



HAL
open science

Développement d'un dispositif métrologique multi-capteurs pour la mesure du dépôt d'aérosols dans un local lors d'un incendie

Amel Kort

► **To cite this version:**

Amel Kort. Développement d'un dispositif métrologique multi-capteurs pour la mesure du dépôt d'aérosols dans un local lors d'un incendie. Génie des procédés. Université de Lyon, 2021. Français. NNT : 2021LYSEM006 . tel-03424583

HAL Id: tel-03424583

<https://theses.hal.science/tel-03424583>

Submitted on 10 Nov 2021

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.



N°d'ordre NNT : 2021LYSEM006

THESE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LYON

opérée au sein de
I'Ecole des Mines de Saint-Etienne

Ecole Doctorale N° 488
Sciences, Ingénierie, Santé

Spécialité de doctorat : Génie des procédés

Soutenue publiquement le 29/01/2021, par :

Amel Kort

Développement d'un dispositif métrologique multi-capteurs pour la mesure du dépôt d'aérosols dans un local lors d'un incendie

Devant le jury composé de :

Géhin, Evelyne	Professeure / UPEC	Présidente
Blondeau-Pâtissier, Virginie	Maître de conférences / Université de Franche-Comté	Rapporteuse
Sagot, Benoît	Maître de conférences / ESTACA	Rapporteur
Brohez, Sylvain	Professeur / Université de Mons	Examineur
Vernoux, Philippe	Directeur de recherche CNRS/Université de Lyon	Examineur
Viricelle, Jean-Paul	Directeur de recherche / EMSE	Directeur de thèse
Ouf, François-Xavier	Ingénieur chercheur HDR / IRSN	Co-directeur de thèse
Lakhmi, Riadh	Maître assistant / EMSE	Co-encadrant de thèse
Breuil, Philippe	Ingénieur de recherche / EMSE	Invité
Gelain, Thomas	Ingénieur chercheur / IRSN	Invité
Malet, Jeanne	Ingénieure chercheuse HDR / IRSN	Invitée

Spécialités doctorales
 SCIENCES ET GENIE DES MATERIAUX
 MECANIQUE ET INGENIERIE
 GENIE DES PROCEDES
 SCIENCES DE LA TERRE
 SCIENCES ET GENIE DE L'ENVIRONNEMENT

Responsables :
 K. Wolski Directeur de recherche
 S. Drapier, professeur
 F. Gruy, Maître de recherche
 B. Guy, Directeur de recherche
 D. Graillot, Directeur de recherche

Spécialités doctorales
 MATHEMATIQUES APPLIQUEES
 INFORMATIQUE
 SCIENCES DES IMAGES ET DES FORMES
 GENIE INDUSTRIEL
 MICROELECTRONIQUE

Responsables
 O. Roustant, Maître-assistant
 O. Boissier, Professeur
 JC. Pinoli, Professeur
 N. Absi, Maître de recherche
 Ph. Lalevée, Professeur

EMSE : Enseignants-chercheurs et chercheurs autorisés à diriger des thèses de doctorat (titulaires d'un doctorat d'Etat ou d'une HDR)

ABSI	Nabil	MR	Génie industriel	CMP
AUGUSTO	Vincent	CR	Image, Vision, Signal	CIS
AVRIL	Stéphane	PR2	Mécanique et ingénierie	CIS
BADEL	Pierre	MA(MDC)	Mécanique et ingénierie	CIS
BALBO	Flavien	PR2	Informatique	FAYOL
BASSEREAU	Jean-François	PR	Sciences et génie des matériaux	SMS
BATTON-HUBERT	Mireille	PR2	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
BEIGBEDER	Michel	MA(MDC)	Informatique	FAYOL
BLAYAC	Sylvain	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
BOISSIER	Olivier	PR1	Informatique	FAYOL
BONNEFOY	Olivier	PR	Génie des Procédés	SPIN
BORBELY	Andras	MR(DR2)	Sciences et génie des matériaux	SMS
BOUCHER	Xavier	PR2	Génie Industriel	FAYOL
BRODHAG	Christian	DR	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
BRUCHON	Julien	MA(MDC)	Mécanique et ingénierie	SMS
CAMEIRAO	Ana	MA(MDC)	Génie des Procédés	SPIN
CHRISTIEN	Frédéric	PR	Science et génie des matériaux	SMS
DAUZERE-PERES	Stéphane	PR1	Génie Industriel	CMP
DEBAYLE	Johan	MR	Sciences des Images et des Formes	SPIN
DEGEORGE	Jean-Michel	MA(MDC)	Génie industriel	Fayol
DELAFOSSÉ	David	PR0	Sciences et génie des matériaux	SMS
DELORME	Xavier	MA(MDC)	Génie industriel	FAYOL
DESRAYAUD	Christophe	PR1	Mécanique et ingénierie	SMS
DJENIZIAN	Thierry	PR	Science et génie des matériaux	CMP
BERGER-DOUCE	Sandrine	PR1	Sciences de gestion	FAYOL
DRAPIER	Sylvain	PR1	Mécanique et ingénierie	SMS
DUTERTRE	Jean-Max	MA(MDC)		CMP
EL MRABET	Nadia	MA(MDC)		CMP
FAUCHEU	Jenny	MA(MDC)	Sciences et génie des matériaux	SMS
FAVERGEON	Loïc	CR	Génie des Procédés	SPIN
FEILLET	Dominique	PR1	Génie Industriel	CMP
FOREST	Valérie	MA(MDC)	Génie des Procédés	CIS
FRACZKIEWICZ	Anna	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
GARCIA	Daniel	MR(DR2)	Sciences de la Terre	SPIN
GAVET	Yann	MA(MDC)	Sciences des Images et des Formes	SPIN
GERINGER	Jean	MA(MDC)	Sciences et génie des matériaux	CIS
GOEURIOT	Dominique	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
GONDRAN	Natacha	MA(MDC)	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
GONZALEZ FELIU	Jesus	MA(MDC)	Sciences économiques	FAYOL
GRAILLOT	Didier	DR	Sciences et génie de l'environnement	SPIN
GROSSEAU	Philippe	DR	Génie des Procédés	SPIN
GRUY	Frédéric	PR1	Génie des Procédés	SPIN
HAN	Woo-Suck	MR	Mécanique et ingénierie	SMS
HERRI	Jean Michel	PR1	Génie des Procédés	SPIN
KERMOUCHE	Guillaume	PR2	Mécanique et Ingénierie	SMS
KLOCKER	Helmut	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
LAFOREST	Valérie	MR(DR2)	Sciences et génie de l'environnement	FAYOL
LERICHE	Rodolphe	CR	Mécanique et ingénierie	FAYOL
MALLIARAS	Georges	PR1	Microélectronique	CMP
MOLIMARD	Jérôme	PR2	Mécanique et ingénierie	CIS
MOUTTE	Jacques	CR	Génie des Procédés	SPIN
NAVARRO	Laurent	CR		CIS
NEUBERT	Gilles			FAYOL
NIKOLOVSKI	Jean-Pierre	Ingénieur de recherche	Mécanique et ingénierie	CMP
NORTIER	Patrice	PR1	Génie des Procédés	SPIN
O CONNOR	Rodney Philip	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
PICARD	Gauthier	MA(MDC)	Informatique	FAYOL
PINOLI	Jean Charles	PR0	Sciences des Images et des Formes	SPIN
POURCHEZ	Jérémy	MR	Génie des Procédés	CIS
ROUSSY	Agnès	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
ROUSTANT	Olivier	MA(MDC)	Mathématiques appliquées	FAYOL
SANAUR	Sébastien	MA(MDC)	Microélectronique	CMP
SERRIS	Eric	IRD		FAYOL
STOLARZ	Jacques	CR	Sciences et génie des matériaux	SMS
TRIA	Assia	Ingénieur de recherche	Microélectronique	CMP
VALDIVIESO	François	PR2	Sciences et génie des matériaux	SMS
VIRICELLE	Jean Paul	DR	Génie des Procédés	SPIN
WOLSKI	Krzysztof	DR	Sciences et génie des matériaux	SMS
XIE	Xiaolan	PR0	Génie industriel	CIS
YUGMA	Gallian	CR	Génie industriel	CMP

REMERCIEMENTS

C'est avec émotion que je m'attaque à la rédaction de cette partie qui me tient particulièrement à cœur.

Cette thèse a été réalisée à l'école des Mines de Saint-Etienne et à l'IRSN au sein du service du confinement et de l'aérosdispersion des polluants (SCA) à Saclay où règne une ambiance unique et ce grâce à notre chef de service Laurent Bouilloux. Je te remercie Laurent pour ta bienveillance.

Je souhaite également remercier François Gensdarmes, chef du laboratoire de physique et de métrologie des aérosols pour ses précieux conseils et sa gestion efficace du laboratoire.

Je témoigne ma reconnaissance auprès des membres du jury d'avoir accepté gentiment, dans ces conditions particulières, d'évaluer mon travail. Je commence donc par remercier Madame Evelyne Géhin d'avoir accepté de présider le jury mais également pour ses questions pertinentes. J'adresse mes vifs remerciements à Madame Virginie Blondeau-Patissier et à Monsieur Benoit Sagot d'avoir accepté de rapporter mon manuscrit. Je vous remercie pour l'intérêt que vous avez porté à mon travail et au temps que vous y avez consacré. J'ai beaucoup apprécié nos échanges pendant la soutenance. Un grand merci à Monsieur Sylvain Brohez et Monsieur Philippe Vernoux pour avoir accepté d'examiner ce travail. Je les remercie également pour leurs remarques pertinentes et les questions particulièrement intéressantes.

Je remercie particulièrement et chaleureusement mon équipe exceptionnelle d'encadrement et je leur tire mon chapeau pour la qualité d'encadrement, leur disponibilité et la bonne ambiance qui règne pendant les réunions.

Merci à mon directeur de thèse Jean-Paul Viricelle pour ses conseils, sa pédagogie ainsi que son excellent suivi et encadrement de ce travail. Jean-Paul, tu as été toujours disponible, réactif et tu m'as beaucoup aidé dans le sprint final. Je te remercie énormément.

Mon co-directeur de thèse François-Xavier OUF est un encadrant hors-pair, tant sur le plan scientifique que sur le plan personnel. FX, tu fais partie des personnes qui me marqueront à jamais. J'ai beaucoup appris de toi durant ces trois années. Tu as été présent tout au long de la thèse, toujours de bonne humeur et de bons conseils. Tu m'as motivé à aller toujours vers l'avant et tu m'as toujours rassuré pendant les moments difficiles. Je n'oublierai jamais les dernières manips au 83 et les nombreuses relectures du manuscrit. Merci pour tout.

Cette thèse n'aurait pas vu le jour sans l'expert en métrologie Philippe Breuil. Merci à toi Philippe pour tes conseils pointus, ta transmission du savoir-faire et la résolution des problèmes à distance sur mes manips. Je te remercie également pour les nombreuses corrections apportées au manuscrit. Je profite de ces remerciements pour te rendre un hommage puisque tu partiras bientôt en retraite.

Pour compléter cette équipe de choc, tout en gardant le meilleur pour la fin, je nomme mon encadrant Riadh Lakhmi sacré meilleur joueur tout au long de ces trois années. Je tiens à t'adresser, Riadh, toute ma gratitude pour être toujours présent et bienveillant. Je te remercie pour ton aide plus qu'indispensable et pour les longues heures passées au téléphone pour essayer de trouver les solutions et d'interpréter les résultats. Tu as été recruté à l'Ecole des Mines quand j'ai commencé ma thèse et maintenant au-delà d'être encadrant, tu es devenu ami. Je te souhaite beaucoup de succès dans ta carrière d'enseignant chercheur.

Je remercie également Thomas Gelain, avec qui le travail se déroule toujours dans la joie et la bonne humeur. Merci Thomas pour ton efficacité et ta réactivité même en télétravail. Je remercie également Jeanne Malet pour ces remarques pertinentes et sa gentillesse.

Ces trois années de thèse n'auraient pas pu être aussi exceptionnelles sans chacun de vous !

Esmaani Gwenichou « Grand fan de Makis et tête de liste » (pour marquer le but d'égalité) et graver les bons souvenirs de la pièce 14 (Hoarau, 2020), merci à toi mon cher ami de m'avoir accompagné dans l'expérience inédite des rats de labos. Si Mouheb, je ne te remercierai assez pour tout. Je te

promets qu'il y aura du couscous à l'osben pour une occasion très spéciale qu'on attend depuis que je te connais.

Merci à toi Cécile pour ta gentillesse et pour les multiples commandes de gaz. Je remercie également Samuel « Sam Sam » pour les agréables pauses permettant souvent de voyager et de changer d'humeur quand on sature à la fin de la journée.

Je remercie également l'équipe IRMA l'Hortense (maman de Juliette) et **Stephanos** (supporter fidèle de l'étoile du Sahel) pour les bons moments et les rigolades. Vous formez une équipe de choc. Je remercie également Céline « cheffe du LECEV » ainsi que l'équipe Persée Audrey (qui rime avec bonne humeur) et Benoît Marcillaud. Merci benoît de m'avoir donné le feu vert pour utiliser les trésors de ta caverne d'Ali Baba.

Gréééégoiiiire, je te remercie pour tes coups de mains pour le calcul d'incertitude et les conduites au Guichet avant de devenir Versaillais. Excellent choc mou au foot ! Je remercie également Bernadette titulaire de l'équipe EPICIA.

Une pensée particulière à Catherine et Geneviève. Merci pour votre efficacité et pour les bons moments passés à la cantine.

Je salue les efforts déployés par Yann responsable HSE du SCA qui s'acharne à nous faire respecter les gestes barrières. Merci au fameux couple Juhel Fauvel pour leur sympathie et la veille continue au rangement du laboratoire et la bonne utilisation de matériel.

Je remercie Mamadou et Pauline, Valérie et Jean Baptiste pour leur gentillesse. Merci à Matheus de m'avoir aidé à déménagé. Je te souhaite une belle carrière à l'Ineris.

Une dédicace spéciale aux petits thésards Hantao, Lina, Modou, Jonathan, Delphine, Zeinab et Marie. Sans oublier les anciens Laura, Alexis, Benjamin et Carinouch avec qui on a partagé des moments inoubliables. Une dédicace aux jeunes Marine et Hanaa heureuses héritières de la pièce 14.

Finalement, je ne pourrais clore la liste de remerciements du 89 sans faire un petit coucou à Anissa.

Je souhaiterais également remercier particulièrement les personnes qui sont venues spécialement pour me soutenir le jour de la soutenance. Je vais donc commencer par toi Pascal. Tu es d'une gentillesse et d'une sensibilité extrêmes. Je remercie également Soso et Florent Dany.

La liste est vraiment longue, je souhaiterais donc remercier tout le SCA. Merci à Laurent Ricciardi pour les relectures des productions scientifiques, à Jean Claude pour ses conseils, à Coco pour l'organisation des séminaires et de l'AG, à Jérôme pour tous ses conseils et son expertise dans la partie modélisation et à tous ceux que je n'ai pas nommé. Chacun de vous m'a marqué.

Côté Saint-Etienne, je souhaiterais remercier Leticia pour les manips ATG/Spectro, Loïc, Mathilde, Maxime et Marie-Pierre.

Je ne pourrai pas ne pas faire un clin d'œil à Salah qui m'a invitée chez lui le jour de l'aid bien qu'on se connaissait à peine, Rachid, Guita et Mohamed avec qui j'ai partagé le bureau et passé de bons moments.

J'aimerais dédier ce travail aux personnes les plus chères et les plus précieuses. Mes Parents Tahoura et Loulou sans qui je n'aurais jamais été la personne que je suis aujourd'hui. Je ne pourrai jamais vous remercier pour votre soutien indéfectible et amour inconditionnel. Votre absence pendant la soutenance tant attendue m'a beaucoup peiné. Vous me manquez énormément et je souhaite à travers ces mots vous exprimer ma profonde gratitude et vous décerner le prix des meilleurs parents. Vous êtes uniques ! Je vous aime mes petits retraités adorés.

Ma petite sœur Dardoura alias « DO », est le meilleur cadeau qui m'ait été offert. Merci à toi d'embellir mon quotidien et d'être toujours là pour moi. Tu ne te rends peut être pas compte mais ta présence est plus que indispensable.

Un grand merci à grand-mère qui me manque beaucoup et que j'espère revoir bientôt, à mes tantes et cousins et à toute ma famille, amis et tonton Slah de m'avoir soutenu.

Et pour finir en beauté, je ne peux que remercier Ahmouda qui inonde ma vie de bonheur.

TABLE DES MATIERES

TABLE DES MATIERES	IV
LISTE DES TABLEAUX	VIII
LISTE DES FIGURES	VIII
INTRODUCTION GENERALE	1
CHAPITRE.I ETAT DE L'ART	4
INTRODUCTION	5
I.1 L'INCENDIE ET SES CONSEQUENCES	6
I.1.1 Méthodologie adoptée pour estimer le rejet de substances dangereuses dans l'environnement.....	6
I.1.2 Facteur d'émission η_s	7
I.1.3 Dépôts sur les parois du local en feu (1-C ₂)	8
I.1.4 Dépôts dans les voies de rejet (1-C ₃)	8
I.2 MECANISMES ET MODELISATION DU DEPOT DES SUIES	8
I.2.1 Mécanismes du dépôt des suies lors d'un incendie	9
I.2.1.1 Dépôt par diffusion brownienne	9
I.2.1.2 Dépôt par thermophorèse.....	10
I.2.1.3 Dépôt par impaction inertielle.....	11
I.2.1.4 Dépôt par sédimentation.....	11
I.2.2 Etat des connaissances sur le dépôt des suies lors d'un incendie.....	11
I.2.2.1 Synthèse des modèles disponibles pour prédire le dépôt en cas d'incendie	11
I.2.2.2 Synthèse des connaissances expérimentales sur les dépôts de suies dans des locaux	12
I.2.2.3 Développement technologique.....	14
I.3 TECHNOLOGIES DE CAPTEURS DEDIES A LA MESURE DES AEROSOLS	15
I.3.1 Capteurs basés sur la charge électrique	15
I.3.1.1 Capteurs par décharge électrique (SDSS : Spark discharge soot sensors)	15
I.3.1.2 Capteurs électrostatiques	16
I.3.2 Capteurs gravimétriques.....	18
I.3.2.1 Capteurs Surface Acoustic Wave (SAW)	18
I.3.2.2 Capteurs Film Bulk Acoustic Resonator (FBAR)	18
I.3.2.3 Capteurs Quartz Cristal Microbalance (QCM).....	19
I.3.2.4 Micro-résonateurs (MEMS).....	20
I.3.3 Capteurs optiques	21
I.3.4 Capteurs accumulatifs	21
I.3.5 Le capteur résistif.....	22
I.4 LES CAPTEURS DE GAZ CO₂ ET CO D'INTERET	24
I.4.1 Capteurs NDIR (Non Dispersive Infrared Sensor)	25

I.4.2	Capteurs à base d'oxyde métallique (MOX)	25
I.5	FORMATION DES SUIES DANS UNE FLAMME.....	26
I.6	CARACTERISTIQUES DES SUIES FORMANT LE DEPOT.....	27
I.6.1	Phase de dépôt.....	28
I.6.1.1	Définition des différents domaines.....	28
I.6.1.2	Distribution granulométrique des suies	30
I.6.1.3	Morphologie fractale des suies.....	30
I.6.1.4	Diamètres équivalents.....	31
I.6.2	Mesure de la conductivité électriques des suies	32
I.6.3	Régénération : oxydation des suies	35
CONCLUSION	37
CHAPITRE.II	QUANTIFICATION EX-SITU DU DEPOT A GRANDE ECHELLE ET IDENTIFICATION DU BESOIN EN CAPTEURS	38
INTRODUCTION	39
II.1	QUANTIFICATION EX-SITU DES SUIES PRODUITES A GRANDE ECHELLE ..	40
II.1.1	Conditions et moyens expérimentaux de l'essai incendie	40
II.1.1.1	Description du local incendie et configuration des essais.....	40
II.1.1.2	Méthode de collecte des suies pendant l'essai incendie	42
a)	Caractéristiques des cibles passives de dépôt	42
b)	Prélèvements par aspiration	43
II.1.1.3	Localisation des cibles et des prélèvements par aspiration	44
a)	Cibles aux parois (mur et plafond) et au sol	44
b)	Prélèvements par aspiration	45
II.1.2	Observations qualitatives et quantification des suies.....	45
II.1.2.1	Principales observations qualitatives	45
II.1.2.2	Analyse quantitative des suies déposées (collectées par aspiration)	48
II.1.2.3	Estimation du flux des suies produites et des caractéristiques des dépôts.....	50
II.1.3	Conclusions sur les essais incendies à grande échelle	52
II.2	DEMARCHE ET STRATEGIE POUR L'OPTIMISATION DU NOMBRE DE CAPTEURS.....	52
II.2.1	Définition du scénario incendie	54
II.2.1.1	Le combustible.....	54
II.2.1.2	Configuration expérimentale d'incendie.....	55
II.2.1.3	Caractéristiques des aérosols émis par un foyer incendie TBP/TPH	57
II.2.1.4	Synthèse	58
II.2.2	Etude numérique	59
II.2.2.1	Corrélations des hauteurs, des températures et des vitesses de flamme	59

