et les régimes correspondant dans la phase gazeuse.

II.4 - Conclusions de fin de chapitre

Le présent Chapitre a permis de mettre en avant plusieurs points nécessaires au choix du modèle et à la définition du domaine de calcul.

Dans un premier temps, au travers des options de modélisation de la turbulence, il a pu être mis en évidence que le choix de la DNS s'impose pour résoudre de manière fine le phénomène local et bref que constitue l'auto-inflammation. Peu usité jusqu'alors, les moyens de calculs actuels offrent cette possibilité, comme un outil supplémentaire de recherche dans le domaine de la recherche en sécurité incendie. Le choix du code de calcul FDS s'est imposé de par ses options et l'environnement du projet dans lequel ce travail s'inscrit. Les sous modèles principaux ont été décrits et permettent de mieux comprendre le fonctionnement du code.

Des données d'entrées issues d'expérimentations à l'échelle du laboratoire ont ensuite pu être identifiées. Elles permettent l'implémentation d'un modèle représentatif des phénomènes, notamment en intégrant la variation de certaines grandeurs selon la température. La disposition du cône calorimètre en deux dimensions a été choisie pour étudier l'auto-allumage de plaques de PMMA, mais les coûts en termes de temps de calcul ont mené à la diminution de la taille de l'échantillon, en comparaison de celle utilisée en cône réel.

Une étude numérique de faisabilité en une dimension a été menée afin de corroborer le travail parallèle à cette étude conduit sur le logiciel FDS par (Peng et al., 2015). Forts des constats effectués sur ce cas, le passage en deux dimensions a permis de définir un maillage adéquat 2D de 0,2 mm × 0,2 mm en phase gazeuse et 1D de 0,01 mm en phase condensée. Il permet de s'affranchir de tout artefact numérique et une convergence des résultats est obtenue tant sur des valeurs moyennées que sur des valeurs locales.

Des paramètres influents ont alors été identifiés, tels que la taille d'échantillon. Ces travaux devront être poursuivis par la suite mais il est néanmoins possible de valider les notions de surface suffisante de matériau mentionnées au Chapitre I. Un solide trop petit soumis à un éclairement énergétique trop faible peut se décomposer mais les gaz de pyrolyse ne sont pas susceptibles de s'auto-allumer.

Comme toute étude DNS, ce travail implique le choix de cas simples et académiques permettant l'accès et la compréhension des phénomènes. Le choix de faire varier la densité de la phase condensée implique un changement en termes de conduction de la chaleur ainsi qu'un changement chimique. Il sera cependant possible de comparer les temps caractéristiques de la chimie et de la conduction, tels qu'identifiés par (Pyle & Zaror, 1984). Ce changement permettra d'appréhender au mieux l'impact de la phase condensée sur la phase gazeuse.

Cet affranchissement du PMMA pour un matériau à la densité variable conduit vers un concept de solide « fictif » et « idéal » permettant l'étude précise des phénomènes au travers de la résolution complète des écoulements générés par ce solide. Le Chapitre III présente les résultats et les discussions relatives à ces derniers.

Chapitre III : Résultats et discussions de la simulation numérique directe de l'auto-inflammation du PMMA

La première partie de ce mémoire a permis de comprendre le contexte dans lequel s'inscrit ce travail ainsi que les enjeux associés. La succession des chapitres nous a alors amené à comprendre les phénomènes couplés inhérent à l'autoallumage des solides ainsi qu'au choix d'une méthode de modélisation précise et de données d'entrée basées sur l'expérience.

Le Chapitre III est dédié à la présentation des résultats de cette étude et à l'interprétation qui peut en être faite. Avant de mettre en avant ces résultats, il convient de préciser les conditions d'utilisation du modèle et celles d'interprétation des résultats.

Au travers les différents cas étudiés, les tendances générales sont exposées via des résultats globaux. Comme cela est mentionné précédemment, la densité du matériau est le paramètre variant au cours de l'étude et il est fait mention des impacts qu'engendre ce changement sur des valeurs telles que le délai d'autoallumage ou les temps caractéristiques de la pyrolyse et de la conduction. Ces résultats globaux orientent alors le choix de cas représentatifs qui sont développés dans ce mémoire de thèse.

Les cas représentatifs correspondent à des niveaux de densités élevées et faibles pouvant correspondre à des cas réels. Les résultats détaillés de ces différents cas sont exposés au cours de ce Chapitre et différents paramètres sont étudiés. Cette étape mène à l'identification de différents régimes d'auto-inflammation qui sont comparés et analysés tout au long du Chapitre.

SOMMAIRE DU CHAPITRE III

III.1 - Utilisation du modèle 78
III.1.1 - Variations de la masse volumique du matériau 78
III.1.2 - Détermination du délai d'inflammation et mentions complémentaires à l'interprétation 79
III.1.3 - Eclairement énergétique : détermination des flux de chaleur à la surface du solide 81
III.1.4 - Caractérisation du mélange MMA/Air 82
III.1.5 - Détermination du nombre de Reynolds local 84
III.1.6 - Taux de dissipation et nombre de Damköhler 85
III.1.7 - Paramètres globaux vs. locaux en surface de solide 85
III.2 - Etude globale : moyennes spatiales et temps caractéristiques 87
III.2.1 - Délai d'inflammation 88
III.2.2 - Densités de flux de chaleur à la surface du solide 89
III.2.3 - Température de surface moyenne, débit massique de pyrolyse moyen 94
III.2.4 - Temps caractéristiques 96
III.2.5 - Taux de dégagement de chaleur 99
III.3 - Etude locale : évolution spatiale et temporelle des variables 100
III.3.1 - Phase condensée 100
III.3.2 - Phase gazeuse 112
III.4 - Conclusions de fin de chapitre 136

III.1 - Utilisation du modèle

Avant l'étude détaillée des résultats numériques obtenus aux cours de la présente étude, il convient de mentionner au lecteur les paramètres considérés, la manière dont ces derniers sont obtenus et de préciser les notions qui sont en amont des termes employés au cours de l'analyse.

III.1.1 - Variations de la masse volumique du matériau

Comme cela est mentionné au Chapitre I (I.3.3), la masse volumique (ou densité) est un paramètre important permettant de modifier les propriétés thermiques d'un matériau en réduisant son temps caractéristique de conduction. Cette réduction permet alors de faire dominer les processus chimiques sur les processus thermiques.

Le paragraphe II.2.1 apporte les données d'entrées initiales de la phase condensée. En plus de la densité initiale, seize autres densités ont été étudiées de manière à évaluer son impact sur le processus d'auto-inflammation des solides. Les valeurs étudiées sont présentées dans le Tableau 8 ci-dessous.

Tableau 8 : Densités de matériau étudiées numériquement

Dénomination	**Masse volumique ($kg.m^{-3}$)**	**Matériau correspondant (à titre indicatif)**
ρ	1155	PMMA
$\rho/1{,}25$	924	Polyéthylène, caoutchouc
$\rho/1{,}50$	770	Bois divers
$\rho/1{,}75$	660	
$\rho/2$	577,50	
$\rho/3$	385	
$\rho/4$	288,75	Liège
$\rho/6$	192,50	Balsa
$\rho/10$	115,50	Laine de roche
$\rho/20$	57,75	Coton, polystyrène expansé
$\rho/40$	28,875	
$\rho/50$	23,10	
$\rho/100$	11,55	Liquides/gaz
$\rho/200$	5,775	
$\rho/250$	4,62	
$\rho/300$	3,85	
$\rho/350$	3,30	

Il est important de préciser ici que seule la masse volumique est modifiée au cours de l'étude. Les paramètres thermiques, ainsi que les paramètres cinétiques de décomposition du PMMA restent inchangés. L'étude s'affranchit donc du matériau PMMA en tant que tel à partir de la première diminution de densité pour aller vers un matériau fictif permettant de s'attarder sur la phénoménologie et de mener une étude paramétrique. Il est possible de remarquer que pour des masses volumiques très faibles, seuls quelques liquides et gaz correspondent aux valeurs testées : ces valeurs ne sont donc pas représentatives de solides réels et seront exclues de cette étude.

Il est à noter que les matériaux correspondants aux différentes masses volumiques sont donnés à titre indicatif. En effet, la simulation numérique directe à ici pour objectif de capter la plupart des échelles caractéristiques de temps et de longueur afin de mettre en évidence les phénomènes

physico-chimiques lors du processus d'inflammation et éventuellement différents régimes d'inflammation fonctions de la masse volumique. La simulation numérique directe peut donc être vue comme une « expérience numérique » ayant pour objectif l'étude de la phénoménologie et non la représentation d'une expérience « réelle ». Nous avons déjà pu aborder la configuration des simulations et nous avons pu constater que cette dernière ne correspond pas à un banc expérimental existant. Les résultats ne seront donc pas comparés à d'éventuels résultats expérimentaux : seul l'aspect théorique des résultats sera discuté.

III.1.2 - Détermination du délai d'inflammation et mentions complémentaires à l'interprétation

Le délai d'inflammation est un paramètre clé de la présente étude. Même si sa méthode de détermination est mentionnée au II.3.2.b, il est proposé au lecteur de s'y attarder de nouveau.

Plusieurs critères ont été énoncés au Chapitre I (I.2.4) quant à la détermination de l'inflammation. Il est cependant complexe d'appliquer directement ces derniers à notre cas d'étude tant leurs conditions de détermination et les matériaux étudiés sont divers. Il apparaît ainsi plus aisé de considérer l'évolution du taux de dégagement de chaleur calculé par FDS sur la base de la réaction ayant lieu en phase gazeuse pour sa détermination. Comme cela a pu être étudié par le biais des théories de Semenov et de Frank-Kamenetskii, l'inflammation débute au sein d'un réacteur lorsque la balance énergétique devient positive. La production de chaleur devient ainsi supérieure aux pertes et l'emballement thermique est amorcé. L'autoallumage étant un processus se déroulant en phase gazeuse, nous devons donc choisir un critère lié à cette phase, écartant ainsi tous les autres critères liés à la phase condensée présentés au I.2.4, tels que le débit critique de pyrolyse par exemple. Une des caractéristiques principales de l'inflammation étant la production de chaleur, phénomène la plupart du temps « brutal » et « intense », nous avons donc choisi le taux de dégagement de chaleur pour définir les délai d'inflammation du solide.

Pour illustrer, attardons-nous sur la Figure 50 ci-dessous, représentant le taux dégagement de chaleur global (c'est-à-dire l'intégrale du taux de dégagement sur tout le domaine de calcul de la phase gazeuse) au cours du temps, pour une masse volumique de matériau égale à 1155 $kg.m^{-3}$ et soumis à un éclairement énergétique de 100 $kW.m^{-2}$.

Le délai d'inflammation est alors défini dans ce mémoire comme l'instant t correspondant à l'augmentation du taux de dégagement de chaleur, c'est-à-dire à l'instant t pour lequel la dérivée du taux de dégagement ne s'annule plus. Dans le cas présenté en Figure 50, le délai d'auto-inflammation est donc $t = 10{,}834\ s$.

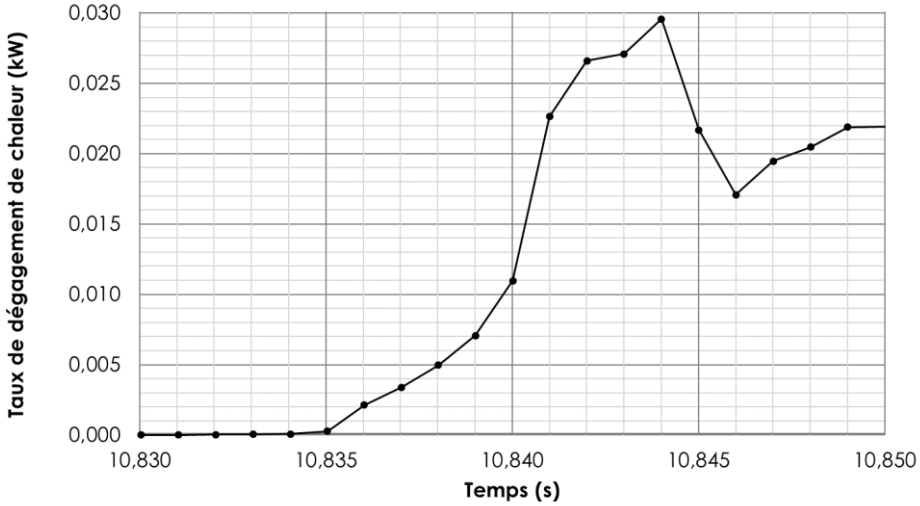


Figure 50 : Evolution du taux de dégagement de chaleur en fonction du temps pour un cas à masse volumique initiale – Détermination du délai d'inflammation

Tout au long de l'analyse des résultats, cinq instants sont considérés et présentés pour bien analyser la phénoménologie de l'auto-inflammation. Ces pas de temps entourent le délai d'auto-inflammation et correspondent à l'acquisition de l'instrumentation prescrite dans FDS à 1.10^{-3} s. Sauf indication contraire, le pas de temps médian est celui correspondant au délai d'autoallumage, les deux temps en amont puis les deux en aval de celui-ci sont toujours présentés.

L'exemple ci-dessus donne un délai d'autoallumage identifié à $t = 10{,}834\ s$, nous nous attarderons sur ce délai et les deux millisecondes précédentes et suivantes soient, dans leur totalité, les instants égaux à 10,832 s ; 10,833 s ; 10,834 s ; 10,835 s et 10,836 s

Par ailleurs, pour des raisons d'optimisation de la lisibilité, les courbes correspondant au pas de temps de l'inflammation sont tracées en gris (sauf indication contraire). La Figure 51 donnée ci-après est un exemple de ce type de représentation graphique pour les cinq pas de temps de l'inflammation. Elle représente l'évolution du profil de température dans la phase gazeuse, au centre de l'échantillon.

L'inflammation correspond à l'initiation du phénomène de combustion ayant lieu en phase gazeuse. Par conséquent, un laps de temps très court, et donc un léger écart, peuvent être constatés entre les mesures en phase gazeuse et les effets sur la phase condensée. La Figure 52 permet d'exposer ce type de décalage de 3.10^{-3} s entre les résultats. Toutefois, dans un souci de compréhension et de manière à avoir une cohérence graphique, les courbes traduisant l'inflammation sont toujours présentées en gris, même si les pas de temps diffèrent légèrement de ceux de la phase gazeuse.

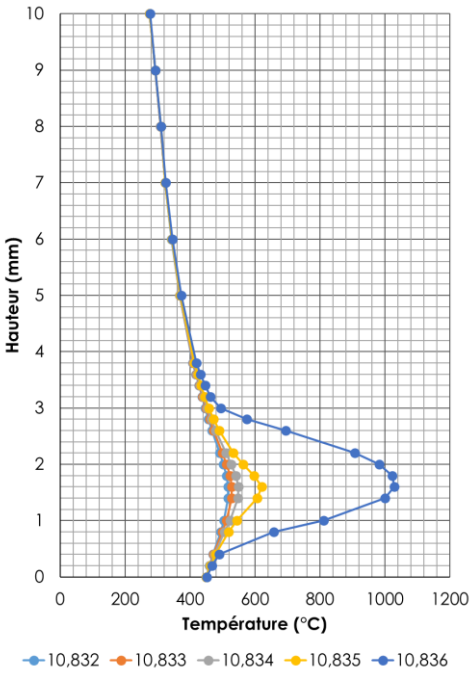


Figure 51 : Répartition de la température en phase gazeuse le long de l'axe vertical au centre de l'échantillon, aux instants de l'inflammation - Cas à masse volumique initiale

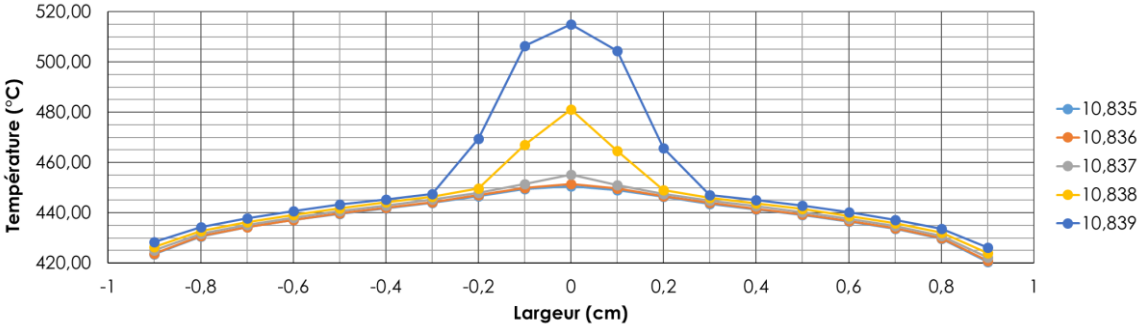


Figure 52 : Répartition horizontale de la température de la maille en surface du solide, aux instants de l'inflammation - Cas à masse volumique initiale

De plus, nous observons pour ce cas que les températures en phase gazeuse et à la surface du solide avant l'inflammation ne sont pas très différentes pour les pas de temps de l'inflammation. Ceci illustre la difficulté de définition d'un critère « universel » afin de caractériser le processus d'inflammation.

III.1.3 - Eclairement énergétique : détermination des flux de chaleur à la surface du solide

Quatre types de densités de flux de chaleur sont mesurables sous FDS :

- La densité de flux radiatif.
- La densité de flux convectif.
- Le flux incident.
- Le flux net.

Le flux radiatif est considéré comme une balance d'énergie sur une surface. Le flux radiatif net est donc donné par la somme du rayonnement absorbé ($\dot{q}''_{rad,in}$) et de celui réémis ($\dot{q}''_{rad,out}$) par cette surface, soit :

$$\dot{q}''_{rad} = \dot{q}''_{ext} - (1-\varepsilon)\dot{q}''_{ext} - \varepsilon\sigma T_w^4 = \varepsilon\dot{q}''_{ext} - \varepsilon\sigma T_w^4 \qquad \text{Eq. III.1}$$

ε : Emissivité de la surface du solide, σ : Constante de Stefan-Boltzman, T_w : Température de surface, $\dot{q}''_{ext}$: flux appliqué à la surface (100 kW.m^{-2}) et diminué de la partie « absorbée et diffusée » par les gaz et augmenté de la partie qui vient de ces gaz et qui rayonnent vers la surface.

Le flux convectif est quant à lui donné par :

$$\dot{q}''_{conv} = -k\frac{\partial T}{\partial n} = -k\frac{T_w - T_g}{\delta n/2} \qquad \text{Eq. III.2}$$

k : Conductivité thermique du gaz, n : la coordonnée spatiale perpendiculaire au solide, δn : la taille de la maille normale au solide, T_w : Température de surface, T_g : Température au centre de la première maile au sein de la phase gazeuse.

Le flux net représente la somme des flux convectifs et radiatifs :

$$\dot{q}''_{net} = \dot{q}''_{rad} + \dot{q}''_{conv} \qquad \text{Eq. III.3}$$

Pour finir, le diagnostic de flux incident somme les flux de chaleur radiatif et convectif, il n'inclut pas le rayonnement réfléchi :

$$\dot{q}''_{inc} = \dot{q}''_{ext} + \dot{q}''_{conv} \qquad \text{Eq. III.4}$$

III.1.4 - Caractérisation du mélange MMA/Air

La fraction de mélange permet de quantifier le mélange local entre le combustible et le comburant. Dans notre cas, le combustible est le gaz de pyrolyse MMA et le comburant, l'oxygène de l'air. Par convention, un mélange constitué uniquement de combustible présente une fraction de mélange d'un et à l'inverse, un mélange constitué uniquement de comburant présente une fraction de mélange de zéro. On définit également la fraction de mélange stœchiométrique Z_{st} pour laquelle la réaction consomme la totalité du combustible et de l'oxydant. Par convention également, on parlera d'un mélange riche lorsque ce dernier se compose de combustible en excès ($Z > Z_{st}$) et de mélange pauvre lorsque le combustible est en défaut ($Z < Z_{st}$). Comme cela est mentionné au Chapitre I, les limites d'inflammabilité constituent des valeurs seuils déterminées expérimentalement et définissant le domaine pour lequel un mélange est susceptible de s'enflammer. De manière générale, elles sont données sous la forme d'un pourcentage volumique et sont étudiées pour des conditions standard de température et de pression.

a) Fraction de mélange stœchiométrique

Au-delà des aspects thermiques, la chimie joue un rôle majeur lors de l'autoallumage. Les conditions de mélange doivent alors être étudiées par le biais de la notion de fraction de mélange. Il paraît alors nécessaire de définir cette dernière ainsi que la fraction de mélange stœchiométrique d'un mélange MMA-Air.

Si l'on considère la réaction de combustion du MMA implémentée dans FDS :

$$C_5H_8O_2 + 6O_2 + 24N_2 \rightarrow 5CO_2 + 4H_2O + 24N_2 \qquad \text{Eq. III.5}$$

La fraction de mélange Z peut s'exprimer à partir des fractions massiques de MMA et d'oxygène via l'expression suivante :

$$Z = \frac{sY_{C_5H_8O_2} - Y_{O_2} + Y_{O_2}^0}{sY_{C_5H_8O_2}^0 + Y_{O_2}^0} \qquad \text{Eq. III.6}$$

Avec s le rapport stœchiométrique tel que :

$$s = \frac{\nu'_{O_2} W_{O_2}}{\nu'_{C_5H_8O_2} W_{C_5H_8O_2}} = \frac{6 \times 32}{1 \times 100} = 1{,}92 \qquad \text{Eq. III.7}$$

La valeur stœchiométrique de la fraction de mélange (Z_{st}) est obtenue au niveau du front de flamme où $Y_{C_5H_8O_2} = 0$, alors :

$$Z_{st} = \frac{Y_{O_2}^0}{1{,}92\, Y_{C_5H_8O_2}^0 + Y_{O_2}^0} = \frac{0{,}2}{1{,}92 + 0{,}2} = 0{,}094 \qquad \text{Eq. III.8}$$

Au niveau de la zone réactionnelle (zone de flamme) entre le MMA et l'Air, la fraction de mélange du MMA sera de 0,094.

b) Limites d'inflammabilité

Au travers différentes fiches de données de sécurité relatives au MMA liquide, les limites de son domaine d'inflammabilité sont les suivantes :

- Limite Inférieure d'Inflammabilité : 2,1 % vol.
- Limite Supérieure d'inflammabilité : 12,5 % vol.

Il faut cependant garder à l'esprit la description faite de ces limites au Chapitre I (I.4.1.c) concernant leur représentativité pour des cas éloignés de leurs conditions de détermination. En effet, ces limites dépendent également de la température du mélange et les relations empiriques (présentées au Chapitre I) permettent de calculer leur évolution en fonction de l'ambiant (équations I.20 et I.21). La Figure 53 présente l'évolution des limites d'inflammabilité du MMA en fonction de la température. Ces courbes sont issues du calcul des deux équations précitées.

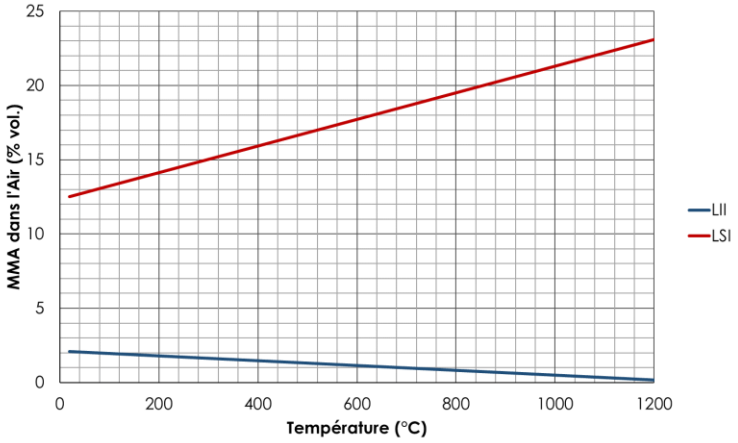


Figure 53 : Evolution du domaine d'inflammabilité du MMA en fonction de la température (voir calcul des limites donné au Chapitre I)

Il est possible d'observer que la limite inférieure d'inflammabilité du MMA est peu élevée ce qui favorise l'inflammation à des richesses relativement basses.

Par ailleurs, la température d'auto-inflammation du MMA liquide est de l'ordre de 420°C. Cependant, cette valeur ne peut être utilisée qu'à titre indicatif car elle n'est pas forcément représentative du mélange gazeux se constituant au-dessus du solide.

III.1.5 - Détermination du nombre de Reynolds local

L'inflammation est également en partie conditionnée par la nature de l'écoulement. Son caractère laminaire ou turbulent doit donc être identifié par l'intermédiaire du nombre de Reynolds. Ce dernier est déterminé en post-traitement et son calcul est rapidement présenté ici pour faciliter la compréhension du lecteur.

La formulation du nombre de Reynolds est la suivante :

$$Re = \frac{\rho V L}{\mu} \qquad \text{Eq. III.9}$$

Avec ρ, la masse volumique du fluide, V sa vitesse caractéristique, L la dimension caractéristique de l'écoulement et μ la viscosité dynamique du fluide.

Pour obtenir un nombre de Reynolds local (tel qu'il est présenté ultérieurement), la masse volumique moyenne des gaz en présence est considérée. La valeur absolue du vecteur vitesse résultant des composantes de vitesse dans les deux dimensions est quant à elle utilisée comme valeur de vitesse de référence. La dimension caractéristique de l'écoulement est calculée sur la base de la formulation d'un diamètre hydraulique pour une section rectangulaire (le solide en pseudo 2D pouvant y être assimilé), soit :

$$D_h = \frac{2.ab}{a+b} \qquad \text{Eq. III.10}$$

a et b représentant la longueur et la largeur de la surface de l'échantillon.

Pour finir, la viscosité dynamique moyenne du fluide est calculée par le biais de la loi de mélange donnée ci-dessous :

$$\mu_{mix} = \sum_i (x_i . \mu_i) \qquad \text{Eq. III.11}$$

Avec x_i la fraction molaire du gaz i.

Cette méthode de calcul constitue une première approche simplifiée du calcul de la viscosité dynamique pour un mélange de gaz (Davidson, 1993) mais est suffisante au besoin qualitatif de l'étude en vue de déterminer le caractère laminaire ou turbulent de l'écoulement.

Au sein d'un écoulement turbulent, les fluctuations turbulentes suivent la cascade de Kolmogorov depuis l'échelle intégrale (l_t) jusqu'à l'échelle de longueur de Kolmogorov, plus petite échelle caractéristique de la turbulence à laquelle est dissipée l'énergie cinétique. Il est alors possible de définir autant de nombre de Reynolds que d'échelles caractéristiques de longueur de la turbulence, le nombre de Reynolds variant de celui de l'échelle intégrale à un. Il a été choisi de définir uniquement le nombre de Reynolds de l'échelle intégrale pour plusieurs raisons. L'écoulement étudié est très peu turbulent et peut plutôt être qualifié de « laminaire perturbé ».

Le nombre de Reynolds sera décrit uniquement de manière comparative, seule la variation relative sera étudiée dans l'objectif de mettre en avant d'éventuels régimes d'auto-inflammation.

III.1.6 - Taux de dissipation et nombre de Damköhler

Pour un solide, l'inflammation en phase gazeuse se produit en intégrant un aspect dynamique résultant de l'écoulement des gaz de pyrolyse au-dessus de la surface de la phase condensée.

Pour étudier ces phénomènes dynamiques, il est nécessaire de faire appel aux notions de temps caractéristiques et d'analyser ces temps entre eux par l'intermédiaire de nombres adimensionnés.

Le temps caractéristique de la réaction est la première variable nous intéressant. En effet, ce temps « chimique » permet de connaître l'échelle de temps nécessaire à une réaction pour se produire. Il correspond à l'inverse de la constante de réaction k et est donné par la relation suivante :

$$t_{chim} = \frac{1}{k} = \frac{1}{Ae^{-E_a/RT}} \qquad \text{Eq. III.12}$$

Pour comprendre les problématiques liées à la turbulence et l'impact de celle-ci, il est également nécessaire de définir un temps caractéristique de la turbulence. Ce temps turbulent correspond à l'inverse du taux de dissipation scalaire. L'approximation que ce sont les mêmes remous turbulents qui dissipent la chaleur et mélangent les espèces est faite (Borghi & Champion, 2000). Le temps caractéristique de la turbulence s'exprime alors par :

$$t_{turb} = \frac{1}{\overline{\rho}\tilde{\chi}} = \frac{1}{\frac{\lambda}{\rho C_p}\,\nabla(Z)^2} \qquad \text{Eq. III.13}$$

En comparant ce temps turbulent au temps chimique, il est alors possible de définir le nombre de Damköhler :

$$Da = \frac{t_{turb}}{t_{chim}} \qquad \text{Eq. III.14}$$

Lorsque :

- $Da \gg 1$, alors la chimie est très rapide et la turbulence a peu d'impact sur la structure de la zone réactionnelle (la flamme).
- $Da \ll 1$, alors la chimie est lente et la turbulence défait la structure de la flamme.

III.1.7 - Paramètres globaux vs. locaux en surface de solide

Au cours du mémoire, deux typologies de résultats ont déjà été présentées de manière indifférenciée. Il est cependant nécessaire de distinguer les valeurs globales, des valeurs locales extraites des simulations. Le taux de dégagement de chaleur, la température moyenne de surface ou le débit de pyrolyse moyen sont des exemples de valeurs globales. En effet, elles sont moyennées et intégrées sur une surface ou à l'échelle du domaine de calcul. A l'inverse, les mesures locales sont ponctuelles et traduisent des variations de grandeurs en un point précis du domaine. Elles comportent notamment les mesures de température, de débit local ou d'éclairement énergétique.

L'enjeu de cette partie est alors de déterminer la validité d'utilisation des valeurs globales ainsi que d'éventuelles limites à leur interprétation. Cette différentiation est essentielle pour les grandeurs mesurables à la surface de l'échantillon de matériau.

Le cas initial (ρ = 1155 kg.m^{-3}) présenté en III.1.2 est représentatif et est utilisée comme exemple de travail dans cette partie.

Dans la mesure où des tendances sont à établir afin de caractériser l'auto-inflammation, deux paramètres majeurs sont à prendre en considération au niveau du solide :

- La température de surface
- Le débit de pyrolyse

Par ailleurs, la température de surface est dépendante de l'éclairement énergétique reçu par l'échantillon, nous analysons donc la répartition horizontale de ce dernier en surface. Comme cela vient d'être exposé, le flux incident permet de mesurer le flux convectif et le flux radiatif à la surface du solide et c'est ce dernier qui est exposé dans cette partie du rapport au travers de la Figure 54 qui permet d'obtenir une vision globale de la répartition de l'éclairement énergétique incident à la surface de l'échantillon de matériau. Les pas de temps pré-inflammation sont ceux qui nous intéressent particulièrement ici ($t_1 = 10{,}835\ s$ et $t_2 = 10{,}836\ s$). Il est alors possible de remarquer qu'au-delà des bords de l'échantillon, l'éclairement reçu est constant à la surface.