II.2.2.2	Présentation du logiciel ANSYS CFX et de la modélisation associée	60
II.2.2.2.1	Equations de transport	61
II.2.2.2.2	Modèle de transport des particules	62
II.2.2.3	Résultats numériques	67
II.2.2.4	Stratégie de quantification	73
CONCLUSION	77
CHAPITRE.III	VERS LA QUANTIFICATION IN-SITU ET TEMPS-REEL DU DEPOT DE	
SUIES	78	
INTRODUCTION	79
III.1	MATERIELS ET METHODES	80
III.1.1	Fabrication et qualification des capteurs	81
III.1.1.1	Étapes de fabrication du capteur résistif de suies	81
a)	Face avant	81
b)	Face arrière	84
III.1.1.2	Validation du procédé de fabrication des capteurs résistifs.....	85
III.1.2	Pilotage et acquisition du signal du capteur résistif	88
III.1.2.1	Acquisition du signal et polarisation	88
III.1.2.2	Régénération du capteur résistif	88
III.1.3	Exposition du capteur aux suies	89
III.1.3.1	Sources de génération des suies	89
a)	Génération des suies du CAST.....	89
b)	Génération des suies de TBP/TPH.....	90
III.1.3.2	Protocole expérimental	91
III.1.3.3	Granulométrie des suies produites par le Mini-CAST et par le TBP/TPH	93
a)	Suies produites par le Mini-CAST	93
b)	Suies produites par le TBP/TPH.....	93
III.2	METHODE DE MESURE 1 : CONDUCTANCE ELECTRIQUE	94
III.2.1	Réponse électrique du capteur résistif	95
III.2.1.1	Eléments théoriques liés au signal de conductance du capteur	95
III.2.1.2	Effet de la tension de polarisation sur la réponse en conductance du capteur résistif	
	100	
III.2.2	Développement et exploitation d'une méthode d'étalonnage en masse déposée du	
	capteur résistif	106
III.2.2.1	Protocole de quantification	106
III.2.2.2	Effet de la tension de polarisation sur la masse déposée	110
III.2.3	Etalonnage du capteur résistif	111
III.2.3.1	Etalonnage du capteur résistif pour les suies issues du CAST	111

III.2.3.2	Étalonnage du capteur résistif pour les suies issues du TBP/TPH	114
III.2.3.3	Comparaison des courbes d'étalonnage des suies issues du CAST et du TBP/TPH....	116
III.3	METHODE DE MESURE 2 : MESURE D'EMISSION DE CO₂	117
III.3.1	Choix des capteurs de gaz	117
III.3.1.1	Résultats de l'analyse couplée ATG/ Spectroscopie de masse des suies du CAST sous air	118
III.3.1.2	Résultats de l'analyse couplée ATG/ Spectroscopie de masse des suies TBP/TPH sous air	118
III.3.1.3	Conception de la cellule capteurs.....	120
III.3.1.4	Etalonnage du capteur CO ₂ à l'aide de concentrations connues de CO ₂	121
III.3.2	Interprétation de la variation de concentration de CO₂ lors de la régénération ...	122
III.3.2.1	Protocole expérimental	122
III.3.2.2	Variation du signal du capteur CO ₂ après combustion des suies CAST et TBP/TPH...	124
III.3.2.3	Calcul de masse déposée à partir de la différence des concentrations mesurées pour les suies du CAST et TBP TPH.....	127
III.3.2.4	Courbe de prédiction pour les suies du CAST et TBP TPH.....	129
III.4	COMPARAISON DES DEUX METHODES DE MESURE, CONDUCTANCE ELECTRIQUE ET EMISSION DE CO₂	130
	CONCLUSIONS SUR L'APPLICABILITE DES DEUX METHODES DE MESURE A UNE SITUATION REELLE D'INCENDIE	131
	CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES.....	134
	REFERENCES.....	138
	ANNEXE A : PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DES DILUTEURS ET DU SMPS	150
	ANNEXE B : REPOSE DU CAPTEUR CO₂ APRES EXPOSITION DU CAPTEUR DANS LE BANC DE GENERATION DES SUIES.....	152

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Facteurs d'émission des suies du TBP/TPH reportés dans la littérature.....	8
Tableau 2 : Caractéristiques morphologiques des particules produites lors d'un incendie	31
Tableau 3 : Conductivités électriques sous compression de suies modèle	32
Tableau 4 : Caractéristiques du filtre de quartz pur (Tissuquartz 2500 QAT - UP) (données constructeur)	43
Tableau 5 : Propriétés des dépôts formés à la paroi	52
Tableau 6 : Caractéristiques du TBP/TPH en phase liquide.....	55
Tableau 7 : Caractéristiques du scénario incendie	58
Tableau 8 : Paramètres des calculs	65
Tableau 9 : Conditions aux limites pour les calculs	65
Tableau 10 : Données d'entrée pour les calculs	66
Tableau 11 : Caractéristiques des aérosols injectés	67
Tableau 12 : Part de dépôt et COV_{dparoi} sur les différentes parois.....	73
Tableau 13 : Débits de gaz utilisés en PF1	90
Tableau 14: Analyse de la contribution d'un filtre vierge (TC = carbone total)	108
Tableau 15 : Biais, en termes de masse quantifiée de EC et de OC, associés aux différentes étapes du protocole de quantification	109
Tableau 16 : Spécifications du capteur CO_2	120
Tableau 17 : Masse déposées, sur le capteur résistif exposé 1 heure aux suies du CAST et du TBP/TPH, quantifiées avec les deux méthodes de mesure	131

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Représentation simplifiée du confinement d'une installation nucléaire en situation accidentelle	7
Figure 2 : Dépôt d'une particule sur un obstacle par diffusion brownienne [24]	9
Figure 3 : Particule soumise à un gradient de température [25]	10
Figure 4 : Dépôt d'une particule sur un obstacle par impaction inertielle [24].....	11
Figure 5 : Dispositif expérimental du dépôt de suies de Riahi [31].....	13
Figure 6 : Instrumentation du local d'essai : vue de côté de Decoster [32]	14
Figure 7 : Courbe d'étalonnage entre la masse déposée la conductance , Mensch & Cleary [11]	15
Figure 8 : Schéma de principe du capteur SDSS [40]	16
Figure 9 : Schéma de principe du capteur Emisense [42]	17
Figure 10 : Schéma du capteur de particules PEGASOR [44].....	17
Figure 11 : Structure d'un capteur SAW [52]	18
Figure 12 : Schéma de principe d'un capteur FBAR [54]	19
Figure 13 : Capteur résonnant de type QCM permettant la détection de la masse des particules : a) vue d'ensemble d'un capteur combiné à un impacteur virtuel ; b) Élément sensible du capteur QCM [55].....	19

Figure 14 : Schéma d'un résonateur plat [60]	20
Figure 15 : Schéma de principe d'une mesure d'extinction à deux angles [70]	21
Figure 16 : Schéma de capteur capacitif élaboré par Hagen et al. [71]	22
Figure 17 : Schéma de capteur capacitif élaboré par Kondo <i>et al.</i> [72]	22
Figure 18 : Principe de fonctionnement d'un capteur résistif [79]	23
Figure 19 : Prototype d'un capteur résistif élaboré par EFI Automative	23
Figure 20 : Construction de pont par électrophorèse [86]	24
Figure 21 : Principe de fonctionnement du capteur NDIR [88]	25
Figure 22 : Mécanisme de croissance des particules de suie au sein d'une flamme de diffusion laminaire à co-flux [99]	27
Figure 23 : Illustration schématique de l'évolution du dépôt entre les électrodes (en considérant la géométrie et les conditions employées par Grondin et al. [8]	28
Figure 24 : Évolution du nombre de Knudsen en fonction du diamètre de la particule pour des températures de 20°C à 800°C	29
Figure 25 : Conductivité de la poudre de « suie » mesurée par la méthode de Van der Pauw. (conditions décrites dans [136])	33
Figure 26 : Microstructure d'une particule de suie [139]	34
Figure 27 : Spectre d'analyse thermogravimétrique couplée à oxydation en température programmé [151]	35
Figure 28 : Spectre de masse des suies produits de combustion [151]	36
Figure 29 : Vue en perspective de DIVA	40
Figure 30 : Illustration du scénario incendie (Essai A2 à gauche et essai A1 à droite). Le cercle et le triangle désignent respectivement le foyer en vue du dessus et vue de face, le carré bleu (vue de dessus) et la flèche épaisse bleue (vue de face) représente la bouche d'admission et le carré orange (vue de dessus) et la flèche épaisse orange (vue de face) la bouche d'extraction	41
Figure 31 : Emplacement du foyer ① dans le local 3 et de la trémie ② entre les locaux 3 et 4	41
Figure 32 : Schéma de la cible de dépôt sur les parois (gauche) et cible installée au sol (droite) ...	42
Figure 33 : Schéma d'aspiration des suies sur les différentes parois	43
Figure 34 : Cibles installées respectivement sur les parois est, sud, ouest et nord du Local 3 (photos réalisées avant les essais)	44
Figure 35 : Disposition des cibles sur le sol du Local 3	44
Figure 36 : Différentes surfaces de dépôt (de gauche à droite : verre, isolant, béton, métal)	45
Figure 37 : Vue rapprochée des convertisseurs analogiques et numériques en partie haute du local L3 avant (gauche) et après (droite) l'essai A2	45
Figure 38 : Signaux de sortie des convertisseurs numériques en partie haute du local L3 lors de l'essai A2	46
Figure 39 : Observations des cibles du côté Sud-Est (gauche), près du foyer du côté Nord-Ouest (milieu) et au sol (droite) dans le local L3 après incendie. de l'emplacement (gauche) des cibles du côté Sud-Est, près du foyer du côté Nord-Ouest et au sol dans le local L3 (après essai)	46
Figure 40 : Dépôt sur les surfaces représentées sur la figure 36 (de gauche à droite : verre, isolant, béton, métal)	47
Figure 41 : Observation d'une cible déposée au sol après incendie	47

Figure 42 : Photographie du plafond du côté Sud-Est après l'incendie : ① marque de la cible passive, ② surface du plafond après aspiration	47
Figure 43 : Filtres obtenus après aspiration sur les parois de différentes natures	48
Figure 44 : Illustration d'un filtre après aspiration et après analyses OC/EC	48
Figure 45 : Dépôts de suies en g.m ⁻² sur les différentes parois du local 3 lors de l'essai A2 (en bleu) et A1 (en rouge)	49
Figure 46 : Masses des suies déposées en fonction de la nature des parois des essais A2 (1 m ²) et A1 (0,4 m ²)	50
Figure 47 : Représentation idéale de la flamme et principaux mécanismes influençant le débit de pyrolyse du combustible [158]	53
Figure 48 : Représentation de la ventilation de l'installation DIVA [158]	55
Figure 49 : Taux de perte de masse a) du TPH dans DIVA [157], b) du TBP/TPH dans PLUTON [17] en fonction du temps.....	56
Figure 50 : Courbe de puissance du combustible (TPH) dans DIVA [157]	56
Figure 51 : Evolution du diamètre des particules primaires des suies en fonction du facteur d'émission massique de suies [12]	57
Figure 52 : Cliché MET d'un agrégat a) sans phase adsorbée b) avec phase adsorbée [19]	58
Figure 53 : Domaine de calcul.....	63
Figure 54 : Schéma d'une paroi (vue de face) divisée en 4 zones et dans chaque zone 2 surfaces (capteur et cible)	64
Figure 55 : Modélisation simplifiée d'un incendie (Essai PRISME D1) et emplacement des monitorings points dans le domaine de calcul	66
Figure 56 : Comparaison des profils de température	67
Figure 57 : a) Champs de gradients de température aux parois du local, b) Champs de dépôts aux parois du local (sans thermophorèse), c) Champs de dépôts aux parois du local (avec thermophorèse)	68
Figure 58 : Taux de dépôt sur la paroi Est	69
Figure 59 : Taux de dépôt adimensionné sur la paroi Ouest	70
Figure 60 : Taux de dépôt sur la paroi Nord	70
Figure 61 : Taux de dépôt sur la paroi Sud.....	71
Figure 62 : Taux de dépôt sur le sol.....	71
Figure 63 : Taux de dépôt sur le plafond.....	72
Figure 64 : Stratégie de quantification 1x1 - 1 zone par paroi et vue de dessus de l'emplacement de la cible (en noir)/capteur (en vert).....	73
Figure 65 : Stratégie de quantification 1x2 et 2x1 - 2 zones par paroi (sol (à gauche) et plafond (à droite)).....	74
Figure 66 : Stratégie de quantification 2x2 et 3x3 zones par paroi et emplacement des cibles/capteurs	74
Figure 67 : Evolution de l'écart du flux de dépôt moyen sur le capteur à la valeur moyenne de dépôt sur la paroi (%) en fonction de la stratégie	76
Figure 68: Synoptique des deux méthodes de mesure	80
Figure 69: Procédé standard « couche épaisse » [175]	81
Figure 70 : Dépôt du platine à travers un masque rectangulaire	82
Figure 71 : Structuration des peignes interdigités par laser	82

Figure 72 : a) Clichés de microscopie optique de a) la face sensible du capteur, b) des électrodes et des espaces inter-électrodes de 20 μm	83
Figure 73 : Dépôt des pistes en or et des plots de contact en Ag-Pd sur la face avant du capteur...	83
Figure 74 : Dépôt du film diélectrique de protection	84
Figure 75 : Dépôt de la résistance en platine sur la face arrière (pour régénération)	84
Figure 76 : Dépôt des pistes en or et des plots de contact sur la face arrière	85
Figure 77 : a) Dépôt du diélectrique sur la face arrière, b) Résistance de chauffe pour la régénération des suies (8 Ω à 20° C)	85
Figure 78 : Schéma de principe de la face sensible du capteur résistif, paramètres géométriques associés	87
Figure 79 : Détermination expérimentale de la constante de cellule	87
Figure 80 : Illustration photographique du capteur lors de la phase de régénération (la face sensible du capteur apparaît ici en rouge car portée à une température de 650° C).....	89
Figure 81 : Schéma de principe du Mini-CAST [177]	89
Figure 82 : Schéma général du banc PARIS [178] et aspect de la flamme produite par le mélange TBP/TPH	90
Figure 83 : Schéma général du banc d'essai	92
Figure 84 : Différentes configurations du capteur dans le flux.....	92
Figure 85 : Réponse du capteur a) parallèle au flux, b) dos au flux et c) face au flux	92
Figure 86 : a) Distributions granulométriques en termes de diamètre de mobilité électrique pour les suies produites par le Mini-CAST b) Evolution de la concentration en nombre et du diamètre médian de mobilité électrique au cours du temps.....	93
Figure 87 : a) Distributions granulométriques en termes de diamètre de mobilité électrique pour des suies produites par la combustion du TBP/TPH, b) Evolution de la concentration en nombre et du diamètre médian de mobilité électrique au cours du temps	94
Figure 88: Schéma simplifié du taux de couverture	96
Figure 89: Géométrie a) des électrodes minces « affleurantes » et b) des électrodes épaisses « non-affleurantes »	98
Figure 90: Evolution de la densité de courant au niveau a) des électrodes minces et b) des électrodes épaisses en fonction du dépôt formé (sur et au-dessus des électrodes)	99
Figure 91: Evolution de la conductance linéique en fonction de l'épaisseur de la couche pour des électrodes minces et épaisses pour une épaisseur et un espace inter-électrodes de 20 μm	100
Figure 92 : Évolution de la conductance en fonction du temps d'exposition (origine prise à la fin de la phase de régénération) a) pour différentes tensions de polarisation b) à 0,1 V.....	101
Figure 93 : Images MEB montrant après une heure d'exposition a) les ponts formés entre les électrodes à 10 V de polarisation b) le dépôt homogène formé entre les électrodes à 0,1 V.....	102
Figure 94 : Evolution de la conductance et du coefficient de variation pour deux tensions de polarisation (0,1 et 10 V)	103
Figure 95 : Evolution de la conductance en fonction du temps d'exposition (origine prise à la fin de la phase de régénération) pour une tension de polarisation de 0,1 V (à gauche) et de 10 V (à droite) pour 3 essais successifs	104
Figure 96 : Evolution de la conductance en fonction du temps d'exposition (origine prise à la fin de la phase de régénération) à une tension de polarisation de 10 V pour 2 volumes de combustible	105

Figure 97 : Evolution de la conductance du capteur, de la concentration et du mode des suies produites en fonction du temps (0,1V à gauche, 10V à droite)	105
Figure 98 : Thermogramme caractéristique d'une mesure OC/EC (Sunset Laboratory)	107
Figure 99 : Schéma de principe de l'analyseur OC/EC	108
Figure 100: Masse déposée de EC pour différentes tensions de polarisation	110
Figure 101: Evolution de la masse de EC déposée et de la conductance en fonction du temps pour une tension de polarisation de 0,1 et de 10 V	111
Figure 102: Zoom sur l'évolution de la masse de EC déposée et de la conductance en fonction du temps (jusqu'à 800 s) pour une tension de polarisation de 0,1 et de 10 V	112
Figure 103: Courbe d'étalonnage du capteur résistif pour 0,1 et 10 V	113
Figure 104 : Evolution de la masse déposée de EC et de la conductance du capteur en fonction du temps.....	114
Figure 105 : Courbe d'étalonnage du capteur résistif avec les suies produites par du TBP/TPH	115
Figure 106 : Courbe d'étalonnage du capteur résistif avec les suies produites par le Mini-CAST et celles produites par du TBP/TPH.....	116
Figure 107 : Évolution de la perte en masse (ATG) (gauche) et spectre de masse (droite) sous air en fonction de la température pour des suies produites par le Mini-CAST en PF 1	118
Figure 108 : Évolution de la perte en masse (ATG) sous air en fonction de la température pour des suies produites par la combustion de TBP/TPH à 21 % d'oxygène	119
Figure 109 : « Spectre de masse pour 2 jeux de rapports m/z et pour des suies produites par la combustion de TBP/TPH à 21 % d'oxygène ».....	119
Figure 110 : Cellule capteurs utilisée pour la régénération et le couplage capteurs résistif/gaz ...	120
Figure 111 : Banc d'étalonnage des capteurs	121
Figure 112 : Variations de la réponse du capteur CO ₂ Sensirion SCD 30 en fonction de la concentration CO ₂ de référence : 100, 200, 400, 600 et 1000 ppm, Débit : 20 L.h ⁻¹ ; T: 24 °C ; HR : 3-5 %	122
Figure 113 : Courbe d'étalonnage du capteur SCD30	122
Figure 114 : Vue de la face sensible du capteur résistif avec dépôt de suies :(gauche) exposé sur le banc de génération des suies, (droite) effectué manuellement.....	123
Figure 115 : Banc expérimental utilisé pour la quantification du dépôt de suies.....	123
Figure 116 : Réponse du capteur CO ₂ lors de la régénération du capteur résistif exempt de suies .	125
Figure 117 : Réponse du capteur CO ₂ après exposition du capteur dans le banc de génération des suies pendant 30 min avec une masse de 11 µg	125
Figure 118 : Réponse du capteur CO ₂ à la régénération d'un capteur chargé « manuellement » avec une masse de 350 µg.....	126
Figure 119 : Réponse du capteur CO ₂ à la régénération d'un capteur chargé « manuellement » par a) 48 µg et b) par 120 µg de suies du CAST	126
Figure 120 : Réponse du capteur CO ₂ chargé à : a) 15 µg et b) 300 µg de dépôt de suies déposées « manuellement » et produites par combustion du TBP/TPH.....	127
Figure 121 : Evolution de la masse calculée de carbone en fonction des différences des masses pesées pour suies du CAST et du TBP/TPH	128
Figure 122 : Courbe de prédiction pour suies du CAST et du TBP/TPH	129
Figure 123 : Gammes des masses mesurables pour les différentes méthodes de mesure utilisées ..	132
Figure 124: Prototypage du principe du dispositif d'échantillonnage.....	137

INTRODUCTION GENERALE

La sûreté nucléaire est l'ensemble des dispositions techniques, humaines et organisationnelles mises en œuvre en continu dans une installation nucléaire de base (INB) pour protéger, en toutes circonstances, l'homme et l'environnement contre une éventuelle dispersion de produits radioactifs. Elle repose en partie sur la maîtrise des transferts de contamination radioactive dans les installations et sur la maîtrise des rejets à l'environnement. Afin d'améliorer l'estimation du volume et de la composition des rejets de matières dans l'environnement, il est essentiel de pouvoir quantifier les dépôts de contamination particulaire au sein des gaines et des équipements des réseaux de ventilation.

Au-delà de ce contexte industriel, la quantification du dépôt est un enjeu dans plusieurs domaines. L'objectif majeur étant de préserver les personnes et l'environnement. En effet, pour évaluer les risques toxiques des moyens de mesure sont indispensables. Ce type de développement pourrait donc être utilisé pour quantifier le dépôt des émissions automobiles [1], détecter les quantités de polluants pouvant se déposer dans des locaux ventilés et donner lieu à des phénomènes de dysfonctionnement électrique [2] (data center, équipements électriques participant à la sûreté), ou bien encore quantifier le dépôt de suies dans l'environnement à la suite d'incendies industriels.

En ce qui concerne la problématique de l'incendie dans une INB, les principales conséquences en termes d'aérosol sont, d'une part la mise en suspension de particules radioactives, d'autre part la production de particules de suie.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre d'un programme de recherche commun avec Orano sur des feux de mélanges solvants/acide nitrique contaminés par du plutonium et dont l'objectif principal est d'estimer les conséquences d'un incendie sur le confinement des substances radioactives dans une INB. Elle est réalisée à l'IRSN et à l'Ecole des Mines de Saint-Etienne.

Depuis plusieurs années, l'IRSN développe des outils de simulations d'incendie qui visent à décrire les mécanismes de dépôt et de transport des aérosols [3]. Pour garantir la représentativité de ces simulations, il est nécessaire de valider les modèles implémentés dans les outils de calcul par des données expérimentales issues d'incendie à échelle réelle.

Ce travail contribuera à améliorer l'évaluation des quantités de suies déposées sur les parois d'un local lors d'un incendie. En effet, les suies sont émises en quantités beaucoup plus importantes que les substances radioactives. Elles sont ainsi en grande partie responsables du colmatage des filtres THE (Très Haute Efficacité) [4]. Ces filtres représentent une barrière pour éviter le rejet de matière radioactive dans l'atmosphère, d'où l'intérêt de développer des modèles permettant de prédire leur comportement aéraulique et anticiper ainsi leur colmatage pouvant, pour des situations extrêmes, donner lieu à leur rupture.

En outre, lors d'une situation d'incendie dans un local confiné et faiblement ventilé tel qu'une INB, les feux étudiés ne sont que rarement caractérisés par des phases stabilisées de combustion, et présentent alors des variations importantes de température, de pression mais aussi d'espèces émises. Une telle dynamique temporelle mais aussi spatiale dans les grandeurs thermodynamiques et les concentrations en polluants émis (gazeux et particulaires) souligne la nécessité de disposer d'un dispositif de mesure capable de quantifier en continu et en temps réel le dépôt des aérosols sur les différentes parois du local ou du réseau de ventilation soumis à cette situation accidentelle d'incendie.

L'objectif de ce travail de thèse est donc de développer un dispositif à base de capteurs permettant la quantification, en continu, des fractions des aérosols déposés sur des parois représentatives d'une INB en situation d'incendie. Les données apportées par un tel outil lors d'expérimentations à échelle réelle permettront de valider et d'améliorer les modèles de dépôt [3] employés par l'IRSN dans leurs simulations incendie dans une INB.

INTORUDCTION GENERALE

En cas d'incendie, la majorité des mesures se font en phase aérosols. En l'état des connaissances au début de ce travail de thèse, aucun dispositif absolu ne permettait de délivrer d'informations quantitatives et en temps réel relatives au dépôt des aérosols. De plus, les connaissances sur les propriétés électriques des suies, tout particulièrement émises lors d'un incendie, sont relativement limitées. La technologie la plus prometteuse, identifiée en préambule à ce travail, reposerait sur l'utilisation de capteurs résistifs [5]. Les capteurs résistifs sont certes bon marché, simples à fabriquer et tiennent à haute température mais nécessitent un travail d'étalonnage spécifique pour leur utilisation en conditions réelles. L'objectif, sur un plan métrologique, de ce travail de thèse est donc de proposer dans un premier temps une méthodologie d'étalonnage de ce type de capteurs résistifs pour leur application en conditions incendie. Le second objectif vise quant à proposer une méthode complémentaire de quantification en exploitant la phase de régénération du capteur résistif.

Ainsi, le présent mémoire est composé de trois chapitres :

Dans le **premier chapitre**, nous présentons l'état de l'art des connaissances utiles à cette thèse sur l'incendie, ses conséquences et la méthodologie retenue pour estimer le rejet de substances particulières potentiellement dangereuses dans l'environnement. Puis, nous nous attacherons à étudier les mécanismes donnant lieu au dépôt des suies ainsi que les développements numériques et expérimentaux présents dans la littérature pour prédire et quantifier ce dépôt. Ensuite, un état de l'art des technologies existantes de capteurs pouvant servir à la quantification des aérosols sera réalisée pour identifier le type de capteur le plus pertinent qu'il convient d'utiliser pour la quantification, non pas des particules en suspension mais bien des suies déposées sur diverses surfaces et dans des conditions représentatives d'incendie. Finalement, nous détaillons les caractéristiques des suies formant le dépôt et leurs grandeurs physiques et chimiques pertinentes afin d'interpréter la réponse apportée par le capteur de particules sélectionné.

Le **deuxième chapitre** traite, quant à lui, en premier lieu du développement de cibles passives de collecte de suies, mises en place lors d'essais réalisés dans des locaux à échelle réelle. Ces cibles serviront, à avoir des ordres de grandeurs des masses déposées à différents emplacements du local incendie dans le but d'identifier les spécifications du dépôt à grande échelle. En deuxième lieu, des simulations numériques ont été réalisées afin de décrire, à l'aide de modèles de dépôt, le transport des aérosols dans le local et leur dépôt sur les parois. Ces développements numériques nous ont ainsi permis d'identifier les zones et les mécanismes prépondérants de dépôt des suies sur les parois d'un local incendié en accord avec les conclusions issues de la caractérisation expérimentale réalisée à grande échelle. En se basant sur un scénario incendie représentatif de ceux envisagés dans cette thèse, les taux de dépôt ont été cartographiés et les paramètres physiques indispensables à la compréhension des phénomènes de dépôt ont été ciblés. De tels paramètres peuvent, en effet, être difficiles à caractériser ou à maîtriser expérimentalement (vitesse d'écoulement sur la paroi, niveau de turbulence à la paroi...). A l'issue de ce second chapitre, les spécifications (conditions opératoires, gammes de mesure, sensibilité et nombre de capteurs adaptés à l'échelle du local), du système de capteurs dédié à la quantification du dépôt des suies ont été proposées.

Finalement, le **troisième chapitre** consiste à présenter les deux méthodes de mesure développées durant cette thèse pour la quantification des suies déposées. En effet, la méthode de quantification employée à grande échelle et présentée dans le chapitre II est encore à ce jour une méthode de quantification ex-situ et a posteriori. Souhaitant obtenir des informations sur la dynamique du dépôt sans induire une modification du phénomène de dépôt, il est indispensable de développer des méthodes de quantification spécifiques, en temps réel et non-intrusives.

Deux bancs de dépôt de suies, générées par un brûleur (Mini-CAST) et par une installation de Production d'Aérosols Représentatifs d'un Incendie Sous-ventilé, ont été mis en place en parallèle d'une analyse thermo-optique permettant la quantification du carbone organique (OC) et du carbone élémentaire (EC). Ces analyses combinées constituent la première méthode de quantification de la

INTORUDCTION GENERALE

masse déposée. Elles ont notamment permis d'étudier l'effet de la tension de polarisation appliquée au capteur résistif sur la masse de suies déposée sur l'élément sensible de celui-ci dans un premier temps. Un étalonnage de la réponse (conductance) du capteur résistif en fonction de la masse déposée a ensuite pu être réalisé pour des suies CAST et des suies produites par la combustion d'un solvant industriel Tributylphosphate (TBP) /Tetrapropylène Hydrogéné (TPH).

Enfin, une deuxième méthode a été mise en place pour proposer une mesure complémentaire de la masse de suie déposée. Celle-ci est basée sur la mesure par des capteurs de CO₂ des concentrations en gaz émis pendant la phase de régénération du capteur résistif (utilisé, dans ce cas, uniquement pour recueillir les suies produites). Les capteurs de gaz ont été étalonnés et une première preuve de faisabilité a été démontrée. Une comparaison entre ces deux méthodes sera donc réalisée et leur applicabilité aux suies produites par le Mini-CAST et aux suies produites par TBP/TPH sera finalement discutée.

CHAPITRE.I ETAT DE L'ART

INTRODUCTION

L'incendie est l'un des accidents majeurs dans les installations industrielles. Selon les plus récentes statistiques de la National Fire Protection Association (NFPA) [6], une moyenne de 37000 incendies se produit chaque année dans les installations industrielles.

De nombreux incendies dramatiques ont eu lieu en France avec des impacts sociétaux importants. Ceci fut le cas de l'incendie de l'usine chimique de Lubrizol (26 septembre 2019 à Rouen). Ces incendies ont confirmé la nécessité d'une meilleure prédiction des conséquences toxicologiques et environnementales d'un incendie sur les populations et, pour ce faire, de proposer des outils permettant de modéliser la dispersion, dans l'atmosphère, des matières dangereuses potentiellement adsorbées à la surface des particules émises.

Au-delà de la question de la dispersion atmosphérique et de la contamination environnementale, les mêmes problématiques se posent également lorsque l'on considère les conséquences des incendies sur le confinement des matières dangereuses (nucléaires, biologiques, chimiques) dans les installations industrielles.

Dans les Installations Nucléaires de Base (INB), le confinement est assuré grâce à un réseau de ventilation associé aux filtres à Très Haute Efficacité (THE) pour éviter le rejet de particules dangereuses dans l'environnement.

Afin de prédire le comportement de tels dispositifs de confinement en cas d'incendie, plusieurs études ont été menées sur le colmatage et l'efficacité des filtres THE [4], [7], [8].

La prédiction de la cinétique de dépôt des particules produites lors d'un incendie (suies contaminées par des substances radioactives), en terme de masse, sur les surfaces des filtres THE et les parois des locaux est d'une importance majeure pour déterminer les conséquences d'un incendie sur le confinement des substances radioactives dans les INB.

Dans cette optique, des améliorations des outils de simulation pour prédire le transport et le dépôt de particules de suie dans des installations industrielles confinées et ventilées doivent être effectuées.

De plus, dans la littérature, il y a un manque de données quantitatives sur les dépôts de suie dans des conditions réelles d'incendie en raison de la complexité des phénomènes. Ce manque de connaissances s'explique en partie par l'absence de moyens de mesure à l'échelle expérimentale qui, en l'état actuel, repose essentiellement sur des technologies ne permettant pas de disposer d'informations quantitatives en temps réel.

Par conséquent, des dispositifs de quantification appropriés doivent être développés pour la mesure en temps réel du dépôt de suie sur les parois d'un local industriel, tel que par exemple une installation nucléaire de base confinée et sous-ventilée, lors d'un incendie.

Les capteurs accumulatifs de suie [1], [9], [10] présentent plusieurs avantages pour la quantification de suie dans un contexte d'incendie. Ils sont bon marché, adaptés à la température élevée et à l'environnement chimique agressif et pourraient être facilement intégrés sur les parois d'un local lors d'expériences d'incendie. Parmi les capteurs de suie accumulatifs, les capteurs résistifs pourraient être une solution prometteuse puisque ces capteurs ont été développés pour le domaine automobile [5] et ont récemment été utilisés par Mensch et al. [11] pour quantifier les dépôts de suie sur les surfaces en cas d'incendie. Cependant, à ce stade, ces capteurs résistifs ne délivrent pas d'informations quantitatives relatives au dépôt et doivent être couplés à d'autres technologies.

Dans le présent chapitre, nous allons exposer les conséquences d'un incendie, détailler les mécanismes de dépôt, les différentes technologies de capteurs dédiées à la mesure des aérosols ainsi que la technologie adoptée pour la quantification du dépôt de suie sur les parois d'un local en conditions d'incendie. Finalement, nous allons présenter les spécificités des suies ainsi que leurs propriétés électriques et les mécanismes d'oxydation de ces particules.

I.1 L'INCENDIE ET SES CONSEQUENCES

I.1.1 Méthodologie adoptée pour estimer le rejet de substances dangereuses dans l'environnement

L'incendie est un phénomène dangereux accidentel produit à la suite d'une combustion incontrôlée et autoentretenu.

Dans les installations industrielles, où l'incendie représente un accident majeur, les matières dangereuses, produites par combustion, sont isolées de l'environnement par des dispositifs de confinement (réseau de ventilation qui permet de maintenir un niveau de dépression suffisant dans l'installation et ainsi renouveler d'une manière constante l'air dans les différents locaux).

Il est donc important d'assurer le confinement de ces matières au sein des installations en situation de fonctionnement normal, mais aussi en situation accidentelle et en particulier en cas d'incendie.

La figure 1 est une représentation générale d'un système type de ventilation rencontré dans une installation industrielle. En fonctionnement normal, les conduits d'extraction permettent de transporter et épurer l'air issu des différents locaux vers l'extérieur à travers des filtres THE.

Les activités menées dans les installations industrielles (stockages de matériaux, travaux par points chauds...) peuvent donner lieu à un départ d'incendie [12].

Au cours d'un incendie, les principales conséquences en termes d'aérosol sont, d'une part la mise en suspension de particules, d'autre part, la production d'une grande quantité de suies.

Ce travail se situe dans le cadre de l'étude du dépôt des suies sur les parois d'un local lors d'un incendie, indispensable à la prédiction des quantités d'aérosol pouvant être transportées dans les réseaux de ventilation et participant, pour la majeure partie, au colmatage des filtres à Très Haute Efficacité. En s'inspirant de la méthodologie développée par l'IRSN pour l'évaluation du terme source (activité totale rejetée dans l'environnement) dû à un incendie [13], la masse des suies arrivant sur les filtres THE sera définie dans le présent document, de la manière suivante :

$$S = m_f \eta_s C_2 C_3 , \quad (1)$$

avec :

S : masse de suies arrivant sur les filtres THE (kg),

m_f : quantité du combustible disponible (kg),

η_s : facteur d'émission des suies (kg de suies produites par kg de combustible consommé),

C_2 : fraction de suies non déposées sur les parois du local,

C_3 : fraction de suies non déposées dans les conduites de ventilation.

Les quantités transportées jusqu'au niveau des filtres THE (figure 1) dépendent donc de la masse de suie produite (qui fait intervenir m_f et η_s), et de la fraction qui va se déposer préalablement (à savoir sur les parois du local $(1-C_2)$ et dans les conduites de ventilation $(1-C_3)$).

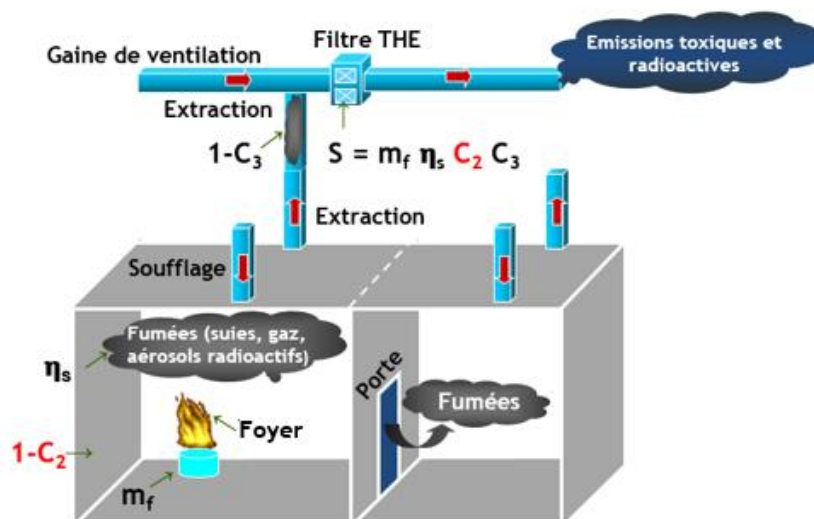


Figure 1 : Représentation simplifiée du confinement d'une installation nucléaire en situation accidentelle

Afin d'étudier la fraction $(1-C_2)$, il faut introduire les mécanismes de dépôt sur les parois lors d'un incendie, les travaux numériques qui ont été réalisés pour évaluer les quantités déposées ainsi que les travaux expérimentaux sur les dépôts lors d'un incendie.

I.1.2 Facteur d'émission η_s

Le facteur d'émission η_s décrit la capacité d'un foyer à produire des suies (agrégats ayant une structure fractale composés de particules primaires).

Il est défini par le rapport de la masse des particules produites par la masse du combustible brûlé et s'exprime sans dimension en gramme de suie par gramme de combustible. Les facteurs d'émission de suie disponibles dans la littérature ont été déterminés pour de nombreux combustibles à petite échelle. À cause de la complexité et de la spécificité des mécanismes de production de suie, ce paramètre est difficile à prévoir. De plus, les foyers constitués d'un seul combustible ne sont généralement pas représentatifs des situations réelles d'incendie [14], [15].

Dans les Installations Nucléaires de Base (INB), les solvants utilisés pour le traitement des déchets nucléaires sont généralement constitués d'un mélange Tributylphosphate (TBP) /Tetrapropylène Hydrogéné (TPH)).

Les données disponibles mettant en jeu un mélange de TBP (30 %) / TPH (70 %) en volume à grande échelle s'avèrent très restreintes. À notre connaissance, seuls les essais réalisés par l'IRSN (FLIP pour « Feux de combustible Liquide en Interaction avec une Paroi » [16]) ont mis en jeu ce combustible dans un local de grande dimension (caisson de 400 m³ de volume [17]). L'analyse de ces mesures expérimentales permet de déterminer les quantités de suies produites pour chacun de ces composés. Les valeurs obtenues indiquent une production de 3 à 9 % de suies (pourcentage en masse rapportée à la masse de combustible brûlé). Cependant, ce facteur d'émission a été mesuré à l'extraction sans tenir compte des fractions de suies déposées. De plus, à cause de la complexité naturelle du développement du feu, des effets du couplage avec les écoulements dans le réseau de ventilation et des risques liés à la présence de nombreux matériaux inflammables [18], le bilan en masse n'a pas été établi, ce qui explique des facteurs d'émission de suie inférieurs à ceux déterminés à petite échelle (cf. tableau 1), soulignant de plus la nécessité de disposer d'outils de quantification des dépôts de suies sur les parois des locaux lors des expérimentations incendie.

Tableau 1 : Facteurs d'émission des suies du TBP/TPH reportés dans la littérature

Échelle	η_s	Auteurs
Petite échelle	14 à 17 %	[19]
Petite échelle	13,3 %	[20]
Petite échelle	10 %	[12]
Grande échelle	3 à 9 %	[17]

I.1.3 Dépôts sur les parois du local en feu (1-C₂)

Lors d'un incendie dans un local industriel, une très grande quantité de suies est produite. L'accumulation de ces suies sur les filtres THE conditionne leur efficacité de filtration et leur résistance aéroulque pouvant, dans une situation extrême, donner lieu à un potentiel rejet de matière dangereuse dans l'environnement, impactant directement la qualité de l'air et la santé publique [21].

Afin de prévenir de telles conséquences, il est nécessaire de connaître la masse de suies transportée au niveau des filtres et donc la masse déposée au préalable sur les parois du local siège de l'incendie (coefficient (1-C₂)).

De plus, les outils de calculs manquent de données de validation suffisantes pour évaluer les performances des modèles. La capacité d'estimer les fractions déposées de suies dans un incendie avec précision, en considérant les paramètres dans l'environnement d'incendie (les variations spatiales et temporelles de la température, la vitesse et les concentrations de suies) reste donc un défi à relever [11]. Par conséquent, un capteur permettant des mesures directes en continu de la masse de suies déposée sur les parois d'un local incendié est nécessaire pour une meilleure compréhension du dépôt de suies dans les incendies et pour l'évaluation des modèles.

I.1.4 Dépôts dans les voies de rejet (1-C₃)

Dans ce travail, nous ne nous intéresserons pas spécifiquement au dépôt dans les voies de rejet. La technologie développée dans cette thèse pourrait, néanmoins, être transposée au cas des conduites. Avant d'envisager le développement de corrélations à partir d'expériences numériques, il est essentiel de s'assurer de l'applicabilité des modèles de dépôt implémentés dans les codes. En effet, les modèles de dépôt de particules dans les conduits, issus de travaux rapportés dans la littérature, n'ont été validés, en très grande majorité, que dans des conduits cylindriques de très faibles dimensions, représentatifs de cannes de prélèvement d'aérosols (diamètre interne de l'ordre du centimètre). Il est nécessaire de procéder à une validation sur la base d'essais menés dans des conduits représentatifs des réseaux de ventilation des installations industrielles (section généralement rectangulaire, diamètre hydraulique supérieur à 30 cm), et dans des conditions parfaitement maîtrisées. En dernière étape il faut envisager une validation des modèles en situation réelle d'incendie, où de nombreux mécanismes physiques interviennent de manière couplée, avec une forte variation temporelle des conditions thermo-aéroulques et des caractéristiques des aérosols.

I.2 MECANISMES ET MODELISATION DU DEPOT DES SUIES

Cette partie sera dédiée à l'étude multi-physique du dépôt en prenant en compte toutes les forces qui peuvent s'appliquer aux suies lors de leur transport dans un local incendié. Nous nous intéresserons dans un premier temps aux différents mécanismes de dépôt des suies lors d'un incendie. Nous réaliserons par la suite une synthèse des connaissances expérimentales sur les dépôts de suies

dans des locaux puis sur les modèles disponibles pour prédire le dépôt en cas d'incendie. On cherchera à identifier les mécanismes prépondérants de dépôt afin de confronter les mesures expérimentales du dépôt aux simulations à grande échelle qui seront présentées dans le chapitre II.

I.2.1 Mécanismes du dépôt des suies lors d'un incendie

Le dépôt des aérosols a été étudié en laboratoire par plusieurs auteurs soit dans des écoulements de conduites industrielles, soit dans des locaux confinés. Ces expérimentations réalisées en laboratoire sont généralement dans des conditions simplifiées d'écoulement d'air et pour des conditions maîtrisées de vitesses d'écoulement et de diamètre des particules. Les vitesses de dépôt sont généralement présentées en fonction du temps de relaxation des particules. Nerisson *et al.* [23] synthétisent une partie des travaux de dépôt réalisés en milieux confinés.

La compréhension des mécanismes de transport des suies au sein du foyer et des parois est donc une étape indispensable à la prédiction du terme source et plus encore à la prédiction de la quantité de particules pouvant être piégés à la surface des filtres à Très Haute Efficacité. Il est donc nécessaire de disposer de modèles physiques de transport de ces particules qui tiennent compte de leur morphologie spécifique.

I.2.1.1 Dépôt par diffusion brownienne

Les particules fines sont soumises à un mouvement aléatoire « brownien » qui résulte de leur collision avec les molécules de gaz porteur. Par conséquent, la diffusion brownienne implique le dépôt des particules fines sur les parois aussi bien en régime turbulent qu'en régime laminaire et est associée au diamètre de mobilité.

Les molécules du gaz porteur, sujettes à l'agitation thermique, peuvent entraîner les particules présentant des diamètres inférieurs à 1 μm dans leur mouvement. À l'approche d'un obstacle, ces particules fines peuvent ainsi se déposer sur la paroi (figure 2).

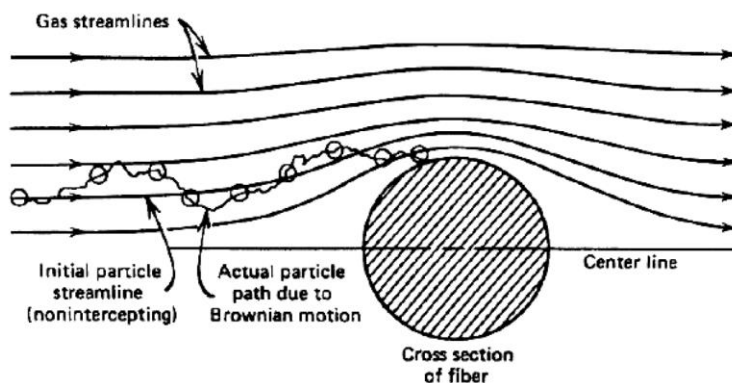


Figure 2 : Dépôt d'une particule sur un obstacle par diffusion brownienne [24]

L'efficacité de collecte est généralement une fonction du nombre de Peclet. Le nombre de Peclet décrit le rapport entre le transport par convection (suivant le mouvement du fluide) et le transport par diffusion. Plus il est faible, plus l'efficacité de collection par diffusion brownienne est grande. Il est aussi égal au produit du nombre de Reynolds Re et du nombre de Schmidt Sc .

$$Pe = \frac{uL}{D} = Re Sc , \quad (2)$$

u est la vitesse moyenne du gaz porteur ($m \cdot s^{-1}$), L est une longueur caractéristique de l'obstacle (m) et D est le coefficient de diffusion brownienne ($m^2 \cdot s^{-1}$).