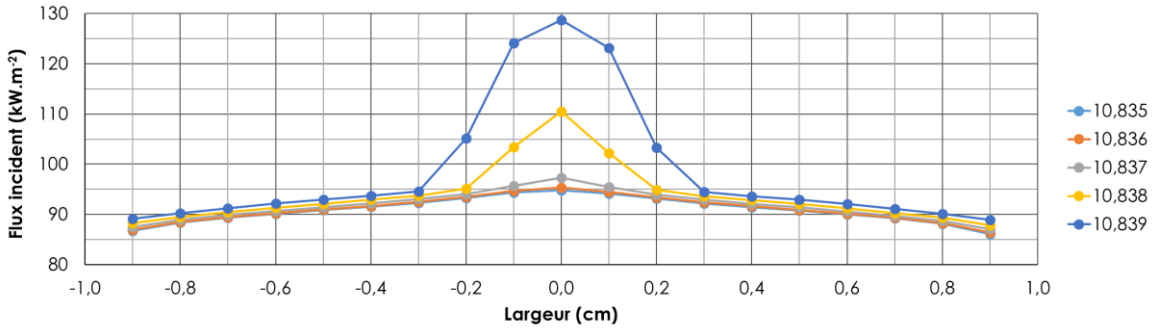


Figure 54 : Répartition horizontale de l'éclairement énergétique incident en surface de solide, à différents pas de temps encadrants l'inflammation - Cas à masse volumique initiale

La seconde étape du raisonnement consiste à étudier la répartition de la température à la surface du solide. Cette dernière est donnée en Figure 55. Une variation de l'ordre de 15°C est observée entre les bords d'échantillon et le centre (toujours en considérant les pas de temps pré-inflammation).

Ces courbes permettent de visualiser la répartition des valeurs et de rester vigilant quant à l'utilisation de valeurs moyennées. Pour un pas de temps pré-inflammation, considérant une valeur moyenne calculée de 459°C, l'étendue de la série de 19 données s'étale de 452 à 462°C, l'écart type est alors de 3,5°C. Il est possible de considérer cette température comme uniforme en surface tant les écarts en surface sont faibles. En s'attardant sur des densités de matériaux plus faibles, l'écart type peut augmenter jusqu'à 18°C sur ces mêmes relevés de surface. Cet écart est également faible mais pourra être garder à l'esprit lors de l'analyse de valeurs moyennées de températures de surface.

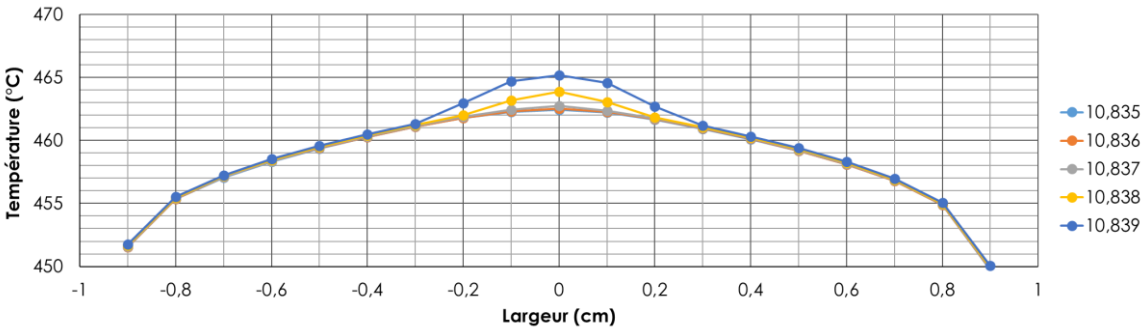


Figure 55 : Répartition horizontale de la température de surface du solide, à différents pas de temps encadrants l'inflammation - Cas à masse volumique initiale

Le débit de pyrolyse ayant une dépendance directe à la température (voir la description du modèle), il est possible de dresser les mêmes conclusions que précédemment. En comparant les variations de débits le long de l'échantillon à la densité initiale (Figure 56), une valeur moyenne de débit de pyrolyse de $1{,}18.10^{-2}$ $kg.m^{-2}.s^{-1}$ est observée pré-inflammation avec un écart type de $3{,}29.10^{-3}$ $kg.m^{-2}.s^{-1}$. Cet écart tend à diminuer avec la diminution de la densité.

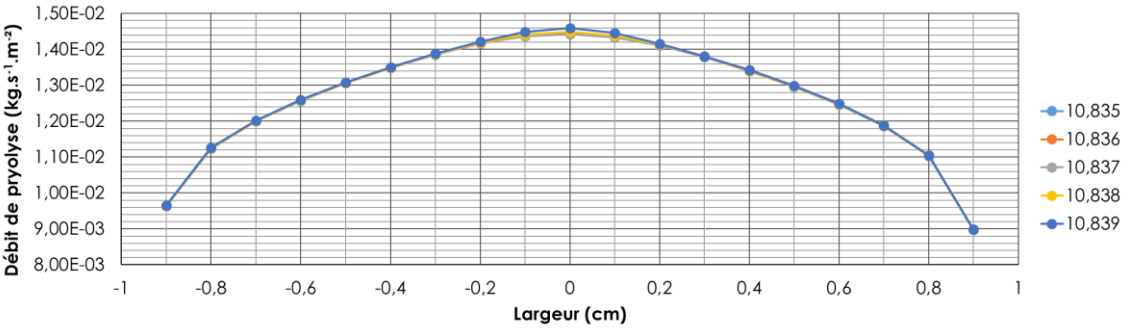


Figure 56 : Répartition horizontale du débit de pyrolyse en surface de solide, à différents pas de temps encadrants l'inflammation - Cas à masse volumique initiale

D'un point de vue global en surface de solide, il a été possible de constater que les variations sont faibles sur la largeur du solide. Des valeurs surfaciques moyennées peuvent donc être présentées et servir de base à notre analyse dans une certaine limite. D'un point de vue local, il sera possible de privilégier la valeur locale centrale de l'échantillon, valeur maximum au regard des cas présentés ici.

Les caractéristiques et les différences entre les grandeurs ayant été présentées, il est désormais possible d'étudier des valeurs locales ou globales en ayant à l'esprit les écarts observés. Cette différenciation est notamment traitée au III.2 et au III.3.

III.2 - Etude globale : moyennes spatiales et temps caractéristiques

Les résultats généraux sur les simulations représentatives de solides sont exposés ici. Le délai d'allumage est le premier paramètre global étudié pour définir les temps autour desquels l'étude s'oriente. Il représente un paramètre crucial et permet une première appréhension du phénomène d'auto-inflammation. L'éclairement énergétique, la température de surface, en lien avec l'évolution du débit de pyrolyse sont ensuite exposés pour les différentes masses volumiques à l'instant de l'inflammation. L'évolution des temps caractéristiques de la conduction et de la pyrolyse sont également présentés dans cette partie afin de caractériser au mieux les solides étudiés selon les définitions de (Pyle & Zaror, 1984). Pour finir, ne pouvant exposer la totalité des

résultats dans leur détail, deux cas représentatifs sont sélectionnés pour mener la suite de l'analyse à l'échelle locale.

Une analyse préliminaire est menée afin d'établir les tendances d'évolution des paramètres selon la variation de la densité, puis deux cas d'études sont sélectionnés car ils apparaissent comme idéaux pour exposer des différences de comportement à l'inflammation selon la nature des solides (et donc la variation de la densité dans le cas de la présente étude. Ces cas sont :

- La masse volumique initiale (1155 $\mathrm{kg.m^{-3}}$) qui permet d'illustrer le comportement d'un matériau à masse volumique élevée.
- Une densité de $\rho/50$ (23,10 $\mathrm{kg.m^{-3}}$) comme exemple de la phénoménologie à faible masse volumique.

Après avoir illustré ces cas, nous nous attardons sur la phénoménologie des très faibles densités avec l'exemple de $\rho/200$ (5,775 $\mathrm{kg.m^{-3}}$).

III.2.1 - Délai d'inflammation

Le délai d'auto-inflammation est un paramètre pris en considération dans de nombreuses études. Pour les cas appliqués au solide, il est décomposable de manière à faire apparaître une somme de temps caractéristiques que sont le délai lié à la décomposition du solide, le délai lié au transport et au mélange des espèces en phase gazeuse et enfin le délai de chauffage desdites espèces.

La présente étude propose de s'attarder sur la variation de ce délai en fonction de différentes masses volumiques d'échantillon testées. Le délai d'autoallumage est déterminé par la méthode citée en III.1.2 et il est présenté à travers le graphique donné en Figure 57.

Il est possible d'observer que le délai d'auto-inflammation du matériau diminue linéairement avec sa masse volumique. La corrélation de Quintiere est basée sur un modèle de conduction pure au sein d'un matériau semi-infini et suppose que les temps caractéristiques liés à la phase gazeuse (temps caractéristique de transport et de mélange des gaz, temps caractéristique du transfert de chaleur et temps caractéristique de la réaction) sont négligeables devant les temps caractéristiques de la phase condensée et notamment devant celui de la pyrolyse (somme du temps caractéristiques de la réaction et du transfert de chaleur). Dans notre cas, cette hypothèse est vérifiée car les conditions de combustion correspondent à des conditions bien ventilées. On peut ainsi supposer que les temps caractéristiques de mélange afin d'atteindre la stœchiométrie et de réaction sont plutôt faibles devant celui de la pyrolyse. Enfin, le flux de chaleur externe apporté est de 100 $\mathrm{kW.m^{-2}}$, ce qui réduit fortement le temps de transfert caractéristique de chaleur en phase gazeuse, les gaz de pyrolyse étant préalablement chauffés. L'hypothèse de conduction est également vérifiée dans notre cas de par la nature du modèle et du type de matériau étudié. En effet, le modèle en phase condensée ne prend pas en compte les éventuels transports de masses et son utilisation est discutable dans le cas où les matériaux ont une forte porosité. Le matériau est ici considéré comme opaque et on peut donc exclure tout transfert de chaleur par rayonnement au sein de ce dernier.

La masse volumique du solide impacte le temps caractéristique de pyrolyse et donc le temps d'inflammation à deux niveaux.

La masse volumique a un effet sur le taux de réaction. Des densités élevées vont générer des réactions élevées et auront tendance à diminuer le temps caractéristique global de pyrolyse via

celui de la réaction. En revanche, le temps caractéristique global de la pyrolyse dépend aussi du temps caractéristique du transfert de chaleur au sein du solide afin d'atteindre la température d'inflammation. Dans ce cas, une densité élevée augmentera le temps caractéristique du transfert de chaleur et donc le délai d'inflammation.

Nous sommes dans des conditions où la chimie en phase condensée peut être considérée comme infiniment rapide. Le temps caractéristique de la cinétique est donc négligeable devant celui du transfert de chaleur, dans le cas d'un matériau thermiquement épais, ce qui explique l'augmentation du délai d'inflammation en fonction de la densité.

Les deux phases (condensée et gazeuse) peuvent être étudiées plus en détail afin de vérifier ces résultats et hypothèses. Nous nous attarderons sur les valeurs globales que représentent la température moyenne de surface et le débit massique de pyrolyse moyen, ces deux paramètres étant respectivement à la base de l'apport énergétique et de la génération de l'écoulement gazeux.

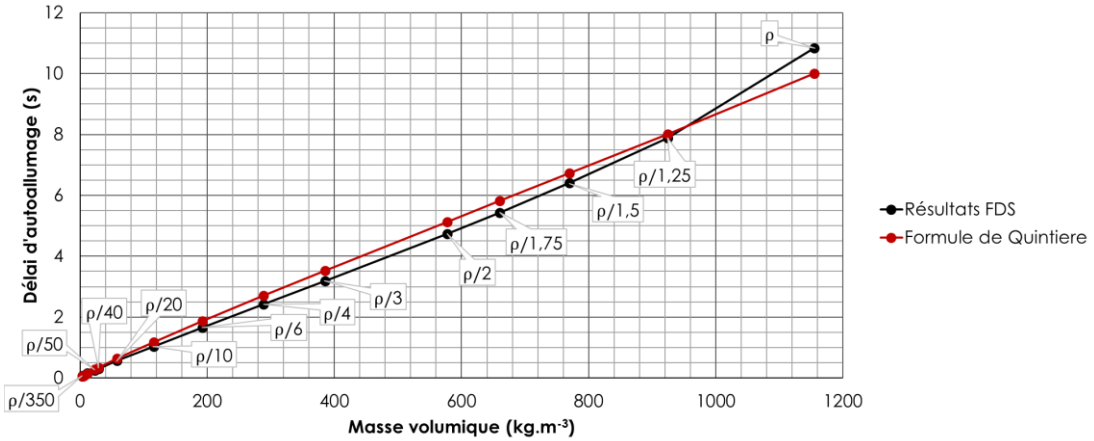


Figure 57 : Evolution du délai d'autoallumage en fonction de la densité et comparaison à la formule classique de calcul du délai d'inflammation

Afin de d'approfondir l'étude de ces résultats, ces derniers ont été confrontés à la formule proposée par (Quintiere, 1998) définissant le temps d'inflammation en fonction de la densité de la manière suivante :

$$t_{ig} = c(k\rho C_p)\left[\frac{(T_{ig} - T_\infty)}{\dot{q}''}\right]^2 \qquad \text{Eq. III.15}$$

Les résultats de cette comparaison sont également donnés en Figure 57 par le bais de la courbe rouge. Une cohérence des résultats est obtenue (l'écart maximum mesuré étant d'environ 1 s).

III.2.2 - Densités de flux de chaleur à la surface du solide

FDS permet la mesure de quatre flux de chaleur différents :

- Radiatif : flux net radiatif ; $\dot{q}''_{rad} = \varepsilon\dot{q}''_{ext} + \varepsilon\sigma T_w^4$.
- Convectif : flux apporté en un point par convection ; $\dot{q}''_{conv} = -k\frac{\partial T}{\partial n} = -k\frac{T_w - T_g}{\delta n/2}$.
- Incident : combinaison du flux radiatif extérieur et convectif ; $\dot{q}''_{inc} = \dot{q}''_{ext} + \dot{q}''_{conv}$.
- Net : combinaison du flux radiatif (en tenant compte de la partie réfléchie) et convectif ; $\dot{q}''_{net} = \dot{q}''_{rad} + \dot{q}''_{conv}$.

Pour rappel, un éclairement énergétique externe de 100 kW.m^{-2} est prescrit à la surface du solide.

Par le biais des cinq graphes donnés en Figure 58, il est possible d'évaluer l'évolution des différentes densités de flux de chaleur à la surface de l'échantillon, en fonction des masses étudiées, aux cinq pas de temps étudiés (2 juste en amont de l'inflammation, à l'inflammation et 2 juste après l'inflammation). Les densités de flux de chaleur ont été moyennées spatialement sur toute la surface du solide.

Le pas de temps séparant les cinq instants présentés en Figure 58 est de 10^{-3} s. En considérant les incertitudes de calculs du délai d'inflammation, on peut considérer que l'inflammation se produit au niveau des instants t_3 et t_4.

Pour les deux pas de temps pré-inflammation, les flux de chaleur sont pratiquement constants quelle que soit la densité. Les faibles variations sont dues au flux convectif qui prend en compte la température de la première maille en phase gazeuse. Les débits de pyrolyse n'étant pas nuls aux pas de temps pré-inflammation, et également différents selon la densité, ceci a un impact sur le flux convectif. On peut noter qu'avant l'inflammation, le flux convectif est négatif et ne représente qu'entre 5 et 10 % du bilan d'énergie à la surface du solide selon les densités. On peut également noter que la part re-rayonnée du flux radiatif par la surface du solide représente entre 10 et 20 % du flux incident selon les densités. La variation de flux incident dépend principalement de la variation de température au sein de surface en fonction des masses volumiques.

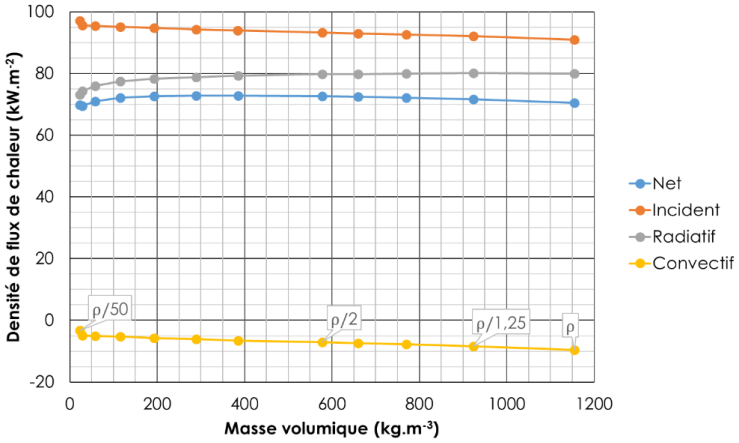
A l'inflammation, on observe deux régimes. Le premiers de ceux-ci correspond aux masses volumiques élevées pour lesquelles la densité de flux de chaleur net à la surface de l'échantillon est pratiquement identique à celle avant l'inflammation et constante de $\rho/3$ à ρ. Dans ce cas, l'inflammation est plus locale et nous le verrons lors de l'interprétation des résultats à l'échelle locale. La production d'énergie n'est alors pas très intense et l'augmentation de la température des gaz annule les parts convectives constatée avant l'inflammation. En revanche, pour les densités faibles ($< \rho/3$), un second régime apparaît. On constate alors une forte augmentation du flux de chaleur à la surface du solide. Dans ce régime, l'inflammation est rapide et au pas de temps sélectionné, l'inflammation s'étend sur tout le domaine spatialement.

L'inflammation n'étant pas un terme issu d'une grandeur conservative, sa définition est difficile à appréhender. La définition du délai d'inflammation est également complexe, comme nous avons pu le voir au Chapitre I. Plusieurs techniques de calcul ont été définies par différents auteurs et conduisent à différents délais pour des conditions identiques.

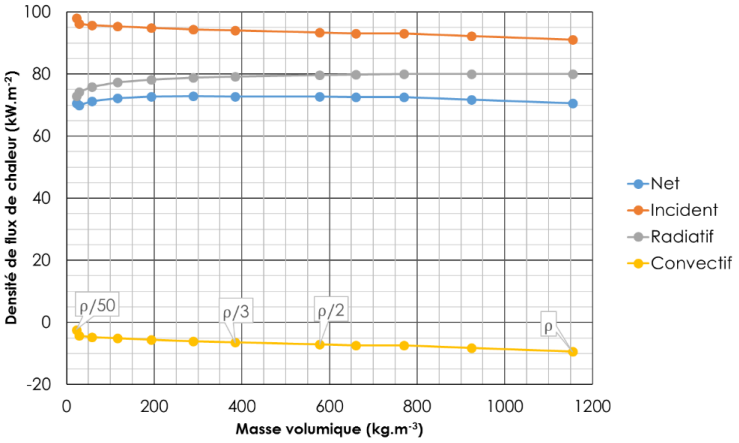
La valeur critique de la densité conduisant au changement de régime se situe autour de $\rho/2$, $\rho/3$ ce qui correspond, nous le verrons par la suite, à un changement de régime cinétique en phase condensée. En effet, pour des densités plus importantes au point critique, le temps caractéristique du transfert de chaleur (en phase condensée) est plus grand que celui de la chimie. Pour les densités inférieures au point critique, les deux temps caractéristiques s'équivalent, la chimie devenant même le processus limitant. Dans ce cas de figure, les températures de surface sont relativement élevées, augmentant la réactivité du mélange en phase gazeuse.

Cette analyse permet de compléter celle de l'évolution de la température de surface en fonction de la densité de matériau étudiée. L'évolution de la densité de flux convectif est à l'origine de l'augmentation de la température en surface du solide pour les faibles densités. En effet, les valeurs des différentes densités de flux de chaleur sont relativement constantes pour les pas de temps pré-inflammation. Au moment de l'inflammation, une nette augmentation du flux convectif est à noter à partir de $\rho/3$. L'augmentation du flux incident, liée à l'augmentation de la part

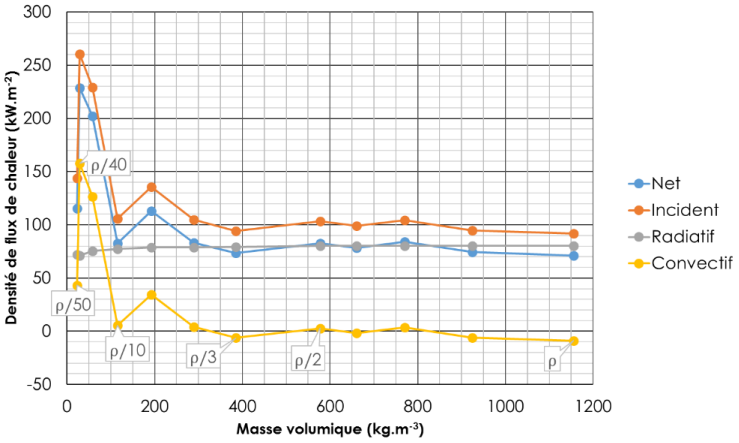
convective, conduit à l'augmentation de la température de surface lors de l'inflammation et lors de la diminution de la densité. Ce paramètre sera étudié au paragraphe suivant.



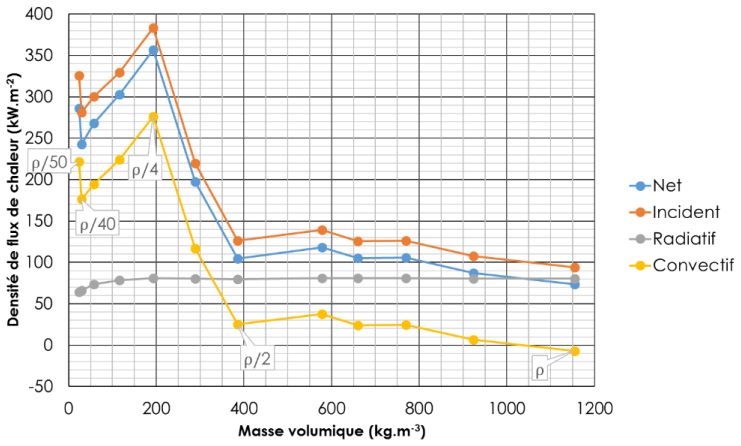
t_1



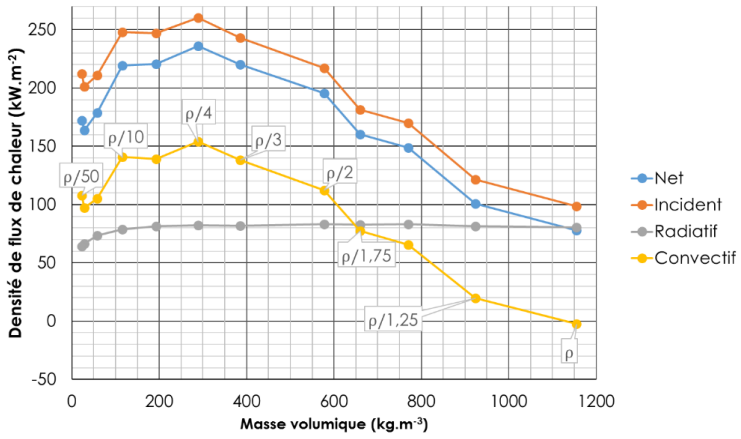
t_2



t_3



t_4



t_5

Figure 58 : Densités de flux de chaleur moyennes à la surface de l'échantillon en fonction de la masse volumique pour les pas de temps encadrant l'inflammation

Le Tableau 9 fait un bilan des différentes densités de flux de chaleur moyennes à la surface de l'échantillon pour les cinq pas de temps considérés. L'écart type des densités de flux locales à la surface de l'échantillon est également mentionné. Ce paramètre nous donne une information sur l'homogénéité de la densité de flux sur toute la surface de l'échantillon.

A masse volumique initiale, il est possible de noter une augmentation constante des flux de chaleur net et incident en fonction du temps grâce au Tableau 9. Tandis que la part radiative reste constante pour les cinq pas de temps considérés, la part convective est en constante augmentation lors de l'inflammation et il est alors possible de lui attribuer l'augmentation des flux net et incident. Par ailleurs, on remarque en t_5 que l'écart type du flux convectif (et donc des flux net et incident), augmente significativement de 2,5 à 12 kW.m^{-2}. Cette augmentation de l'écart type traduit l'apparition de divergences de densité de flux de chaleur en surface et la probabilité d'occurrence d'un phénomène local.

La seconde masse volumique étudiée ($\rho/50$) montre un comportement différent dans l'évolution de la densité de flux de chaleur en surface. Cette dernière prend en effet des valeurs très importantes aux instants de l'inflammation, bien au-dessus du flux de consigne de 100 kW.m^{-2}. Une nouvelle fois, une certaine constance est observée dans les valeurs de flux radiatif mais de fortes variations le sont pour le flux convectif. Ces fortes variations entre les instants pré et post-inflammation traduisent des perturbations de l'écoulement et la violence de la réaction en phase

gazeuse. Par ailleurs, de fortes variations d'écarts types sont à noter dans les valeurs mesurées le long de la surface. Une nouvelle fois, la perturbation de l'écoulement par la réaction et par l'expansion thermique des gaz peut être à l'origine de ces variations. Elles doivent également être étudiées à l'échelle locale mais elles permettent une vision globale en première approche.

Tableau 9 : Récapitulatif des densités de flux de chaleur moyennes en surface de l'échantillon pour les pas de temps encadrant l'inflammation et pour les deux masses volumiques considérées

Masse volumique	Flux de chaleur	Pas de temps	Densité de flux moyenne ($kW.m^{-2}$)	Ecart type
ρ = 1155 $kg.m^{-3}$	Convectif	t_1	-9,53	2,42
		t_2	-9,38	2,45
		t_3	-8,86	2,57
		t_4	-6,96	5,37
		t_5	-2,45	12,01
	Radiatif	t_1	79,98	0,28
		t_2	80,01	0,26
		t_3	80,12	0,21
		t_4	80,25	0,18
		t_5	80,44	0,16
	Incident	t_1	90,92	2,44
		t_2	91,10	2,50
		t_3	91,73	2,72
		t_4	93,78	5,61
		t_5	98,52	12,33
	Net	t_1	70,46	2,15
		t_2	70,63	2,21
		t_3	71,25	2,44
		t_4	73,29	5,37
		t_5	77,99	12,07
ρ = 23,1 $kg.m^{-3}$	Convectif	t_1	-3,25	7,05
		t_2	-2,37	8,01
		t_3	43,25	54,62
		t_4	221,41	50,13
		t_5	107,85	32,10
	Radiatif	t_1	73,11	1,56
		t_2	72,99	1,62
		t_3	72,21	2,39
		t_4	64,43	2,18
		t_5	64,33	1,69
	Incident	t_1	97,18	7,06
		t_2	98,06	8,02
		t_3	143,98	54,83
		t_4	325,83	49,51
		t_5	212,21	31,29
	Net	t_1	69,86	5,56
		t_2	70,61	6,49
		t_3	115,46	52,39
		t_4	285,84	50,18
		t_5	172,18	30,59

III.2.3 - Température de surface moyenne, débit massique de pyrolyse moyen

La Figure 59 présente les variations de la température de surface et de débit massique de pyrolyse en fonction de la masse volumique des différents matériaux testés au moment de l'inflammation. Les températures de surface ont été moyennées spatialement sur toute la surface du solide. Le débit de pyrolyse représente ici l'intégrale du débit sur toute l'épaisseur de l'échantillon et le débit moyen représente la moyenne spatiale sur toute la surface de l'échantillon.

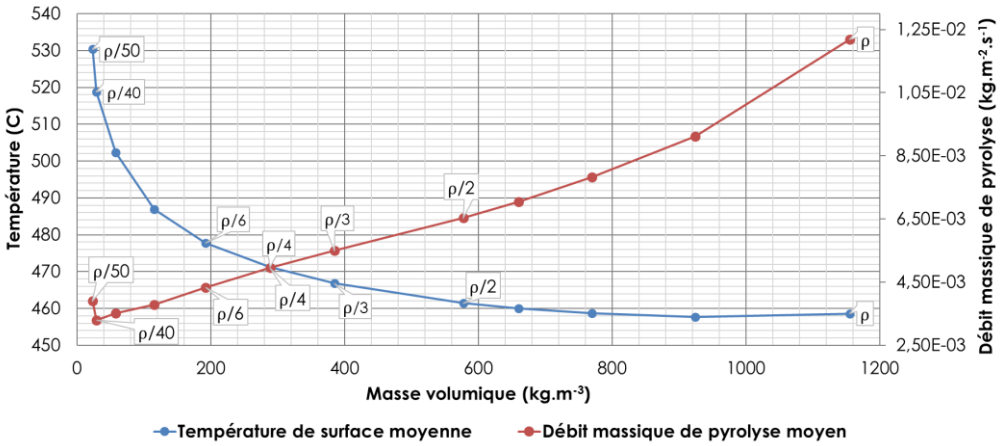


Figure 59 : Température de surface moyenne et débit massique de pyrolyse moyen associé au moment de l'inflammation

Cette figure donne d'avantage d'informations concernant les phénomènes macroscopiques de surface. Il est en effet possible de constater que la diminution de la densité impacte de manière notable la température de surface du solide. La température de surface dépend du bilan d'énergie et du gradient de température à la surface de l'échantillon. Précédemment, nous avons identifié l'augmentation du flux de chaleur à la surface pour des densités faibles ce qui tend à augmenter la température de surface. La diminution de la masse volumique engendre une augmentation de la diffusivité thermique qui tend à augmenter la température de surface. On remarque notamment une différence de plus de 70°C entre les densités initiales et la densité finale. Cette différence ne représente cependant qu'une variation de 10 % de la température de surface. Cet écart se creuse d'autant plus avec les très faibles densités. Le débit moyen, quant à lui, décroit de manière relativement linéaire lors de la diminution de la masse volumique.

Pour les masses volumiques comprises entre 1155 et 577,50 kg.m^{-3}, la température de surface jute avant l'inflammation n'augmente que de quelques degrés. En revanche, sur cette même plage de densités, le débit massique de pyrolyse diminue presque de moitié, passant de 1,25.10^{-2} à 6,5.10^{-3} kg.m^{-2}.s^{-1}. Même si la température de surface varie peu pour les densités élevées, le taux de réaction en phase condensée est directement proportionnel à la densité locale du solide. Le débit massique de pyrolyse diminue donc globalement avec la densité. Pour les faibles densités, l'augmentation de la température de surface (et plus globalement de la température au sein du solide) a un effet antagoniste à celle de la diminution de la densité sur le débit de pyrolyse. Pour la majorité des masses volumiques étudiées ici, l'évolution du débit de pyrolyse est gouvernée par la variation de densité excepté pour les faibles masses volumique ($\rho/50$) où l'on observe une augmentation du débit de pyrolyse. Dans ce cas, l'effet de l'augmentation locale de température devient le paramètre dominant par rapport à la diminution de la densité. Il semble alors que le phénomène d'inflammation dans la phase gazeuse prédomine dans cette première partie

puisqu'aucun changement de température n'est à remarquer en surface de la phase condensée. Ce point est approfondi dans les parties suivantes

Pour les densités inférieures à 577,50 kg.m^{-3}, la température de surface connaît une augmentation importante, de 70°C. Il est alors possible de confirmer la tendance de diminution du débit de manière quasi-linéaire sur cette gamme de masses volumiques. Dès lors, aux vues des débits, il semble que la phase condensée, au travers de sa montée rapide en température, ait un impact plus important sur le phénomène d'autoallumage se produisant en phase gazeuse. Peu de gaz sont émis pour des densités faibles mais une température importante de surface est atteinte rapidement. Ce premier point peut permettre d'expliquer les différences entre les pics de HRR qui seront étudiés au III.2.5.