Le nombre adimensionné de Reynolds Re est défini comme étant le rapport entre la vitesse caractéristique du fluide u , de la longueur caractéristique L et de la viscosité cinématique du fluide ν :

$$Re = \frac{u L}{\nu} , \quad (3)$$

le nombre de Schmidt Sc étant défini par ν/D .

1.2.1.2 Dépôt par thermophorèse

Ce phénomène de dépôt s'observe en présence d'un gradient thermique entre l'écoulement contenant les particules et la paroi.

Les fines particules mises en suspension dans un gaz où règne un gradient de température, migrent de la région la plus chaude vers la région la plus froide suite aux collisions entre les molécules du gaz porteur et la particule. Dans un écoulement, la face de la particule en regard de la face la plus chaude subit des collisions avec une fréquence plus élevée et par des molécules présentant une plus grande énergie cinétique que celles associées à la surface de la particule exposée aux températures les plus faibles. Ce déséquilibre en termes de quantité de mouvement et de flux moléculaire induit une force de thermophorèse, responsable de la migration de la particule. La figure 3 représente schématiquement le principe de thermophorèse avec la différence de vitesse entre les molécules de la zone « chaude » et les molécules de la zone « froide », qui induit la vitesse de thermophorèse :

$$v_{th} = K_{th} \frac{\eta_g}{\rho_g T} \nabla T , \quad (4)$$

avec K_{th} le coefficient de thermophorèse défini par plusieurs auteurs [25], ρ_g la masse volumique du gaz, η_g la viscosité dynamique du gaz, T la température moyenne du gaz autour de la particule et ∇T le gradient de température.

Pour le cas particulier des suies présentant une morphologie fractale, divers auteurs ([26] et [25]) ont démontré que la vitesse de thermophorèse dépend du nombre des particules primaires dans l'agrégat et ne peut pas être décrite par les relations théoriques développées pour des particules de morphologie sphérique.

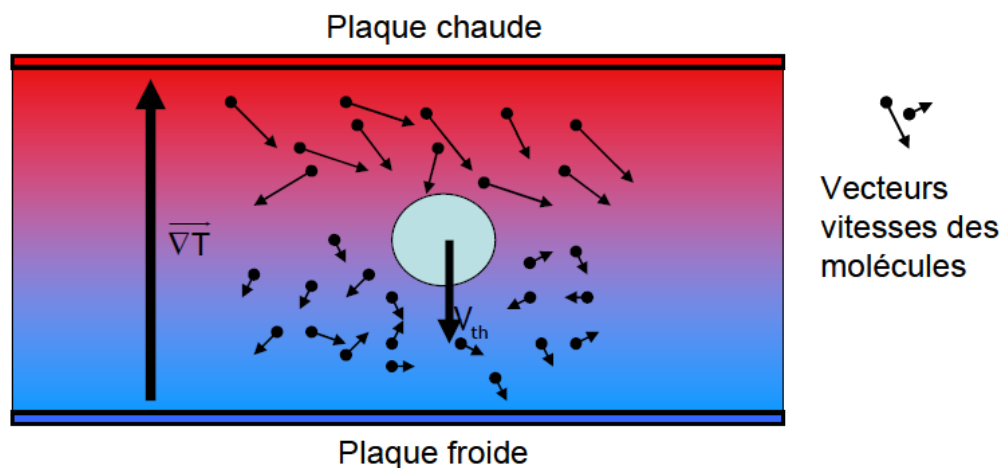


Figure 3 : Particule soumise à un gradient de température [25]

Plusieurs travaux expérimentaux ont été menés sur les phénomènes de dépôt et leur intégration dans des codes incendie Fire Dynamics Simulator FDS (entre autres). Ces travaux ont déjà apporté des éléments de conclusion sur l'importance de la thermophorèse dans des conditions maîtrisées mais aussi sur les ordres de grandeur des quantités déposées lors d'un incendie dans un local à l'échelle du laboratoire.

1.2.1.3 Dépôt par impaction inertielle

Une particule ayant une inertie importante ne parvient pas à suivre les changements de direction de l'écoulement autour de l'obstacle et s'impacte sur la surface (figure 4).

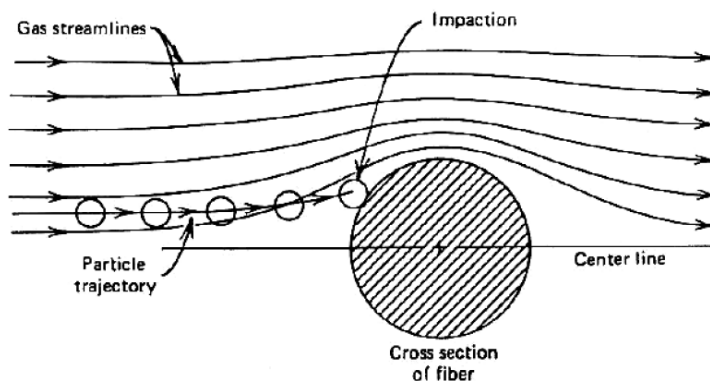


Figure 4 : Dépôt d'une particule sur un obstacle par impaction inertielle [24]

L'influence de cette inertie croît avec le diamètre et la masse volumique des particules ainsi que la vitesse d'écoulement. La vitesse de dépôt par impaction inertielle est décrite en fonction du nombre de Stokes St défini par le rapport entre la distance d'arrêt de la particule et la longueur caractéristique de l'obstacle L :

$$St = \frac{\tau u}{L}, \quad (5)$$

avec τ le temps de relaxation (s).

1.2.1.4 Dépôt par sédimentation

La vitesse de sédimentation correspond à la vitesse de chute des particules en suspension dans un gaz. La particule soumise à son poids et à la poussée d'Archimède atteint rapidement une vitesse verticale appelée la vitesse de sédimentation [27].

Ce mécanisme s'avère prépondérant pour les particules de diamètre et de masse volumique élevés. En considérant la distribution granulométrique des suies, les mécanismes prépondérants de transport et de dépôt de ces particules sont la diffusion brownienne et la thermophorèse, la sédimentation et l'inertie étant généralement considérées de second ordre dans de telles situations.

1.2.2 Etat des connaissances sur le dépôt des suies lors d'un incendie

1.2.2.1 Synthèse des modèles disponibles pour prédire le dépôt en cas d'incendie

Cohan et al. [28] ont utilisé FDS pour simuler les essais réalisés par Gottuk et al. [29], Hamins *et al.* [30] et Riahi [31], en introduisant les mécanismes de dépôt par thermophorèse (équation 6) et par diffusion turbulente (équation 7) :

$$V_{th} = \frac{0,55 \nu}{T} \frac{dT}{dx} , \quad (6)$$

avec ν la viscosité cinématique du gaz et $\frac{dT}{dx}$ le gradient de température à la paroi évalué expérimentalement grâce à la mesure du flux thermique radiatif et total reçus à la paroi.

$$V_d = 0,037u^* , \quad (7)$$

avec u^* la vitesse de frottement.

Ils ont conclu que les prédictions par FDS étaient en bon accord avec les résultats expérimentaux à petites échelles. Les auteurs indiquent qu'à grande échelle, une divergence a été observée et l'expliquent par le fait que le facteur d'émission de suies varie avec la taille du foyer et le volume du local incendié. Cependant, cette divergence pourrait aussi être une conséquence des modèles de dépôt implémentés dans FDS. En effet, ces modèles ne prennent pas en compte plusieurs paramètres tels que la rugosité, l'effet d'échelle ou encore la morphologie des suies.

Riahi [31] a estimé les valeurs de la masse déposée prédite ($m_{\text{predicted}}$) qu'il a défini de la manière suivante :

$$m_{\text{predicted}} = \int_0^t V_{th}(t) C_s(t) dt , \quad (8)$$

où C_s est la concentration de suies dans les fumées mesurées à l'extraction de la hotte par une méthode optique. La vitesse de dépôt par thermophorèse V_{th} est calculée selon l'équation 6).

Decoster [32] a effectué des simulations numériques pour déterminer les conditions limites dans FDS où la vitesse de dépôt est assimilée à la vitesse de thermophorèse en négligeant les autres mécanismes de dépôt.

$$V_d = V_{th} = \frac{K_{th} \nu}{T_{\text{gaz}}} \left(\frac{dT}{dx} \right)_{x=0} , \quad (9)$$

avec K_{th} le coefficient de thermophorèse donné par Talbott *et al.* [33] et T_{gaz} la température du gaz.

Il a montré, qu'en l'état, FDS ne permet pas de prédire de manière satisfaisante le dépôt de suies dans les conditions d'essais à grande échelle.

Les travaux expérimentaux permettant de valider les modèles de dépôt sont généralement effectués dans des géométries simples, afin de définir des lois de dépôt semi-empiriques [34].

La plupart de ces travaux sont cités par Sippola *et al.* [35]. Ces derniers ont, en effet, effectué un travail de synthèse, dans des conduits, sur les différentes recherches menées sur le dépôt d'aérosols en régime turbulent. A notre connaissance, aucune étude ni modèle ne permet à ce jour d'envisager un calcul pleinement prédictif des masses de suies déposées sur les parois d'un local lors d'un incendie.

1.2.2.2 Synthèse des connaissances expérimentales sur les dépôts de suies dans des locaux

Plusieurs études ont été menées et concluent que le dépôt des suies représente un facteur important pour affiner la modélisation des concentrations des fumées dans les locaux incendiés et prédire ainsi la réponse de moyens de détection incendie [36], dimensionner les voies d'évacuation d'urgence [21]

et estimer les concentrations de suies en entrée des réseaux de ventilation dans des installations industrielles au sein desquels des substances toxiques ou radioactives doivent être confinées [37]. Pour le dépôt des particules de suies, les données expérimentales dans la littérature sont limitées. Une étude préliminaire a été effectuée par Bellivier et al. [38] et a permis d'obtenir des données expérimentales sur le dépôt de suies produites par un brûleur acétylène sur des parois verticales (de l'ordre du mg.cm^{-2}) dans le foyer de l'installation BANCO [7]. L'importance de la thermophorèse a été mise en évidence, en comparant le dépôt obtenu sur trois cibles à trois températures de parois différentes.

Riahi [31] a réalisé une étude expérimentale permettant l'étude du dépôt de suies par thermophorèse de fumées produites par trois combustibles (PMMA, essence, polypropylène). Il a installé des filtres en fibre de verre sur les parois verticales d'une hotte (figure 5) pour récupérer les dépôts de suies et mesurer, par la suite, la quantité de suies déposées (de l'ordre de $0,035 \text{ mg.cm}^{-2}$) en utilisant une méthode gravimétrique.

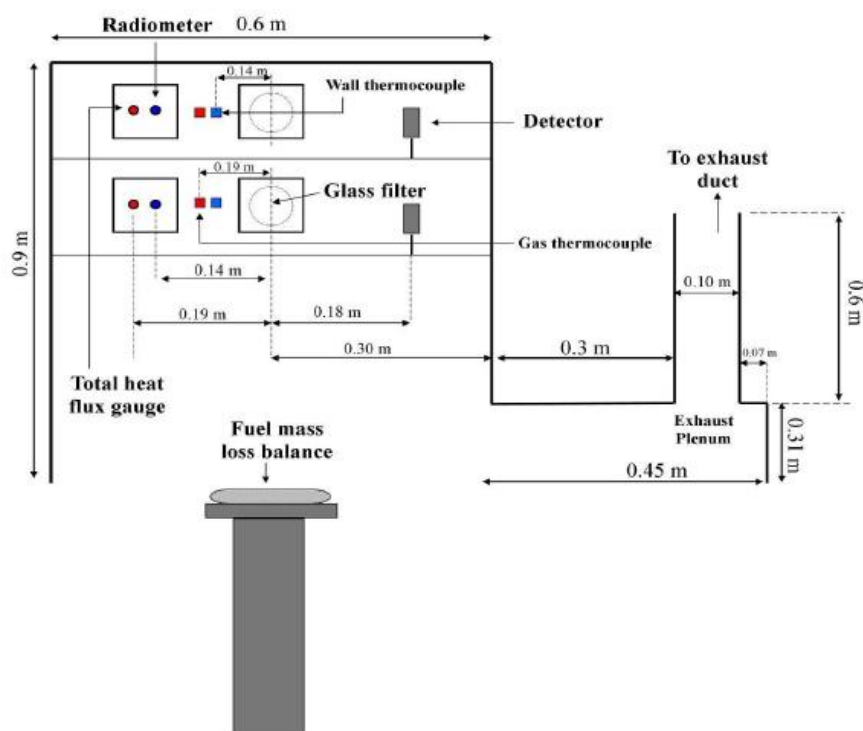


Figure 5 : Dispositif expérimental du dépôt de suies de Riahi [31]

Decoster [32] a effectué trois campagnes expérimentales dans un caisson maritime en acier de 38 m^3 de volume. Des cibles « chaudes » et « refroidies » ont été fixées verticalement sur une paroi à une distance de 2 m du foyer. La première campagne d'essais (figure 6) consistait en une configuration d'essai simple afin de contrôler les conditions initiales et les conditions limites, problématiques à échelle réelle. Il a mesuré, pour un feu de bac de faible puissance (40 kW) entre 67 et 149 mg.m^{-2} de suies déposées sur des cibles verticales en aluminium situées dans la couche de fumée, parallèles à l'écoulement.

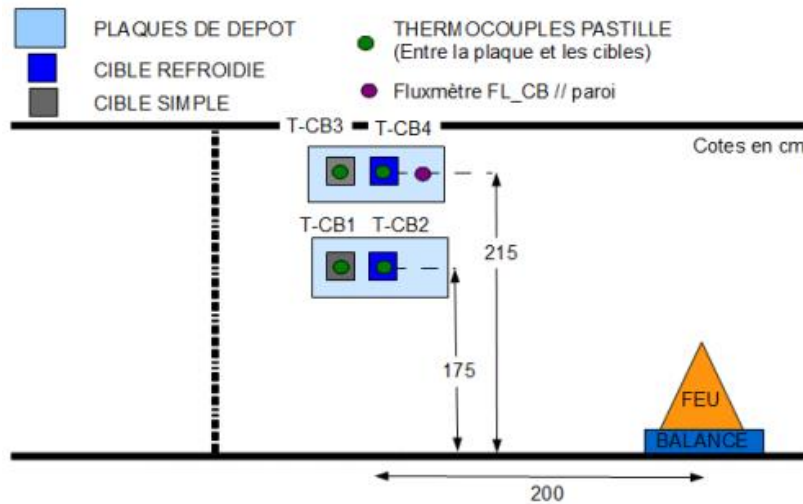


Figure 6 : Instrumentation du local d'essai : vue de côté de Decoster [32]

Dans sa seconde série de mesures, il a ajouté un couloir au local de la première campagne expérimentale afin d'étudier l'influence de la vitesse d'écoulement des fumées sur le dépôt de suies. Les quantités de dépôt mesurées étaient de 28 à 65 mg.m⁻². Vu la dispersion des tendances obtenues, cette configuration ne lui a pas permis de conclure sur l'effet de la vitesse d'écoulement des suies sur le dépôt. La dernière campagne d'essais était effectuée à échelle réduite. Elle a permis d'obtenir des données expérimentales du dépôt sur une cible perpendiculaire à l'écoulement (le dépôt par impaction non négligeable) sur une cible horizontale orientée vers le bas (la sédimentation s'oppose au dépôt). Il a conclu qu'une corrélation de convection forcée, n'est pas adaptée à l'évaluation du gradient de température effectif à prendre en compte dans l'expression de la vitesse de dépôt par thermophorèse à échelle réelle.

1.2.2.3 Développement technologique

Mensch & Cleary [11] ont également mesuré la quantité de suies déposée sur l'élément sensible d'une jauge conductimétrique en fonction de la conductance délivrée par celle-ci en utilisant deux méthodes de quantification de la masse ; une méthode gravimétrique et une méthode par transmission de lumière.

La méthode gravimétrique consiste à mesurer la variation de masse sur un substrat métallique. En appliquant cette méthode, les auteurs n'ont pas pu mesurer le courant de fuite et par conséquent la conductance [11].

La deuxième méthode consiste à mesurer la transmittance de lumière par spectrophotométrie dans un mélange de suies, d'eau et de savon. La transmission lumineuse est corrélée à des solutions de concentration en suies connues. Une méthode similaire a été employée par Dillner et al. [39] qui a mesuré la transmission lumineuse des particules atmosphériques dans des mélanges d'alcool isopropylique/eau.

Pour des conductances variant de 0 à 6666 S, la masse déposée varie de 20 à 140 mg.m⁻². Les résultats de quantification par gravimétrie sont moins dispersés que les résultats de quantification avec la méthode par transmission (figure 7), soulevant la question de l'étalonnage de tels capteurs afin de recueillir des informations en masse fiables ainsi que sur la pertinence de la courbe d'étalonnage proposée entre masse et conductance qui est ainsi entachée d'une forte incertitude. On gardera cependant à l'esprit que cette technologie de capteur apparaît bien adaptée aux conditions extrêmes d'incendie.

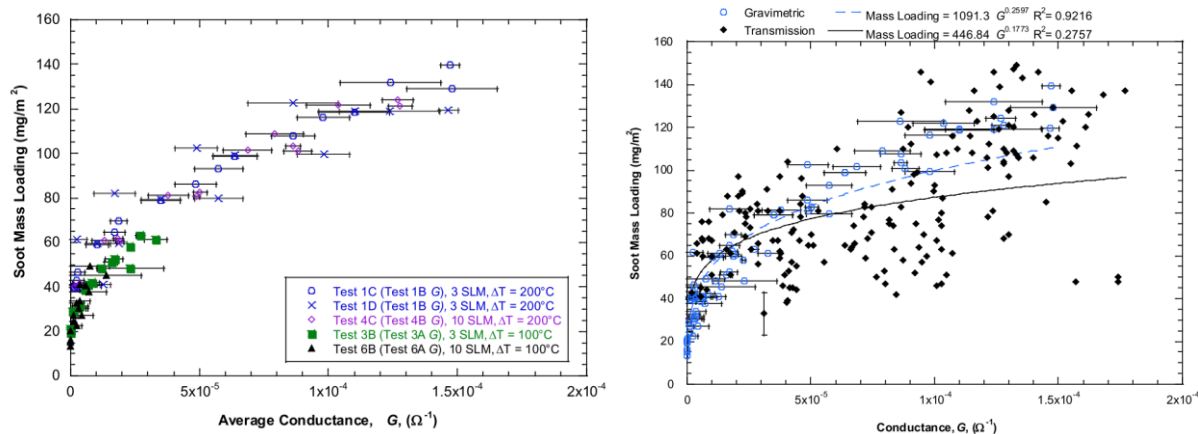


Figure 7 : Courbe d'étalonnage entre la masse déposée la conductance , Mensch & Cleary [11]

I.3 TECHNOLOGIES DE CAPTEURS DEDIES A LA MESURE DES AEROSOLS

Il existe plusieurs technologies de capteurs dédiés à la mesure des aérosols. Cependant, ces capteurs renseignent toujours sur une concentration volumique en particules en phase aérosol et ne fournissent, par conséquent, pas d'informations quantitatives relatives au dépôt. Dès lors, il n'existe pas dans la littérature des capteurs actifs qui renseignent sur la quantité de suies déposées, par unité de surface, sur les parois au cours d'un incendie, d'où la nécessité de disposer d'un capteur absolu ne nécessitant pas de calibration préalable. Nous avons donc effectué un état de l'art sur les différentes technologies de capteurs des suies afin de choisir la technologie de capteur qui pourrait s'adapter aux exigences du contexte de l'incendie.

À notre connaissance, il existe quatre principales familles de capteurs de particules pouvant être appliqués au cas spécifique des suies émises lors d'un incendie :

- les capteurs basés sur la charge électrique,
- les capteurs optiques,
- les capteurs gravimétriques,
- les capteurs accumulatifs.

I.3.1 Capteurs basés sur la charge électrique

Le principe général de cette technologie de capteur repose sur le fait que la tension minimale de décharge électrique dans les gaz dépend principalement de la distance entre les électrodes, de l'état des gaz (température, pression, vitesse, teneur en eau) et de la concentration en particules de suies en phase aérosol.

I.3.1.1 Capteurs par décharge électrique (SDSS : Spark discharge soot sensors)

Gheorghiu et al.[40] ont prouvé que les particules de suies entre les électrodes et/ou déposées sur la cathode facilitent la libération des électrons par le champ électrique. La stabilité de la tension à laquelle une décharge électrique se produit est affectée. Dans une atmosphère exempte de suie, la tension de décharge présente une stabilité caractérisée par un écart-type de $\pm 22\%$ tandis que cet écart-type est réduit de $\pm 4\%$ en présence de suies et ce, même pour de très faibles concentrations de suies.

La méthode de mesure SDSS (figure 8) est la plus utilisée pour ce type de capteurs. Elle est basée sur la détermination de la tension électrique minimale à laquelle une étincelle se produit entre deux électrodes dans les gaz d'échappement. L'unité de commande du capteur charge une bobine

d'allumage avec un certain niveau d'énergie. La bobine est ensuite déchargée à travers un éclateur dans le flux de gaz d'échappement. Si l'énergie de décharge est suffisante, un arc électrique est créé. Un système de détection spécifique transmet ainsi un signal à l'unité de commande afin de réduire l'énergie de charge de la bobine pour le cycle de mesure suivant. Sinon, l'unité de commande doit augmenter cette énergie [40]. Afin d'obtenir la dépendance entre la tension minimale d'étincelle et la concentration de suies il faut étudier l'influence d'autres paramètres significatifs tels que la température, le débit massique, le rapport air-carburant et ensuite acquérir ces paramètres tout au long de la mesure.

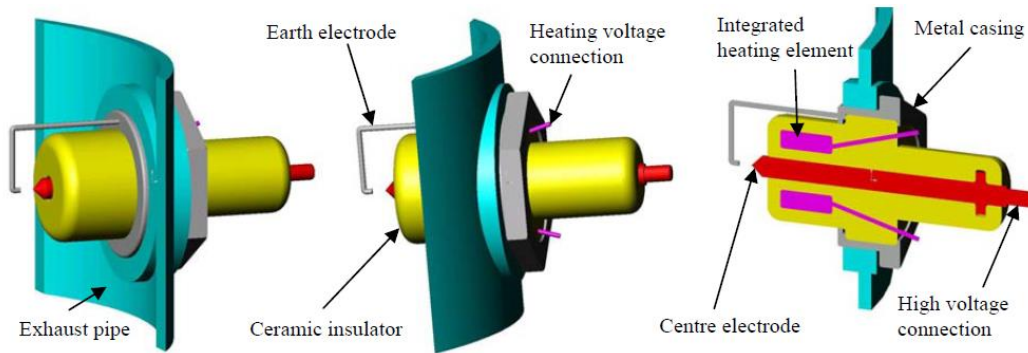


Figure 8 : Schéma de principe du capteur SDSS [40]

Ce type de capteurs ne donne des réponses répétables qu'à des températures inférieures à 350°C. Lorsque les concentrations de suie sont élevées, la réponse du capteur SDSS a tendance à s'altérer pendant une certaine période, délivrant ainsi un signal bruité [40]. Au-delà de cette limitation, l'utilisation de ce capteur impose de caractériser la température et la nature de la phase gaz dans les conditions expérimentales. Son utilisation, dans nos conditions d'essais, s'avère donc relativement limitée et ne permettra pas, de par son principe de déterminer la quantité de suies déposée par unité de surface.

1.3.1.2 Capteurs électrostatiques

Le principe de fonctionnement des capteurs électrostatiques repose sur la mesure des charges à la surface des particules de suies. En effet, le capteur se compose d'une première électrode chargée à haute tension et d'une deuxième connectée à un amplificateur de charge. Les particules de suies, chargées naturellement, sont capturées entre ces deux électrodes. Elles modifient ainsi l'état de charge de la deuxième électrode proportionnellement à la concentration en masse de ces suies [41]. Cette technologie a été commercialisée (figure 9) sous la forme du capteur PMTrac par Emisense [42]. Ce type de capteurs présente une bonne durabilité, une bonne résolution. Cependant, une fois encore celui-ci repose sur le prélèvement des particules et n'est donc pas utilisable dans le cas d'un dépôt et son coût, relativement élevé, ne permet pas de l'envisager à grande échelle.

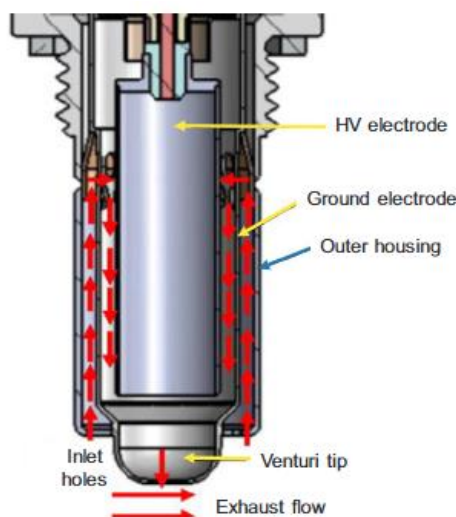


Figure 9 : Schéma de principe du capteur Emisense [42]

Le capteur de particules Pegasor (PPS) (figure 10) est un capteur miniaturisé pouvant être utilisé pour fournir la concentration en masse et en nombre des aérosols dans le pot d'échappement de véhicules automobiles. Son principe repose sur la mesure du courant de fuite par unité de temps des particules, préalablement chargées, lorsqu'elles quittent le capteur. Afin de réduire la fréquence de nettoyage de ce dernier, le flux de particules à travers le capteur est optimisé. Ntziachristos *et al.* [43] ont calibré le signal de sortie de l'instrument avec des gaz d'échappement diesel pour fournir la concentration en nombre ou en masse de suies. La réponse est linéaire avec la concentration massique de suie mesurée par un capteur photo-acoustique (référence de concentration massique). Elle est également linéaire avec la concentration en nombre mesurée par un impacteur électrique à basse pression (référence de concentration en nombre). Les résultats montrent, de plus, que le signal PPS peut fournir des mesures répétables, en continu et en temps réel avec une haute sensibilité aux particules fines et ultrafines. De plus, les mesures sont indépendantes du débit de prélèvement et des variations de températures et de pressions.

Cependant, de nombreux paramètres doivent encore être étudiés afin d'avoir des réponses absolues en masse et en nombre ne nécessitant pas de calibration préalable du capteur, car ces 2 variables (nombre et masse) ne peuvent être séparées. En particulier les influences respectives de la composition (présence d'espèces organiques ou d'eau), de la granulométrie et de la morphologie des suies produites lors d'un incendie restent à être étudiées afin d'appliquer un tel capteur à d'autres sources qu'un moteur diesel ou essence. De plus, cette technologie repose sur un prélèvement et est donc, par conception, non adaptée à la caractérisation de la masse de suie déposée sur une surface.

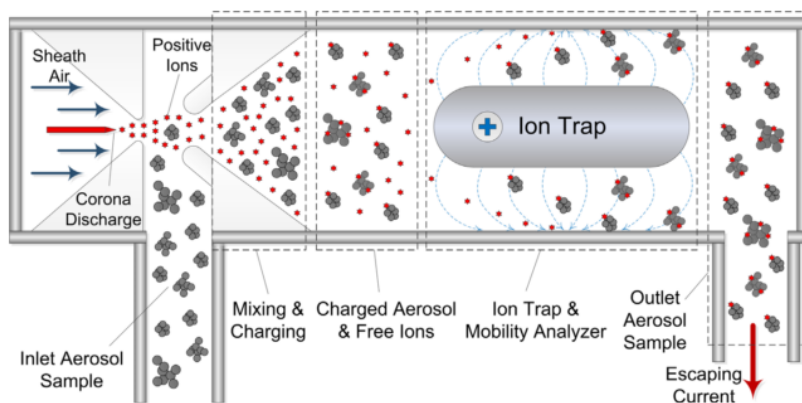


Figure 10 : Schéma du capteur de particules PEGASOR [44]

I.3.2 Capteurs gravimétriques

L'application des capteurs de type gravimétrique à la mesure des particules est relativement récente. Ils sont généralement utilisés pour des mesures de gaz. Parmi les capteurs gravimétriques, on citera les capteurs Surface Acoustic Wave (SAW), les FBAR (Film Bulk Acoustic Resonator), les QCM (Quartz Crystal Microbalance) et les résonateurs MEMS. Le principe de transduction de ces capteurs repose sur le suivi du décalage de fréquence de résonance en fonction de la masse adsorbée [45]-[47]. De par leur principe, ces technologies sont potentiellement adaptées à la mesure de la masse absolue déposée.

I.3.2.1 Capteurs Surface Acoustic Wave (SAW)

Dans le cas des capteurs SAW, un champ électrique oscillant est appliqué entre deux électrodes interdigitées placées sur un matériau piézoélectrique (figure 11). Lorsque l'onde élastique se propage sur la surface du matériau d'une électrode vers une autre (du transducteur d'entrée vers le transducteur de sortie), la vitesse de propagation de l'onde peut être perturbée par différents paramètres tels que les particules déposées, l'humidité ou les fluctuations de température [48]. La masse cumulée des particules est déduite à partir de la célérité modifiée de l'onde. La capacité des capteurs SAW pour la surveillance des $PM_{2,5}$ a été étudiée théoriquement par Hao *et al.* [49]. Dans leur étude, les auteurs ont attribué le dépôt des particules, produites sur la surface de détection située entre les électrodes, au phénomène de la thermophorèse.

Malgré la bonne sensibilité du capteur SAW [50], sa réponse est fortement affectée par les conditions ambiantes (température, humidité) [51] et est donc difficilement envisageable dans le cas d'incendie.

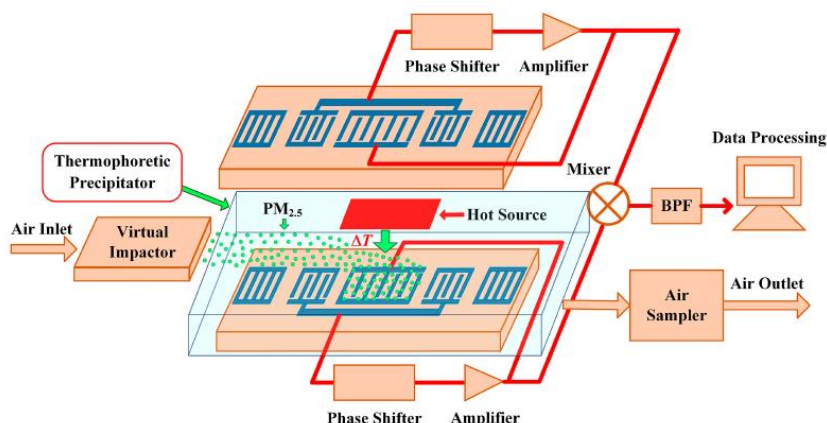


Figure 11 : Structure d'un capteur SAW [52]

I.3.2.2 Capteurs Film Bulk Acoustic Resonator (FBAR)

Un autre système de mesure de masse, appelé capteur FBAR (Film Bulk Acoustic Resonator), a été combiné avec un microcircuit fluïdique afin de séparer les particules [53].

Le FBAR consiste en un film piézoélectrique mince en sandwich entre les électrodes en métal (figure 12). Lorsqu'un champ électrique est créé, une onde élastique se propage vers l'interface électrode-air supérieure, où elle se réfléchit. Afin de maximiser la réflexion de l'onde élastique, la structure est suspendue (du côté de contact inférieur) sur une fente d'air. Le capteur fonctionne de la même façon que les microbalances à quartz. Soumis à une tension alternative à des fréquences variables, des pics de résonance apparaissent dans son spectre de conductance et sont décalés vers les plus faibles fréquences suite à un dépôt de masse.

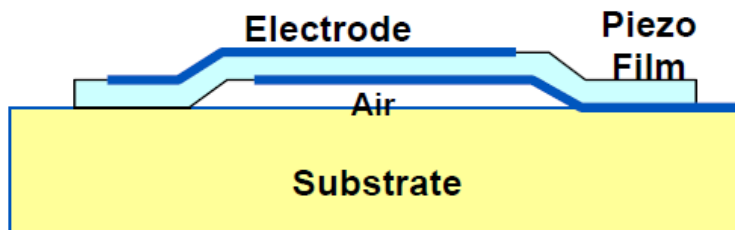


Figure 12 : Schéma de principe d'un capteur FBAR [54]

Bien que les capteurs SAW et FBAR peuvent être réalisés sous forme de films déposés sur un substrat et sont donc faciles à intégrer dans une puce microsysteme, leur sensibilité en masse est encore trop limitée pour envisager leur utilisation au cours d'un incendie [49].

1.3.2.3 Capteurs Quartz Cristal Microbalance (QCM)

Le capteur de masse QCM (figure 13.b) délivre une mesure directe de la masse accumulée sur sa surface. Cependant, il est caractérisé par une faible sensibilité de masse, des mesures de masse non uniformes et une gamme de fréquences limitées.

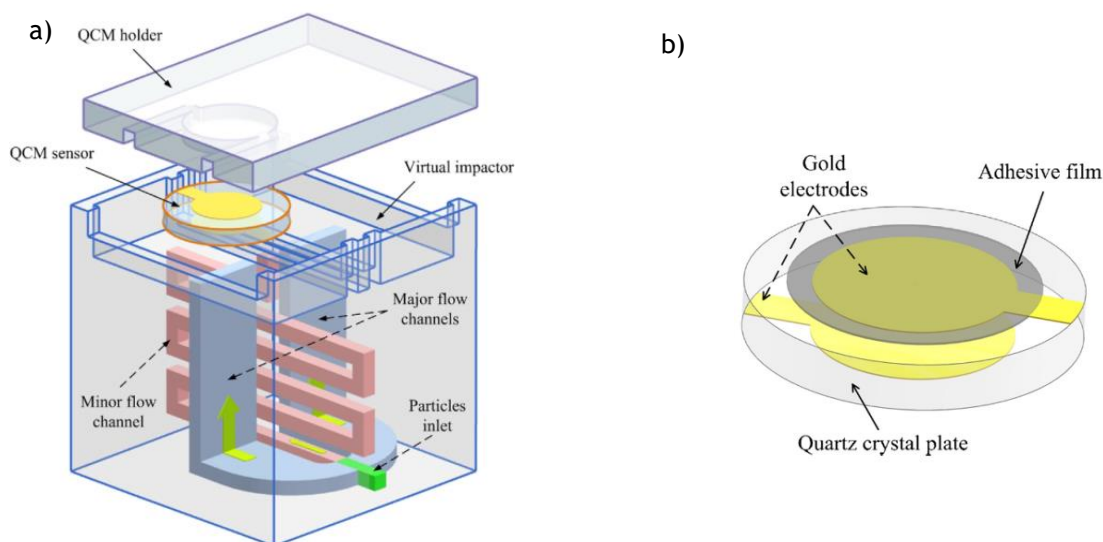


Figure 13 : Capteur résonnant de type QCM permettant la détection de la masse des particules : a) vue d'ensemble d'un capteur combiné à un impacteur virtuel ; b) Élément sensible du capteur QCM [55]

Afin de remédier à sa mauvaise sensibilité et son intégration dans les circuits intégrés, ce capteur a été associé à un impacteur virtuel avec succès (figure 13.a) afin de permettre la séparation des particules par taille avant la mesure de masse [56].

Le QCM reste difficile à intégrer dans un microsysteme intelligent à puce unique où tous les composants peuvent être intégrés sur le même substrat. Plus encore, le nettoyage de ce capteur s'avère complexe.

1.3.2.4 Micro-résonateurs (MEMS)

D'autres nano et micro-systèmes électromécaniques NEMS/MEMS, montrent une très bonne sensibilité et peuvent être des alternatives pertinentes aux capteurs de masse à ondes élastiques, en particulier pour les mesures de faible masse. Les micro-résonateurs MEMS, en tant que capteurs de masse intégrés et ultra-sensibles, peuvent potentiellement déterminer la masse cumulative des particules d'aérosol dans les échantillons d'air. Les micro-résonateurs MEMS reposent sur le même principe de fonctionnement que les capteurs de masse résonants traditionnels comme la microbalance en cristal de quartz (QCM) [57] ou les capteurs d'ondes élastiques de surface (SAW) [58]. Ils ont des structures mécaniques micro-usinées favorisant des fréquences de résonance plus élevées que les structures classiques, et permettant d'améliorer la sensibilité. Un actionneur (intégré ou externe) est utilisé pour créer, généralement par voie électrique, une force d'excitation [59] permettant d'entretenir la vibration au voisinage d'une fréquence propre de la structure. Un décalage de la fréquence de résonance est observé consécutivement à une augmentation de la masse de la structure vibrante (dépôt de particules).

Grâce à leurs petites tailles, les MEMS (figure 14) sont plus sensibles que les QCM et les SAW fabriqués avec des technologies « classiques ». De plus, la fabrication par lots de ces dispositifs intégrés permet une plus grande fiabilité à un coût plus faible. Cependant, ces résonateurs sont extrêmement fragiles et sensibles à l'environnement ambiant [60]. La réponse de ce capteur est en effet dépendante de la température et des effets environnementaux (dérive significative de fréquence), limitant les mesures à long terme pour la surveillance des PM [61], [62]. De plus, les structures fabriquées sont en général fragiles et peu adaptées aux environnements sévères (températures élevées, corrosion) et le facteur de qualité se dégrade quand le résonateur reste exposé aux particules pendant une plus longue période à cause de l'interaction des particules avec les vibrations du résonateur [63]. La question de la régénération de ce capteur n'est donc pas résolue et aucune démonstration n'a été réalisée pour les suies dans des conditions extrêmes de température et de concentration.

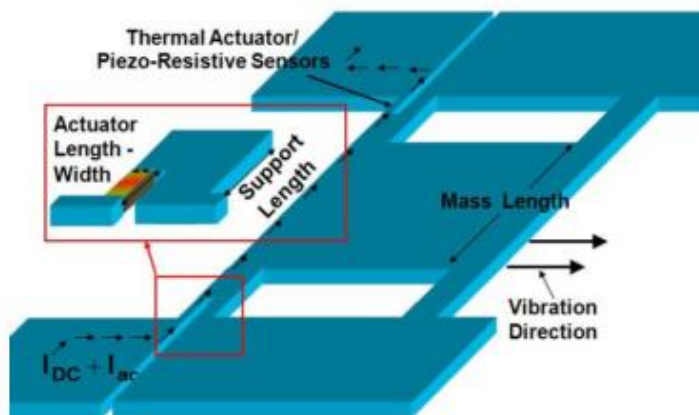


Figure 14 : Schéma d'un résonateur plat [60]

En conclusion, en comparant les résonateurs classiques aux résonateurs MEMS, ces derniers apparaissent sensibles à de faibles masses (des centaines de Hz de variation par ng de particules déposées). Chellasivalingam et al. [64] ont proposé une démonstration expérimentale de la détection des particules ultrafines de diesel (100 nm de diamètre) par des capteurs gravimétriques MEMS. Néanmoins, comme mentionné auparavant, la réponse de ce capteur est sensible aux conditions environnementales (dérive significative de fréquence), et les structures fabriquées sont en général fragiles.

I.3.3 Capteurs optiques

Les capteurs optiques sont les plus répandus dans le commerce pour des mesures de qualité de l'air car ils sont bons marchés et miniaturisés. Leur principe physique repose sur la diffusion d'un rayon lumineux (light scattering) par une particule de suie [65]. Une courbe d'étalonnage permet d'obtenir une mesure en temps réel de la concentration massique. Toutefois, ce type de détection est dépendant de l'humidité [66].

Pour les mesures de concentration de volume, les méthodes d'extinction de lumière peuvent être utilisées (figure 15), à condition que l'indice de réfraction des particules et la longueur du chemin optique soient connus et que la distribution des particules le long de la trajectoire de mesure soit uniforme. Il convient donc généralement, dans le cas de mesures reposant sur l'extinction, d'intégrer la contribution de la diffusion [67]. Par ailleurs, les méthodes de mesure couplée de l'extinction et de la diffusion de lumière sont souvent employées pour déterminer la taille des particules [68] mais l'interprétation des signaux s'avère complexe et repose sur la connaissance de nombreuses propriétés physiques des suies (morphologie, indice de réfraction) ainsi que sur l'utilisation de méthodes d'inversion basées sur des théories simplifiées afin de décrire l'interaction lumière/suie.

À ce jour, ces mesures s'avèrent pertinentes pour des développements à l'échelle du laboratoire mais, mis à part l'extinction [69], sont difficilement applicables à des expérimentations incendie à grande échelle (contraintes de température, présence de gaz corrosifs, possible dépôt de suies sur les parois des optiques pour de forte concentration, atténuation trop importante du signal) [70].

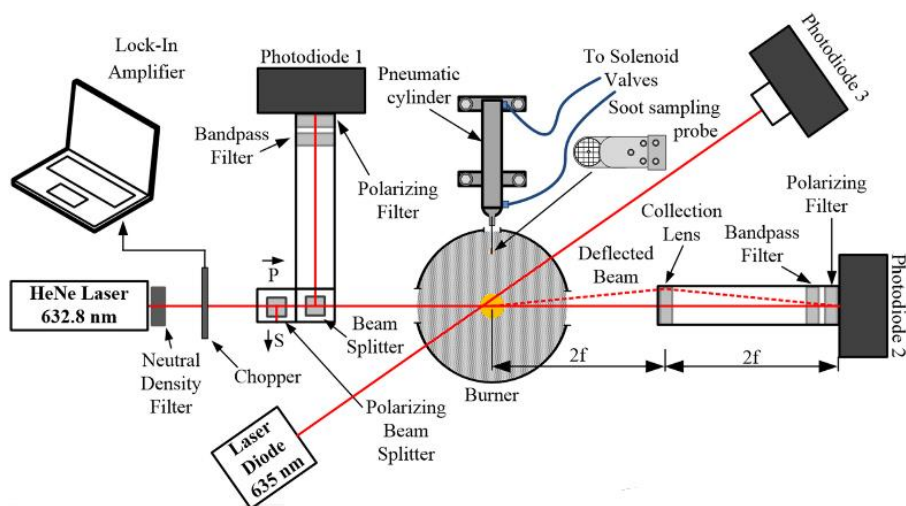


Figure 15 : Schéma de principe d'une mesure d'extinction à deux angles [70]

L'application des principes optiques reste donc compliquée dans les environnements hostiles notamment dans le cas de l'incendie en raison des coûts d'installation et des problèmes de poussière sur les fenêtres optiques évoqués précédemment. De plus, l'injection du faisceau laser à proximité de la surface de dépôt implique des complications expérimentales (injection au plus proche de la paroi afin de limiter toute atténuation du faisceau en cas de trajet optique de plusieurs mètres dans un local) et laisse supposer un caractère intrusif de cette technologie dans le cas de mesure en proche paroi.

I.3.4 Capteurs accumulatifs

Outre les capteurs résistifs que nous détaillerons dans la section 1.3.5 de ce chapitre, la technologie capacitive est une alternative intéressante en ce qui concerne les capteurs accumulatifs. Une couche

d'isolant recouvre les électrodes du capteur capacitif (figure 16). La capacité du capteur sous flux de particules diminue avec l'accumulation des suies. D'après Hagen et al. [71], le capteur semble être moins sensible aux variations de température que le capteur résistif. De plus, les auteurs indiquent une réduction du temps de percolation en appliquant une tension entre les électrodes du dispositif capacitif.

Cependant, un inconvénient majeur de tels dispositifs est la configuration plus complexe du capteur et de l'électronique. La mesure de faibles capacités à haute résolution est nettement plus difficile et plus coûteuse que la simple mesure d'un courant lorsqu'une tension continue est appliquée.

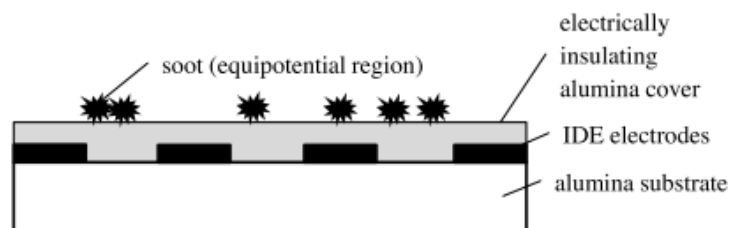


Figure 16 : Schéma de capteur capacitif élaboré par Hagen et al. [71]

Kondo *et al.* [72] ont amélioré la conception du capteur capacitif en fabricant des électrodes en métal de base plutôt qu'un métal noble et en appliquant une tension de polarisation du capteur (figure 17) de l'ordre de 200 V. L'utilisation d'une telle tension améliore grandement le temps de réponse et la sensibilité du capteur mais interroge sur son caractère intrusif, les particules se déposant alors dans un champ électrique et leur dépôt n'étant alors plus uniquement dicté par leur comportement diffusif, inertiel ou au sein d'un gradient de température.