Le Tableau 10 présente les températures de surface moyennes pour deux densités à cinq pas de temps différents autour du temps d'inflammation. L'écart type des températures de surface locales est également analysé. Plusieurs points notables peuvent alors être mis en avant.

- 1°C de différence est observé entre le premier pas de temps à fortes densités, contre 90°C pour la densité divisée par cinquante (ce qui représente une variation d'environ 15 %). Plusieurs raisons peuvent expliquer cette variation. L'augmentation du flux convectif pour les faibles densités peut engendrer cette augmentation de température brutale en surface. Aux faibles densités, on constate que l'inflammation s'établit spatialement sur tout le domaine (en lien avec le caractère brutal du phénomène). L'augmentation du flux de chaleur à la surface est donc significatif aux pas de temps considérés ce qui engendre une augmentation de la température de surface. Par ailleurs, et comme cela est démontré par le biais du HRR, l'établissement de la flamme est plus long pour les densités élevées et plus courte pour les densités faibles. Cette augmentation de température peut donc traduire une arrivée plus rapide de la flamme.
- Les écarts types entre les dix-neuf points de mesure de température en surface sont très faibles pour la densité élevée (environ 3,5°C). Ils sont également constants pour les cinq pas de temps considérés. Cela n'est pas le cas pour la densité la plus faible avec des écarts types d'environ 15°C pré-inflammation, à 8°C post-inflammation et avec un pic à 59°C au moment de l'inflammation. Le phénomène engendre donc plus de perturbation en surface pour les faibles densités.

Ces paramètres globaux se devront d'être approfondis dans la partie suivantes dédiée aux valeurs locales.

Tableau 10 : Températures moyennes de surface pour les pas de temps encadrant l'inflammation et pour les deux densités considérées

Masse volumique	Pas de temps	Température surfacique moyenne (°C)	Ecart type sur la largeur
ρ = 1155 kg.m^{-3}	t_1	458,59	3,53
	t_2	458,62	3,54
	t_3	458,68	3,56
	t_4	458,87	3,71
	t_5	459,26	4,05
ρ = 23,1 kg.m^{-3}	t_1	529,13	14,79
	t_2	530,37	15,41
	t_3	582,01	58,60
	t_4	628,35	7,71
	t_5	619,40	7,67

Le Tableau 11 présente pour les cinq pas de temps considérés, l'évolution du débit moyen de pyrolyse et de son écart type sur la largeur de l'échantillon pour les deux densités étudiées.

Le débit massique de pyrolyse moyenné à la surface du solide dépend du taux de réaction, lui-même dépendant de la température. Le débit ne connait donc pas d'écart pour les densités élevées (densité initiale), tant en termes de débits que de variation le long de l'échantillon. En effet, pour les densités élevées, la température de surface varie peu pour les pas de temps considérés. Lors de la baisse de la densité, les mêmes différences que pour la température sont observables (densité divisée par cinquante). Le débit moyen augmente alors avec la température au fil des pas de temps tandis que l'écart type en surface diminue.

Tout comme pour la température, ces valeurs sont étudiées pas une approche locale dans la partie suivante de ce Chapitre.

Tableau 11 : Débits massiques de pyrolyse moyens à la surface pour les pas de temps encadrants l'inflammation et pour les deux densités considérées

Masse volumique	Pas de temps	Débit de pyrolyse moyen (kg.m^{-2}.s^{-1})	Ecart type sur la largeur
ρ = 1155 kg.m^{-3}	t_1	1,18E-02	3,29E-03
	t_2	1,18E-02	3,29E-03
	t_3	1,18E-02	3,29E-03
	t_4	1,18E-02	3,29E-03
	t_5	1,18E-02	3,30E-03
ρ = 23,1 kg.m^{-3}	t_1	3,60E-03	1,70E-03
	t_2	3,73E-03	1,79E-03
	t_3	4,42E-03	2,50E-03
	t_4	2,07E-02	1,03E-02
	t_5	2,64E-02	9,01E-03

III.2.4 - Temps caractéristiques

Afin de compléter cette étude macroscopique, les temps caractéristiques de la pyrolyse et de la conduction sont étudiés.

Nous verrons ultérieurement que le point d'inflammation de la phase gazeuse se localise au niveau du centre du solide. Une valeur locale (au centre de ce dernier) est alors utilisée pour mener cette étude sur les temps caractéristiques. Les phénomènes de pré-inflammation étant ceux qui nous intéressent, seuls les deux pas de temps pré-allumage sont considérés.

Pour rappel, selon Pyle et Zaror (Pyle & Zaror, 1984), ces temps caractéristiques en phase condensée sont calculés de la manière suivante :

$$t_{chim} = \frac{1}{k} = \frac{1}{Ae^{-\frac{E_a}{RT}}} \qquad \text{Eq.III.16}$$

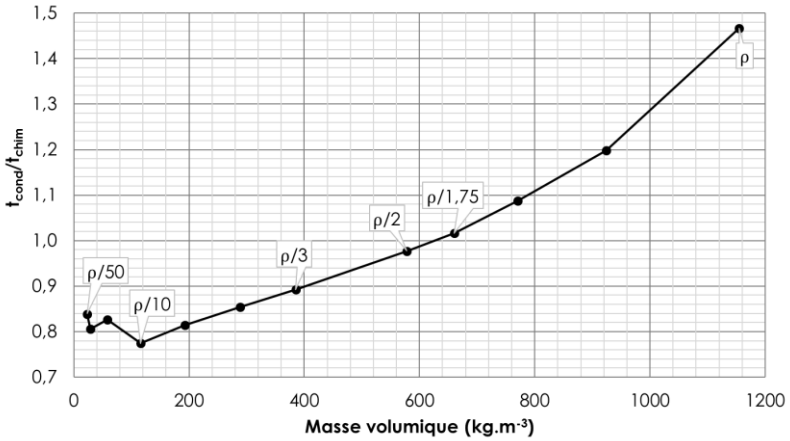
$$t_{cond} = \frac{\rho C_p}{\lambda_s \sigma_s^2} \qquad \text{Eq.III.17}$$

Le taux de réaction considéré est celui calculé par FDS (recalculé en post traitement selon les équations présentées au Chapitre II). Par ailleurs, les variations à la température des paramètres thermiques du solide sont intégrées au calcul du temps caractéristique de la conduction. Le rapport du temps caractéristique de la conduction sur le temps caractéristique de la chimie permet de déterminer le processus limitant lors de la dégradation thermique du solide, à savoir le transfert de chaleur ou la cinétique chimique. Si ce rapport est grand devant l'unité, le temps caractéristique de la chimie est faible devant la vitesse de propagation de l'onde thermique. La zone de réaction peut alors être considérée comme infiniment mince. A l'inverse, si ce rapport est inférieur à un, le temps caractéristique de la réaction est faible et la zone réactionnelle peut être considérée comme ayant une épaisseur caractéristique finie.

Les résultats du rapport temps de conduction sur temps chimique obtenus pour les différentes masses volumiques aux deux pas de temps pré-inflammation sont présentés par la Figure 60 (a) et (b) et l'évolution des deux temps caractéristiques pris séparément est représenté sur la Figure 61. Il est possible d'observer que le rapport des deux temps est inférieur à un dès $\rho/2$. Au-delà de cette masse volumique, la propagation de la chaleur par conduction au sein du solide est moins rapide que la propagation du front de pyrolyse.

Le rapport des temps caractéristiques diminue quasi linéairement avec la diminution de la densité jusqu'à une valeur critique située autour de $\rho/10$. Ensuite, ce rapport augmente. En effet, la dépendance à la température des paramètres de conductivité et de chaleur massique n'ont que peu d'influence sur l'évolution du temps caractéristique devant le changement de densité.

(a)



(b)

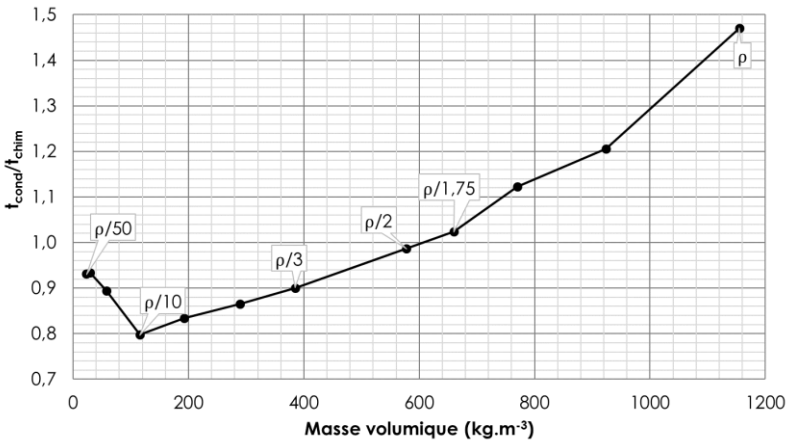


Figure 60 : Rapport des temps caractéristiques de la conduction et de la pyrolyse pour les deux pas de temps pré-inflammation

Cette approche, basée sur des formules issues de l'ingénierie, permet d'obtenir des tendances globales et de situer les cas en fonction de la classification établie par (Pyle & Zaror, 1984). Au-dessus de $\rho/2$, la conduction est plus lente que la chimie : la réaction dépend donc de l'espace et du temps et ne peut pas être considérée comme « infiniment rapide » au sein de la phase condensée. En dessous de cette valeur, la chimie devient plus rapide que la conduction qui pilote les mécanismes. Le front de pyrolyse se déplace donc à la même vitesse que l'onde de chaleur dans le matériau. La variation de masse volumique permet donc bien de modifier le comportement du solide.

Par le biais de la Figure 61, il est possible d'évaluer quantitativement les temps caractéristiques de la phase condensée. En soustrayant ces derniers au délai d'auto-inflammation, il est alors possible de déduire les temps caractéristiques de la phase gazeuse. A masse volumique élevée, le délai d'auto-inflammation est de 10,834 s et la somme des temps caractéristiques de la phase condensée est égale à 6,66 s. Les temps caractéristiques liés au solide représentent donc 61 % du délai d'autoallumage ce qui permet d'affirmer la prépondérance du solide lors de ce phénomène mais également un rôle non négligeable des phénomènes liés à la phase gazeuse dont les temps caractéristiques représentent 39 % du délai d'inflammation total. A faible densité, le délai d'autoallumage est égal à 0,26 s et les temps caractéristiques de la phase condensée équivalent à 92 % du délai d'inflammation total (soit 0,24 s). L'impact des phénomènes liés au solide est alors ici mis en évidence et les temps caractéristiques de la phase gazeuse sont très faibles devant ceux de la phase condensée. Pour les deux masses volumiques, le solide joue donc un rôle prépondérant mais la phase gazeuse joue un rôle non négligeable pour les fortes densités.

La partie relative à la phase condensée donnée au I.3 a permis d'introduire la notion d'épaisseur thermique du matériau en plus du rapport de temps caractéristiques. Le nombre de Biot a été mesuré pour les solides considérés dans cette étude et sa valeur est toujours supérieure à un. Parmi les quatre typologies de solides identifiées, seules deux, correspondant aux solides thermiquement épais, seront donc mises en avant ici. Une variation du nombre de Biot impliquerait en effet la modification de variables telles que l'épaisseur, le flux de chaleur incident ou encore la conductivité. Ces trois variables sont cependant prises en considération dans le calcul des temps caractéristiques et les résultats obtenus ne seraient donc pas comparables à ceux des cas à nombre de Biot grand devant un.

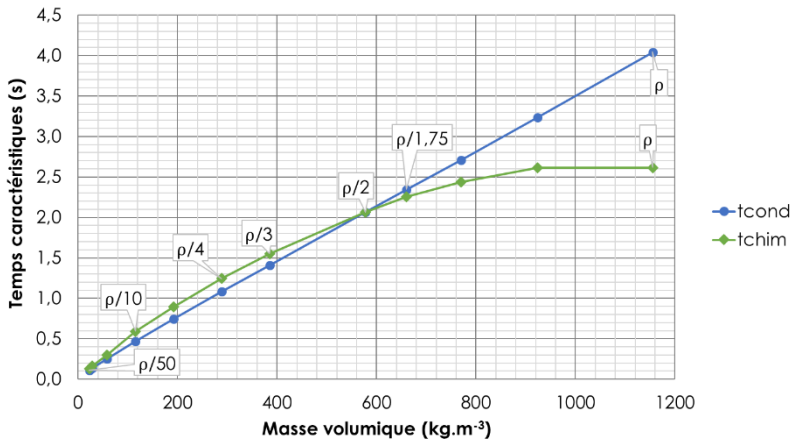


Figure 61 : Evolution des temps caractéristiques de la conduction et de la pyrolyse en fonction de la densité

De manière générale, les paramètres globaux permettent une première approche des phénomènes mais également de situer l'ensemble des cas dans le contexte de l'étude de variation de la masse volumique. Cette étude a notamment mené à une caractérisation des typologies de solides en lien avec la description faite au Chapitre I. Les phénomènes mis en jeu lors de la combustion des solides sont la plupart du temps instationnaires, locaux, non linéaires et fortement couplés. Même si l'interprétation de variables globales permet d'appréhender le problème dans son ensemble et donne des pistes intéressantes pour l'ingénieur, l'étude locale des phénomènes est indispensable afin de comprendre le comportement de tous les processus physico-chimiques mis en jeu lors de la combustion des solides. Les variables locales étudiées seront à la fois inhérentes à la phase condensée et à la phase gazeuse. Les températures et les taux de réactions sont des exemples de valeurs locales prépondérantes qui se devront d'être captées et interprétées.

III.2.5 - Taux de dégagement de chaleur

Le graphe donné en Figure 62 illustre le taux de dégagement de chaleur au cours du temps pour le cas à masse volumique initiale. Au travers de cette courbe, le délai d'inflammation à densité initiale ($\rho = 1155\ \mathrm{kg.m^{-3}}$) est défini comme étant égal à 10,834 s (Cf. Figure 62). On observe en effet un premier décrochement de la courbe à partir de ce pas de temps qui permet de caractériser le début de l'emballement thermique caractéristique de l'inflammation. Un pic à 30 W peut être mis en évidence au moment de l'inflammation.

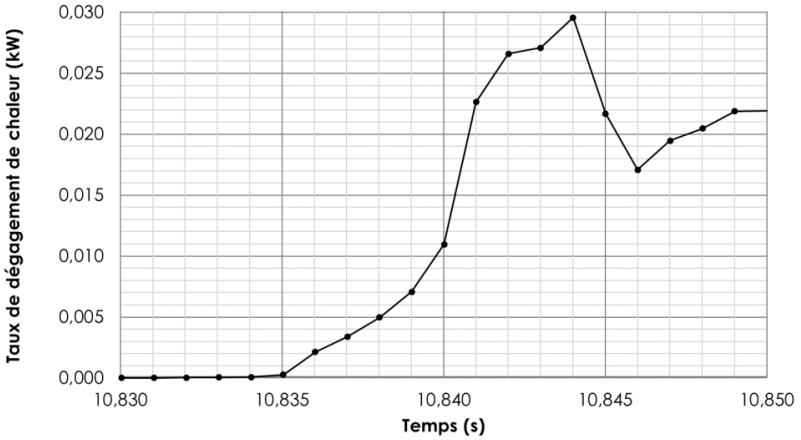


Figure 62: Taux de dégagement de chaleur en fonction du temps, ρ = 1155 kg.m-3

La courbe du taux de dégagement de chaleur (HRR) pour la condition de faible densité est donnée en Figure 63. Le délai d'inflammation pour le cas à masse volumique divisée par cinquante ($\rho = 23{,}1\ kg.m^{-3}$) est défini comme étant égal à 0,260 s. La variation brutale du HRR permet ici de caractériser l'inflammation. Le pic de ce taux atteint 22 W.

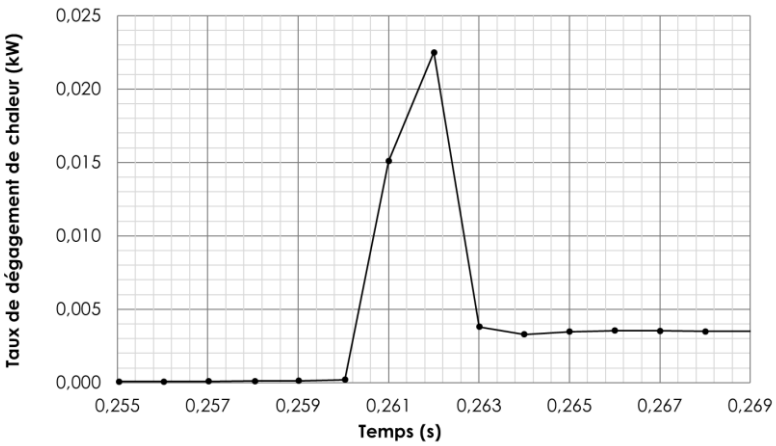


Figure 63 : Taux de dégagement de chaleur en fonction du temps, ρ/50=23,1 kg.m^{-3}

A l'instar de la description précédente, les pas de temps encadrant le délai d'inflammation sont étudiés pour représenter au mieux les phénomènes et ainsi faciliter la compréhension du lecteur.

La Figure 62 et la Figure 63 apportent une première information concernant le taux de dégagement de chaleur pour les deux cas de références étudiés. Huit watts séparent les deux pics de HRR et il est possible de remarquer que les ces pics sont atteints à des vitesses différentes. En effet, deux pas de temps séparent l'inflammation du pic pour le cas à masse volumique faible contre neuf pour le cas à masse volumique élevée. Ce dégagement étant directement lié au taux de réaction dans la phase gazeuse, il est possible de conclure quant à une réaction plus rapide à faible densité.

III.3 - Etude locale : évolution spatiale et temporelle des variables

L'étude de l'évolution de paramètres globaux pour les deux densités représentatives montre le besoin de s'intéresser également à l'évolution de valeurs locales. Cette partie expose ces dernières, pour la phase condensée et la phase gazeuse. Cette analyse plus fine amène à la caractérisation de deux régimes d'inflammation.

III.3.1 - Phase condensée

Il est important de tenir compte des pas de temps considérés en relation avec la phase condensée. En effet, l'inflammation ayant lieu en phase gazeuse, les répercussions de cette dernière sur le solide peuvent être retardées de quelques millisecondes. Les pas de temps présentés pour la phase condensée sont donc ceux correspondants à un changement au niveau de celle-ci, changements parfois impactés de quelques pas de temps après le délai d'inflammation mesuré via le HRR.

a) Densité de flux de chaleur à la surface

Nous avons pu observer précédemment que la composante convective du flux de chaleur a un impact majeur en surface d'échantillon lors de l'inflammation. Nous détaillons celle-ci dans un

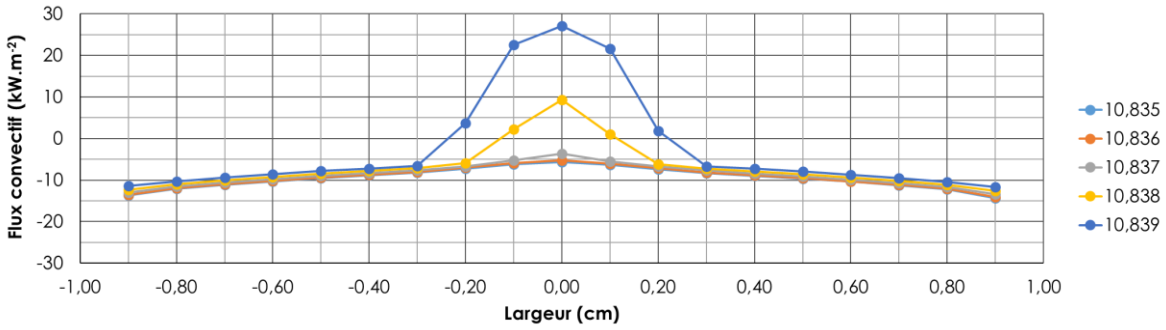
premier temps, puis nous nous attardons sur les flux radiatifs et enfin sur les flux net et incident résultants.

Les Figure 64, Figure 65, Figure 66 et Figure 67 présentent respectivement les densités de flux de chaleur convective, radiative, incidente et nette, locales en surface du solide. Elles sont présentées ci-dessous et seront analysées de manière croisée.

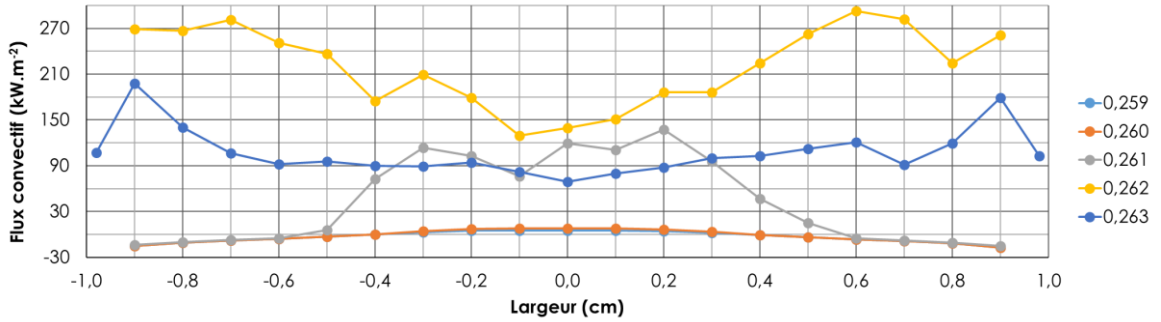
La Figure 64 ci-après permet d'étudier la répartition locale de la densité de flux de chaleur convective en surface du solide et ce, pour les deux masses volumiques considérées depuis le début de l'étude.

Le flux convectif a une valeur moyenne de -10 kW.m^{-2} pré-inflammation pour le cas à densité initiale. Les pertes convectives sont également plus importantes aux bords du solide qu'au centre d'un flux d'environ -15 kW.m^{-2} à -5 kW.m^{-2}. Cette valeur négative suggère une température de surface supérieure à celle des gaz. De l'énergie est donc cédée au milieu extérieur et les gaz ont un effet de refroidissement en surface. L'inflammation de la phase gazeuse engendre une augmentation de la température dans les gaz qui vient échauffer le solide, comme cela est suggéré pour les pas de temps post-inflammation. Cette augmentation est très localisée, impliquant une zone réactionnelle très locale dans la phase gazeuse et se trouvant sur l'axe central de l'échantillon (et du domaine).

Cette tendance est confirmée par l'évolution du flux net qui est similaire à celle du flux convectif. Le flux radiatif dépend du flux incident (flux prescrit et flux de flamme) et de la part re-rayonnée par la surface du solide. Ce flux est relativement constant sur toute la surface de l'échantillon. On constate une part du flux re-rayonné d'environ 20 % du flux incident. Le flux radiatif augmente également au centre de l'échantillon après l'inflammation en raison de l'apport d'énergie du processus d'inflammation qui reste très faibles pour les fortes densités.

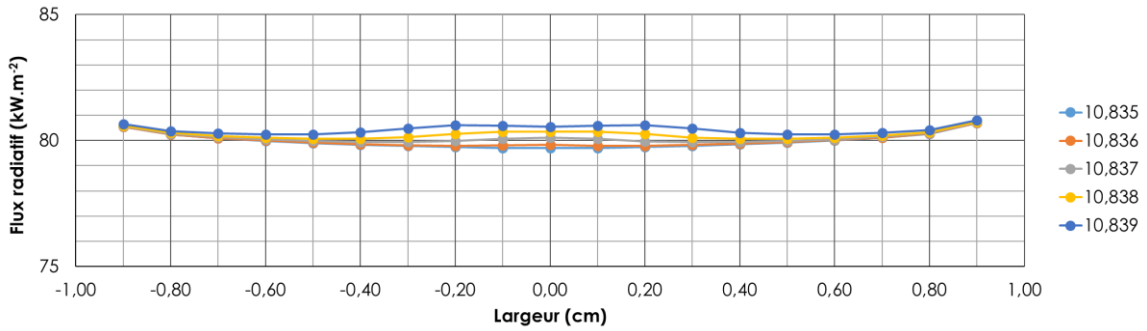


ρ = 1155 kg.m^{-3}

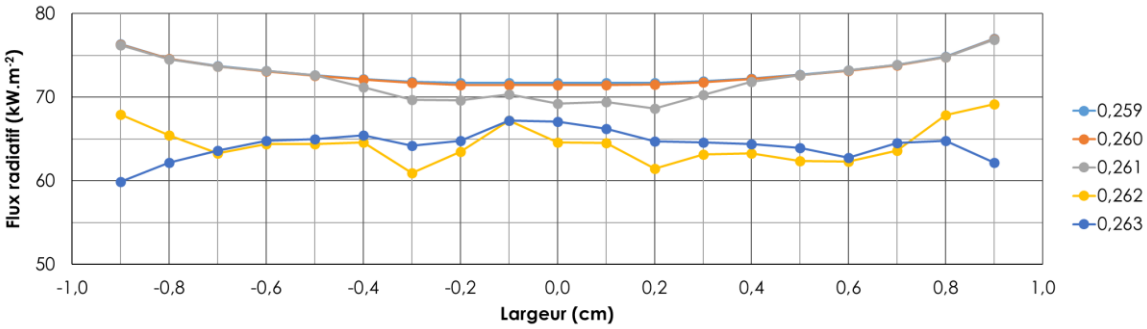


ρ = 23,1 kg.m^{-3}

Figure 64 : Répartition du flux de chaleur convectif en surface du solide aux instants de l'inflammation, pour les deux masses volumiques considérées

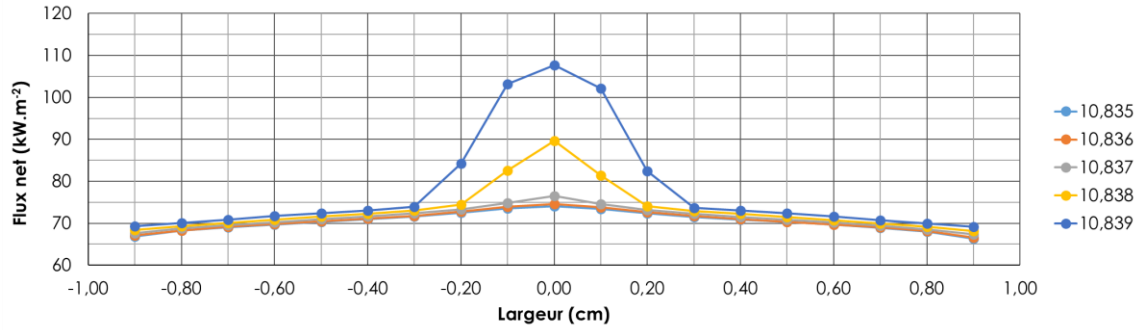


ρ = 1155 kg.m-3

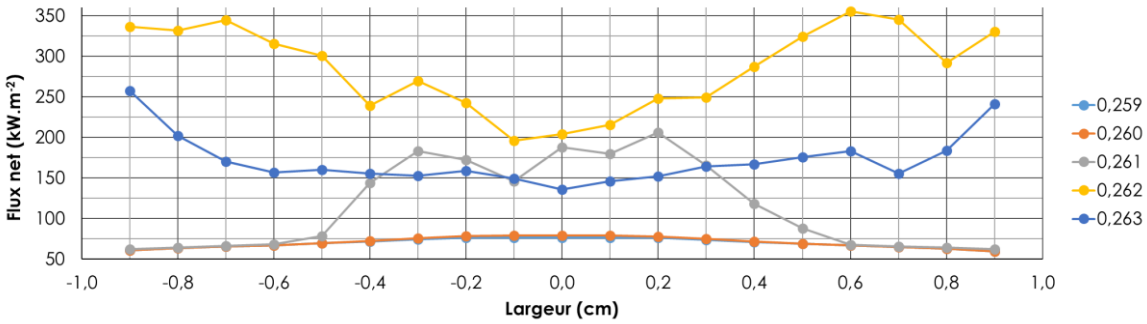


ρ = 23,1 kg.m-3

Figure 65 : Répartition du flux de chaleur radiatif en surface de solide aux instants de l'inflammation, pour les deux masses volumiques considérées



ρ = 1155 kg.m-3



ρ = 23,1 kg.m-3

Figure 66 : Répartition du flux de chaleur incident en surface de solide aux instants de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées

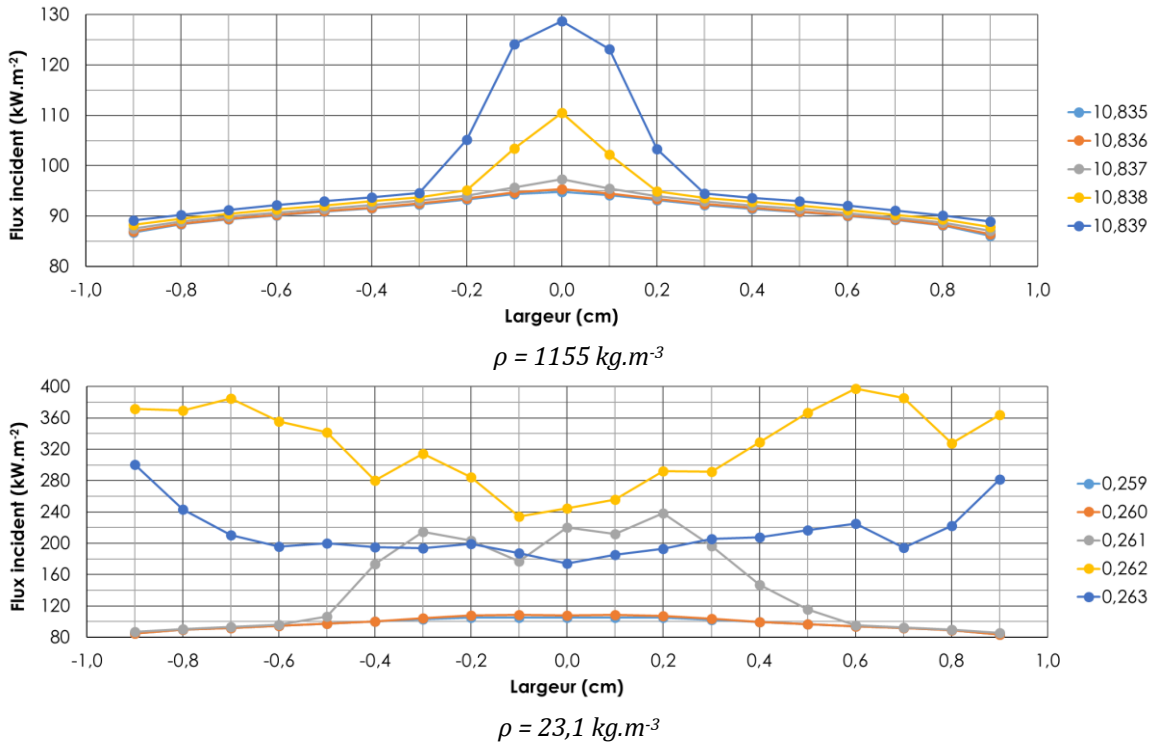


Figure 67 : Répartition du flux de chaleur net en surface de solide aux instants de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées

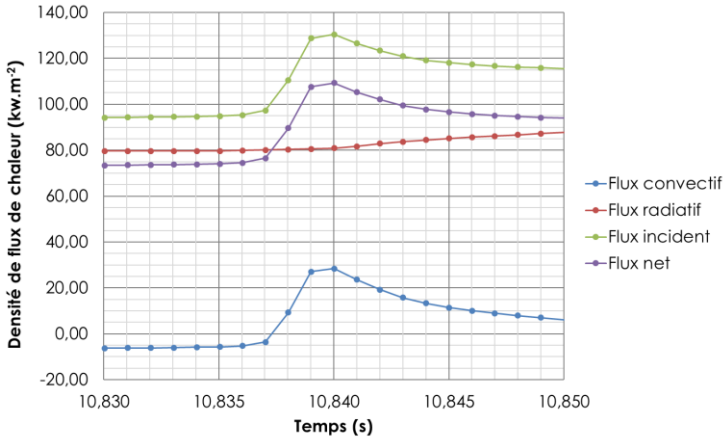
Comparativement, dans le cas à densité faible, le solide est moins refroidi par la phase gazeuse. Des valeurs positives de flux de chaleur convectif sont même mesurées au centre de l'échantillon, impliquant un échauffement du solide par la phase gazeuse, le milieu ayant déjà commencé à réagir même pour les pas de temps avant celui retenu comme étant le t_{ig}. En effet, on observe un gain d'environ 30 kW.m^{-2} entre le centre de l'échantillon et les bords de celui-ci. Cette augmentation d'énergie vient certainement de l'initiation de la réaction en phase gazeuse et non du transfert de chaleur par rayonnement dû au gaz de pyrolyse (CO_2, H_20) car on n'observe pas le même phénomène pour les densités élevées. Pour les densités faibles, l'inflammation se produit extrêmement rapidement, autour de 0,26 s, comparé aux densités élevées pour lesquelles l'inflammation a lieu autour d'une dizaine de secondes. Lors de l'inflammation, l'augmentation du flux convectif est beaucoup moins localisée que sur le cas précédent et s'en suit une augmentation globale du flux sur l'ensemble de la surface à t = 0,262 s. Au pas de temps suivant, une baisse du flux est observée mais ce dernier garde des valeurs bien supérieures à celles mesurées pour le cas à forte masse volumique. Les phénomènes se produisant en phase gazeuse ont alors plus d'impact sur la phase condensée.