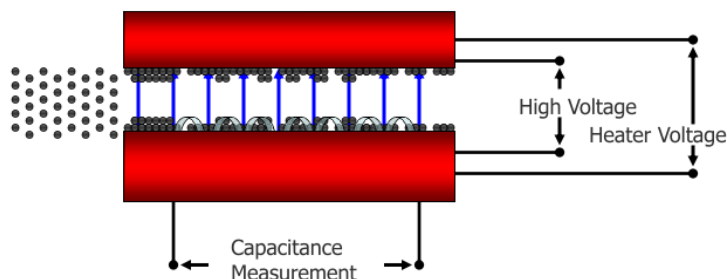


Figure 17 : Schéma de capteur capacitif élaboré par Kondo *et al.* [72]

Cette technologie pourrait être appliquée pour la quantification des suies mais l'application d'une forte tension de polarisation de l'ordre de 200 V modifierait le dépôt et les quantités de suies déposées sur le capteur ne seraient donc pas représentatives de celle déposées sur les parois.

1.3.5 Le capteur résistif

Le capteur résistif est basé sur les propriétés conductrices des suies composées essentiellement de carbone [73]. Le capteur de suies de type résistif est composé de deux électrodes de platine interdigitées déposées sur un substrat en alumine [73]. Son principe repose sur la formation de « ponts » de suies lors de leur dépôt entre des électrodes conductrices séparées de quelques dizaines de micromètres [5], [74]. En l'absence de suie, la conductance mesurée entre les électrodes correspond à celle du substrat en alumine (conductance proche de zéro). Lors de la formation de ces ponts, la conductance du capteur augmente et permet un suivi qualitatif des suies déposées sur le

capteur [75]-[78]. À la saturation, la surface du capteur est régénérée en brûlant les suies à l'aide d'une résistance chauffante (jusqu'à une température de 700°C). Un schéma de principe du processus de détection des suies à l'aide d'un tel capteur résistif est présenté dans la figure 18.

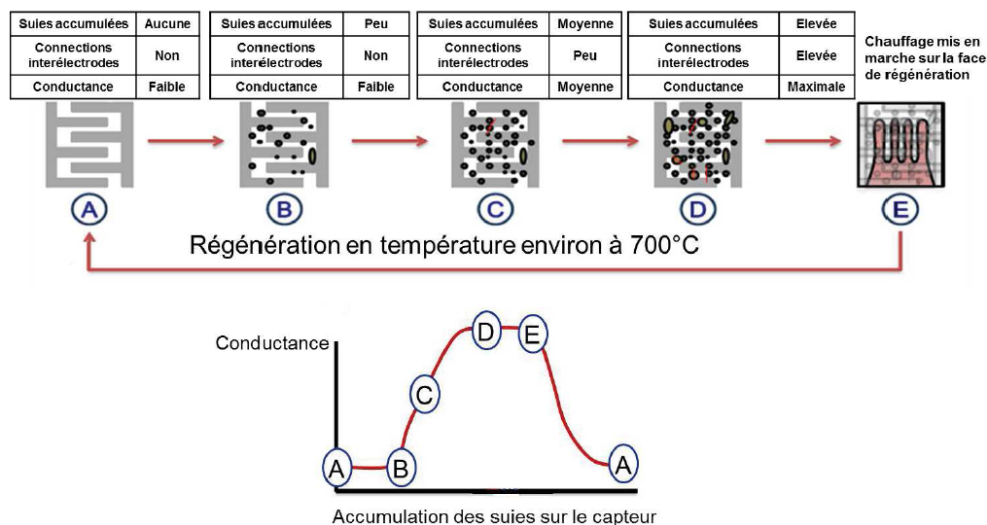


Figure 18 : Principe de fonctionnement d'un capteur résistif [79]

L'évolution de la conductance dépend de la concentration en suies, de leur taille et de leur composition [5], [10]. Afin de permettre de mesurer la concentration en suie dans des lignes d'échappement automobile en amont et/ou en aval de filtres à particules, beaucoup d'industriels (Bosch¹, EFI (figure 19), Delphi²) ont utilisé la technologie résistive pour son accessibilité (même design qu'une sonde Lambda à oxygène [80]) et sa simplicité de mise en œuvre.

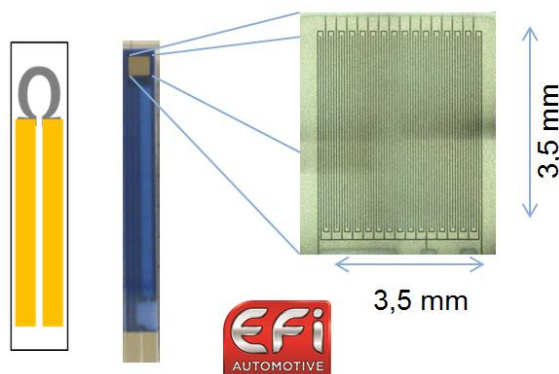


Figure 19 : Prototype d'un capteur résistif élaboré par EFI Automotive

Plusieurs auteurs se sont intéressés au développement et à l'amélioration de ce type de capteur [5], [81], [82] et de nombreux brevets ont été déposés [83]-[85].

¹ <https://www.bosch-mobility-solutions.com/en/products-and-services/passenger-cars-and-light-commercial-vehicles/powertrain-systems/denoxtronic-exhaust-gas-treatment-system/particulate-matter-sensor/>

² <https://www.bosch-mobility-solutions.com/en/products-and-services/passenger-cars-and-light-commercial-vehicles/powertrain-systems/denoxtronic-exhaust-gas-treatment-system/particulate-matter-sensor/>

A partir de la réponse de conductance délivrée par le capteur, la quantification de la masse déposée reste délicate et nécessite un étalonnage long. Par ailleurs, l'utilisation du capteur nécessite de s'assurer que le dépôt sur le capteur n'est pas induit par l'électrophorèse provoquée par le potentiel utilisé pour la mesure de conductance (cf. figure 20) et reste lié aux mécanismes naturels de dépôt de suies. On notera par ailleurs que, bien que le capteur soit actuellement utilisé pour la surveillance de diagnostic embarqué OBD des véhicules diesels, à ce jour, ce capteur ne délivre pas d'information quantitative en temps réel.

Malgré ces limitations sur les capacités de quantification, notre choix s'est porté sur les capteurs résistifs car ils sont robustes, aisément régénérables, délivrent une réponse répétable et en temps réel. De plus, ils supportent des températures très élevées et peuvent par conséquent être placés au plus près du foyer. Ils ont de plus une forte sensibilité mais leur réponse dépend de leur position par rapport au flux ainsi que de la nature des suies.

Il est indispensable par ailleurs d'étudier plus finement les particules de suie qui se déposent sur leur face sensible entre les électrodes (figure 20).

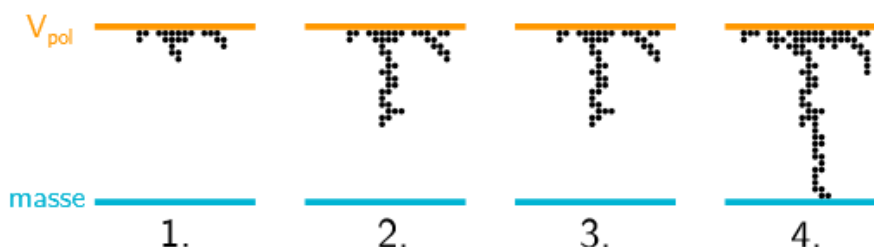


Figure 20 : Construction de pont par électrophorèse [86]

Afin de permettre d'interpréter la réponse de ce capteur et proposer une méthodologie d'étalonnage, il s'avère nécessaire de préciser les caractéristiques des suies qui seront utiles dans cette étude. On s'intéressera en particulier aux mécanismes de formation des suies dans la flamme, aux spécificités des suies (microstructure, composition et granulométrie) ainsi qu'à l'étude de leurs propriétés électriques. Une attention particulière sera, de plus, apportée au processus d'oxydation des suies, phénomène inhérent à la phase de régénération. Cette étape, en plus de permettre un nettoyage de la surface sensible, sera considérée dans cette étude pour une quantification de la masse de suies, ceci en analysant les gaz émis à l'aide de capteurs dédiés.

I.4 LES CAPTEURS DE GAZ CO₂ ET CO D'INTERET

Comme mentionné précédemment, une alternative à l'étalonnage préalable du capteur résistif afin de lier la conductance à la masse de suie déposée, consiste à induire la combustion des suies pendant la phase de régénération de la surface du capteur et ainsi quantifier la masse déposée indirectement, à travers la concentration en gaz de combustion émis (principalement CO₂ et CO). Nous avons donc cherché à le coupler, en second lieu, avec des capteurs de gaz et nous reviendrons sur ce couplage dans le chapitre III.3.

Il existe plusieurs technologies de capteurs de gaz. Dans cette section, nous allons nous intéresser spécifiquement aux technologies qui répondent à notre application.

Ces capteurs de mesure en continu de la concentration d'une espèce chimique dans un mélange gazeux connaissent un développement important. Nous avons basé notre choix essentiellement sur le critère de sélectivité, de sensibilité et de coût.

I.4.1 Capteurs NDIR (Non Dispersive Infrared Sensor)

Pour la quantification du CO₂, nous avons opté pour la technologie la plus commune : une technologie optique basée sur l'absorption de rayonnements infrarouges [87]. Les capteurs à NDIR présentent plusieurs avantages en comparaison des capteurs électrochimiques. Ils sont stables et sélectifs. Ils peuvent, en effet, supporter des niveaux élevés d'humidité, de poussière, d'encrassement puisque le gaz mesuré n'interagit pas directement avec le capteur.

Son principe repose sur la mesure de la variation de l'intensité du rayonnement infrarouge précédemment émis par une source lumineuse et reçu par un détecteur placé après un filtre optique interférentiel (passe bande) qui ne laisse passer que les longueurs d'ondes d'une bande d'absorption du CO₂ (figure 21).

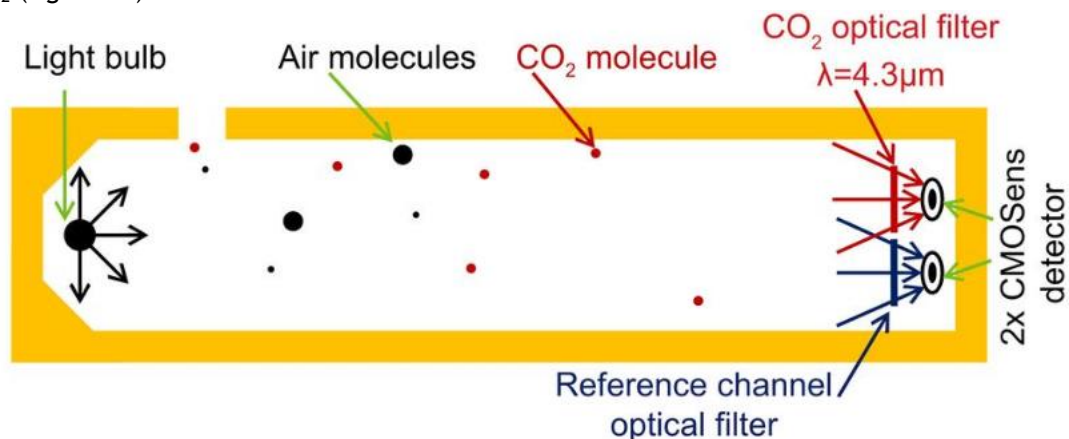


Figure 21 : Principe de fonctionnement du capteur NDIR [88]

L'absorption, qui est le logarithme du rapport $\frac{I}{I_0}$ de l'intensité du rayonnement I absorbé dans une cellule contenant ce gaz et d'une intensité de référence I_0 , est proportionnelle à la concentration en CO₂, en vertu de la loi de Beer-Lambert variation $\frac{I}{I_0}$ de l'intensité du rayonnement, absorbé dans une cellule contenant ce gaz, est exprimée via la loi de Beer-Lambert [89].

I.4.2 Capteurs à base d'oxyde métallique (MOX)

Pour la quantification du CO et des COV, nous avons opté pour des capteurs à bases d'oxyde métallique (MOX). Cette technologie de capteurs de gaz est l'une des plus étudiées en raison de la variété de matériaux sensibles. Ils ont été utilisés dans de nombreuses applications telles que la qualité de l'air extérieur, la détection des gaz combustibles et toxiques dans l'industrie, la détection de la pollution automobile en raison de leur simplicité d'utilisation, du grand nombre de gaz détectables, de leur facilité de production et de leur faible coût [90].

De plus, les capteurs chimiques à base d'oxydes métalliques ont d'autres avantages tels que la portabilité, le changement très important de la conductance du film lors de l'exposition à un gaz de référence ainsi qu'un temps de réponse faible. Certains oxydes métalliques ont des propriétés semi-conductrices qui varient selon la nature des gaz présents dans leur environnement [91]. Ces capteurs sont basés sur un changement de résistance de la couche sensible en interaction avec le gaz.

Seiyama et al. [92] ont démontré que les capteurs MOX sont basés sur le phénomène de l'adsorption et la désorption d'un gaz à la surface d'un oxyde métallique et change ainsi sa conductivité. Deux types de capteurs MOX existent (type « n » et type « p »). Pour les MOX de type « n », la densité d'électrons dans le semi-conducteur est élevée. Tandis que pour les MOX de type « p », la densité des trous est élevée [93]. Ainsi, leur comportement diffère selon le type de gaz (oxydant ou réducteur). La conductance d'un capteur de type « n » augmente en présence de gaz réducteur et diminue en présence de gaz oxydant. Tandis que, pour un capteur de type « p », la conductance

diminue en présence de gaz réducteur et augmente en présence de gaz oxydant. Nous nous intéresserons dans cette étude à la réaction d'un MOX de type « n » avec un gaz réducteur (CO). Les capteurs de type MOX constituent un bon compromis pour la quantification des COV malgré leur manque de sensibilité, leur faible sélectivité et leur sensibilité à l'environnement (température et humidité).

I.5 FORMATION DES SUIES DANS UNE FLAMME

L'utilisation, en vue d'une quantification en masse, de capteurs résistifs et de capteurs de gaz lors de la phase de régénération de la phase sensible de ce capteur, nécessite de préciser les caractéristiques principales des suies émises lors d'un incendie et utiles à l'interprétation de la réponse de ces capteurs. Selon le SFPE Handbook of Fire Protection Engineering [94], la fumée est définie comme « un mélange composé d'une phase condensée, elle-même constituée de particules de suie, de produits organiques semi-volatils et de produits inorganiques volatils » [15].

Les particules de suie sont définies par Petzold et al.[95] comme des agglomérats de monomères constitués uniquement de carbone avec de petites quantités d'hydrogène et d'oxygène. Plusieurs mécanismes complexes sont mis en jeu dans la formation des suies.

La formation des particules de suie passe par les cinq mécanismes suivants : la nucléation, la croissance de surface, la coagulation, l'agglomération et l'agrégation [96], [97].

La nucléation consiste à former en premier lieu, par des réactions de combustion incomplètes, des molécules constituées d'atomes de carbone et d'hydrogène comprenant au moins deux cycles aromatiques appelées Hydrocarbures Aromatique Polycyclique (HAP). Ces molécules coagulent et passent à l'état de particules sphériques solides appelées nucléis d'un diamètre de l'ordre du nanomètre [98]. Les nucléis continuent à grossir par adsorption à leur surface des molécules de HAP en phase gazeuse (phénomène appelé croissance de surface). Parallèlement, le carbone sous forme de nucléis passe progressivement d'un état amorphe désorganisé à une structure en couches organisées (particules primaires).

L'étape de la coagulation consiste à former des particules de masses plus élevées et mieux structurées suite à la collision des particules primaires. Une fois formées, elles se déplacent aléatoirement sous l'effet de la diffusion et peuvent ainsi entrer en collision. L'agitation brownienne des suies provoque alors la formation de particules non-sphériques de différentes tailles, appelés agrégats (dans le cas de liaison forte de type fusion/recouvrement entre particules primaires) ou agglomérats (dans le cas de liaison de type Van Der Waals). La principale différence entre l'agglomération et l'agrégation est liée à la fusion partielle des particules primaires. Ces deux phénomènes (figure 22) sont à l'origine de la morphologie complexe des particules. Ces deux mécanismes peuvent avoir lieu à l'intérieur de la flamme et dans les fumées, ils entraînent la diminution du nombre de particules par unité de volume et modifient la taille des particules tout en conservant cependant leur concentration massique.

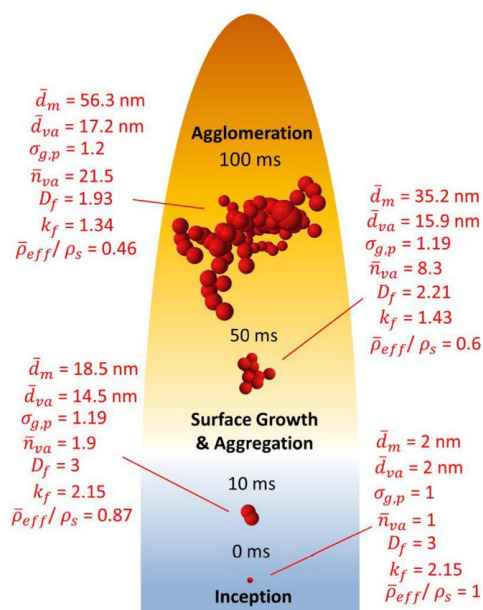


Figure 22 : Mécanisme de croissance des particules de suie au sein d'une flamme de diffusion laminaire à co-flux [99]

Du fait de leur mode de formation, les suies présentent donc une morphologie spécifique. En effet, une particule de suie résulte de l'agrégation/agglomération de particules primaires, de quelques dizaines de nanomètre de diamètre, afin de former des agrégats/agglomérats dont la morphologie relativement complexe peut être modélisée par celle d'un objet quasi-fractal. Dans une telle approche, le nombre N_p de particules primaires composant l'agrégat/agglomérat est relié à son rayon de giration via la dimension fractale D_f et un préfacteur k_f à travers une relation pouvant s'appliquer quelle que soit la taille de l'agrégat/agglomérat.

En parallèle de ces processus producteurs de suies, l'oxydation des suies, par divers radicaux et molécules, vient contrebalancer l'augmentation de la masse totale de suies.

L'oxydation des particules de suie se produit en trois étapes : l'adsorption qui consiste en l'attachement chimique de l'oxygène sur la surface, l'oxydation proprement dite puis la désorption, essentiellement de CO ou CO₂ [100]. Dans les conditions stœchiométriques ou de richesse élevée, l'oxydation des suies est dominée par le radical OH[•]. Dans le cas contraire, le radical OH[•] et le O₂ sont les espèces dominantes pour l'oxydation des suies [101]. Lorsque la température augmente, le taux d'oxydation augmente plus que le taux de pyrolyse. Les quantités de suies produites par les flammes de diffusion (pas d'oxygène dans la zone de pyrolyse) sont donc supérieures à celles produites par les flammes de prémélange (avec oxygène présent dans le mélange).

1.6 CARACTERISTIQUES DES SUIES FORMANT LE DEPOT

L'utilisation d'un capteur résistif (section 1.3.5), nécessite la connaissance préalable des propriétés physico-chimiques des suies qui se déposent sur sa surface sensible. En effet, la nature des particules déposées sur la surface conditionne la réponse électrique du capteur (évolution de la conductance en fonction du temps). Dans la figure 23, nous présentons les grandeurs utiles afin d'appréhender les différentes étapes conduisant à l'évolution de la réponse électrique du capteur résistif.

En ce qui concerne le dépôt des suies entre les électrodes, les paramètres jouant un rôle significatif dans cette étape sont la taille des particules primaires, le nombre de particules primaires composant le dépôt et donc la morphologie et la taille des agrégats/agglomérats le composant.

La deuxième étape donne lieu à l'évolution de la conductivité électrique du capteur. La grandeur la plus importante dans cette étape est bien évidemment la conductivité électrique des suies qui dépend essentiellement de la composition et de la microstructure du matériau composant les suies.

Finalement, la dernière étape permet de régénérer la surface sensible du capteur résistif. Dans cette étape, le mécanisme prépondérant est l'oxydation des suies, phénomène dépendant de la composition et la microstructure de ces particules et nécessitant de caractériser le comportement sous oxydation des suies en réalisant des analyses thermogravimétriques.

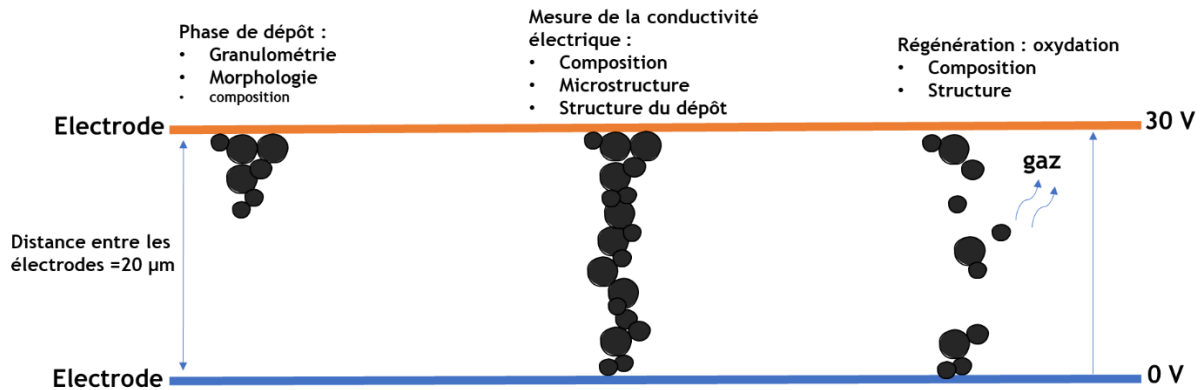


Figure 23 : Illustration schématique de l'évolution du dépôt entre les électrodes (en considérant la géométrie et les conditions employées par Grondin et al. [8])

I.6.1 Phase de dépôt

Les particules de suie sont définies par Petzold et al [95] comme étant des agglomérats de monomères constitués uniquement de carbone avec de petites quantités d'hydrogène et d'oxygène.