Cette première étude de la répartition spatiale des flux à la surface du solide met en évidence deux régimes d'inflammation en fonction de la densité du matériau. En effet, pour les densités élevées, l'inflammation se produit très localement au centre de l'échantillon à des temps d'inflammation relativement longs (environ 10 s). On peut penser à ce stade que le phénomène d'inflammation serait gouverné par les processus de mélange, de transfert de chaleur et de réaction de la phase gazeuse et non par les processus inhérents à la phase condensée, même si pour des densités élevées, les temps caractéristiques du transfert de chaleur au sein de la phase condensée sont longs et justifient en partie les délais d'inflammation relativement grands. En revanche, pour les densités faibles, l'inflammation est très rapide (environ 0,2 s). Ce délai est en partie dû à la rapidité de la diffusion de la chaleur au sein du solide, ce qui permet une libération quasi-instantanée des

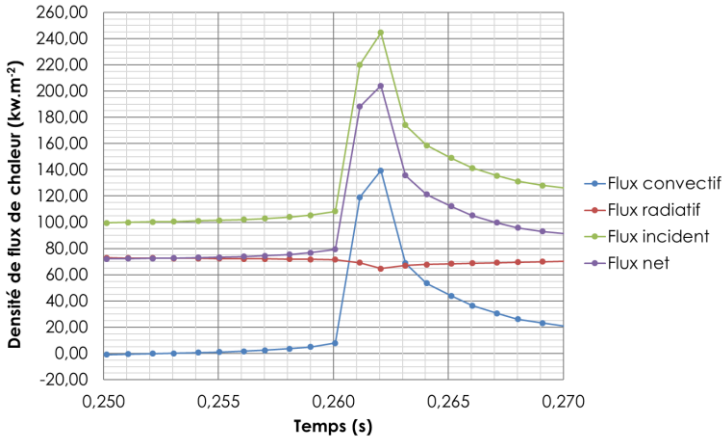
gaz de pyrolyse. On constate une inflammation en volume dans ce cas qui peut laisser supposer que le paramètre limitant serait plutôt la phase condensée. Cette conclusion est bien évidemment à nuancer au regard des délais d'inflammation extrêmement faibles.

Pour finir l'étude de l'éclairement énergétique du solide et conclure quant à l'apport de la part convective lors de l'inflammation, la Figure 68 présente l'évolution des quatre flux de chaleur considérés par FDS au centre de l'échantillon.

Pour les deux densités du solide, l'apport convectif en surface est prépondérant. En effet, le flux convectif représente respectivement 30 et 70 % du flux net en surface pour les fortes et les faibles densités. A l'inflammation, la part convective du flux net est très majoritaire. Il est à noter que l'importance du transfert convectif dans le processus d'inflammation est certainement accrue dans le cas de parois verticales. Il s'avère donc essentiel de correctement modéliser les échanges convectifs à la surface des solides, non seulement afin de capter les phénomènes d'inflammation mais également afin de décrire au mieux la cinétique de combustion du matériau solide car cette dernière dépend en partie de l'historique du processus. Les valeurs de flux incident reçues sont cependant nettement supérieures pour une faible densité. Ceci laisse à présumer des niveaux de température supérieurs dans la phase gazeuse, probablement liés la qualité du mélange et à la cinétique de réaction plus rapide.



ρ = 1155 kg.m^{-3}



ρ = 23,1 kg.m^{-3}

Figure 68 : Evolution des différents flux de chaleur en fonction du temps au centre de l'échantillon et pour les deux masses volumiques considérées

b) Température du solide

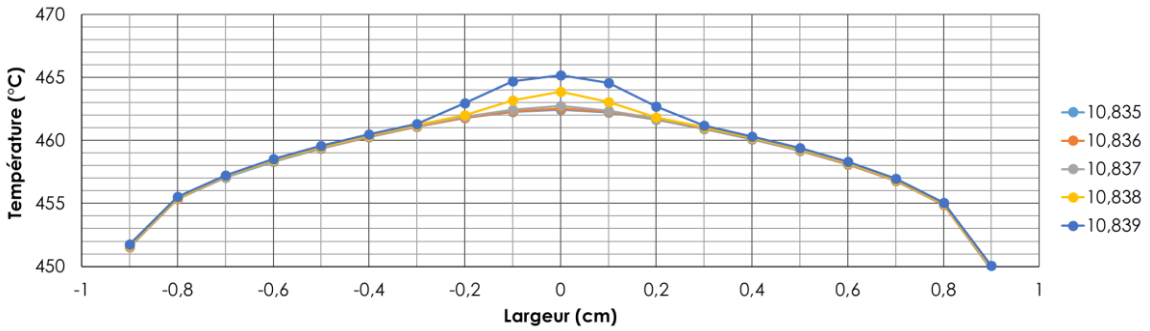
L'éclairement énergétique engendre une augmentation de température au sein du solide, tant en surface qu'en profondeur. Ce sont ces variables qui sont étudiées ici.

Température en surface de solide

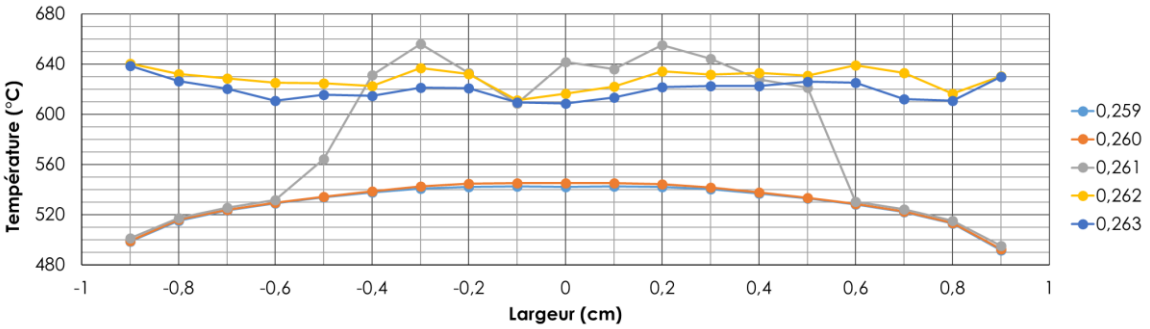
La Figure 69 définit la représentation longitudinale de l'évolution de la température en surface du matériau.

Pour $\rho = 1155\, kg.m^{-3}$, la température de surface évolue au cours du temps au centre de l'échantillon. Elle reste constante aux bords, ce qui peut être expliqué par la localisation de l'augmentation du flux de chaleur reçu. En effet, les graphes précédents ont montré une inflammation très localisée sur l'axe de symétrie vertical de l'échantillon. La variation d'énergie apportée au solide à l'inflammation (considérant que le flux externe de 100 kW.m^{-2} est quasi-stationnaire) est due principalement aux phénomènes convectifs à la surface, localisés au centre de l'échantillon pour les densités élevées. Cependant, les variations de températures sont dans ce cas extrêmement faibles (3°C entre les pas de temps avant et après inflammation). Ceci semble confirmer le caractère très local de l'inflammation minimisant ainsi l'énergie apportée au solide. Il est à noter que la température n'est pas homogène sur toute la surface du solide en raison de l'hétérogénéité du flux convectif. En effet, une variation de 35 kW.m^{-2} a pu être observé entre les bords et le centre de l'échantillon au paragraphe précédent. Si l'on s'attarde sur le flux net à la surface de l'échantillon qui inclus les pertes rayonnées, on observe une variation de 30 kW.m^{-2} pour les temps les plus éloignés (pré et post-inflammation). Entre ces deux temps, cette variation de flux représente environ 35 % et elle engendre une variation inférieure à 3 % de la température de surface. La densité de matériau influence directement son inertie thermique. Les densités élevées vont donc avoir tendance à accroître la résistance du matériau quant à l'élévation de sa température.

A ρ = 23,1 kg.m^{-3}, la température de surface est plus élevée que pour le cas à masse volumique initiale en raison d'une inertie thermique faible. Elle passe en effet de 550 °C avant l'inflammation à environ 640 °C après l'inflammation (au centre de l'échantillon) contre 462 °C et 465 °C pour l'autre masse volumique considérée. Ce constat a déjà pu être fait dans la partie relative aux valeurs globales. Pré-inflammation, peu d'évolutions sont à noter concernant l'augmentation des températures. A partir de t_3, une augmentation brutale de température est observée sur 12 mm et conduit à l'augmentation de la température sur toute la largeur du solide. L'impact de l'inflammation est donc plus brutal et moins local que pour le cas précédent. Ceci résulte notamment de la condition de flux convectif en surface. En effet, à l'inflammation, le flux net est d'environ 180 kW.m^{-2} sur 12 mm de largeur autour de l'axe de symétrie. Le flux net devient rapidement élevé sur toute la surface du solide. Ce régime d'inflammation est caractérisé par un allumage brutale et « volumique ». Ce constat peut conduire à l'hypothèse d'une inflammation plus généralisée dans la phase gazeuse pour une densité faible.



ρ = 1155 kg.m^{-3}

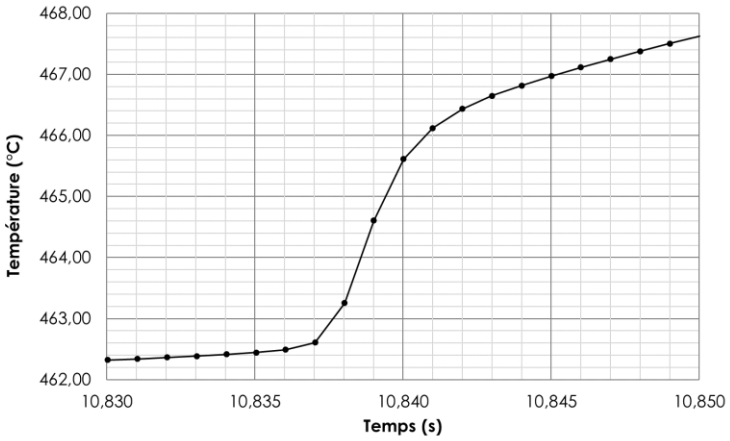


ρ = 23,1 kg.m^{-3}

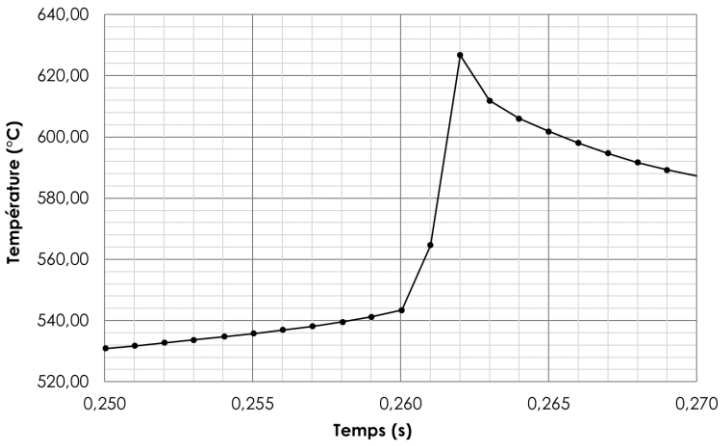
Figure 69 : Répartition de la température en surface de solide aux instants de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées

L'augmentation brutale de température en surface est illustrée par les courbes données en Figure 70 présentant l'évolution de la température au centre du solide. Une rupture de pente causée par l'augmentation de température pour la plus faible masse volumique est clairement observée. Les différences de niveaux de températures peuvent à nouveau être signalées.

La réduction du temps caractéristique de la conduction est ici prouvée par l'expérience, puisque pour un même éclairement énergétique, un solide à forte densité atteint des températures avoisinant les 460°C en 10,8 s, tandis qu'à faible masse volumique, des températures de surface proches de 540°C sont atteintes en 0,25 s.



ρ = 1155 kg.m^{-3}



ρ = 23,1 kg.m^{-3}

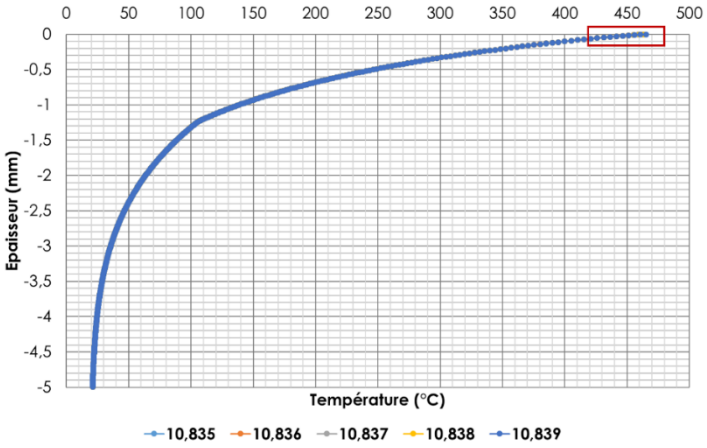
Figure 70 : Evolutions de la température en fonction du temps au centre de l'échantillon et pour les deux masses volumiques considérées

Température dans le solide

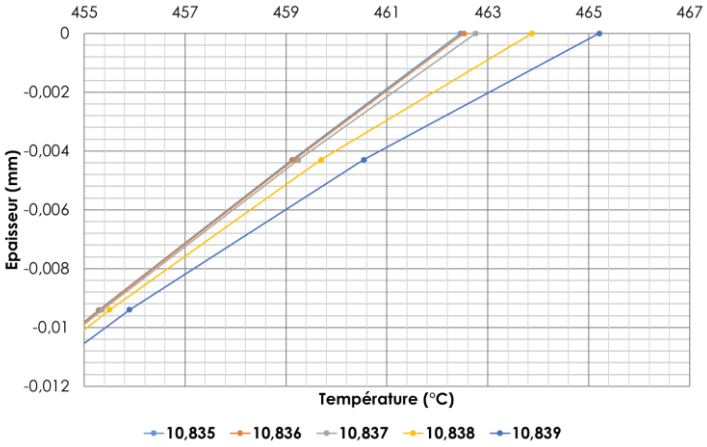
Ayant abordés les phénomènes surfaciques, il est maintenant possible de s'attarder sur les champs de température au sein même de la phase condensée. Les graphes présentés en Figure 71 permettent de visualiser l'évolution de la température interne du solide pour les pas de temps encadrants l'inflammation.

A densité initiale, une évolution de la température en fonction du temps est observable sur les premiers centièmes de millimètres. La température augmente alors au cours du temps. Cette dernière décroit dans l'épaisseur du solide et retrouve la température initiale de 20°C à partir 5,48 mm de profondeur dans le solide (d'1 cm d'épaisseur pour rappel).

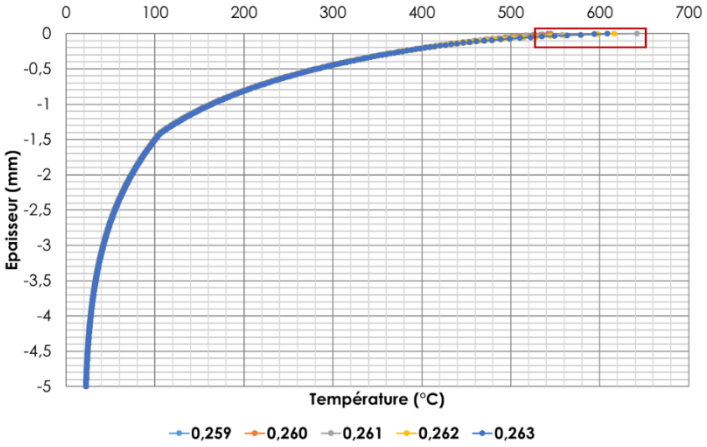
A faible masse volumique, les températures augmentent en surface jusqu'à l'inflammation, puis décroissent aux pas de temps suivants. La valeur de 20°C est retrouvée à partir d'une épaisseur de 6,04 mm pour le premier pas de temps puis à 6,07 mm au dernier. L'épaisseur affectée par le transfert de chaleur (épaisseur thermique) est quasiment identique pour les deux densités. En effet, dans les deux cas, on observe des températures de 50°C à 2,5 mm de profondeur. En considérant une épaisseur plus proche de la surface de l'échantillon, 0,5 mm, on observe des températures de 250°C pour la masse volumique initiale et de 300°C pour la densité divisée par cinquante. En zoomant sur les premières mailles sous la surface, il est possible de retrouver les deux régimes d'inflammation identifiés. Pour les densités élevées, les variations de températures sont faibles ainsi que les gradients. Les variations de gradients de température sont également faibles par rapport aux pas de temps considérés et au processus d'inflammation. En effet, ce dernier a très peu d'influence sur la distribution des gradients de température pour des densités élevées. Pour des densités faibles, les gradients de température dans le solide augmentent en fonction du temps. Cependant, à l'inflammation, les gradients de température sont cinq fois plus élevés (pour une épaisseur considérée proche de la surface) que les gradients de température avant l'inflammation. Après l'inflammation, les gradients diminuent fortement puisqu'ils ne sont plus que deux fois plus élevés que ceux relevés à l'inflammation. Pour ce régime, on peut noter le caractère « intense » (énergétiquement) et bref du processus d'inflammation. On peut en effet remarquer une variation des gradients dans un rapport d'un à cinq en seulement 4.10^{-3} s.



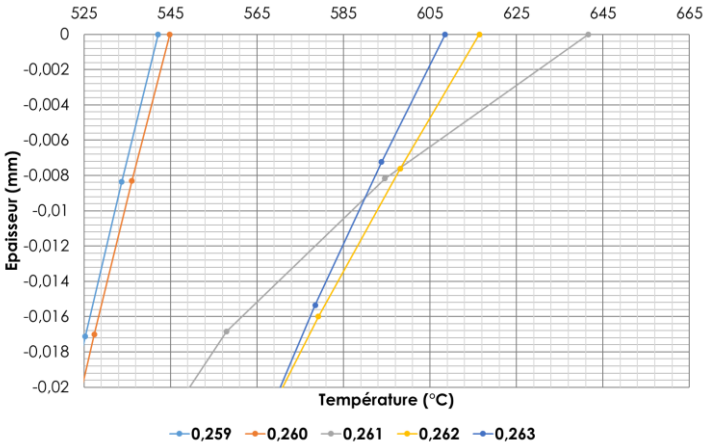
ρ = 1155 kg.m^{-3}



ρ = 1155 kg.m^{-3} (Focus)



ρ = 23,1 kg.m^{-3}



ρ = 23,1 kg.m^{-3} (Focus)

Figure 71 : Evolution de la température interne du solide et zoom sur les phénomènes surfaciques (au centre de l'échantillon)

c) Taux de réaction dans le solide

L'éclairement énergétique engendre l'augmentation de température au sein du solide, provoquant l'augmentation du taux de réaction interne. Non accessible de manière directe sous FDS, ce dernier a été calculé en post-traitement via l'équation II.2 et vérifié par le biais de diagnostics des débits massiques de pyrolyse (et le calcul de ces derniers par les équations II.5 et II.6).

Les mesures de température étant homogènes en surface du matériau, une valeur locale du taux de réaction dans la phase condensée est présentée ici. Comme cela a pu être observé, les pics locaux de température ont lieu au milieu de l'échantillon, du fait de la localisation de l'inflammation dans la phase gazeuse au centre du domaine. Le taux de réaction dans le solide est donc étudié au centre du solide.

Les courbes données en Figure 72 donnent une vision du taux de réaction au centre de l'échantillon pour les pas de temps liés à l'inflammation.

En considérant le cas à densité élevée, si le taux de réaction est adimensionné à chaque pas de temps pour étudier l'épaisseur de la zone de réaction et si l'on considère une valeur seuil de 0,5 % du taux de réaction maximum en surface, l'épaisseur du front de pyrolyse peut être mesurée. Une épaisseur de 0,19 mm de la zone réactionnelle dans le solide peut alors être définie. Pour les 5 pas de temps, cette valeur reste identique.

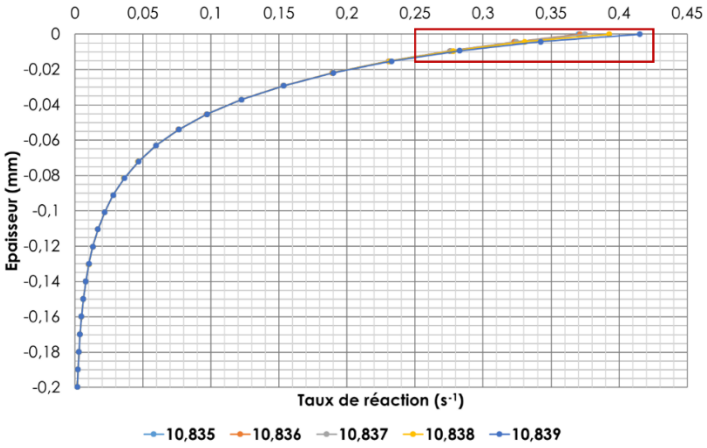
Un aperçu quantitatif précis de l'évolution du taux de réaction en fonction des pas de temps encadrant l'inflammation est donné par le biais des « zooms ». On remarque alors une légère augmentation de 0,05 s^{-1} du taux après l'inflammation. Cette hausse, est liée à la légère augmentation de la température de surface exposée précédemment. Le taux de réaction en phase condensée est alors peu impacté par l'inflammation.

Pour la faible densité, un taux de réaction en surface plus élevé que pour la masse volumique initiale est observé. L'abaissement de la masse volumique initiale du matériau implique une augmentation réactionnelle au sein du solide. Comme cela a pu être mis en avant au I.2.4, la diminution de la densité implique un temps caractéristique de la conduction inférieur à celui de la chimie. Le front de pyrolyse a alors une épaisseur caractéristique.

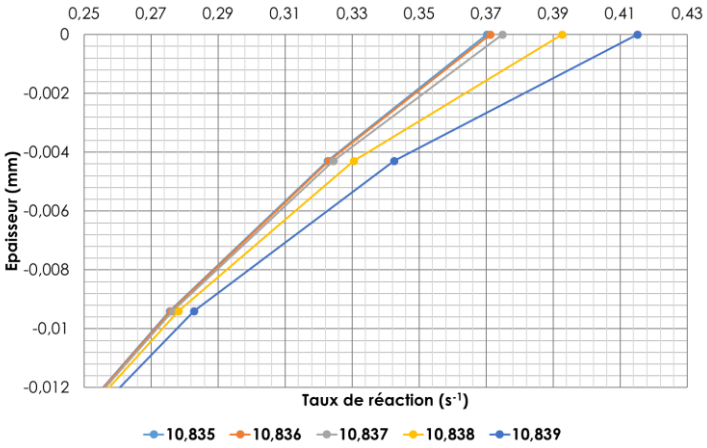
La Figure 72 montre une augmentation du taux de réaction en surface à l'inflammation, correspondant à l'augmentation brutale de température étudiée au paragraphe précédent. Néanmoins, cette augmentation correspond à une valeur atteinte en surface et est purement liée à l'impact de la phase gazeuse. Les points de mesure situés plus en profondeur dans le solide montrent une augmentation régulière du taux de réaction entre les cinq pas de temps. La réaction est donc bien dépendante des conditions de temps et d'espace.

Le taux de réaction est également adimensionné à chaque pas de temps pour étudier l'épaisseur de la zone de réaction. Si l'on considère à nouveau une valeur seuil de 0,5 % du taux de réaction maximum en surface, l'épaisseur du front de pyrolyse peut être évaluée à 0,17 mm pour les deux premiers pas de temps. Cette épaisseur diminue ensuite à 0,07 mm avec le temps, puis augmente à nouveaux jusqu'à 0,11 mm en t_5 (les valeurs maximales étant plus importantes).

Comme pour la température de la phase condensée, l'épaisseur de la zone réactionnelle varie peu en fonction de la densité et du temps (cas pré et post-inflammation). Cependant, la densité du matériau et le processus d'inflammation génèrent des gradients de taux de réaction (et de température) plus importants.



$\rho = 1155\ kg.m^{-3}$



$\rho = 1155\ kg.m^{-3}$

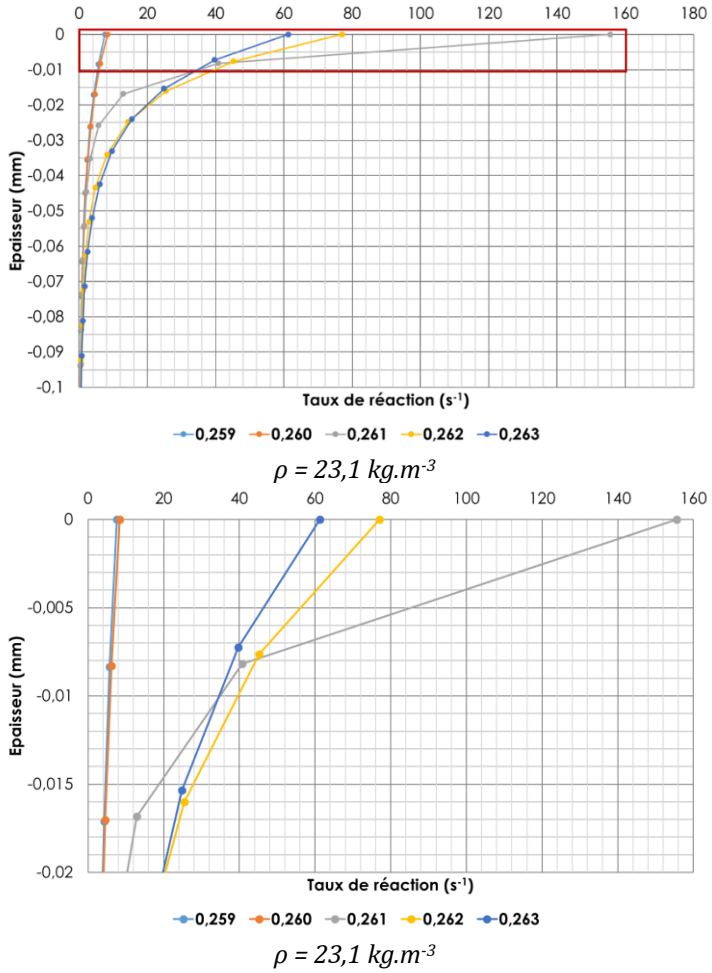


Figure 72 : Evolution du taux de réaction interne au solide et zoom sur les phénomènes surfaciques (au centre de l'échantillon) en fonction du temps

Cette réaction engendre l'apparition d'une émission gazeuse de MMA, quantifiable par l'intermédiaire du débit massique de pyrolyse, qui est étudié dans la partie suivante de ce mémoire.

d) Débit massique de pyrolyse

Les valeurs de débits mesurés en surface pour les pas de temps encadrant l'inflammation sont étudiées. Elles sont exposés en Figure 73, en fonction de la largeur de l'échantillon et pour les deux densités considérées.

A masse volumique initiale, une valeur moyenne de débit constante de $1{,}18.10^{-2}$ $kg.s^{-1}.m^{-2}$ est observée pour tous les pas de temps pré et post-inflammation. Une très légère augmentation est observée au centre de l'échantillon. Cette dernière est liée à l'augmentation du taux de réaction, comme décrit dans la partie précédente.

Pour une densité élevée, l'inflammation engendre peu de modifications sur l'augmentation de température en surface et donc sur les taux de réaction et sur les débits de pyrolyse. Inversement, à faible densité, le débit ne cesse d'augmenter au cours du temps. Cette augmentation est en lien direct avec celle du taux de réaction dans le solide.

Etant donnée la très courte durée entre le début de la simulation et le délai d'auto-allumage, le débit est en cours d'établissement et son augmentation régulière traduit ce phénomène. Ceci est

moins le cas pour la densité initiale pour laquelle le débit reste quasi constant pour les cinq pas de temps.

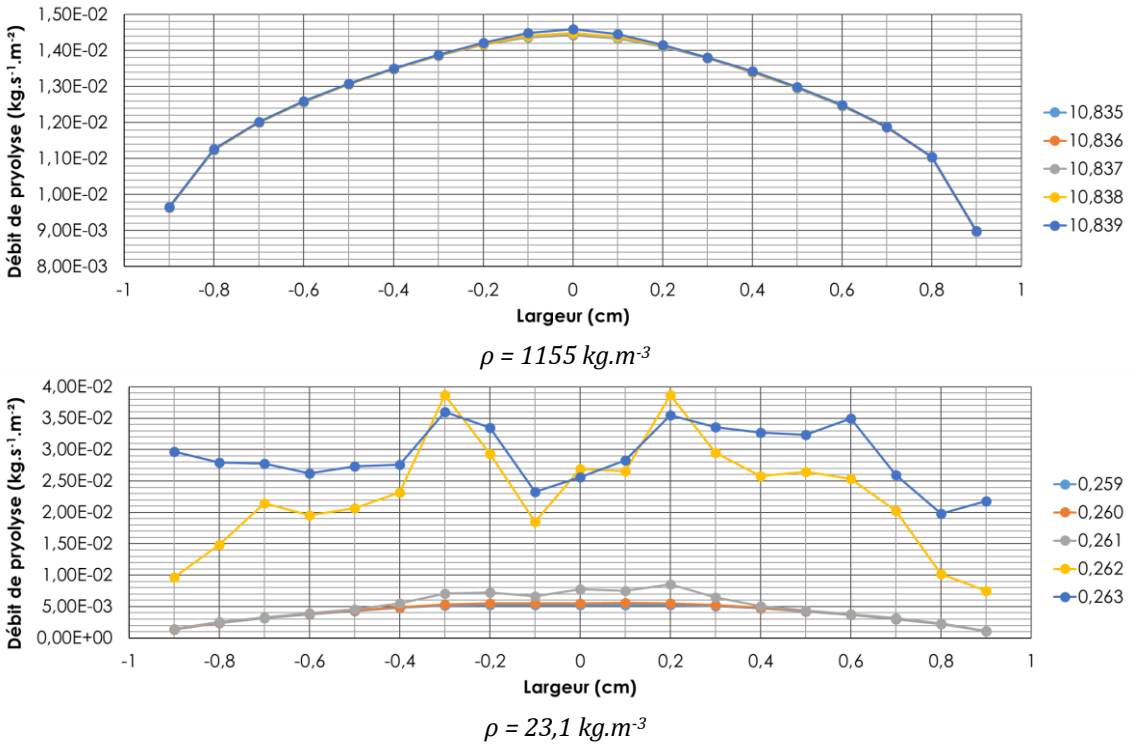


Figure 73 : Répartition du débit massique de pyrolyse en surface du solide aux instants de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées

Le débit de gaz de pyrolyse génère l'écoulement gazeux au sein duquel l'inflammation se produit. Des conditions énergétiques, chimiques et aérauliques particulières permettent l'initiation de la réaction et sont décrites au Chapitre I. La partie suivante propose de détailler ces conditions.

III.3.2 - Phase gazeuse

L'étude s'est jusqu'alors focalisée sur les grandeurs relatives à la phase condensée, elle s'attarde maintenant sur la phénoménologie en jeu au sein de la phase gazeuse. Les pas de temps sont recentrés sur le délai d'inflammation (t = 10,834 s), préalablement déterminé par le biais du taux de dégagement de chaleur.

Plusieurs paramètres déjà mentionnés au Chapitre I sont à prendre en considération dans l'analyse de la phénoménologie en phase gazeuse :

- Dans un premier temps, le mélange doit être dans des proportions idéales pour l'établissement de la réaction de combustion (LII-LSI). Sa composition est alors étudiée du point de vue de sa richesse et des limites d'inflammabilité.
- Les aspects thermiques jouent également un rôle important lors de l'occurrence de l'inflammation. Les températures de ce mélange sont donc exposées par la suite et corrélées aux conditions de mélange (on parle alors de températures conditionnelles).
- Les parts du mélange en combustible/comburant et sa température étant mises en avant, l'écoulement est analysé afin de coupler la notion de mélange inflammable aux aspects dynamiques engendrés par le débit de gaz au-dessus du solide. Les champs de vitesse ainsi que le nombre de Reynolds local sont exposés dans l'ordre logique du déroulement de l'inflammation.

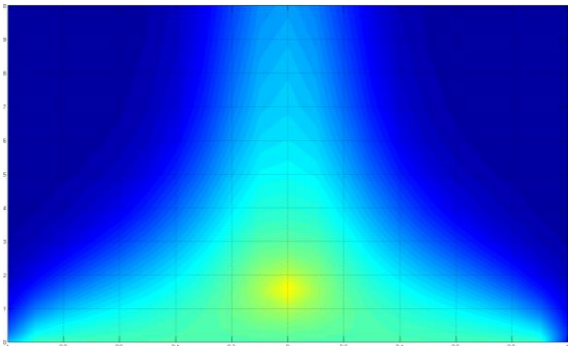
- La dissipation des espèces est également conditionnée par la nature de l'écoulement. Le taux de dissipation scalaire est ensuite exposé, il permet l'obtention du nombre de Damköhler. Selon les descriptions faites au Chapitre I, l'atteinte d'une valeur critique du nombre de Damköhler mène à l'inflammation. Cette dernière se caractérise par l'initiation d'une réaction de combustion qu'il convient de caractériser via le taux de réaction.

a) Fractions de mélange dans l'espace physique et limites d'inflammabilité

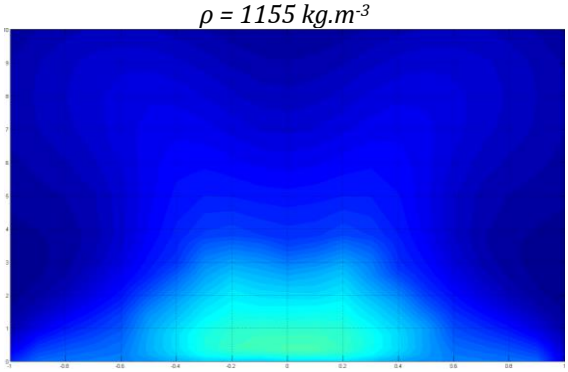
Fractions de mélange dans l'espace physique

Dans l'espace physique, la position de la fraction de mélange stœchiométrique est représentée par le trait noir sur la Figure 75. Elle permet d'obtenir une vision globale de la répartition de la fraction de mélange au-dessus du solide. Il est à noter que la valeur de la fraction de mélange stœchiométrique a été calculée à partir de la réaction de combustion (globale) en phase gazeuse.

Pour bien comprendre les grandeurs exposées, la Figure 74 permet de localiser de manière approximative l'inflammation dans l'espace physique. Cette dernière prend place au centre de l'échantillon et nettement au-dessus de celui-ci pour $\rho = 1155\ kg.m^{-3}$ tandis qu'elle est très proche de la surface et moins localisée au centre pour le cas à masse volumique divisée par cinquante.



$\rho = 1155\ kg.m^{-3}$



$\rho = 23{,}1\ kg.m^{-3}$

Figure 74 : Température de la phase gazeuse à t_3 (temps de l'inflammation), unité arbitraire dans un but de localisation de l'inflammation

En se référant à ce qui a été mentionné précédemment et au regard de la Figure 74 pour le cas à masse volumique initiale, il est possible de constater que l'inflammation a lieu dans une zone de richesse où la fraction de mélange est bien comprise entre 0,6 et 0,7. La fraction de mélange stœchiométrique est alors éloignée de la zone réactionnelle initiale, ce qui est en accord avec l'analyse menée quant aux températures conditionnelles.

En revanche, pour le cas où $\rho = 23{,}1\ kg.m^{-3}$, la fraction de mélange Z est répartie sur toute la largeur de l'échantillon, comme cela est aussi présenté en Figure 75. La fraction de mélange

stœchiométrique, représentée en noir, est très proche du solide (environ 1 mm) avant l'inflammation et la fraction de mélange maximale pour ces mêmes pas de temps est de 0,22.

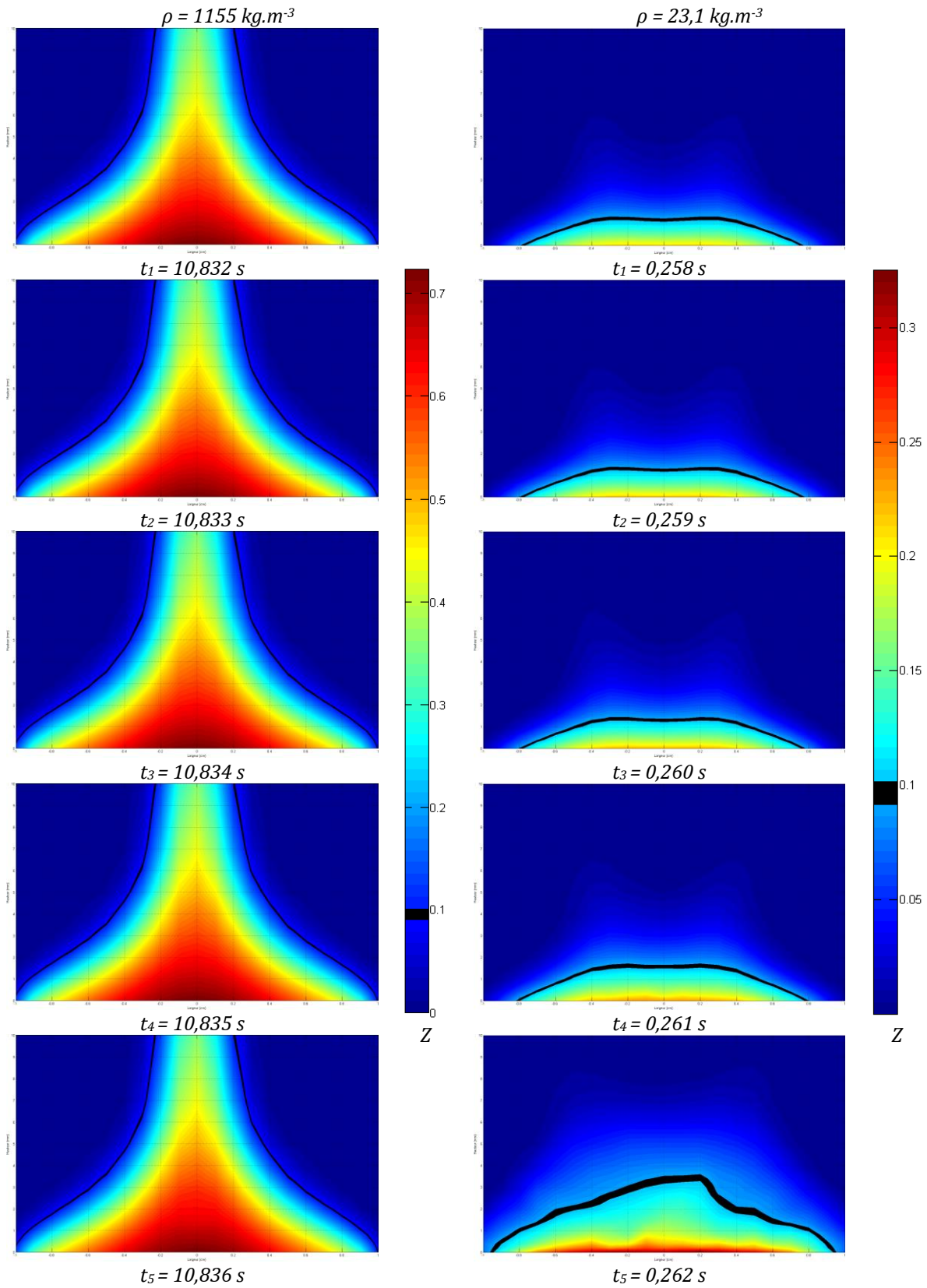


Figure 75 : Répartition de la fraction de mélange dans le domaine ; en noire, la fraction de mélange stœchiométrique ; pour les deux masses volumique considérées

L'évolution de la fraction de mélange en fonction de l'espace et du temps met une nouvelle fois en lumière deux régimes distincts en fonction de la densité.

Pour les masses volumiques élevées, les gaz de pyrolyse se répartissent sur toute la hauteur du domaine, ce qui n'est pas le cas pour les faibles densités, et ce, pour tous les pas de temps (pré-inflammation, inflammation, post-inflammation). Il semblerait donc que le mélange local ne soit pas le paramètre limitant à l'inflammation dans le cas des densités élevées. Cette hypothèse reste cependant à confirmer pour les masses volumiques faibles. On constate une zone stœchiométrique beaucoup plus proche de la surface du solide dans le cas de densités faibles et ce pour tous les pas de temps. Le profil de la fraction de mélange pour la densité initiale est caractéristique d'un écoulement laminaire ce qui n'est pas le cas pour les masses volumiques faibles. Ce point sera confirmé par l'analyse des vitesses locales et du nombre de Reynolds local.

L'évolution des gradients de fraction de mélange permet de localiser la zone de diffusion. On remarque que cette zone de diffusion est très proche de la surface du solide est quasi uniforme sur toute la surface dans le cas de densités faibles. Pour les masses volumiques élevées, la zone de diffusion est proche de la surface sur les bords de l'échantillon et s'éloigne fortement au fur et à mesure que l'on se rapproche de son centre.

L'intensité des gradients de fraction de mélange et la position de la zone de diffusion restent pratiquement inchangées après l'inflammation dans le cas des densités élevées. Cependant, pour les masses volumiques faibles, l'inflammation modifie fortement la zone de diffusion en intensifiant les gradients de fraction de mélange en proche surface du solide.

Limites d'inflammabilité

La richesse élevée du mélange amène à se questionner quant à la position de cette valeur de richesse vis-à-vis des limites d'inflammabilité du MMA dans l'air et notamment au regard de la limite supérieure (le mélange étant au-dessus de la stœchiométrie).

L'évolution de ces limites en fonction de la température a été prise en considération au début de ce chapitre et un ordre de grandeur de température à l'inflammation vient d'être déterminé par le biais de la Figure 24. A t_3 (temps d'inflammation), la température maximale de la phase gazeuse au centre de l'échantillon est d'environ 550°C. Par le biais des calculs empiriques des limites donnés au Chapitre I, les valeurs correspondantes à cette température sont :

- LII : 1,2 % vol.
- LSI : 17,3 % vol.

La représentativité des limites d'inflammabilité et de leur calcul empirique de dépendance à la température a été discutée au Chapitre I. Même si l'interprétation de ces limites est discutable au regard de leur détermination empirique par rapport à des expériences de référence, celles-ci peuvent donner des informations intéressantes quant aux deux régimes identifiés.

La fraction volumique de combustible est présentée en Figure 76 pour les deux solides considérés.

Cet exemple permet d'observer que l'inflammation a lieu au-dessus de la limite supérieure d'inflammabilité pour le cas à densité initiale confirmant ainsi que le mélange local en phase gazeuse n'est pas le paramètre limitant à l'inflammation.

Pour les densités faibles, l'inflammation à lieu dans une zone où le mélange est riche, mais contrairement aux densités élevées, l'inflammation semble se produire entre les limites d'inflammabilité définies. Compte tenu des temps faibles (inflammation à $t_3 = 0{,}26\ s$). Et de la rapidité du mélange, il semble que le mélange ne soit pas le paramètre limitant à l'inflammation.

La limite supérieure n'est jamais atteinte pour le cas à densité divisée par 50 et la limite inférieure est signalée en blanc sur la Figure 76 ci-après. Celle-ci se situe au-dessus de la fraction de mélange stœchiométrique dans l'espace physique. En t_5, la fraction de mélange stœchiométrique est cependant au-dessus de la LII. A ce pas de temps, les températures sont très élevées et les limites n'ont été calculées que pour une température de 550°C, il est donc normal de faire ce constat et il ne doit pas être interprété comme un phénomène réel.

Deux comportements très différents sont ainsi mis en avant en termes de mélange. A masse volumique élevée, l'inflammation se déroule dans une zone de richesse élevée tandis que pour le cas à densité faible, l'inflammation a lieu pour une richesse proche de la stœchiométrie. Cette différence peut expliquer l'augmentation elle aussi différente de la température en surface du solide lors de l'inflammation. En effet, pour une masse volumique faible, les conditions stœchiométriques peuvent engendrer une combustion quasi-instantanée (ce qui a pu être observé via le taux de dégagement de chaleur) et avec des niveaux de température bien plus importants au-dessus du solide.

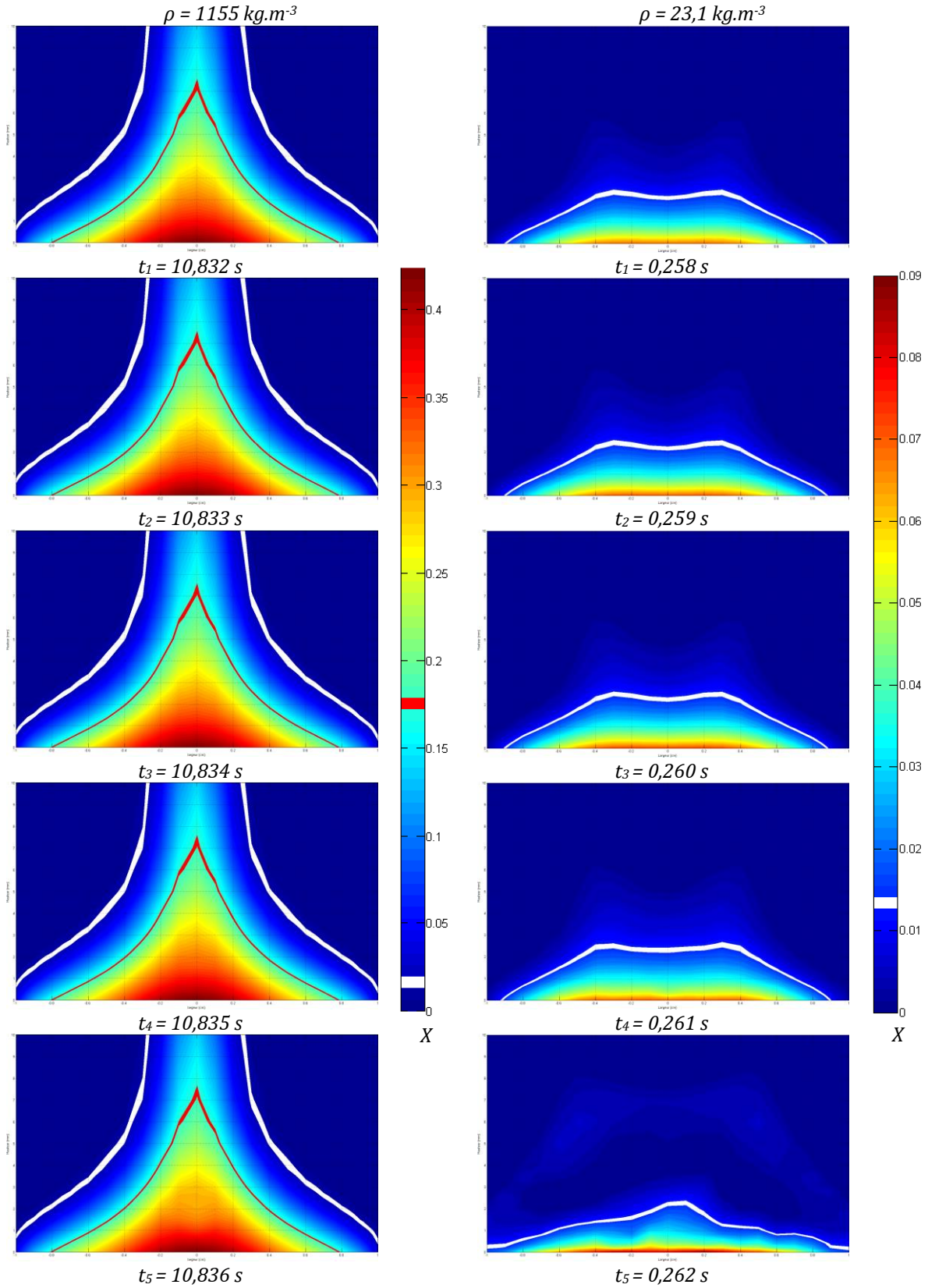


Figure 76 : Répartition de la fraction volumique dans l'espace physique au-dessus du solide, le trait blanc représentant la LII et le trait rouge la LSI pour les deux masses volumiques considérées

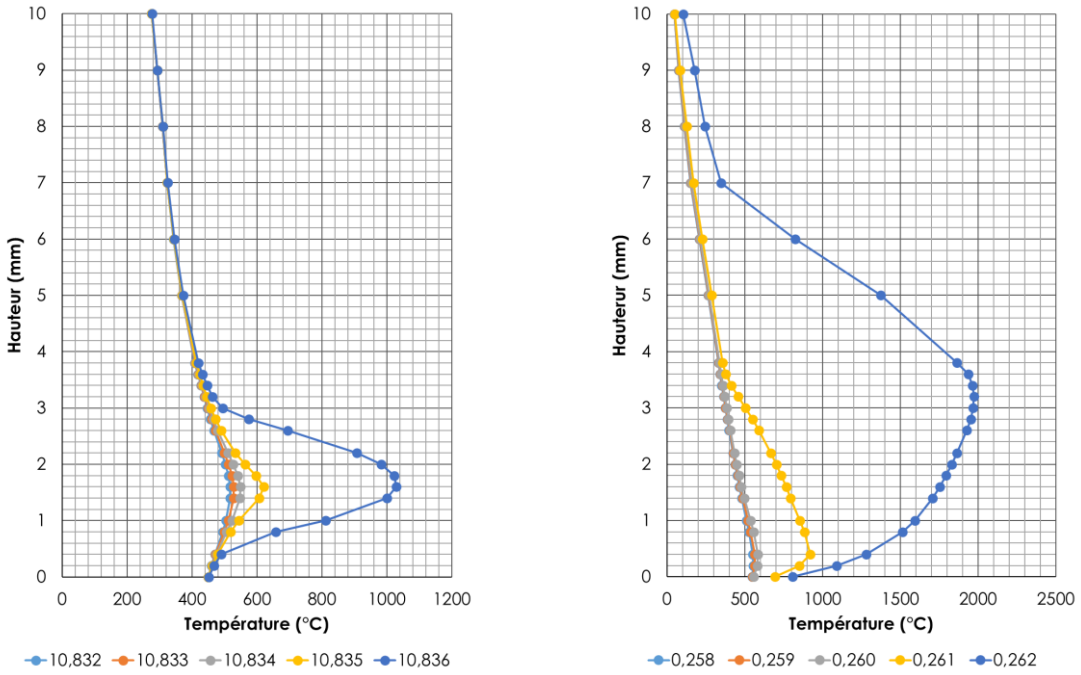
b) Températures locales

L'emballement réactionnel est initié par la température des gaz pré-inflammation, puis entraîne une augmentation de la température une fois la combustion du mélange amorcée. Cette partie propose d'étudier la température au sein de la phase gazeuse aux instants caractéristiques de l'inflammation.

A $\rho = 1155\ kg.m^{-3}$, l'augmentation de la température caractérisant l'inflammation se localise au centre du solide et à une hauteur d'environ 1,5 mm de sa surface. Cette localisation peut être affinée par l'analyse du taux de réaction en phase gazeuse, mais il est d'ores et déjà possible d'identifier cette hauteur caractéristique par le biais de la courbe donnée en Figure 77.

Par le biais cette même figure, la production de chaleur générée par la réaction peut être mise en évidence. Il est possible de distinguer nettement l'augmentation de température de la phase gazeuse, supérieure à la température de surface du solide. Dans ce cas à densité élevée, nous avons vu précédemment que le mélange (fraction de mélange) s'établit rapidement dans des proportions permettant l'inflammation. Cependant, cette dernière ne se produit pas proche de la surface du solide car l'énergie ne semble pas suffisante afin de déclencher l'allumage. Les températures de surface sont peu élevées et l'inflammation se produit à 1,5 mm au-dessus de la surface en raison de l'apport d'énergie généré par le transfert convectif en phase gazeuse. Nous verrons dans les paragraphes suivants que les vitesses sur l'axe vertical commencent à augmenter significativement dans cette zone de 1,5 mm au-dessus de la surface du solide. L'énergie manquante au processus d'inflammation est donc apportée par le transport convectif des grosses structures. Pour les densités élevées, le processus d'inflammation semble être piloté par le transfert de chaleur en phase gazeuse.

Comme cela est observé pour $\rho = 23{,}1\ kg.m^{-3}$, en t_1, le solide échauffe la phase gazeuse. La zone chaude se situe à proximité de la surface du solide et conduit à un dégagement de chaleur dans les premiers dixièmes de millimètre au-dessus du solide. Ceci est confirmé par la répartition des températures dans l'espace physique, donnée en Figure 78. En effet, dans ce cas, les températures de surface sont élevées et suffisantes afin d'initier le processus d'inflammation.



ρ = 1155 kg.m^{-3} *ρ = 23,1 kg.m^{-3}*

Figure 77 : Evolution de la température des gaz au centre du solide pour les deux masses volumiques considérées et pour les pas de temps de l'inflammation

La Figure 78 permet de formuler l'hypothèse de deux régimes distincts d'auto-inflammation, tant cette dernière est localisée et indépendante du solide pour une densité élevée et tant elle paraît initiée directement par ce dernier pour un cas à densité faible.

Post-inflammation, la zone de flamme est plus importante pour le cas à densité faible que pour le cas à masse volumique initiale. Le pas de temps final t_5 correspond au dégagement maximal de chaleur, ce qui explique l'importance de cette zone réactionnelle. La nature du mélange décrite dans la partie précédente contribue à cette réaction quasi-complète. Pour les deux masses volumiques, les temps caractéristiques de réaction en phase gazeuse sont très petits (de l'ordre de 10^{-7} s). Dans le cas des densités faibles il semble que l'inflammation ne soit ni pilotée par la réaction, ni par le mélange, ni par le transfert de chaleur en phase gazeuse. En revanche, si l'on s'attarde sur les temps caractéristiques de la conduction et de la réaction en phase condensée (Figure 61), on peut remarquer que ces derniers sont de l'ordre de 0,13 s pour chacun des deux processus. Cela représente globalement les 0,26 s correspondant au délai d'inflammation du cas à faible masse volumique. Ce régime d'inflammation semble donc être piloté par la phase condensée.

Cette analyse de la localisation de l'inflammation est complétée par l'étude du taux de réaction entre le combustible et le comburant afin de déterminer la position exacte de l'embryon de flamme à l'origine de l'auto-allumage.

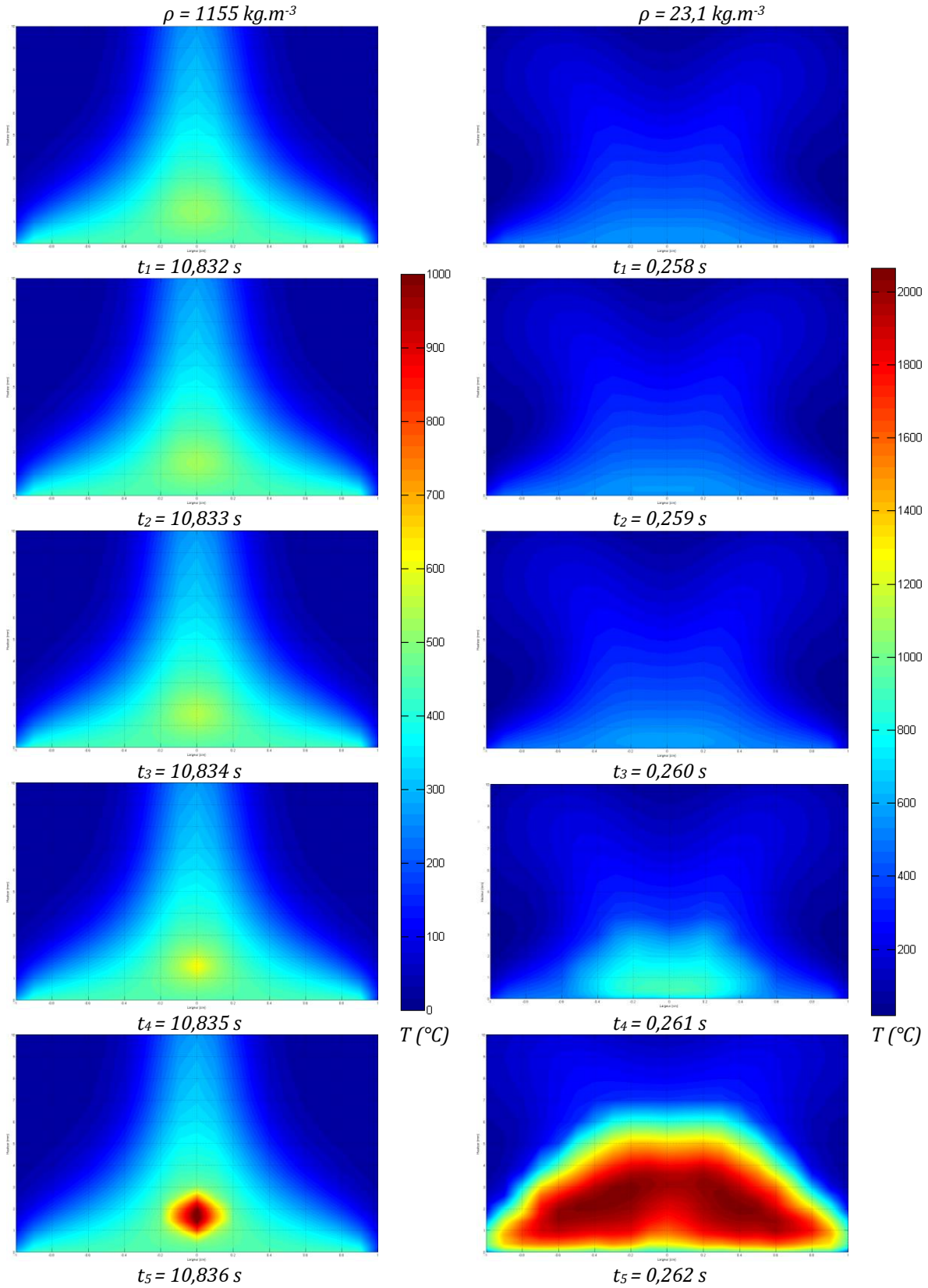


Figure 78 : Répartition de la température des gaz aux instants de l'inflammation et pour les deux masses volumiques considérées

c) Taux de réaction

Les conditions de mélange, de température et d'écoulement étant réunies, la réaction de combustion peut se voir initiée. L'établissement de la combustion qui, débute lorsque la réaction produit suffisamment de chaleur (ou de radicaux) pour s'auto-entretenir. Le taux de réaction caractérise la cinétique et il est un indicateur essentiel pour comprendre l'établissement d'une flamme pérenne en surface.

FDS ne permet pas une extraction directe du taux de réaction dans la phase gazeuse. Celui-ci a donc été obtenu via le calcul de l'équation II.16 donnée au Chapitre II.

La localisation de l'inflammation par le biais de la température va donc être affinée, puisque celle-ci résulte de l'augmentation du taux de réaction. Les résultats du post traitement effectué en vue d'obtenir le taux de réaction sont exposés en Figure 79 pour les deux masses volumiques considérées.

Dans un but de lisibilité, les valeurs maximales prises par le taux de réaction pour les deux derniers pas de temps ne sont pas détaillées, permettant ainsi une meilleure appréhension du phénomène.

Deux typologies de réactions sont observées sur la Figure 79. A densité élevée, l'inflammation est locale et prend place au-dessus du solide, au centre de sa surface. 1,5 mm séparent la surface de la phase condensée de l'inflammation. Pour une masse volumique divisée par 50, la réaction de combustion est initiée à la surface du matériau et s'étend sur plus de 50% de sa surface.

Cette analyse confirme les hypothèses de régimes faites jusqu'ici.