La nature fractale des particules, agrégats et particules primaires, a été confirmée par Köylü [102], [103] depuis les premiers travaux de Witten & Sander [104].

Les dispositifs de métrologie des aérosols sont nombreux. Cependant, ils ne sont pas spécifiquement développés pour l'étude des particules de suie. Ainsi des granulomètres basés sur la mesure du diamètre de mobilité électrique ou du diamètre aérodynamique, sont utilisés pour étudier les suies mais sans prendre en considération la morphologie fractale de ces particules. Dans cette partie, nous définirons les distributions granulométriques des suies et nous introduirons les différents diamètres équivalents employés pour caractériser l'agrégat.

I.6.1.1 Définition des différents domaines

La continuité du milieu est caractérisée par le nombre adimensionnel de Knudsen Kn défini par le rapport du libre parcours moyen des molécules du gaz porteur λ_g et du rayon de la particule (r_p).

$$Kn = \frac{\lambda_g}{r_p} = 2 \frac{\lambda_g}{D_p}, \quad (10)$$

Le libre parcours moyen des molécules de l'air est défini en fonction des conditions de température et de pression [105] :

$$\lambda_g = \lambda_0 \left(\frac{T}{T_0} \right) \left(\frac{P}{P_0} \right) \left(\frac{1 + \frac{110,4}{T_0}}{1 + \frac{110,4}{T}} \right), \quad (11)$$

avec :

- $\lambda_0 = 67,3 \cdot 10^{-9} \text{ m}$,
- $P_0 = 101325 \text{ Pa}$,
- $T_0 = 296,15 \text{ K}$.

Trois régimes d'écoulement se distinguent en fonction du diamètre des particules :

- le domaine continu pour $Kn \ll 1$ ($\lambda_g \ll r_p$),
- le régime intermédiaire pour $Kn \approx 1$ ($\lambda_g \approx r_p$),
- le domaine moléculaire pour $Kn \gg 1$ ($\lambda_g \gg r_p$).

En effet, le système gaz-solide, décrit macroscopiquement grâce aux variables d'état classiques (vitesse, densité, pression, température) pour un petit nombre de Knudsen ($Kn \ll 1$), est considéré comme un milieu continu.

Les discontinuités interfaciales apparaissent quand le nombre de Knudsen augmente. Ces discontinuités sont dues aux phénomènes de glissement.

Lorsque ce nombre de Knudsen devient très supérieur à 1, le milieu n'est plus considéré continu, car le nombre de collisions entre les molécules du gaz porteur est inférieur à celui entre les molécules de gaz et les particules [106].

Les suies présentent généralement des tailles nanométriques de 30 à 1000 nm avec un mode autour de 200-300 nm (figure 24).

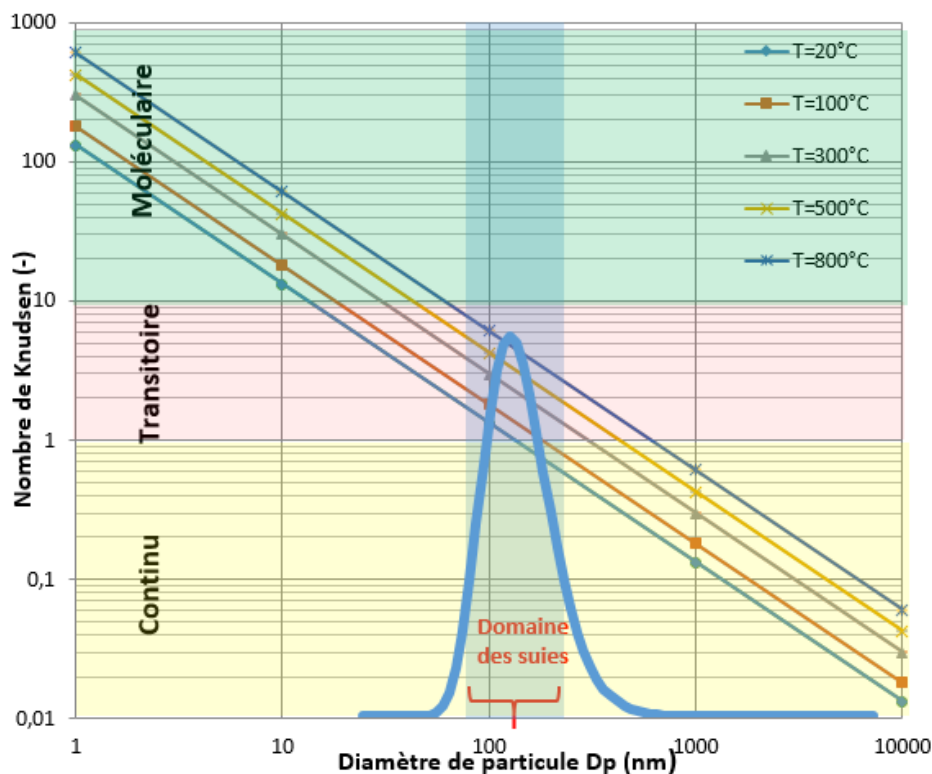


Figure 24 : Évolution du nombre de Knudsen en fonction du diamètre de la particule pour des températures de 20°C à 800°C

I.6.1.2 Distribution granulométrique des suies

La taille des particules primaires est généralement caractérisée par un diamètre unique appelé diamètre de la particule primaire D_p . La morphologie des particules primaires est généralement considérée comme sphérique. Les diamètres de ces particules au sein d'un agrégat sont faiblement dispersés et suivent, selon les auteurs, différentes distributions granulométriques. La distribution gaussienne (ou normale) a ainsi été vérifiée expérimentalement par Wentzel et al. [107] pour des suies Diesel et pour différents combustibles (acétylène, toluène, PMMA) [108] alors que d'autres auteurs [109], [110], considèrent que la distribution granulométrique des particules suit une fonction log-normale (équation 12) [111].

La distribution log-normale est utilisée pour décrire les agrégats [112].

$$\frac{dN}{d\ln(D_p)} = \frac{1}{\ln(\sigma_{p,geo})\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln(D_p) - \ln(D_{p,geo})}{\ln(\sigma_{p,geo})}\right)^2\right), \quad (12)$$

avec D_p le diamètre des particules primaires, $D_{p,geo}$ le diamètre médian des particules et $\sigma_{p,geo}$ l'écart-type géométrique.

Dans la suite de ce travail, on associera la distribution de diamètre des particules primaires d'un agrégat à une fonction log normale.

I.6.1.3 Morphologie fractale des suies

Les particules de suie peuvent être caractérisées grâce à des paramètres spécifiques décrivant leur morphologie fractale. Une dimension caractéristique de ce type d'objets qui traduit la répartition de la matière en son sein est son rayon de giration R_g . Ce dernier correspond à la moyenne quadratique des distances d_i entre les particules primaires et le centre de masse. Il représente la répartition spatiale des particules primaires autour du centre de masse de l'agrégat [32] et peut être introduit par la relation suivante :

$$D_g = 2 R_g = 2 \sqrt{\frac{1}{N_p} \sum_{i=1}^{N_p} d_i^2}, \quad (13)$$

avec N_p le nombre de particules primaires constituant l'agrégat.

Afin de décrire la morphologie spécifique des agrégats de suies, divers auteurs [113] ont introduit la dimension fractale d_f et le préfacteur fractal k_f à travers la relation fractale suivante :

$$N_p = k_f \left(\frac{D_g}{D_p}\right)^{d_f}, \quad (14)$$

où D_p est le diamètre des particules primaires le constituant.

Généralement, l'analyse quantitative de la morphologie des agglomérats (D_p , d_f) repose sur l'analyse au Microscope Electronique à Transmission (MET) des images [102], [114]-[116].

La dimension fractale, le préfacteur fractal et le diamètre des particules primaires peuvent être déterminés par différentes méthodes reposant sur des techniques optiques [117]-[119], une analyse aérodynamique [120] ou une analyse des clichés MET [108], [121], [122].

Le tableau 2 résume les caractéristiques des suies produites lors d'un incendie.

Tableau 2 : Caractéristiques morphologiques des particules produites lors d'un incendie

Combustible	Grandeur	Méthode	Valeur	Référence
Acétylène	d_f	MET	1,93	[123]
	k_f	MET	1,68	[123]
	D_p	MET	64 nm	[123]
TBP/TPH	D_p	MET	31 - 34 nm	[13]
PMMA	d_f	MET	1,72	[123]
	k_f	MET	2,97	[123]
	D_p	MET	53 nm	[123]
Cas particulier CAST (suies produites dans cette étude)	d_f	MET	1,6 - 1,8	[13]
	k_f	MET	2,2 - 2,8	[25]
	D_p	MET	10 - 30 nm	[13]

Plus récemment, Ouf *et al.* [19] ont montré que ces paramètres sont importants pour déterminer les propriétés physiques des agrégats ainsi que leurs diamètres équivalents.

1.6.1.4 Diamètres équivalents

Le dépôt des aérosols sur des surfaces dépend des caractéristiques physico-chimiques des particules composant ces aérosols, des propriétés de la surface de dépôt et des conditions de turbulence.

La forme des particules produites lors d'un incendie est complexe et peut varier selon la nature du combustible. Cependant, les lois physiques sont généralement définies pour des particules sphériques [124]. Afin de pouvoir appliquer ces lois physiques, des diamètres équivalents basés sur les caractéristiques géométriques et aérodynamiques des particules ont été définis. Il existe plusieurs diamètres équivalents mais nous nous intéresserons dans cette section au diamètre équivalent de mobilité électrique et au diamètre aérodynamique.

1.6.1.4.1 Diamètre de mobilité électrique

Au sein d'un champ électrique \vec{E} , si une particule porte au préalable une charge électrique (liée à la présence d'ions au sein d'une flamme ou la production d'ions par un procédé de décharge) elle acquiert une vitesse terminale électrostatique V_{TE} tel que :

$$Z = \frac{V_{TE}}{E}, \quad (15)$$

où Z est la mobilité électrique de la particule, proportionnelle à la mobilité dynamique B .

Le diamètre de mobilité électrique D_m est défini comme étant le diamètre d'une sphère ayant la même mobilité électrique (Z) que la particule (même vitesse de dérive dans un champ électrique [125]). Il est généralement employé pour décrire la diffusion des aérosols et est généralement associé à la mesure SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer).

$$Z = n \cdot e \frac{Cu(D_m)}{3 \pi \eta_g D_m}, \quad (16)$$

avec n le nombre de charges portées par la particule et e la charge élémentaire, η_g la viscosité dynamique du gaz et Cu le coefficient de Cunningham.

Brugière [25] a démontré que ce paramètre est utile pour comparer les écarts de vitesses de thermophorèse pour des billes de latex et des agrégats mais il n'y a pas encore de consensus pour les suies.

La propriété électrique est couramment utilisée en métrologie des aérosols afin de sélectionner les particules par rapport à leurs tailles. En effet, pour un champ électrique donné et à charge égale, une particule de 10 nm aura une mobilité électrique environ 2000 fois supérieure à celle d'une particule de 1 μm .

1.6.1.4.2 Diamètre aérodynamique

Le diamètre aérodynamique (D_a) est défini par le diamètre d'une sphère ayant une masse volumique $\rho_0 = 1000 \text{ kg.m}^{-3}$ et la même vitesse de sédimentation (V_s) que la particule.

$$V_s = \frac{\rho_0 D_a^2 C_u (D_a)}{18 \eta_g}, \quad (17)$$

Le diamètre aérodynamique est utilisé afin de définir le comportement inertiel et gravitationnel des aérosols.

Dans le cas des suies, il n'existe pas de consensus dans la littérature [25] sur le diamètre équivalent pouvant décrire la thermophorèse.

1.6.2 Mesure de la conductivité électriques des suies

Le comportement des capteurs que nous allons considérer repose sur la conductivité électrique équivalente qui est fonction de la conductivité électrique intrinsèque du matériau qui sera ensuite pondérée par la porosité/structure morphologique du dépôt.

En effet, le signal d'un capteur résistif correspond à une mesure de conductance entre deux électrodes entre lesquelles les suies se déposent. Le signal du capteur dépend donc directement de la conductivité apparente des particules de suies [73].

Les suies sont conductrices électriquement car leur composition est riche en carbone. La conductivité électrique est une propriété intrinsèque du matériau. Cependant, au vu de la porosité élevée du dépôt, il est difficile de mesurer la conductivité électrique sans modifier cette propriété.

La conductivité électrique apparente mesurée dépendra donc du nombre de contacts électriques établis entre les particules de carbone. Elle dépendra également de la nature du carbone composant les agrégats (notamment de sa teneur en carbone organique) et de la morphologie des agrégats [126]. La conductivité électrique mesurée dépendra également de la compression du matériau. Une compression plus importante aura un effet direct sur le nombre de points de contact entre les particules primaires ainsi que sur la morphologie des agrégats qui pourront être déformés pour être plus compactes. La conséquence sera une augmentation de la conductivité consécutivement à l'augmentation de la compression. De manière générale, la conductivité des suies augmente avec leur masse volumique [127]-[129].

Le tableau 3 synthétise les valeurs de conductivité trouvées en fonction de la nature des suies étudiées sous l'effet de forces de compression.

Tableau 3 : Conductivités électriques sous compression de suies modèle

Référence	Type de carbone utilisé	Conductivité (S.m^{-1})
[130]	Graphène Noir de carbone	263,16 pour 5 MPa 555,55 pour 5 MPa
[129]	Noir de carbone	50 à 250 pour 742 kPa
[73]	Combustion du Propane (Suies produites par le CAST)	0,33 à 200 en fonction du point de fonctionnement pour 5,9 MPa

Il est à noter que les pastilles formées par compression ne sont pas représentatives du dépôt sur le capteur. La conductivité d'un gâteau de suie reste un paramètre difficile à déterminer car il varie en fonction de plusieurs paramètres (nature des particules, nombre de points de contact....).

D'après Espinola et al. [131], la conductivité des matériaux poreux est difficile à déterminer. Par conséquent, très peu d'informations existent dans la littérature sur la conductivité des suies formées lors d'un incendie vu les porosités importantes du dépôt.

De Falco et al. [132] ont étudié la conductivité électrique des particules de suie formées dans une flamme prémélangée à l'éthylène. La conductivité a été mesurée, sans avoir recours à la compression, en utilisant l'équation 18 :

$$\sigma = G \frac{l}{d \cdot \delta} , \quad (18)$$

où G est la conductance électrique, calculée comme étant la pente des courbes I - V dans l'intervalle entre 20 et 50 V, δ est l'épaisseur du dépôt, l est la distance entre les électrodes (l = 0,1 cm) et d est la longueur de chaque électrode (d = 0,5 cm).

La conductivité électrique mesurée par De Falco et al [132] est comprise entre $4 \cdot 10^{-4}$ et $1,15 \text{ S} \cdot \text{m}^{-1}$, inférieure aux résultats de Liu et al. [133]. Les valeurs moyennes de conductivité électrique proposées par Liu et al. [133] pour des particules de suie de tailles 14-16, 17-19, 20-22 nm sont respectivement de 1,77, 2,53 et 2,08 $\text{S} \cdot \text{m}^{-1}$. Les auteurs suggèrent qu'il n'y a pas de corrélation entre la conductivité électrique et la taille. Nous remarquons néanmoins que lorsque l'échantillon ne subit pas de compression, les conductivités mesurées sont très inférieures à celles présentées dans le tableau 3.

Niessner [134] a mesuré la résistivité de la poudre de suie (figure 25) par la méthode de Van der Pauw [135]. Il a trouvé une différence de quatre ordres de grandeur dans la conductivité de la suie produite différemment dans des conditions identiques de pression et de température. La conductivité la plus élevée a été obtenue dans le cas de particules bien ordonnées et symétriques (comme pour les particules graphitiques). Dans le cas d'une structure déformée, comme celle trouvée pour les nanoparticules de carbone à décharge par étincelle (GfG), les particules deviennent moins conductrices. La conductivité diminue au fur et à mesure que la teneur en matériau inorganique non conducteur augmente dans un agrégat.

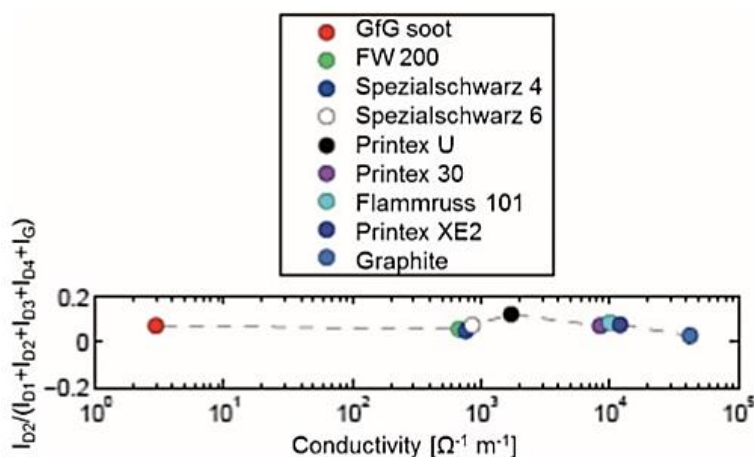


Figure 25 : Conductivité de la poudre de « suie » mesurée par la méthode de Van der Pauw. (conditions décrites dans [136])

La conductivité électrique des suies semble donc très dépendante de la composition et de la microstructure de ces particules. Plusieurs auteurs ont étudié la structure et la nature des suies [113], [137] par prélèvement de particules dans la flamme et analyse des dépôts par différentes techniques. La microstructure des suies est « turbostratique ». Les cristallites (couches de carbone) sont arrangées selon une structure en « pelure d'oignon ».

L'exposition des suies aux rayons X montre que chaque cristallite est constituée de plaquettes disposées en couches hexagonales (5 à 10 plaquettes par cristallite) (figure 26) avec un espace inter-couche égal à 0,344 nm. Cet espace est légèrement supérieur à l'espace inter-couche du graphite (0,335 nm) [138].

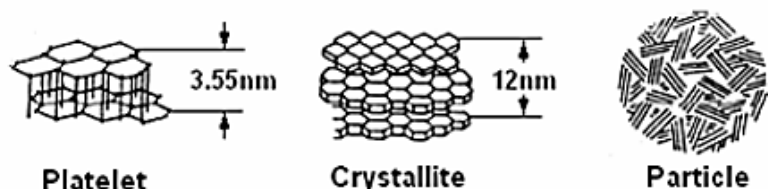


Figure 26 : Microstructure d'une particule de suie [139]

L'analyse chimique de la suie permet de distinguer les principaux composants des suies. Il s'agit de carbone organique (OC) regroupant tous les composés organiques fonctionnalisés, fractions organiques solubles non-volatile et volatile et de carbone élémentaire (EC) constitué à quasiment 100% d'atomes de carbone, matrice carbonée et constituant majoritaire de la suie [140]. Le carbone est le composant majoritaire des suies (>70 % en masse) [141].

Pour quantifier le ratio carbone organique/carbone total (OC/TC), la méthode la plus courante se base sur l'analyse des gaz issus de la décomposition thermique progressive de l'échantillon selon deux principaux protocoles de décomposition thermique appelés méthodes NIOSH [142] et IMPROVE A [143]. Grâce à cette décomposition progressive, le carbone organique fonctionnalisé [144], le carbone organique non fonctionnalisé et le carbone élémentaire sont quantifiés respectivement à partir de 150°C, 350°C et 600°C.

Outre la décomposition thermique, la coulométrie ou la SP-AMS (single-particle aerosol mass spectroscopy) peuvent aussi mesurer le ratio OC/TC [142]. Même si ce ratio est généralement mesuré pour des aérosols atmosphériques, il a été également déterminé pour des suies et noirs de carbone. Ce ratio est inférieur à 5 % pour les noirs de carbone alors qu'il peut atteindre jusqu'à 22 % pour des suies CAST [111] selon le point de fonctionnement.

La fraction en OC implique une diminution de la masse volumique des suies [145] et peut être déduite lors des analyses thermogravimétriques avec des rampes de températures programmées. La perte de masse des noirs de carbone est significativement inférieure à celle des suies [146] car les composés organiques se désorbent à partir de 300°C.

Un paramètre important qu'il convient de prendre en compte lors des mesures de conductivité est la température. En effet, le coefficient de température qui symbolise le facteur de changement de résistance par degré de changement relatif de température joue un rôle important lors des mesures de la conductance des suies.

D'environ $-0,003^{\circ}\text{C}^{-1}$ pour des suies modèles et variant de -2.10^{-3} à $-0,5^{\circ}\text{C}^{-1}$ pour des suies du CAST selon le point de fonctionnement [73], ce coefficient négatif indique une conduction non métallique des particules de suies. Ainsi, la conductance augmente avec la température.

I.6.3 Régénération : oxydation des suies

Dans cette section, nous nous intéressons à la réactivité chimique des suies, et en particulier à leur oxydation. Ce mécanisme est important car il intervient lors de la régénération du capteur résistif. L'oxydation des suies est un processus complexe en raison de la structure hétérogène du matériau. Les suies peuvent s'oxyder pour former du CO_2 , CO et H_2O à des températures élevées (600 - 700 °C). Sediako et al. [148] montrent que l'oxydation des agrégats de suie se fait principalement par des réactions de surface avec des espèces oxygénées ionisées. L'oxydation de surface induit une diminution continue de la taille des particules primaires de l'agrégat, modifiant les liaisons entre ces particules, leur sphéricité et provoquant la fragmentation de l'agrégat et la production de gaz.

La littérature est bien documentée sur la thématique de l'oxydation des suies issues de brûleurs de laboratoire ou de particules issues de procédés de combustion interne. Néanmoins, elle reste limitée dans le cas des aérosols émis lors d'incendies.