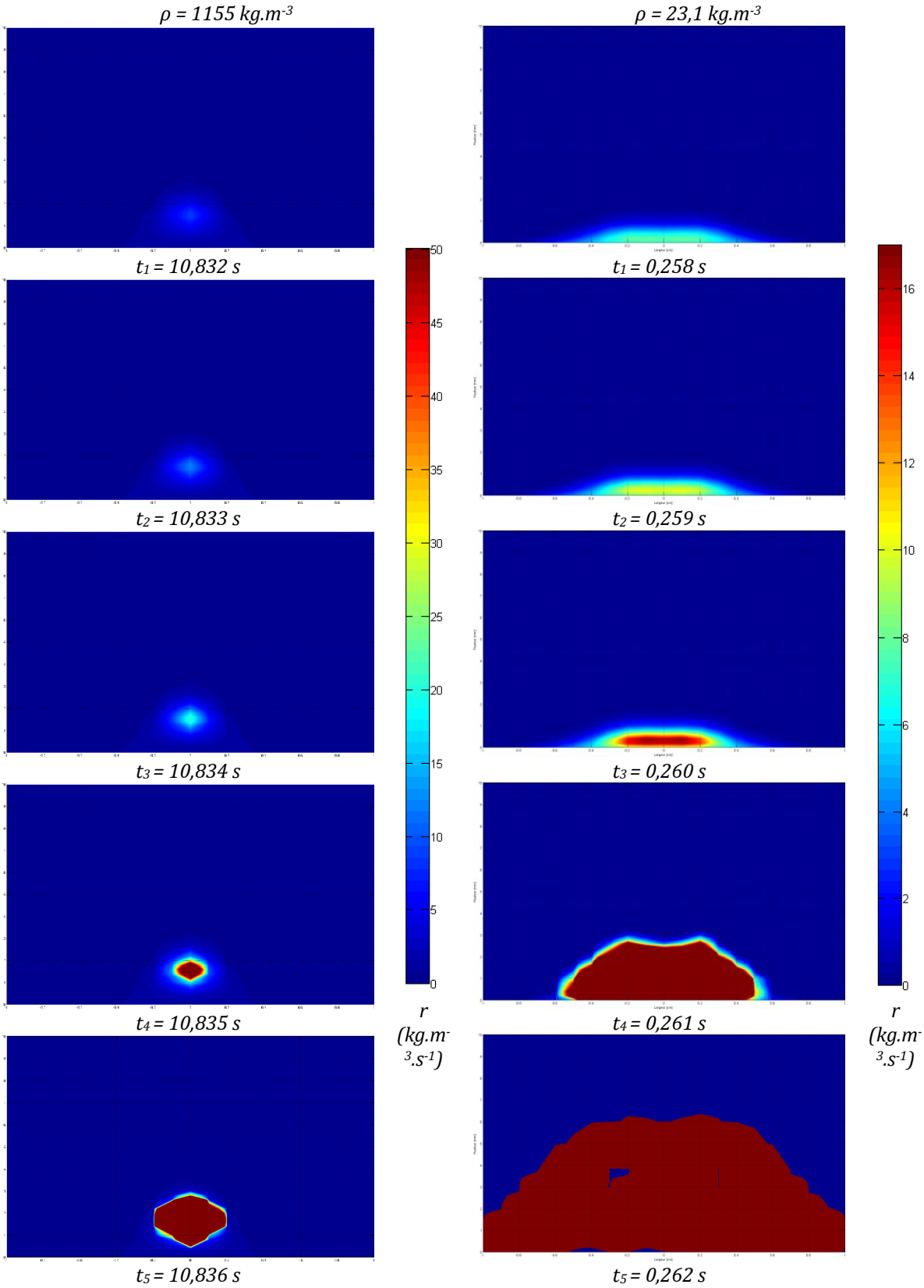


Figure 79 : Evolution du taux de réaction en phase gazeuse aux instantes de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées

Afin d'analyser conjointement la zone de mélange et de réaction, nous allons étudier les températures conditionnelles en fonction de la fraction de mélange.

d) Températures conditionnelles

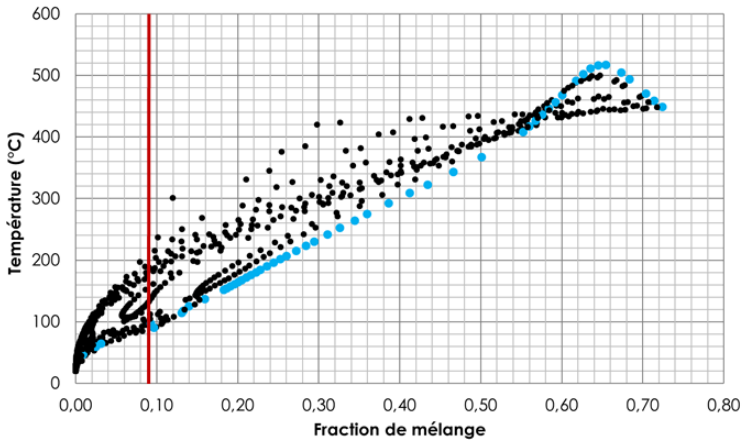
Pour bien analyser la composition du mélange aux temps caractéristiques de l'inflammation, Les courbes de températures conditionnelles sont présentées en Figure 80 et en Figure 81, représentant l'évolution de la température en fonction de la fraction de mélange pour les différents pas de temps considérés. La Figure 80 concerne le cas à masse volumique initiale tandis que la Figure 81 celui à masse volumique divisée par cinquante. Elles apportent des informations sur les zones de richesses dans l'ensemble de la zone réactionnelle gazeuse. L'ensemble des points présentés en bleu clair sur ces deux figures correspondent à la série de mesures de températures et de fractions de mélange, perpendiculaires au centre de l'échantillon. Ces points sont mis en évidence car ils correspondent à la localisation de l'inflammation.

La fraction de mélange stœchiométrique Z_{st} a été identifiée comme étant environ égale à 0,094. Cette valeur est signalée par un trait rouge sur l'ensemble des courbes données sur la Figure 80 et la Figure 81.

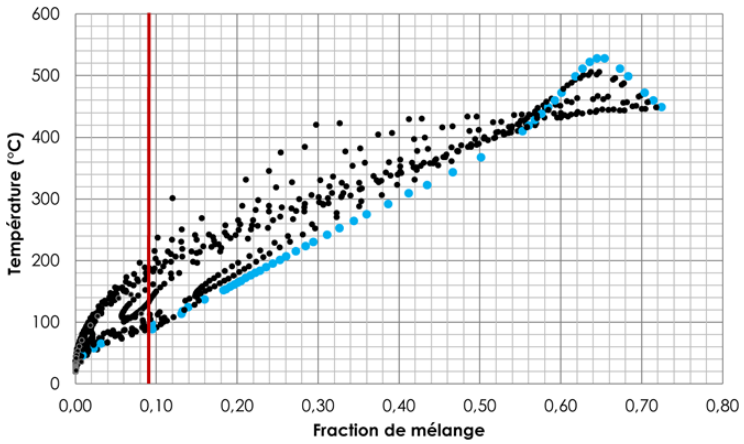
Grâce aux courbes pré-inflammation de la Figure 80, il est possible d'observer le début de l'emballement thermique de la réaction de combustion pour une fraction de mélange comprise entre 0,6 et 0,7. L'inflammation a lieu au niveau des points pour lesquels la température est maximale. Cette dernière se produit pour des valeurs de richesses supérieures (environ 0,65) à la fraction de mélange stœchiométrique, dans des zones riches en combustible. On peut également noter que la majeure partie du domaine gazeux au-dessus du solide se situe dans une zone de richesse bien supérieure à la stœchiométrie. L'inflammation est caractérisée clairement et imputée aux réactions en phase gazeuse, puisque les niveaux de températures atteignent des valeurs supérieures à 500°C (jusqu'à 550°C en t_3), alors que la température locale de surface n'excède pas 465°C.

Les graphes de températures conditionnelles permettent de confirmer que l'inflammation est plutôt pilotée par les transferts de chaleur en phase gazeuse. En effet, les températures à la stœchiométrie ne sont pas assez élevées pour permettre l'inflammation. Cette dernière se produit dans la zone où la température est la plus élevée, aux alentours de 500°C correspondant à une richesse de 0,65.

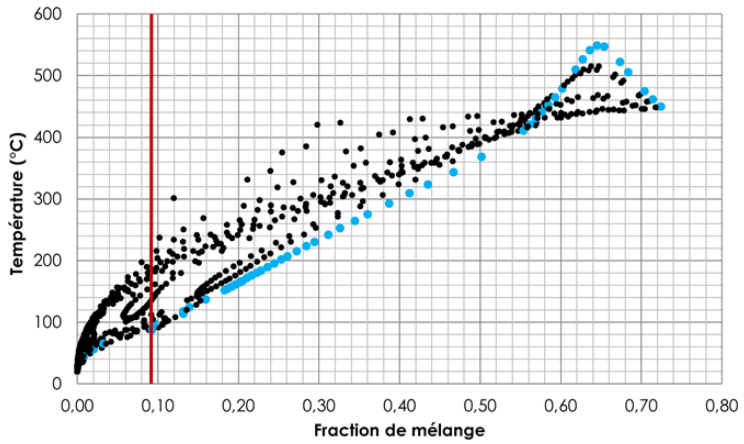
t_1 = 10,832 s



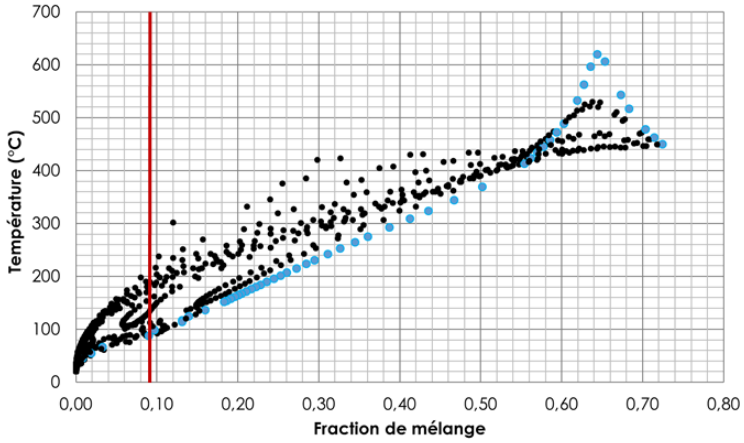
$t_2 = 10{,}833$ s



$t_3 = 10{,}834$ s



$t_4 = 10{,}835$ s



$t_5 = 10{,}836$ s

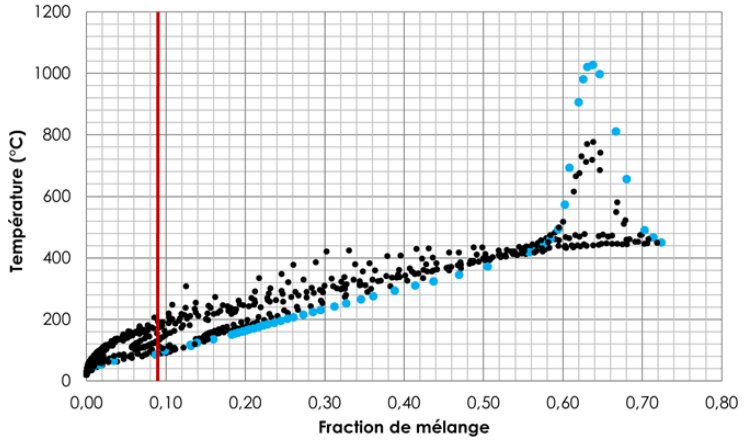


Figure 80 : Températures conditionnelles aux pas de temps encadrants l'inflammation, pour $\rho = 1155$ kg.m^{-3}

Par le biais des graphes présentés en Figure 81, il est possible d'analyser la composition du mélange aux instants caractéristiques de l'inflammation pour le cas dont la densité du solide est divisée par 50. Les graphes pour les trois premiers pas de temps montrent la pauvreté en combustible du mélange. En effet, la majorité des points du domaine se situent en dessous de la fraction de mélange stœchiométrique Z_{st} représentée par la ligne rouge. A ces instants, le débit de pyrolyse est faible et globalement la phase gazeuse est en excès d'air.

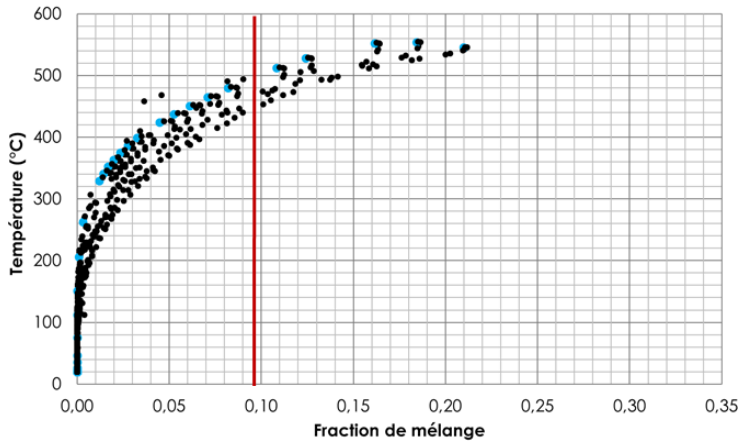
Par ailleurs, les températures maximales du mélange avant l'inflammation sont comprises entre 500 et 550°C. Ces valeurs sont similaires à celles identifiées à masse volumique initiale. Etant donné qu'aucun paramètre n'est modifié dans la phase gazeuse, il est logique de retrouver ces valeurs maximales pré-inflammation, qui au-delà de ce constat, permettent de définir une gamme de températures d'auto-inflammation du mélange.

L'initiation de la réaction de combustion provoque l'emballement thermique illustré par la figure en t_4 pour arriver aux niveaux maximaux température donnés en t_5. On remarque alors que la température maximale est atteinte à la fraction de mélange stœchiométrique Z_{st}. Les conditions de mélange étant idéales, il est alors normal d'observer des températures élevées à Z_{st} et supérieures à celle mesurées dans le cas précédent (où le mélange est trop riche). Ce type de graphique et la forme particulière de la répartition des résultats sont couramment utilisés pour illustrer l'évolution de la fraction de la température en fonction de la fraction de mélange en combustion.

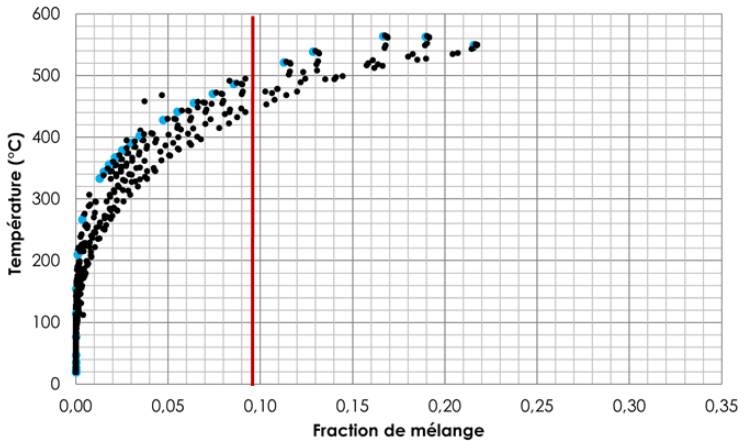
Dans ce cas, l'inflammation a lieu dans plusieurs gammes de richesses de 0,03 à 0,24. Elle se déroule donc simultanément dans des zones pauvres, riches et à la stœchiométrie. On observe une gamme de températures relativement large pour une même fraction de mélange (les points sont très éclatés), ce qui est caractéristique d'une zone de réaction « désordonnée ».

Au temps t_5, la combustion est établie et les températures sont proches de la zone d'équilibre, caractéristique d'une chimie infiniment rapide.

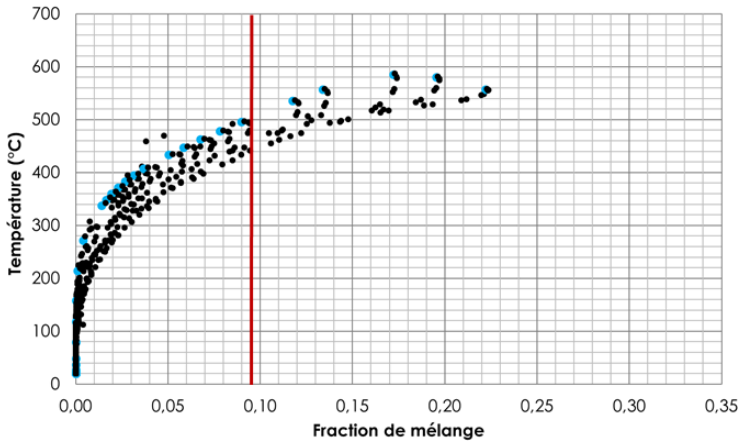
$t_1 = 0{,}258\ s$



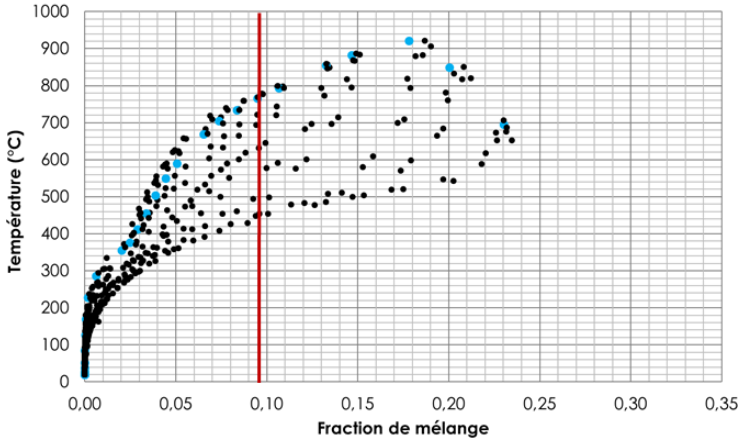
$t_2 = 0{,}259$ s



$t_3 = 0{,}260$ s



$t_4 = 0{,}261$ s



$t_5 = 0{,}262$ s

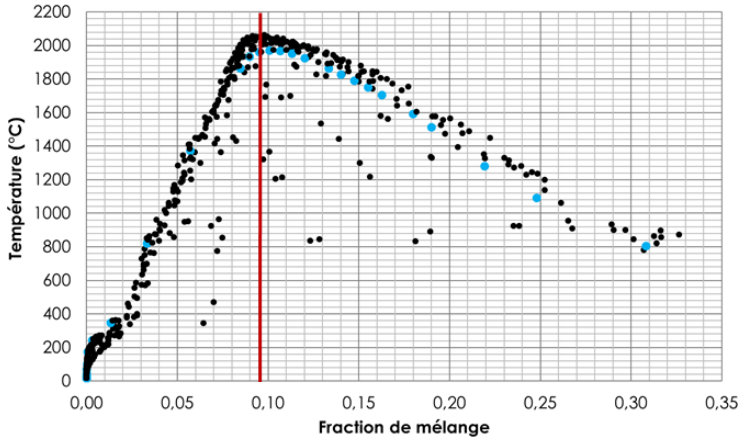


Figure 81 : Températures conditionnelles aux pas de temps encadrants l'inflammation, pour $\rho = 23{,}1$ kg.m^{-3}

e) Vitesses et nombre de Reynolds local

Vitesse verticale

Comme cela est souligné au sein du premier Chapitre, la vitesse de l'écoulement joue un rôle notable sur l'occurrence de la réaction. En effet, des niveaux de vitesse trop élevés ne permettent pas l'initiation de la réaction et donc l'établissement de la flamme.

L'écoulement des gaz issus d'un solide horizontal dans l'air se fait de manière verticale et est guidé par les forces de flottabilité. Nous analysons donc dans un premier temps la composante verticale du vecteur vitesse de l'écoulement afin de déterminer des valeurs de vitesses d'écoulement.

La Figure 82 permet d'observer les valeurs de la composante verticale de la vitesse au-dessus de l'échantillon pour les deux masses volumiques considérées. De manière générale, des niveaux de vitesses peu élevés sont observés avant l'inflammation, avec des valeurs maximales de l'ordre de 0,2 $m.s^{-1}$. En surface du solide, les vitesses sont très faibles et les gaz sont ensuite accélérés en partie haute. A hauteur de la zone d'inflammation pour la densité initiale (1,4 mm), la vitesse verticale moyenne sur la largeur de l'échantillon est de $2{,}5.10^{-2}$ $m.s^{-1}$, comme cela est illustré par la Figure 83. Ces faibles vitesses sont notamment liées aux niveaux de débits de pyrolyse relevés pour le cas à densité élevée.

Les gaz sont accélérés après l'inflammation, comme cela est visible en t_5 sur la Figure 82, la Figure 83 et la Figure 84. L'augmentation de la vitesse est liée à l'expansion thermique des gaz. On note à l'inflammation, et plus visiblement à t_5, que les gaz commencent à être accélérés au centre de l'échantillon à une hauteur de 1,4 mm au-dessus de la surface du solide. Cette hauteur correspond à l'endroit où l'inflammation est initiée. Dans ce cas, l'augmentation de vitesse augmente le transfert de chaleur par convection et permet le déclenchement de l'allumage car l'énergie critique d'inflammation est atteinte.

Dans le cas à densité faible, l'initiation de la combustion engendre également l'expansion thermique des gaz qui produit une augmentation de la vitesse de ces derniers, observable pour les pas de temps t_4 et t_5. Les vitesses maximales relevées post-inflammation sont alors de 2 $m.s^{-1}$. Les niveaux de températures atteints par la combustion dans ce cas mènent à des valeurs de vitesses plus importantes. Les courbes données en Figure 84 témoignent de cette augmentation importante de la vitesse à 1,4 mm au-dessus de la phase condensée. Les vitesses générées lors du processus d'inflammation caractérisent une zone d'allumage plus turbulente que dans le cas des densités faibles.

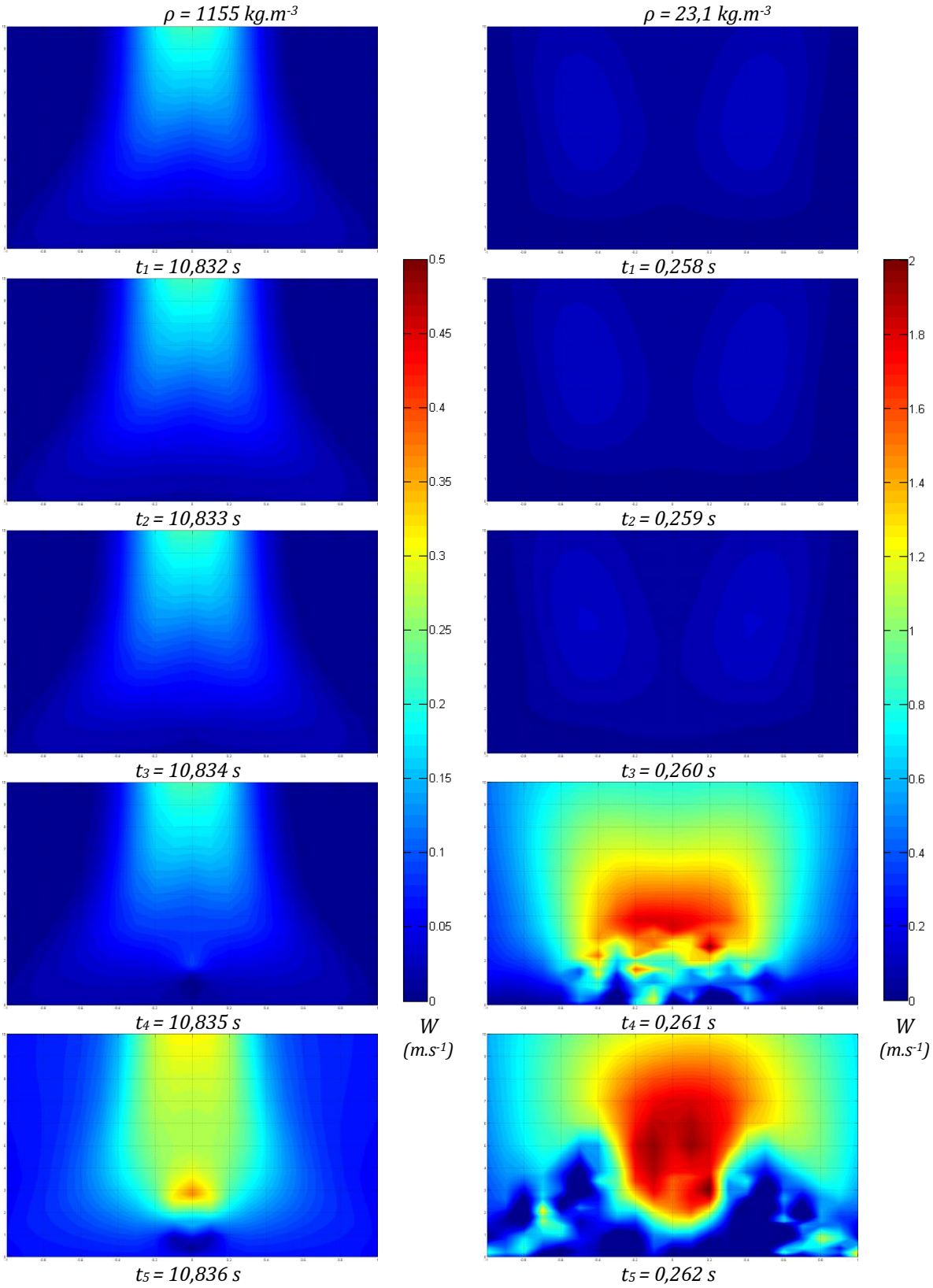


Figure 82 : Champs de vitesse verticale aux instants de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées

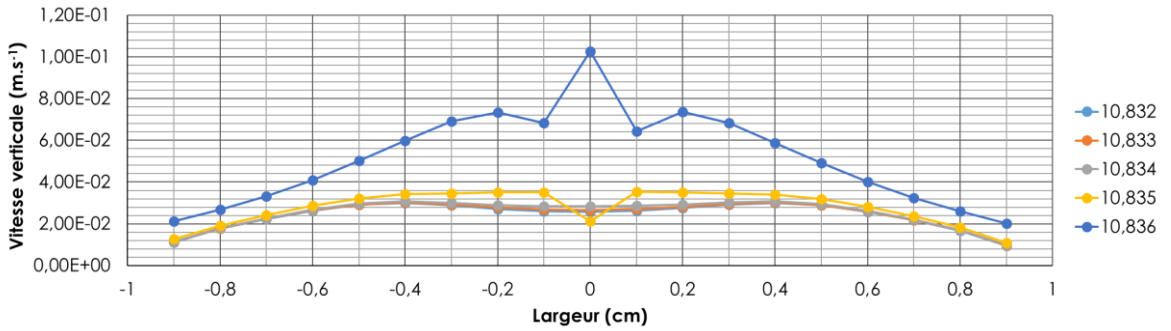
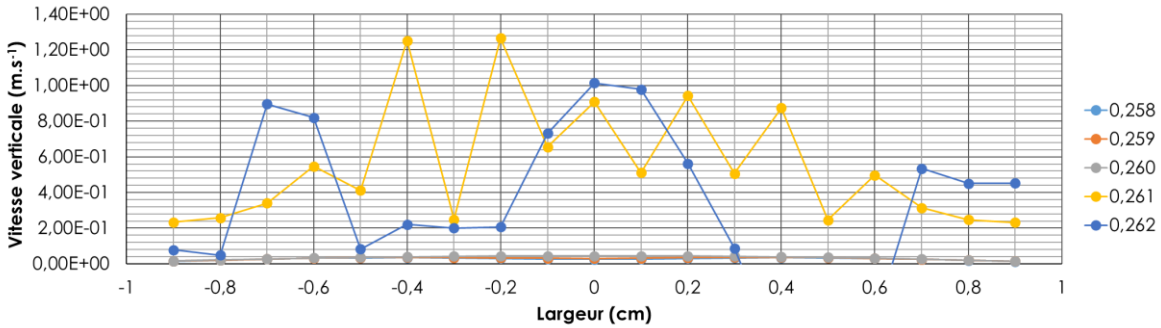
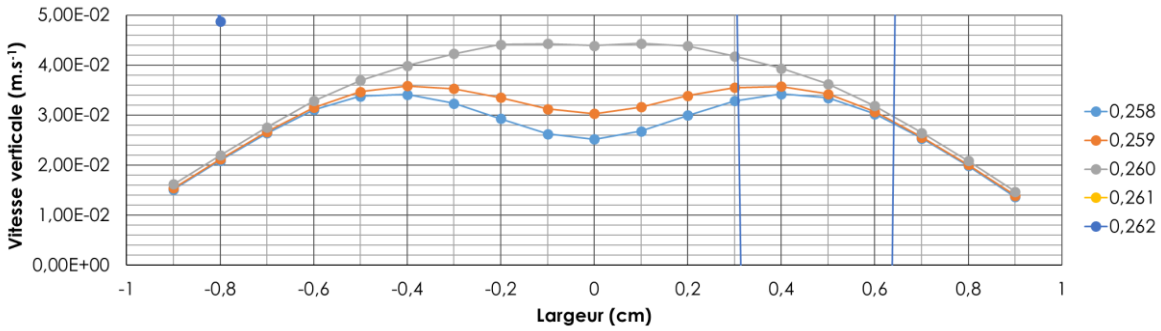


Figure 83 : Vitesse verticale des gaz à 1,4 mm de hauteur au-dessus de la surface du solide, ρ = 1155 kg.m^{-3}



(a)



(b)

Figure 84 : Vitesse verticale des gaz à 1,4 mm de hauteur au-dessus de la surface du solide, ρ = 23,1 kg.m-3 ; (a) ensemble des pas de temps ; (b) Pas de temps pré-inflammation et pas de temps de l'inflammation

Vitesse résultante des composantes verticale et horizontale

Afin d'avoir une vision globale des champs de vitesse, le vecteur résultant des composantes verticale et horizontale est tracé dans l'espace physique. Les représentations vectorielles sont données en Figure 85 pour les deux masses volumiques considérées.

A titre d'information et pour faciliter la lecture de ces figures, seuls les quatre premiers millimètres au-dessus du solide (et toujours l'intégralité de sa largeur soit 20 mm) sont considérés.

Par le biais de la représentation vectorielle, on remarque un écoulement majoritairement vertical au-dessus du solide, avec un entrainement de l'air au bord de ce dernier. Lors de l'inflammation, les vitesses sont plus importantes et le sens des vecteurs change pour aller vers toutes les directions de l'espace. Cela traduit l'expansion des gaz dû à l'initiation de la réaction de combustion.

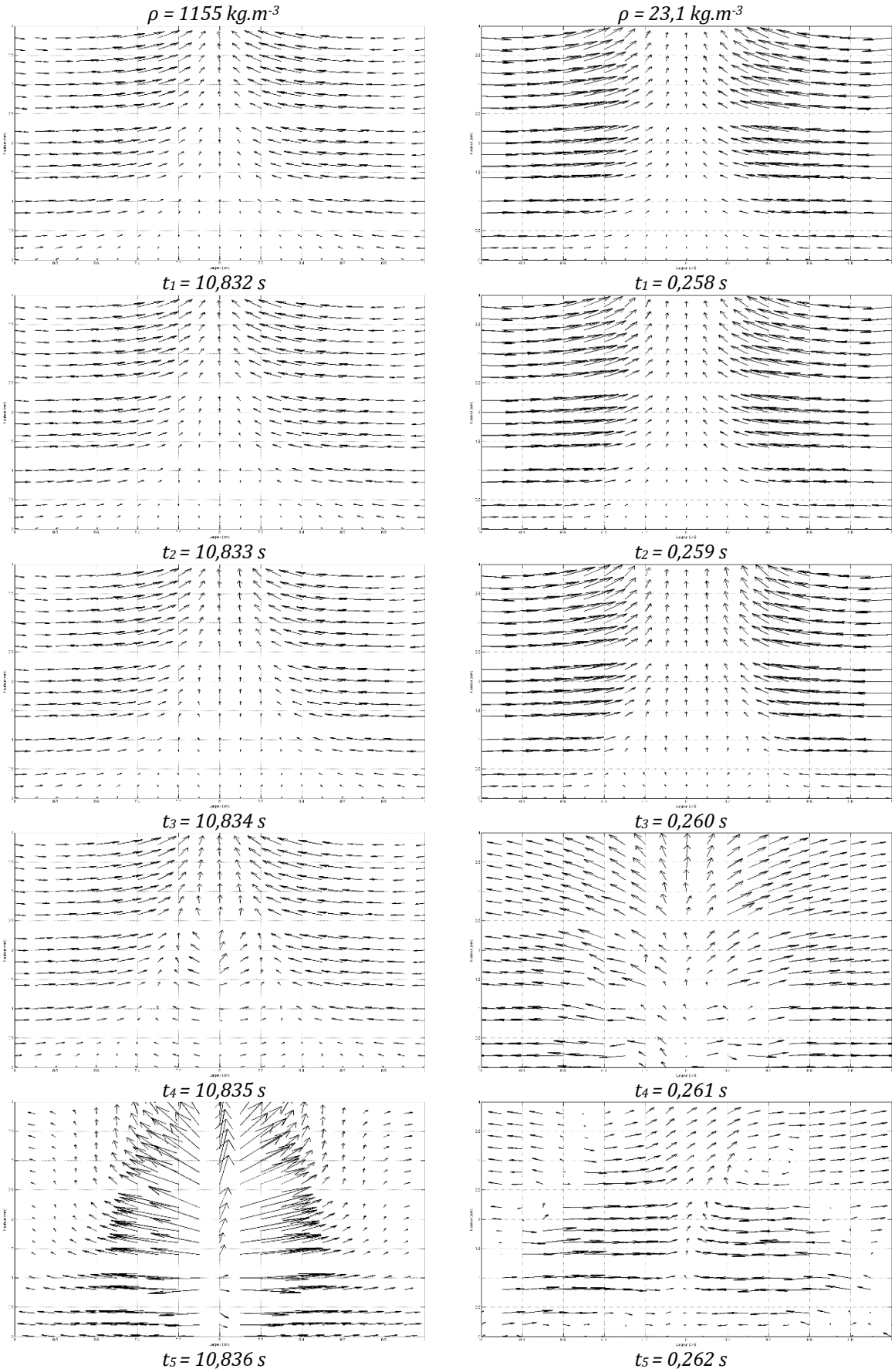


Figure 85 : Vecteur vitesse résultant des composantes horizontale et verticale de vitesse aux instants de l'inflammation et pour les deux masses volumiques considérées

Nombre de Reynolds

La mesure de vitesse implique la notion de caractérisation de l'écoulement. Si les vitesses mesurées jusqu'alors laissent à penser que ce dernier est laminaire, il est intéressant de calculer un nombre de Reynolds local afin de le confirmer. A l'instar du cas à masse volumique initiale, un nombre de Reynolds local est calculé en post traitement. Les dimensions classiques de représentation de la phase gazeuse sont retrouvées sur la Figure 86 (20 mm de largeur sur 10 mm de hauteur). Le nombre de Reynolds calculé ici correspond à celui de l'échelle intégrale. En effet, la dimension caractéristique considérée est celle du solide.

En fonction des sources, il est généralement admis par la communauté scientifique que la transition du régime laminaire vers turbulent a lieu pour $2000 < Re < 4000$. Les écoulements obtenus pour les deux densités sont donc laminaires, comme en témoigne la Figure 86.

A densité initiale, les valeurs maximales du nombre de Reynolds (environ 80) sont obtenues aux limites de l'écoulement de MMA. Une légère augmentation du nombre de Reynolds peut être remarquée à t_5, lorsque l'inflammation prend de l'ampleur dans l'espace. Après l'inflammation, l'augmentation de la vitesse engendre une hausse du nombre de Reynolds localement. Cette augmentation traduit des perturbations locales de l'écoulement mais sont insuffisamment importantes pour qualifier l'écoulement de turbulent. On parle alors d'écoulement laminaire perturbé.

Le même comportement est observable pour une masse volumique faible. Pré-inflammation, le nombre de Reynolds local est également très faible, mais il augmente pour atteindre des valeurs supérieures à 1000. La perturbation est alors plus importante et résulte de l'augmentation des vitesses observée précédemment.

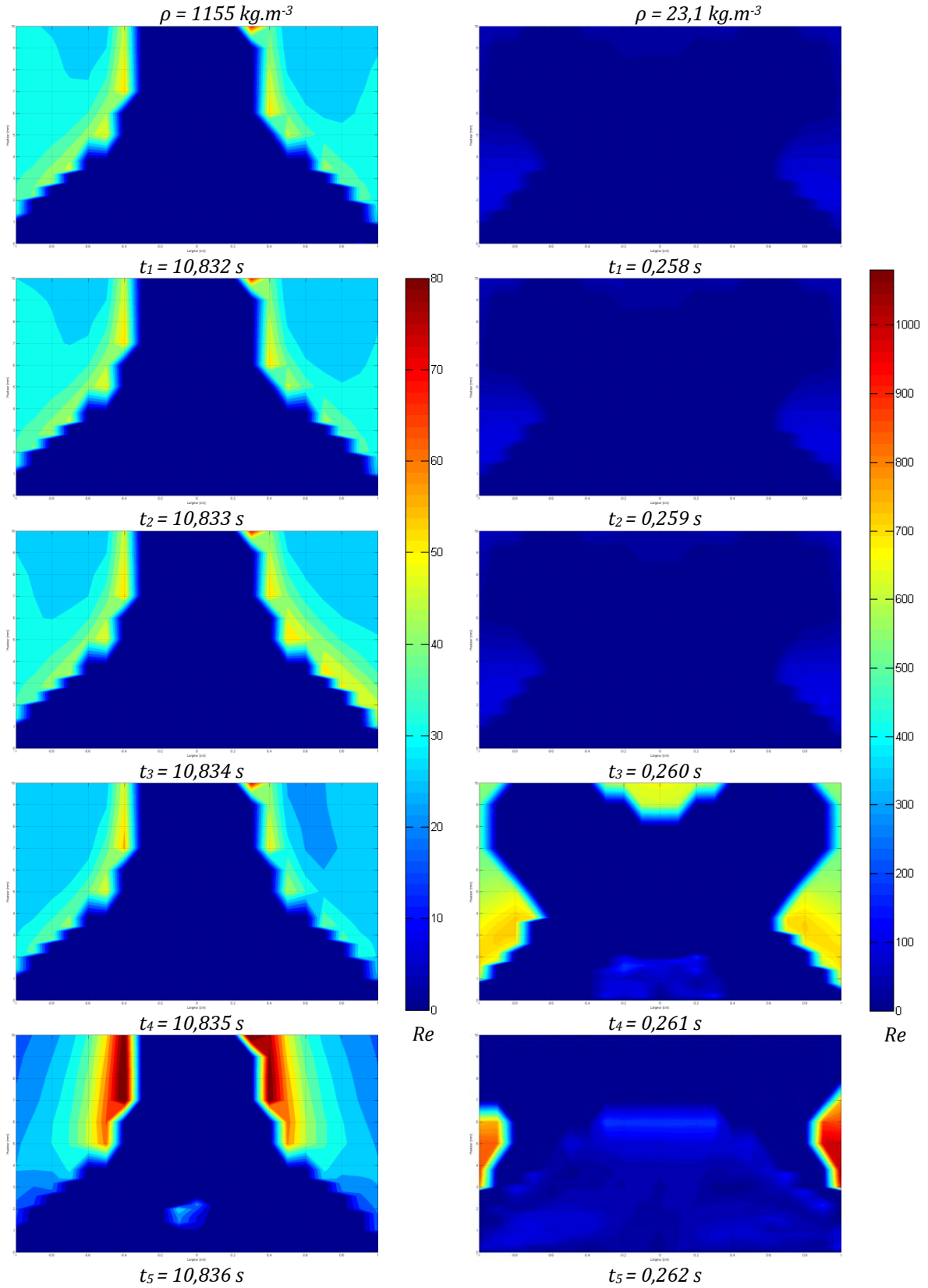


Figure 86 : Nombre de Reynolds local aux instants de l'inflammation et pour les deux masses volumiques considérées

f) Taux de dissipation scalaire et nombre de Damköhler

Taux de dissipation

Il est nécessaire de définir le temps caractéristique de la turbulence afin de calculer une valeur du nombre de Damköhler. Ce temps caractéristique peut être assimilé à l'inverse du taux de dissipation scalaire, en considérant que les tourbillons dissipant l'énergie sont les mêmes que ceux mélangeant les espèces.

Le taux de dissipation scalaire local est donc calculé en post traitement. Il est inversement proportionnel au gradient de fraction de mélange. Les résultats issus du post-traitement sont présentés en Figure 87 ci-après.

Pour le cas à masse volumique initiale, les espèces sont diffusées aux bords de l'écoulement. Le taux de dissipation est alors proche de zéro à l'allumage. Les valeurs maximales sont quant à elles très faibles, de l'ordre de $5{,}5.10^{-8}$.

A faible masse volumique, le délai d'allumage court ne permet pas une diffusion importante des espèces, qui restent majoritairement proches de la surface du matériau. Le taux de dissipation est alors plus élevé en surface du solide. Les valeurs maximales sont cependant plus faibles que pour le cas à densité initiale, avec au plus un taux de dissipation égal à 1.10^{-8}.

Trois zones sont alors identifiables concernant la diffusion des espèces dans le cas à densité faible :

- Une première zone se situe sur les bords de l'échantillon où le taux de dissipation est plus fort que sur toute la longueur du solide.
- Une deuxième au centre de l'échantillon et très proche de la surface est également identifiable. Le taux de dissipation y est moindre.
- Ce dernier diminue ensuite avec la hauteur ce qui constitue une troisième zone.

L'inflammation prend place au sein de la deuxième zone où le taux de dissipation est moyen mais où la température et la concentration d'espèces sont en quantité suffisante.

Au travers de la Figure 87, des valeurs faibles de taux de dissipation scalaire sont observées (de l'ordre de 10^{-8}). Par ailleurs, au niveau de la zone d'inflammation, le taux de dissipation est nul ou très faible au moment où se produit le phénomène, ce qui est en accord avec les travaux de Torero mentionnées au Chapitre I (Torero, 2016).

Post inflammation, le taux de dissipation augmente au niveau de la zone d'inflammation. Le gradient de fraction de mélange est modifié à cet endroit du fait de la consommation du combustible et du comburant par la réaction de combustion.

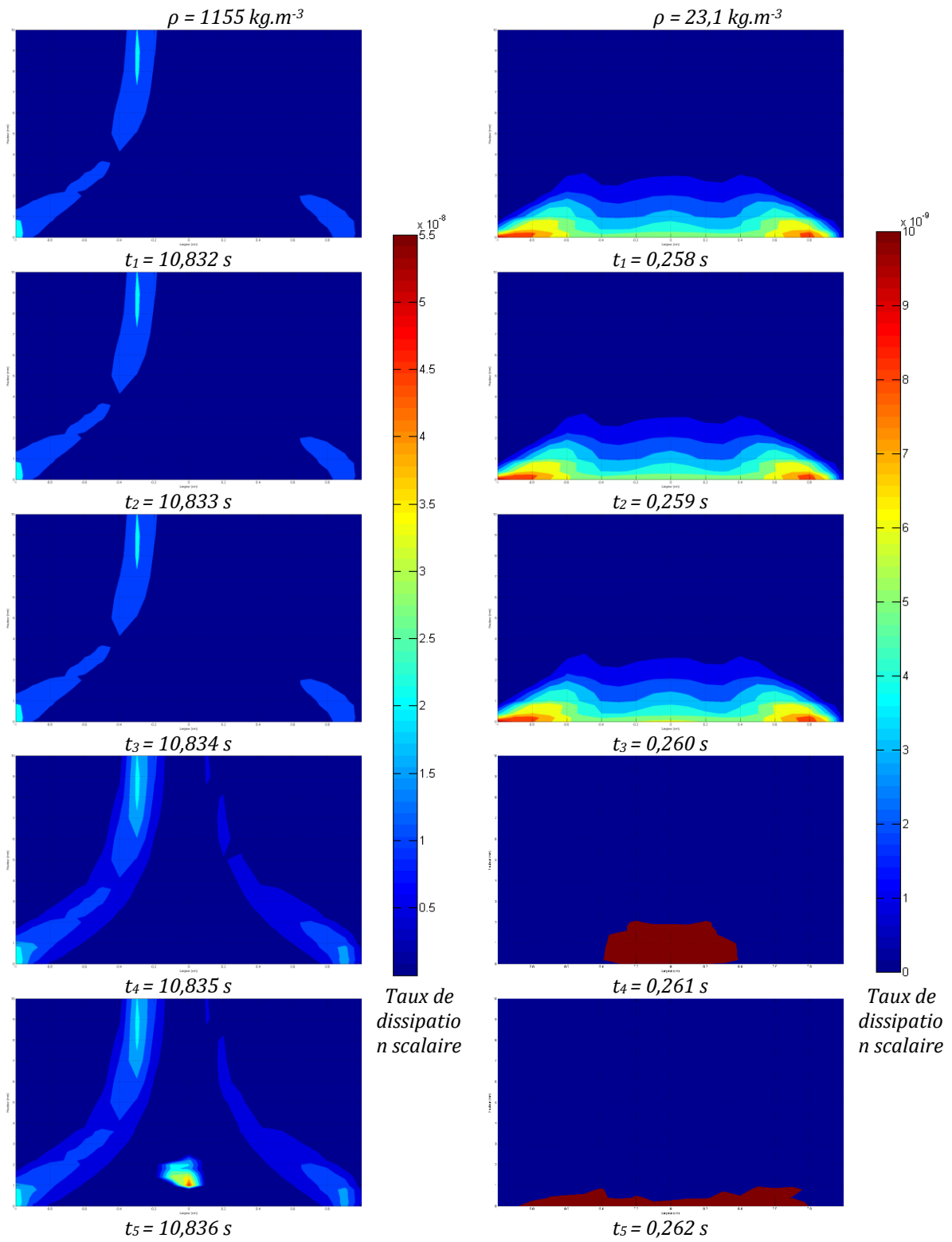


Figure 87 : Taux de dissipation scalaire aux instants de l'inflammation et pour les deux masses volumiques considérées

Nombre de Damköhler

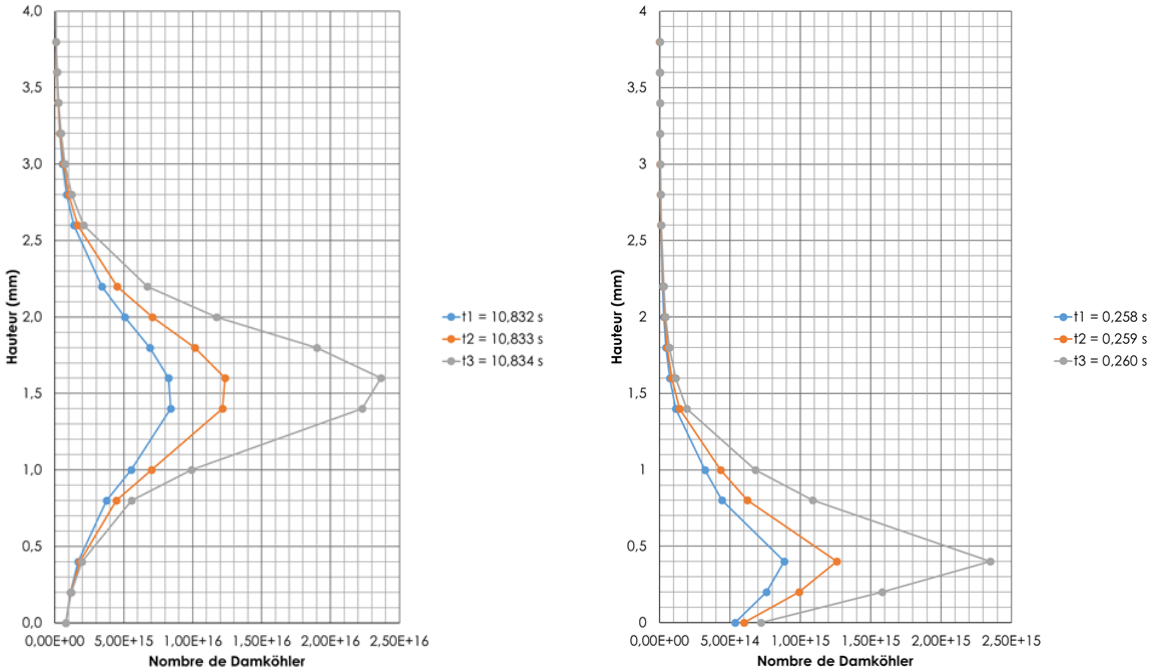
Pour compléter cette étude, le nombre de Damköhler local est également calculé en post-traitement. Pour rappel, un nombre de Damköhler faible traduit un temps de résidence des gaz faible en comparaison du temps caractéristique de la chimie. A l'inverse, un fort nombre de Damköhler correspond à un temps de résidence très grand devant celui de la chimie. Aux vues des faibles valeurs de vitesses et du taux de dissipation scalaire, le nombre de Damköhler a tendance à prendre des valeurs élevées.

Ce dernier étant primordial pré-inflammation, seuls les pas de temps t_1, t_2 et t_3 sont présentés. La Figure 88 permet d'étudier en détail le nombre de Damköhler dans la phase gazeuse. Par le biais de cette représentation et des mentions faites au Chapitre I, un nombre de Damköhler critique peut être mis en avant pour chaque cas.

A masse volumique initiale, ce dernier, environ égal à $1{,}25.10^{16}$, présente une valeur très élevée, mettant en avant un grand temps de résidence devant le temps caractéristique de la chimie et confortant l'hypothèse de dissipation des espèces.

Le nombre de Damköhler critique à masse volumique faible est d'environ $1{,}25.10^{15}$. Une valeur très élevée est à nouveau obtenue.

Dans les deux cas, il est montré que l'écoulement laminaire permet une inflammation peu perturbée par l'aéraulique. Les temps caractéristiques de la chimie sont très courts devant ceux de l'écoulement et la chimie peut alors être qualifiée d'infiniment rapide.



ρ = 1155 kg.m⁻³ *ρ = 23,1 kg.m⁻³*

Figure 88 : Evolution du nombre de Damköhler aux deux pas de temps pré-inflammation et au pas de temps de l'inflammation pour les deux masses volumiques considérées

III.4 - Conclusions de fin de chapitre

Dans la continuité des travaux cités au Chapitre I, la présente étude est relative à l'autoallumage des solides dans des conditions d'incendie. Deux typologies d'auto-inflammations sont citées par (Torero, 2016) pour les solides. Un premier type d'inflammation a alors lieu en phase gazeuse (les gaz s'échauffant plus vite que le solide) et un deuxième pour lequel la source d'allumage est le solide (qui s'échauffe alors plus vite que le gaz). La différence majeure de cette étude avec la phénoménologie décrite par (Torero, 2016), réside dans le fait que l'apport énergétique est prescrit à la surface du solide. Dans les cas simulés au cours de de cette étude, le rayonnement ne traverse donc pas la phase gazeuse (pour laquelle l'absorptivité des gaz pourrait jouer un rôle prépondérant).

Deux régimes d'auto-inflammation ont été clairement identifiés en modifiant uniquement la masse volumique du matériau :

- Le premier régime d'inflammation correspond à celui des densités élevées. La réaction est initiée par la montée en température de la surface mais l'écoulement déplace la zone réactionnelle plus haut dans la phase gazeuse. L'atteinte d'un tel niveau de température en surface de solide implique une durée d'éclairement énergétique importante. Sous l'effet de la dégradation thermique du solide, ce dernier émet des gaz de pyrolyse en quantité importante ce qui explique les richesses de mélange élevées à l'inflammation.
- Le deuxième régime correspond à celui observé pour les densités faibles. Pour ces cas, la température de surface subi une montée en température très rapide (plus de 500°C en quelques dixième de secondes). Dès lors, la pyrolyse est amorcée et l'inflammation a lieu dès lors que le mélange gazeux est inflammable. L'auto-allumage des gaz est donc initié par le solide.

Si beaucoup de solides rencontrés dans l'habitat correspondent au premier cas, certains matériaux à faibles masses volumiques sont aussi présents. Le délai d'autoallumage de ces derniers se voit donc réduit et une des raisons potentielles de cette diminution vient d'être exposée au travers ce Chapitre. Dans de grands ensembles multi compartimentés, la transition pourra donc être facilitée par des matériaux pour lesquels la chimie prédomine sur les phénomènes thermiques.

Les conclusions et la généralisation face à d'autre ne doivent cependant pas être hâtives car il est nécessaire de prendre en considération la cinétique en phase gazeuse, laquelle est propre à chaque solide.

Par ailleurs, ces deux régimes sont représentatifs de cas extrêmes. Dans le cadre d'une approche d'ingénierie, cette distinction peut être utile mais les simulations intermédiaires à ces deux masses volumiques ont montré que la transition entre ces régimes n'est pas nette. La localisation de l'inflammation se rapproche du solide au fur et à mesure que sa densité diminue et il est nécessaire de garder à l'esprit ce constat dans le cadre de travaux futurs.

Conclusions, perspectives

Au cours des trois Chapitres de ce mémoire de thèse, plusieurs points ont pu être mis en évidence concernant l'inflammation des solides et plus particulièrement leur autoallumage.

Ce phénomène conditionne en partie la propagation des feux entre locaux et favorise le développement des sinistres à l'échelle de bâtiments et parfois de quartiers ou de villes. Pour mieux prévoir ce risque, il est nécessaire de le comprendre et d'en isoler les variables principales pour les étudier une à une. L'étude réalisée met ainsi en lumière l'impact de la phase condensée sur l'inflammation des gaz de pyrolyse.

Pour aller plus loin dans les approches actuelles de modélisation à grande échelle, des conclusions générales quant aux résultats obtenus sont dressées dans cette partie du mémoire. Les perspectives relatives au sujet sont exposées dans un deuxième temps. Par ailleurs, ce travail doit également servir de base de réflexion dans le cadre d'applications opérationnelles à destination des services de secours mais également à destination des différents corps de métiers gravitant autour de l'ingénierie de la sécurité incendie. Ainsi, organismes de prévention, assureurs, industriels pourront également bénéficier de ces travaux de recherche.

SOMMAIRE DES CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Conclusions générales 138
Perspectives de recherche 140
Perspectives d'application 141

Conclusions générales

L'enjeu du présent travail est de fournir à la communauté scientifique du domaine de la sécurité incendie une vision fine de la phénoménologie d'auto-inflammation des solides. L'auto-allumage apparaît notamment être un des acteurs de la propagation des incendies au travers d'ensembles multi-compartimentés et il convient de le caractériser finement pour implémenter et améliorer les modèles actuels de propagation. L'évolution des ressources de calcul permet d'intégrer de plus en plus de détail et ainsi de répondre à une approche déterministe du risque incendie.

Le premier chapitre permet une présentation des modèles actuels de propagation de feux à grande échelle, tout en constatant leurs évolutions et leurs limites. Ces limites engendrent des besoins qu'il convient de caractériser. La détermination des conditions de propagation fait partie des demandes actuelles en matière d'incendies à grande échelle et cette dernière est, entre autres, conditionnée par l'auto-inflammation des matériaux. Par ailleurs, l'auto-allumage des solides est très dépendant des conditions expérimentales et de variables locales souvent difficilement maîtrisables ou mesurables. L'avancée de certains travaux expérimentaux, couplée aux connaissances en combustion homogène, ont cependant permis de caractériser théoriquement les phénomènes et de dresser les constats suivants :

- Aux vues des critères d'inflammation de la littérature, la phase condensée semble avoir un impact non négligeable sur l'inflammation des gaz de pyrolyse.
- Deux typologies d'auto-inflammations existent. La première résulte de l'emballement thermique en phase gazeuse et donne lieu à l'allumage des réactifs au-dessus du solide (les gaz s'échauffent plus rapidement que le solide). La deuxième résulte de l'échauffement plus rapide du solide, qui agit alors comme source de chaleur et conduit à l'inflammation du mélange dès l'atteinte de conditions favorables de richesse en phase gazeuse.

Seule une résolution suffisamment fine de la cinétique chimique, des phénomènes thermiques et de l'écoulement peut donc permettre de venir enrichir la communauté scientifique autour de la thématique de l'auto-inflammation des solides.

Ces constats ont conduit à la réalisation d'un état de l'art global des études relatives à la modélisation de l'auto-inflammation des solides. Une approche de Simulation Numérique Directe (DNS) du phénomène a alors été choisie, via l'outil Fire Dynamics Simulator, internationalement reconnu. Par ailleurs, la sélection du polyméthacrylate de méthyle (PMMA) opaque comme matériau d'étude s'est naturellement imposée tant ses paramètres de décomposition thermique et de combustion ont été étudiés depuis l'avènement des sciences de l'incendie. Pour étendre le champs d'analyse, différentes typologies de solides ont été identifiées selon des critères de temps caractéristiques de pyrolyse et de conduction. Ces derniers peuvent en effet être longs ou courts, définissant quatre types de matériaux (thermiquement épais/fin, cinétique rapide/lente). Après analyse et décomposition de ces temps caractéristiques, il apparaît que la masse volumique permet de faire varier le temps caractéristique de la conduction et ainsi faire prédominer la chimie devant la thermique et inversement. En conservant les propriétés thermiques et cinétiques du PMMA ainsi que celles de sa phase gazeuse, il est alors possible d'obtenir différentes typologies de matériaux en ne changeant que la densité initiale du solide.

Par la suite, les modèles implémentés dans le code de calculs FDS sont présentés au sein du Chapitre 2, afin de donner une vision globale de l'outil et de ses caractéristiques. La résolution de

la pyrolyse pour la phase condensée et de la combustion pour la phase gazeuse sont alors exposées et les données d'entrées relatives au matériau sont détaillées. Ces dernières sont pour la plupart issues d'études expérimentales récentes et reconnues. Elles intègrent notamment la dépendance à la température des propriétés physiques ainsi que le changement d'état du PMMA. Une étude préliminaire permet alors de juger des capacités du code à capter l'auto-inflammation.

Le principe (dispositif) du cône calorimètre est choisi pour mener l'étude et analyser les phénomènes, car connu de la communauté, très documenté et représentatif de conditions d'incendies. Ce choix permet également de faire écho aux différents travaux expérimentaux et situer l'étude dans le paysage scientifique actuel de la sécurité incendie. Une représentation en deux dimensions est sélectionnée et une étude de sensibilité au maillage est menée dans la phase gazeuse comme dans la phase condensée. Au travers cette étude préliminaire, l'impact de la taille de l'échantillon sur l'allumage du solide est identifié sans être approfondi, tant les temps de calculs requis sont prohibitifs. Il est néanmoins possible de conclure que plus la surface de l'échantillon est faible, moins celui-ci est enclin à s'enflammer à de faibles éclairements énergétiques (problème de quantité critique de gaz de pyrolyse pour l'atteinte de la LII).

Le troisième et dernier chapitre de ce mémoire est consacré à la présentation des résultats et leur exploitation. Les paramètres importants pour l'analyse sont présentés, telles que la fraction de mélange stœchiométrique, la dépendance à la température des limites d'inflammabilité, la détermination du délai d'auto-inflammation… Des résultats globaux sont exposés pour l'ensemble des cas simulés et des tendances sont données quant à la variation de la masse volumique. La baisse de cette dernière implique une diminution quasi-linéaire du délai d'autoallumage. Elle engendre également une augmentation de la température de surface, en lien avec la diminution du temps caractéristiques de la conduction. Le rapport du temps caractéristique de la conduction sur celui de la chimie est également étudié en fonction de la masse volumique et il est possible de constater une diminution de ce dernier avec la densité. A partir d'une densité initiale divisée par deux, le rapport (temps caractéristique de la conduction / temps caractéristique de la chimie) passe sous la barre de l'unité et la conduction n'est plus prédominante au sein du solide. Ces valeurs globales amènent cependant à des limites d'interprétation et elles doivent être approfondies par l'analyse de valeurs locales.

Ces dernières permettent l'identification de deux cas particuliers pour lesquels deux différents régimes d'inflammation sont observés. Ces cas se situent aux extremums des cas représentatifs testés (masses volumiques égales à 1155 $kg.m^{-3}$ et 23,1 $kg.m^{-3}$).

Les résultats identifiés en phase condensée concernent le flux de chaleur reçu, la température du solide, son taux de réaction et son débit massique de pyrolyse. Les analyses montrent que ces paramètres sont uniformes en surface pour les deux cas considérés. L'impact du flux convectif à la surface lors de l'inflammation est mis en évidence et de plus hauts niveaux de températures pré-inflammation sont relevés pour le cas à faible densité. Le taux de réaction est alors impacté par la variation de la masse volumique, il croit en fonction de la baisse de celle-ci.

D'autres différences majeures sont identifiées en phase gazeuse et apportent d'avantage d'informations sur le régime d'autoallumage à proprement parlé. La fraction de mélange est analysée, notamment vis à vis des limites d'inflammabilité du méthacrylate de méthyle. Pour les densités élevées, le mélange est riche en combustible lors de l'inflammation. Des valeurs de fraction de mélange 7 fois supérieures à la stœchiométrie sont en effet identifiées. Ces dernières

sont par ailleurs supérieures à la limite supérieure d'inflammabilité, ce qui interroge quant à la représentativité de ces valeurs d'ingénierie dans des cas éloignés de ceux de leur détermination. Pour le cas à masse volumique faible, l'inflammation a en revanche lieu dans un mélange proche de la stœchiométrie.

Par ailleurs, et ce pour les deux densités types, des niveaux de vitesses faibles sont relevés dans les gaz avant l'inflammation. Un régime laminaire est identifié et engendre des taux de dissipation très faibles. Les temps caractéristiques de la chimie et de la turbulence sont alors comparés par l'intermédiaire du nombre de Damköhler qui prend des valeurs très grande devant l'unité. Une chimie infiniment rapide est donc identifiée et la turbulence a peu d'impact sur l'inflammation de tels solides.

La localisation de l'inflammation et ses caractéristiques sont également différentes dans les deux cas. A densité élevée, l'autoallumage a lieu dans la phase gazeuse, à 1,5 mm au-dessus de la surface du solide. A l'inverse, à faible masse volumique, l'inflammation est initiée par la surface suffisamment chaude du solide. Entre les deux densités, la localisation de l'autoallumage se rapproche de la surface plus la masse volumique diminue. La transition entre ces deux régimes est alors difficilement identifiable. Utiles du point de vue de l'ingénierie, les régimes mis en avant dans ce mémoire se doivent donc d'être replacés dans un contexte de recherche en considérant leur transition qui n'a pas été étudiée ici.

Perspectives de recherche

Au cours de ce travail, plusieurs pistes de recherche ont été écartées du fait de la contrainte temporelle inhérente à une thèse de doctorat. Ces sujets doivent néanmoins apparaître afin d'orienter de futurs projets de la communauté scientifique.

Des paramètres ayant été modifiés en phase condensée, il parait judicieux de faire de même au sein de la phase gazeuse. La modification de l'énergie d'activation de la réaction, du débit de pyrolyse ou de la concentration en oxygène sont des exemples de paramètres pouvant faire évoluer le nombre de Damköhler en modifiant les temps caractéristiques de l'écoulement et de la chimie. L'introduction d'un brûleur poreux aux propriétés similaires à celles du solide serait une solution numérique intéressante pour l'étude des paramètres de la phase gazeuse.

Lors d'incendies en milieux clos, la fumée chaude expose les matériaux en partie basse à un éclairement énergétique. Cette configuration horizontale des matériaux est retranscrite dans cette étude par l'utilisation d'un modèle calquant le cône calorimètre. Dans le cas de la propagation des feux, les matériaux peuvent également être orientés verticalement. Une étude sur l'impact de l'inclinaison du solide sur l'auto-allumage et sur les régimes identifiés pourrait être intéressante. Cette étude pourrait être menée sur deux densités et est réalisable avec les cas actuels, en modifiant seulement le vecteur gravité au sein du logiciel FDS.

Comme exposé au sein Chapitre II, la surface de l'échantillon a un impact notable sur le flux de chaleur critique d'inflammation. L'évolution incessante de la puissance des calculateurs pourrait permettre d'ici quelques années de mener des études sur des échantillons plus grands, identiques à ceux normalisées en cône calorimètre (ISO 5660). Ces avancées technologiques pourraient également favoriser l'étude du phénomène en trois dimensions.

Une étude sur plusieurs matériaux serait également opportune afin de vérifier les conclusions émises quant à la variation de la densité. Une telle étude nécessite la connaissance des mécanismes réactionnels dans les deux phases et doit faire appel à la mobilisation de la communauté expérimentale pour identifier des paramètres à implémenter dans les modèles. La mise en place de bases de données internationales fiables semble alors nécessaire. Par ailleurs, un artefact numérique a été identifié lors de la résolution de la pyrolyse et plus particulièrement lors des mesures de débits massiques en surface de solide sous FDS. Ce problème est aujourd'hui connu et pourra être corrigé dans des versions ultérieures du code.

Une étude expérimentale approfondie pourrait également être menée sur l'auto-inflammation. Les techniques de mesures non intrusives actuelles peuvent permettre une bonne caractérisation de l'écoulement et un couplage à de l'imagerie électronique à haute fréquence pourrait mettre en évidence les régimes numériquement identifiés ici. Des travaux sont actuellement en cours au sein de la Plateforme Hestia pour mener ce type d'investigation tout en disposant une instrumentation fine dans le solide et dans la phase gazeuse. Ce dispositif en place, la variation des solides, de leur taille et de la concentration en oxygène pourra être étudiée.

Dans le cadre d'une approche multi-échelle globale, un passage à des tailles d'échantillon supérieures à celle du cône calorimètre serait envisageable. Une plus grande échelle d'étude pourrait permettre la compréhension des phénomènes d'auto-inflammation à l'échelle de deux pièces, respectivement équipées d'un foyer source et d'un foyer cible par exemple.

Pour conclure quant aux perspectives de recherches, l'évolution des outils de calcul à grande échelle devra permettre l'implémentation de l'ensemble des résultats obtenus en y intégrant une précision assez fine des phénomènes. Des maillages adaptés en surface de matériaux pourraient être envisageables pour une description plus précise. Par ailleurs, la DNS permet une approche théorique et académique ramenant l'utilisateur au choix de configurations simples. Ces dernières permettent une analyse fine des phénomènes et la possibilité d'établir des conclusions venant compléter les travaux expérimentaux. Dans des conditions telles que celle du cône calorimètre, la modélisation DNS paraît toute indiquée tant la résolution des conditions aérauliques sont importantes au-dessus du solide. Jusque-là mise de côté par la communauté de la sécurité incendie de par son caractère chronophage, la DNS doit aujourd'hui apparaître comme un outil de recherche complémentaire pour le chercheur dans notre communauté.

Perspectives d'application

Ce travail de recherche a été permis par une structure de référence, Calyxis-Pôle d'expertise de risques, et initié par les services opérationnels de secours. Des perspectives d'applications directes sont donc données dans cette partie pour rendre ce travail théorique accessible à ces structures.

Comme nous avons pu le constater au sein du préambule et du Chapitre I de ce mémoire, les feux urbains représentent aujourd'hui un risque face auquel les municipalités souhaitent être résilientes. Au-delà du caractère accidentel des incendies, certains territoires doivent également composer avec la présence de risques majeurs comme les séismes qui peuvent engendrer des effets dominos dont l'incendie fait partie intégrante. Les menaces non-conventionnelles, dont peuvent également découler des feux de grande ampleur, sont aujourd'hui également considérées par les municipalités. Le concept de risque apparaît dès lors que l'aléa incendie est couplé à des

enjeux que représentent les aspects humains, économiques et environnementaux. A hauteur de plusieurs centaines de morts par an en France, les incendies constituent un risque non négligeable pour la population. Les pertes économiques liées aux incendies et mises en avant par les assureurs sont également des facteurs à prendre en considération. Dans un système assurantiel (notamment mutualiste), les coûts engendrés par les incendies se répercutent sur les sociétaires et représente donc un coût pour la collectivité, en plus des taxations étatiques inhérentes au financement des services d'incendie et de secours. Les matériaux actuels utilisé dans l'habitat génèrent en brulant des polluants ayant un impact environnemental. Par ailleurs, les eaux d'extinction des incendies sont difficilement récupérables et peuvent menacer des écosystèmes locaux. L'évolution des moyens permet aujourd'hui des études déterministes dans ce domaine.

La sphère de l'habitat constitue un enjeu vulnérable face au risque incendie. En se focalisant sur les interventions menées par services de secours en matière de feux potentiellement confinés (sont exclus ici les feux sur voie publique, feux de véhicules et feux de végétation), les incendies d'habitations représentent alors 83% de l'activité. La réglementation relative aux établissements recevant du public fait donc preuve d'efficacité et prends de plus en plus en considération l'approche performantielle de sécurité incendie. Il est plus compliqué d'introduire ce type d'approche dans l'habitat aux vues de son hétérogénéité et du caractère privé de ce qu'il constitue. Dans ce contexte, l'obligation d'équipement en détecteur de fumée est à saluer mais doit s'accompagner d'une prévention efficace, de l'éducation aux population et d'une analyse de risque à l'échelle des territoires afin de répartir au mieux les moyens de secours. Des structures de recherche appliquée telles que Calyxis doivent être présentes dans les domaines de la prévention et de l'éducation au risque. Elles peuvent en effet contribuer à développer un habitat plus sûr face à l'incendie en étant en relation constante avec des industriels et former le grand public aux conduites à tenir en présence d'un feu. Calyxis a également un rôle majeur à jouer concernant les statistiques d'incendies en faisant le lien avec les services de secours et le monde de l'assurance, afin de capitaliser des connaissances générales sur le risque et ses conditions d'occurrence. En plus d'un travail universitaire, cette étude se veut donc être une base de réflexion fondamentale pour la structure mais également une continuité au regard des travaux déjà mené en son sein sur la vulnérabilité de l'habitat face au risque inondation.

Ces incendies de grande ampleur sont conditionnés par les transitions verticale ou horizontale entre les locaux composant le maillage urbain. Comme cela a déjà pu être abordé, cette transition résulte de l'inflammation pilotée ou spontanée des matériaux dans les pièces attenantes à un feu. La modélisation de la propagation est rendue complexe par l'hétérogénéité du bâti mais également par la difficulté d'établir des critères seuils à partir desquels la transition d'un local à l'autre peut être effective. Pour définir ces critères, il est primordial de comprendre les phénomènes régissant l'inflammation. Ces derniers ont beaucoup été étudiés en présence d'un pilote au travers de dispositifs tel que le cône calorimètre. Cela est cependant moins le cas concernant l'autoallumage des solides. La présente étude se veut être complémentaire des travaux déjà menés au sujet de l'auto-inflammation, en y apportant une approche de Simulation Numérique Directe, jusqu'alors trop coûteuse.

Ces travaux constituent dans un premier temps une base de ressource documentaire à destination des structures précitées (et ce notamment au travers de l'avant-propos et du Chapitre I). Sans avoir de prétention d'exhaustivité, cette thèse peut servir de base de données sur la phénoménologie de l'inflammation des solides. Son intérêt est alors d'apporter des notions aux lecteurs industriels, chercheurs, étudiants… qui souhaiteront approfondir cette problématique.

Pour Calyxis, organisme à but de prévention du risque à la personne, les savoirs et concepts abordés ici peuvent être vulgarisés et portés à la connaissance du grand public afin de diminuer la vulnérabilité de la population face à l'incendie, car le pas entre la peur et la lumière est toujours la connaissance (*« the transition between fear and enlightenment is always knowledge »* (Prof. Jose Torero, Fire: A Story of Fascination and Fear, 2010)). Dans un deuxième temps, les services de secours commanditaires du projet dans lequel s'est inscrit ce travail peuvent également trouver des réponses à certaines interrogations spécifiques relatives à la phénoménologie. Des réformes de la formation des sapeurs-pompiers voient aujourd'hui le jour et ce type de document peut servir de base à la construction d'enseignements de formateurs par exemple.

D'un point de vue opérationnel, l'implémentation des modèles issus de la recherche à des outils de prévention/prévision permet d'identifier les risques et de préparer une réponse opérationnelle adaptée à froid. A chaud, ils permettent une description en temps réel de l'évolution du feu (tel que cela peut être le cas en feu de forêt) et sont de véritables outils d'aide décisionnelle pour la chaîne de commandement.

Ce dernier point nécessite une évolution des moyens de calcul en perpétuels progrès mais également une caractérisation fine des logements (tant sur le bâtis que sur la configuration et l'ameublement) et une caractérisation fine des scénarios de départ feux. Pour ce faire, des études statistiques approfondies et uniformisées à l'échelle nationale doivent être menées.

Bibliographie

Agence National de l'Habitat. (2006). *Le Parc Privé dans l'Enquête Nationale Logement - 2006*.

Agence National de l'Habitat. (2012). *Mémento de l'Habitat Privé - 2011/2012*.

Atreya, A. (1998). Ignition of fires. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, *356*(1748), 2787–2813.

Auguin, G. (2008). *Guide de prescriptions techniques pour la résistance du bâti face à un aléa technologique thermique avec pour unique but la protection des personnes*.

Aviotti, A. (2011). *Contribution à la caractérisation de la vulnérabilité de l'habitat individuel face à l'inondation. Vers un outil d'autodiagnostic*. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.

Babrauskas, V. (2003). *Ignition Handbook* (Fire Scien).

Babrauskas, V., & Grayson, S. J. (1992). *Heat release in fires* (Interscien). London.

Batiot, B. (2014). *Étude et modélisation de la cinétique de décomposition thermique des matériaux solides. Application à la dégradation du bois en cas d'incendie.* Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique.

Bell, J. B., Day, M. S., Rendleman, C. a., Woosley, S. E., & Zingale, M. (2004). Direct Numerical Simulations of Type Ia Supernovae Flames II: The Rayleigh-Taylor Instability, 1–62.

Bengtsson, L.-G. (2001). *Enclosure Fires* (SRSA).

Benkoussas, B., Consalvi, J. L., Porterie, B., Sardoy, N., & Loraud, J. C. (2007). Modelling thermal degradation of woody fuel particles. *International Journal of Thermal Sciences*, *46*(4), 319–327.

Boonmee, N. (2004). Theorical and experimental study of autoignition of wood. *NIST Special Publication 1019*.

Borghi, R., & Champion, M. (2000). *Modélisation et théorie des flammes* (Technip).

Breton, T., & Duthen, Y. (2008). *Les simulations de propagation de feu en milieu urbain*.

Brunelle, E. (2007). *Analyse et Calibration d'un Modèle Multiéchelle pour la Simulation de Feux de Forêt*. Université de Montréal.

Bustamante Valencia, L. (2009). *Étude expérimentale et numérique de la décomposition thermique des matériaux à trois échelles : Application à une mousse polyéther polyuréthane utilisée dans les meubles rembourrés*.

CEREMA. (2015). Villes et territoires résilients. *Etudes et Documents*, *123*, 53.

Chao, Y. H. C., & Fernandez Pello, A. C. (1997). Forced ignition of a solid fuel in a turbulent boundary layer oxidizing flow. In *Physical and Chemical Aspect of Combustion - A tribute to Irvin Glassman* (pp. 409–431).

Cheng, H., & Hadjisophocleous, G. V. (2009). The modeling of fire spread in buildings by Bayesian network. *Fire Safety Journal*, *44*(6), 901–908.

Code de la Construction et de l'Habitation. art. R111-1-1.

Code de la Construction et de l'Habitation. (n.d.-b). Article R129-12.

Colin, P., Jappiot, M., Mariel, A., Cabaret, C., Veillon, S., & Brocchiero, F. (2001). *Protection des Forêts contre l'Incendie*. Rome.

Côme, G.-M. (1999). *Réactions Thermiques en Phase Gazeuse – Thermodynamique, Cinétique, Mécanismes Réactionnels* (Ellipses).

Cuenot, B. (n.d.). *Introduction à la modélisation de la combustion turbulente*. Toulouse.

Davidson, T. A. (1993). *A Simple and Accurate Method for Calculatlng Viscosity of Gaseous Mixtures*.

De Gennaro, M., Billaud, Y., Kaiss, A., Pizzo, Y., Zekri, N., Elhajj, M., & Porterie, B. (2014). Méthode adaptative de suivi de fronts de feux de forêts. In *GDR Feux* (p. 18). Corte.

Deepak, D., & Drysdale, D. D. (1983). Flammability of solids: An apparatus to measure the critical mass flux at the firepoint. *Fire Safety Journal*, *5*(2), 167–169.

Depuydt, D. (2008). Production Industrielle (hors série) Chiffres clés ch i ffre s, 1–16.

Di Blasi, C. (2008). Modeling chemical and physical processes of wood and biomass pyrolysis. *Progress in Energy and Combustion Science*, *34*(1), 47–90.

Di Blasi, C., Crescitelli, S., Russo, G., & Cinque, G. (1991). Numerical model of ignition processes of polymeric materials including gas-phase absorption of radiation. *Combustion and Flame*, *83*, 333–344.

Direction Générale de la Sécurité Civile et de la Gestion des Crise. (2015). *Les statistiques des Services d'Incendie et de Secours*.

Dong, H. Q. (2013). *Evaluation du risque d'inflammation des fumées riches dans un milieu confiné sous-ventilé à l'aide de la simulation numérique*. Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique.

Drysdale, D. (2011). *An Introduction To Fire Dynamics, Third Edition*.

Fernandez Pello, A. C. (2011). On Fire Ignition. In *Fire Safety Science - Proceeding of the Tenth International Symposium* (pp. 25–42).

Frank-Kamenetskii, D. A. (1939). Temperature distribution in reaction vessel and stationary theory of thermal explosion. *Journal of Physical Chemistry*, *13*, 738–755.

Frank-Kamenetskii, D. A. (1955). Diffusion and Heat Exchange in Chemical Kinetics.

Giraud, N. (2016). *Un modèle de réseau pour la propagation d'un incendie dans une structure massivement multi-compartimentée*. Université Aix-Marseille.

Glassman, I., & Yeter, R. A. (2008). *Combustion - Fourth Edition*.

Guibet, J.-C. (2000). Les Carburants et la Combustion. *Techniques de L'ingénieur*.

Guillaume, É. (2013). Modélisation de la décomposition thermique des matériaux en cas d'incendie. *Techniques de l'Ingénieur*, 23.

Haghiri, A., Talei, M., & Brear, M. J. (2015). A DNS Based Analysis of Noise Generation by a Turbulent Premixed Flame. In *International Symposium On Turbulence and Shear Flow Phenomena* (pp. 1–6). Melbourne.

Hermouet, F. (2015). *Développement d'une approche innovante de modélisation de la cinétique de décomposition thermique des matériaux solides en espaces confinés sous-ventilés Application aux incendies en tunnel*.

Hesse, H., Chakrabortyfj, N., & Mastorakos, E. (2009). The effects of the Lewis number of the fuel on the displacement speed of edge flames in igniting turbulent mixing layers. *Proceedings of the Combustion Institute*, *32 I*(1), 1399–1407.

Himoto, K., Akimoto, Y., Hokugo, A., & Tanaka, T. (2008). Risk and behavior of fire spread in a Densely-built urban area. *Fire Safety Science*, (c), 267–278.

Himoto, K., & Tanaka, T. (2008). Development and validation of a physics-based urban fire spread model. *Fire Safety Journal*, *43*(7), 477–494.

Himoto, K., & Tanaka, T. (2012). A model for the fire-fighting activity of local residents in urban fires. *Fire Safety Journal*, *54*, 154–166.

Janssens, M. (1991). Piloted ignition of wood: A review. *Fire and Materials*, *15*(4), 151–167.

Karami, B. S., Hawkes, E. R., & Talei, M. (2014). Edge flame dynamics in a turbulent lifted jet flame. In *Center for Turbulence Research - Proceedings of the Summer Program* (pp. 137–146).

Karami, S., Hawkes, E. R., Talei, M., & Yu, H. (2014). Direct Numerical Simulation of a Turbulent Lifted Flame : Stabilisation Mechanism. In *19th Australasian Fluid Mechanics Conference* (pp. 1–4). Melbourne.

Kashinath, K., Hemchandra, S., & Juniper, M. P. (2013). Nonlinear thermoacoustics of ducted premixed flames: The influence of perturbation convection speed. *Combustion and Flame*, *160*(12), 2856–2865.

Kashiwagi, T. (1994). Polymer combustion and flammability-Role of the condensed phase. *Symposium (International) on Combustion*, *25*(1), 1423–1437.

Kashiwagi, T., Macdonald, B. W., Isoda, H., & Summerfield, H. (1971). Ignition of a solid polymeric fuel in a hot oxidizing gas stream. *Symposium (International) on Combustion*, *13*(1), 1073–1086.

Korver, K. T. (2015). *A Generalized Model For Wall Flame Heat Flux During Upward Flame Spread On Polymers*.

Lentini, J. (2006). *Scientific Protocols for Fire Investigation*.

Leventon, I. T., Li, J., & Stoliarov, S. I. (2015). A flame spread simulation based on a comprehensive solid pyrolysis model coupled with a detailed empirical flame structure representation. *Combustion and Flame*, *162*(10), 3884–3895.

Li, J., Gong, J., & Stoliarov, S. I. (2014). Gasification experiments for pyrolysis model parameterization and validation. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *77*, 738–744.

Li, J., & Stoliarov, S. I. (2013). Measurement of kinetics and thermodynamics of the thermal degradation for non-charring polymers. *Combustion and Flame*, *160*(7), 1287–1297.

Li, S., & Davidson, R. A. (2013). Parametric study of urban fire spread using an urban fire simulation model with fire department suppression. *Fire Safety Journal*, *61*, 217–225.

Li, S., Davidson, R., & Lee, S. (2011). Recent Advances in Post-Earthquake Fire Modeling : An Urban Fire Simulation Model (UFS). In *2011 PEER Annual Meeting* (pp. 1–37).

Luche, J., Rogaume, T., Richard, F., & Guillaume, E. (2011). Characterization of thermal properties and analysis of combustion behavior of PMMA in a cone calorimeter. *Fire Safety Journal*, *46*(7), 451–461.

Lyon, R. E., & Quintiere, J. G. (2007). Criteria for piloted ignition of combustible solids. *Combustion and Flame*, *151*(4), 551–559.

Marchand, A., Collin, A., & Boulet, P. (2016). Étude Expérimentale de Feux de Végétation à l'Échelle du Laboratoire: Vers une Base de Données Expérimentales. In *GDR Feux*. Paris.

Marchesse, Y. (2010). *Modélisation de la turbulence*. (Ecole Catholique d'Arts et Métiers, Ed.). Lyon.

Margerit, J. (2003). *Modélisation et Simulations Numériques de la Propagation de Feux de Forêts*.

Marquis, D. (2010). *Caractérisation et modélisation multi-échelle du comportement au feu d'un composite pour son utilisation en construction navale*. Ecole des Mines de Nantes.

Mcgrattan, K., Hostikka, S., Floyd, J., & Mcdermott, R. (2012). *Fire Dynamics Simulator - User's Guide (Version 6.0)*.

McGrattan, K., Hostikka, S., McDermott, R., Floyd, J., Weinschenk, C., & Overholt, K. (2013). Fire Dynamics Simulator, Technical Reference Guide, Volume 1: Mathematical Model. *NIST Special Publication 1018*, *1*, 175.

Morvan, D. (2015). Numerical study of the behaviour of a surface fire propagating through a firebreak built in a Mediterranean shrub layer. *Fire Safety Journal*, *71*, 34–48.

Namba, Y., & Yasuno, K. (1986). A Study on the Fire Spread Model of Wooden Buildings in Japan. In CRC Press (Ed.), *Fire Safety Science - Proceeding of the First International Symposium* (pp. 881–890).

Niioka, T., Takahashi, M., & Izumikawa, M. (1981). Gas -Phase Ignition of a Solid in a Hot Stagnation-Point Flow. *Journal of Chemical Information and Modeling*.

Observatoire de la Qualité de la Construction. (2009). *L'Evolution des Parts de Marché des Produits et Matériaux de la Construction*.

Ohgai, A., Gohnai, Y., & Watanabe, K. (2007). Cellular automata modeling of fire spread in built-up areas-A tool to aid community-based planning for disaster mitigation. *Computers, Environment and Urban Systems*, *31*(4), 441–460.

Organisation Internationale de Normalisation. (2008). *Norme Internationale - ISO 13943* (Vol. 2008).

Parisse, D. (2016). *Les Statistiques d'Incendies : Point de Situation et Premiers Enseignement de l'ISO TR 17755*.

Pauwels, J. F. (2010). Cinétique chimique de combustion. In *12ème Ecole de Combustion du CNRS* (p. 116). Porticcio.

Peng, F., Zhou, X.-D., Zhao, K., Wu, Z.-B., & Yang, L.-Z. (2015). Experimental and Numerical Study on Effect of Sample Orientation on Auto-Ignition and Piloted Ignition of Poly(methyl methacrylate). *Materials*, *8*(7), 4004–4021.

Perry, G. L. W. (1998). Current approaches to modelling the spread of wildland fire: a review. *Progress in Physical Geography*, *22*(2), 222–245.

Poinsot, T., & Veynante, D. (2005). *Theorical and Numerical Combustion*.

Poling, B. E., Prausnitz, J. M., & O'Connell, J. P. (2001). *The Properties of Gases & Liquids - Fifth Edition*. *Experimental Thermal and Fluid Science* (McGraw-Hil).

Porterie, B., & Santoni, P.-A. (2015). Feux de Végétation 2 - Modélisation des Feux de Forêts Applications. In *Ecole thématique du CNRS sur la Science des Incendies et ses Applications* (p. 87). Porticcio.

Pyle, D. L., & Zaror, C. A. (1984). Heat transfer and kinetics in the low temperature pyrolysis of solids. *Chemical Engineering Science*, *39*(1), 147–158.

Quintiere, J. G. (1998). *Principles of Fire Behavior*. (Delmar, Ed.). Alar Elken.

Quintiere, J. G. (2006). *Fundamentals of Fire Phenomena* (John Wiley).

Quintiere, J. G., & Harkleroad, M. T. (1984). New concepts for measuring flame spread properties. *Fire Safety Science and Engineering*, *1984*, 239–267.

Rasbash, D. J., Drysdale, D. D., & Deepak, D. (1983). Critical Heat and Mass Transfer at Pilot Ignition and Extinction o f a Material, *10*(1986), 1–10.

Rein, G., Abecassis Empis, C., & Carvel, R. (2007). *The Dalmarnock Fire Tests: Experiments and Modelling*. *The Dalmarnock Fire Tests: Experiments and Modelling* (Engineerin). Edinburgh.

Roblin, S., Batiot, B., Rogaume, T., Richard, F., Baillargeat, J., Poisson, M., … Lepelletier, M. (2015). Improvement of the Firefighters â€™ Training : Assessment of the Constraints During Compartment Fire Behaviour Trainings in Shipping Container. In *Second European Symposium on Fire Safety Science*

(p. 6). Cyprus.

Rothermel, R. C. (1972). *A Mathematical Model for Predicting Fire Spread in Wildland Fuels*. Ogden.

Roy, O., Thiry, A., & Suzanne, M. (2013). Caisson d'entraînement aux phénomènes thermiques. In *Colloque Caissons d'Entranement aux Phénomènes Thermiques* (p. 88).

Scawthorn, C., Eidinger, J. M., & Schiff, A. J. (2005). *Fire Following Earthquakes* (ASCE-NFP).

Scawthorn, C., Yamada, Y., & Iemura, H. (1981). A Model for Urban Port-Earthquake Fire Hazard. *Disasters*, *5*, 125–132.

Semenov, N. N. (1935). Chemical Kinetics and Chain Reactions.

Shi, L., & Chew, M. Y. L. (2013). Fire behaviors of polymers under autoignition conditions in a cone calorimeter. *Fire Safety Journal*, *61*, 243–253.

Sieuw, A. (2015). *Etude des Incendies d'Habitation - Les Sinistres "Incendie."*

Soustelle, M. (2011). *Mécanisme chimique réactionnels et cinétque* (Lavoisier).

Spearpoint, M. J., & Quintiere, J. G. (2001). Predicting the piloted ignition of wood in the cone calorimeter using an integral model - Effect of species, grain orientation and heat flux. *Fire Safety Journal*, *36*(4), 391–415.

Suzanne, M. (2009). *Conditions d'Utilisation de Modèles Numériques pour l'Evaluation de Scénarios de Départ de Feu dans un Cadre d'Investigation Post-Incendie*. Institut National des Sciences Appliquées de Rouen.

Tewarson, A. (2002). Generation of Heat and Chemical Compounds in Fires. In NFPA & SFPE (Eds.), *SFPE Handbook of Fire Protection Engineering - Third Edition* (pp. 616–695).

Thomas, D. G., & Baker, G. (2008). Implementation of Urban Fire Spread Model as NZFS Tools, *9*(80), 28.

Thomas, P. H. (1972). Self-Heating and Thermal Ignition—A Guide to Its Theory and Application. *Ignilion, Heat Release, and Noncombusttbility of Marerial*, *ASTM STP 5*(American Scrcicty for Testing and Materials), 56–82.

Thomas, P. H. (1973). An approximate theory of "hot spot" critically. *Combustion and Flame*, *21*(1), 99–109.

Torero, J. L. (2016). Flaming Ignition of Solid Fuels. In *SFPE Handbook of Fire Protection Engineering* (Springer, pp. 633–661).

Tsai, T. H., Li, M. J., Shih, I. Y., Jih, R., & Wong, S. C. (2001). Experimental and numerical study of autoignition and pilot ignition of PMMA plates in a cone calorimeter. *Combustion and Flame*, *124*, 466–480.

Tzeng, L. S., Atreya, a., & Wichman, I. S. (1990). A one-dimensional model of piloted ignition. *Combustion and Flame*, *80*, 94–107.

Union Européenne. (1988). 89/106/CEE.

Van't Hoff, J. H. (1884). *Etudes de Dynamique Chimique*. https://doi.org/10.1017/CBO9781107415324.004

Van Tiggelen, A. (1968). *Oxydations et combustions*. Paris.

Veynante, D., & Vervisch, L. (2002). Turbulent combustion modeling. *Progress in Energy and Combustion Science*, *28*.

Vovelle, C., & Delfau, J.-L. (1997). Combustion des plastiques. *Techniques de l'Ingénieur*, 27.

Weber, R. O. (1991). MODELLING FIRE SPREAD THROUGH FUEL BEDS, *17*, 67–82.

Williams, F. A. (1985). *Combustion Theory - Second Edition*. *Journal of Chemical Information and Modeling* (Vol. 53).

Witkowski, A., Stec, A. A., & Hull, T. R. (2016). Thermal Decomposition of Polymeric Materials. In *SFPE Handbook of Fire Protection Engineering* (pp. 167–254).

Xie, W., & DesJardin, P. E. (2009). An embedded upward flame spread model using 2D direct numerical simulations. *Combustion and Flame*, *156*(2), 522–530.

Yaws, C. L. (1995). *Handbook of Thermal Conductivity - Volume 2 - Organic Compounds C5 to C7*. *Statewide Agricultural Land Use Baseline 2015* (Gulf Publi, Vol. 1). Houston.

Zabetakis, M. G. (1965). *Flammability Characteristics of Combustible Gases and Vapors*. Washington D.C.

Zhao, S. (2011). Simulation of Mass Fire-Spread in Urban Densely Built Areas Based on Irregular Coarse Cellular Automata. *Fire Technology*, *47*(3), 721–749.

Zhou, Y., & Fernandez-Pello, A. C. (2000). Numerical modeling of endothermic pyrolysis and ignition delay of composite materials exposed to an external radiant heat flux. *Proceedings of the Combustion Institute*, *28*(2), 2769–2775.

Etude numérique de l'auto-inflammation des solides par Simulation Numérique Directe : application au Polyméthacrylate de méthyle.

La propagation des incendies à l'échelle de locaux et de villes est un enjeu majeur. Elle est notamment conditionnée par l'inflammation des matériaux dans les locaux attenants au sinistre. Cette dernière résulte de l'allumage du mélange gazeux combustible issu de la décomposition thermique de la phase condensée.

Deux types d'inflammation sont définis dans la littérature : l'inflammation pilotée par la présence d'une source d'allumage, et l'auto-inflammation, résultant de l'emballement de la réaction dans la phase gazeuse. L'auto-inflammation joue un rôle majeur dans le contexte d'une propagation de local à local. Toutefois, ce processus n'a été que très peu étudié expérimentalement du fait de sa complexité et seules des analyses théoriques sont aujourd'hui disponibles concernant les phénomènes en jeu.

L'enjeu de la présente étude est de caractériser les régimes d'autoallumage en fonction de différentes typologies de solide (comportement thermique et cinétique), afin de mieux comprendre leurs processus et leurs conditions d'occurrence. Cette compréhension fine permet alors de développer des modèles plus globaux de propagation pour une considération déterministe du risque incendie à l'échelle urbaine.

Le caractère bref et local de l'auto-inflammation impose le choix d'une méthode de résolution complète des écoulements, des transferts et de la chimie. La Simulation Numérique Directe (DNS) a donc été sélectionnée afin de capter ces phénomènes, avec l'introduction d'une cinétique fine et non infiniment rapide de la décomposition thermique et de la combustion.

Mots clés : Simulation par ordinateur ; Combustion spontanée ; Polyméthacrylate de méthyle--Inflammabilité ; Méthacrylate de méthyle ; Incendie--Prévention--Recherche ; Feu--Production et usage ; Pyrolyse ; Cinétique chimique ; Thermocinétique ; Stoechiométrie ; Densité volumique de masse

Numerical study of solid fuels auto-ignition using Direct Numerical Simulation: Application to the Polymethyl methacrylate.

Fire propagation on the scale of buildings and cities is a major stake. It is conditioned by the ignition of solid fuels in rooms adjacent to the one where the disaster originally takes place. The ignition is so piloted by the initiation of the combustion reaction of the gaseous mixture stemming from the thermal decomposition of the condensed phase induced by heat transfer.

Two types of ignition are defined in the literature: piloted-ignition related to the presence of a hot spot and auto-ignition resulting from the thermal runaway within the gas phase. The auto-ignition plays a major role in the context of fire spread between rooms. However, this process has been very little experimentally studied, because of its complexity, and only theoretical analyses were lead concerning the phenomena which take place during solid fuels auto ignition.

The aim of the present study is to characterize auto-ignition regimes according to various solid typologies (regarding to thermal and kinetic behaviour) in order to understand better their processes and their occurrence conditions. Thereby, this fine understanding allows to develop global models of fire spread for a deterministic consideration of the fire hazards at urban scale.

The brief and local character of the auto-ignition requires the choice of a complete resolution for flows, transfers and chemistry. Thus, the Direct Numerical Simulation (DNS) was selected to capture the phenomena, with the introduction of a fine and non-infinitely fast chemistry of thermal decomposition and combustion.

Keywords: Computer simulation ; Combustion, Spontaneous ; Polymethylmethacrylate--Flammability ; Methyl methacrylate ; Fire prevention--Research ; Firemaking ; Pyrolysis ; Chemical kinetics ; Heat—Transmission ; Stoichiometry ; Density