Ouf [13] a réalisé des analyses thermogravimétriques (ATG) sur des suies réalistes d'incendie récupérées à la suite d'expérimentations à échelle analytique notamment des suies du CAST et des suies produites à grande échelle. Les analyses thermogravimétriques permettent de déterminer la température de conversion maximale (température de régénération). De plus, elles permettent de calculer les énergies d'activation en se basant sur une équation de type Arrhénius.

Pour les suies du CAST, les températures de conversion maximale varient entre 650 et 700 °C et l'énergie d'activation est de 80 $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ pour une concentration d'oxygène dans l'azote de 21 %. Ouf [13] a par ailleurs déterminé cette énergie d'activation pour des suies produites par d'autres combustibles lors d'un incendie. Les valeurs reportées sont ainsi comprises entre 80 et 140 $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ en accord avec la gamme de variation d'énergie d'activation des suies issues de la combustion de polymère polyméthylméthacrylate (PMMA), polypropylène (PP), acrylonitrile butadiène styrène (ABS)) varie entre 100 et 300 $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ reportée par Hartman et al. [150]. Par ailleurs, Muller et al. [151], ont trouvé que l'énergie d'activation apparente pour des suies de décharge d'étincelle (GFG) est égale à 130 $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$, tandis que celle pour la suie de diesel est égale à 160 $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$.

Au-delà de cette analyse de la littérature sur les énergies d'activation, Ouf [13] a conclu que les températures de conversion maximale et d'oxydation complète sont sensibles à la concentration en oxygène et à la nature du combustible et que l'énergie d'activation est peu sensible à la concentration en oxygène mais sensible au ratio OC/EC dans les suies. Plus encore, plusieurs auteurs ont étudié la gamme de température d'oxydation des suies. D'après Muller et al. [151] celle-ci varie entre 600 °C et 700 °C (figure 27), en très bon accord avec la température de régénération du capteur résistif fixée à 650 °C.

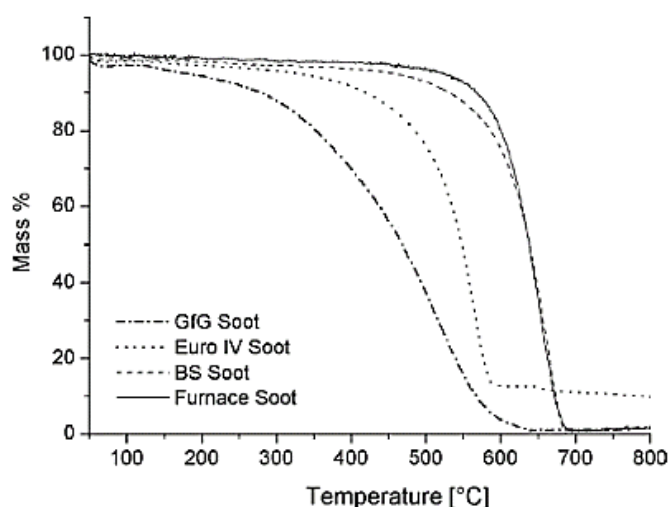


Figure 27 : Spectre d'analyse thermogravimétrique couplée à oxydation en température programmé [151]

Les analyses thermogravimétriques sont généralement couplées à des analyses des gaz émis par spectroscopie de masse afin d'identifier les produits d'intérêt.

Les produits de combustion dépendent de la composition des suies.

Néanmoins, les spectres de masse (figure 28) présentés par Muller et al. [151] montrent que le gaz majoritairement émis lors de la combustion des suies est le CO_2 . Des quantités moindres de CO peuvent également être produites.

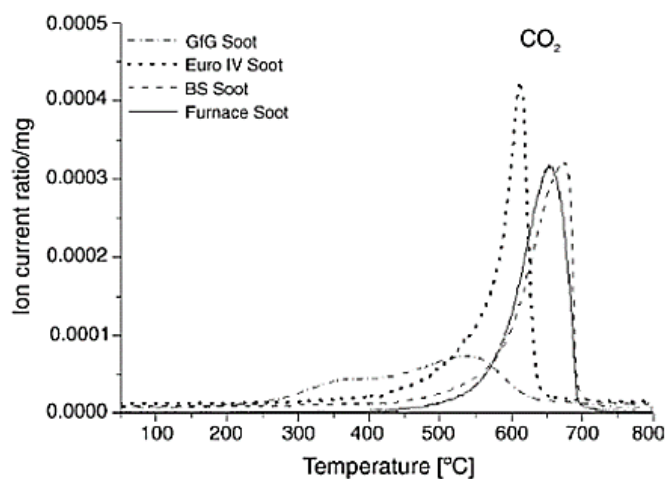


Figure 28 : Spectre de masse des suies produits de combustion [151]

Pour la quantification des suies, une analyse de gaz de CO_2 et de CO émis lors de la combustion serait donc d'après les données de la littérature envisageable.

CONCLUSION

Ce premier chapitre de l'état de l'art nous a permis de situer le contexte et les objectifs de ce travail de thèse.

L'objectif principal de la thèse étant de développer un dispositif multi-capteurs pour mesurer la masse de suies déposée sur les parois d'un local soumis à un incendie à grande échelle, il est donc primordial d'étudier les différents mécanismes de dépôt et de déterminer les zones de dépôts privilégiées afin de fixer le nombre et les positions des capteurs dans le local.

D'après Ait Ali Yahia *et al* [26], Brugière [25], Decoster [32], Riahi [31], dans des installations contrôlées à petites échelles, le dépôt est principalement dû à la thermophorèse. La caractérisation du gradient de température à la paroi s'avère donc crucial dans la prédiction du dépôt de suie.

L'état de l'art élaboré a permis de conclure qu'en cas d'incendie, les modèles de dépôt intégrés dans les codes de simulation incendie ne sont pas adaptés car manquants d'une part de données expérimentales de validation, les différents essais disponibles à ce jour ayant été réalisés dans des conditions contrôlées à l'échelle du laboratoire, d'autre part n'incluant pas encore à ce jour la morphologie complexe des suies.

Grâce à ces conclusions, un cahier des charges des spécifications du capteur résistif, qui va être utilisé pour mesurer les masses de suies déposées sur les parois, a été élaboré :

- Pas de perturbation du mécanisme de dépôt des suies en paroi :
 - faible épaisseur du substrat,
 - dimensions réduites,
 - faibles tensions de polarisation (réduction de l'effet d'électrophorèse).
- Adapté aux conditions d'incendie :
 - pas de dérive à haute température,
 - surface du capteur inerte aux vapeurs corrosives émises lors d'un incendie,
- Grande plage dynamique de mesure et résolution de l'ordre du mg.m^{-2} .
- Réponse en temps réel.
- Régénérable afin d'éviter la saturation et limiter la contribution du dépôt formé à la surface.
- Mesure quantitative de la masse déposée.

En se basant sur ces spécifications, la technologie résistive de capteurs de suie a été retenue.

Les suies qui se déposent sur le capteur résistif ont majoritairement une morphologie fractale et une taille des agrégats nanométrique. Lors de la régénération de ce capteur, les auteurs dans la littérature montrent que l'oxydation des suies se réalise à des températures autour de 600 à 700°C. Cependant, il n'y a pas de consensus sur la conductivité électrique de ces suies et les ordres de grandeur dans la littérature présentent de grandes disparités.

Avant de procéder à la fabrication des capteurs, des essais incendie à échelle réelle nous ont permis de préciser les ordres de grandeurs de dépôt afin d'affiner les spécifications du capteur pour la situation industrielle précise considérée dans cette thèse.

De plus, ces essais à grande échelle et des simulations de types CFD, nous ont permis de déterminer les zones privilégiées de dépôt afin de fixer le nombre optimal et les emplacements des capteurs lors d'une campagne de validation à grande échelle prévue dans le cadre du projet de recherche.

Les résultats de quantification à grande échelle ainsi que les résultats du calcul sont présentés dans le chapitre II de cette thèse.

Chapitre.II QUANTIFICATION EX-SITU DU DEPOT A GRANDE ECHELLE ET IDENTIFICATION DU BESOIN EN CAPTEURS

INTRODUCTION

Comme souligné dans le chapitre I, il n'existe pas dans la littérature de capteurs actifs qui permettent de déterminer, en temps réel, la quantité de suies déposées, par unité de surface, sur les parois d'un local au cours d'un incendie.

Les données expérimentales dans la littérature, en termes de masse de suies déposées, sont limitées à des études dans des conditions contrôlées à petite échelle [31], ou reposant sur des moyens métrologiques limités [32]. La mesure de ces quantités déposées sur les parois est cependant indispensable pour juger de la pertinence des modèles de dépôt d'aérosols existants et implémentés dans des codes de calcul tels que ANSYS CFX® [23], dans les codes de simulation dédiés à l'incendie tels que FDS [152] ou comme données d'entrée des modèles de colmatage des filtres à Très Haute Efficacité (THE) présents sur les réseaux de ventilation des INB [4].

Les résultats présentés dans la première partie du chapitre II visent donc à fixer l'ordre de grandeur du dépôt grâce à des analyses ex-situ, à étudier l'effet de la nature des surfaces sur le dépôt et les caractéristiques du dépôt afin de définir les spécifications du capteur temps réel en cours de développement. Ils visent aussi à déterminer les zones privilégiées de dépôt. Ces résultats concernent les essais de feux A2 et A1 menés à grande échelle dans l'installation nommée DIVA (Dispositif Incendie, Ventilation et Aérocontamination, IRSN Cadarache), à échelle réelle dans le cadre du projet OCDE PRISME [153].

Lors des essais A2 et A1 de la campagne PRISME 3, des cibles passives ont été installées dans un local incendie afin d'identifier les zones et les mécanismes prépondérants de dépôt des aérosols émis par la combustion de l'huile DTE Médium sur différents supports.

De manière plus générale, ces essais visent à étudier la propagation des fumées d'un local vers d'autres locaux par des ouvertures verticales (portes ouvertes) ou horizontale (trémie) ainsi qu'à évaluer les conséquences des fumées et du dépôt des suies sur le fonctionnement d'équipements électriques ou électroniques en conditions réelles d'incendie.

Dans la deuxième partie du chapitre II, nous présenterons l'étude numérique menée afin de déterminer les zones privilégiées de dépôt de suie et par suite le nombre optimal de capteur qu'il convient d'envisager et leur positionnement pour caractériser ces dépôts dans un local incendie ainsi que les éventuelles singularités induites par les équipements de ventilation ou le foyer incendie. En l'état actuel des connaissances, aucun modèle couplé incendie/aérosol, ne permet de réaliser un tel calcul de dépôt de suies. A défaut de modèles de transport de suies validés par des expérimentations incendie à grande échelle, notre choix s'est porté sur une modélisation relativement détaillée et validée expérimentalement, du transport des aérosols et ce au détriment de la modélisation du foyer incendie. Les logiciels de calcul CFD (Computational Fluid Dynamics) peuvent être utilisés pour simuler le transport ainsi que le dépôt d'aérosols dans le local incendié. Le logiciel CFD « ANSYS CFX » a été employé dans cette étude car il présente l'avantage de disposer de modèles de dépôt et de transport d'aérosols, implémentés et validés par l'IRSN à partir de données expérimentales. Néanmoins, ces données concernent essentiellement des conduits de ventilation relativement lisses et de faible diamètre (de l'ordre du centimètre) qui ne sont pas représentatifs d'un local à grande échelle.

Les objectifs du présent chapitre porteront d'une part sur l'identification des phénomènes de dépôt des suies et sur les mécanismes pouvant donner lieu à d'éventuelles hétérogénéités de dépôt (nécessitant l'implantation de capteurs à des emplacements spécifiques) ainsi que sur l'étude expérimentale des caractéristiques des dépôts de suies sur les parois afin de proposer les spécifications adéquates du capteur résistif.

II.1 QUANTIFICATION EX-SITU DES SUIES PRODUITES A GRANDE ECHELLE

II.1.1 Conditions et moyens expérimentaux de l'essai incendie

II.1.1.1 Description du local incendie et configuration des essais

Le dispositif expérimental DIVA à Cadarache, dans lequel les essais A2 et A1 se sont déroulés, est schématisé en figure 29.

L'installation DIVA est constituée de trois locaux (Local 1, Local 2 et Local 3) de tailles identiques contigus ($L \times l \times h = 6 \times 5 \times 4 \text{ m}^3$) et donnant sur un couloir latéral commun, de 15,6 m de long et de 2,5 m de large. Un quatrième local « Local 4 », situé au-dessus du local 3, permet de traiter la propagation du feu et des fumées vers les étages supérieurs à travers une trémie.

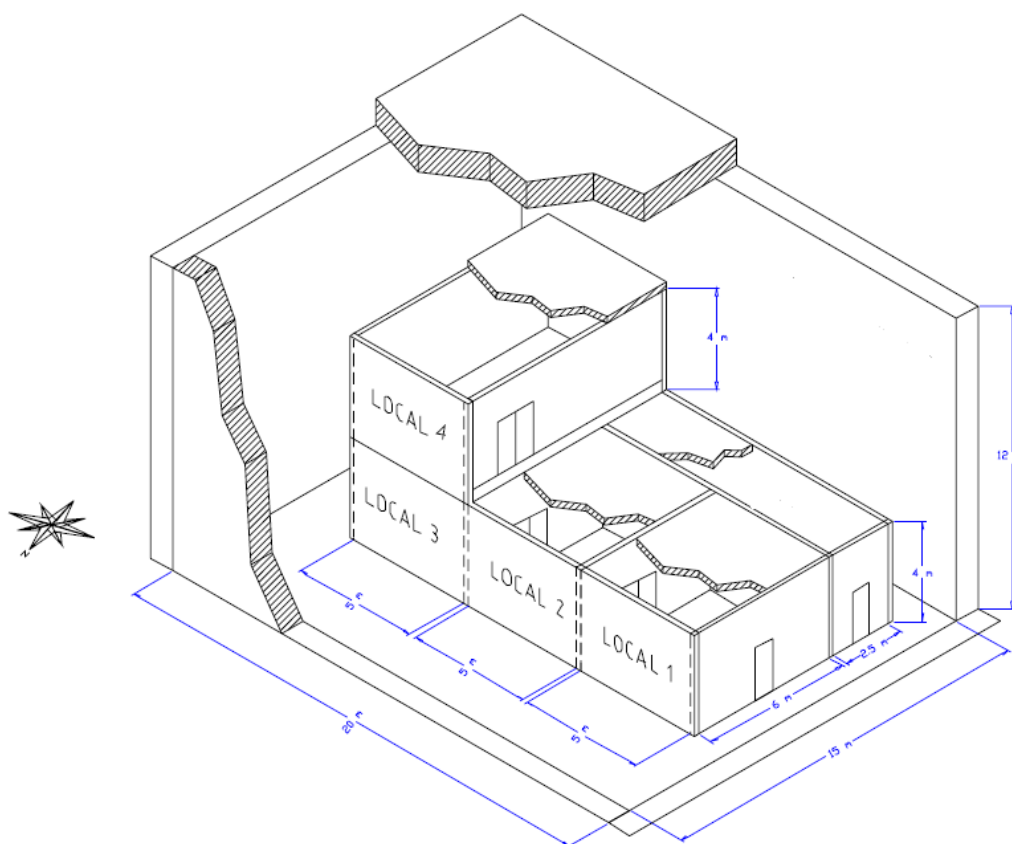


Figure 29 : Vue en perspective de DIVA

Les configurations des essais A2 et A1 consistent en un foyer localisé dans le local 3 mécaniquement ventilé. Les locaux 1, 2 et 3 communiquent par des portes ouvertes, tandis que les locaux 3 et 4 communiquent par un système de ventilation et une trémie.

Les 2 scénarios incendie sont représentés dans la figure 30. Les essais A1 et A2 ont mis en jeu un bac d'huile lubrifiante DTE Medium respectivement d'une surface de $0,4 \text{ m}^2$ (32 L) et 1 m^2 (80 L).

L'essai A2 a duré une heure et demie tandis que l'essai A1 a duré une heure. Tous les locaux sauf le couloir commun étaient mis en jeu.

Dans les deux cas, le foyer était placé à proximité de la paroi nord du local 3. Les bouches de soufflage et d'extraction étaient placées en partie haute du local 3 pour l'essai A2 et en partie haute du local 4 pour l'essai A1. Le taux de renouvellement était égal à 20 h^{-1} , d'où un débit d'extraction égal à

CHAPITRE. II

QUANTIFICATION EX-SITU DU DEPOT A GRANDE ECHELLE ET IDENTIFICATION DU BESOIN EN CAPTEURS

2400 m³.h⁻¹ et un débit d'admission d'air égal à 2400 m³.h⁻¹. La Figure 31 présente le foyer installé dans le coin Nord - Ouest du local 3.

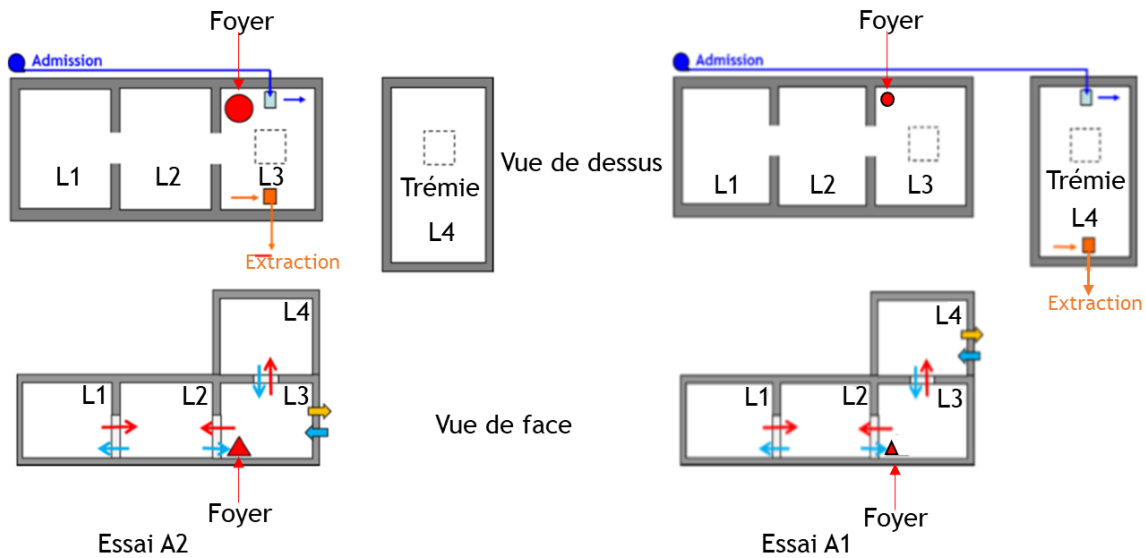


Figure 30 : Illustration du scénario incendie (Essai A2 à gauche et essai A1 à droite). Le cercle et le triangle désignent respectivement le foyer en vue du dessus et vue de face, le carré bleu (vue de dessus) et la flèche épaisse bleue (vue de face) représente la bouche d'admission et le carré orange (vue de dessus) et la flèche épaisse orange (vue de face) la bouche d'extraction



Figure 31 : Emplacement du foyer ① dans le local 3 et de la trémie ② entre les locaux 3 et 4

CHAPITRE. II

QUANTIFICATION EX-SITU DU DEPOT A GRANDE ECHELLE ET IDENTIFICATION DU BESOIN EN CAPTEURS

II.1.1.2 Méthode de collecte des suies pendant l'essai incendie

Afin de récupérer les suies déposées, deux moyens expérimentaux ont été déployés :

- 1- prélèvement sur des cibles installées à différents endroits, sur les parois, le plafond, ou posées au sol ;
- 2- prélèvement par aspiration directe sur parois, plafond et sol.

La quantification du dépôt prélevé sur les cibles et par aspiration est effectuée à posteriori à l'aide d'une technique thermo-optique reposant sur la détermination, à l'aide d'un détecteur à ionisation de flamme FID, de la quantité de carbone composant l'échantillon sous forme organique (OC) et élémentaire (EC) (analyseur OC/EC Sunset Lab, cf. III.3 [154]).

a) Caractéristiques des cibles passives de dépôt

Les cibles (Figure 32 (gauche)) sont constituées d'un porte-filtre en acier sur lequel est plaqué un isolant (RS PRO - 724-8919) et un filtre en quartz (Membranes Quartz 2500 QAT - UP) d'une dimension de 10x10 cm². Elles ont été installées à plusieurs emplacements dans les différents locaux.

Les porte-filtres en acier pèsent environ 0,5 kg et sont schématisés sur la figure 32.

L'isolant, d'une dimension de 9x9 cm², est plaqué sur le porte-filtre en acier. Cependant, il n'est pas à exclure la présence d'un film d'air entre l'isolant et le porte-filtre pouvant modifier les contacts thermiques.

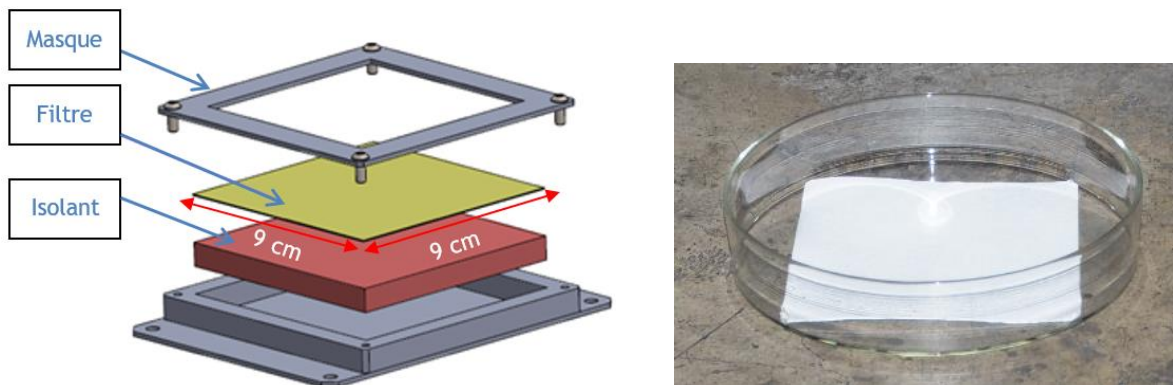


Figure 32 : Schéma de la cible de dépôt sur les parois (gauche) et cible installée au sol (droite)

L'isolant utilisé est une fibre superwool 607 (RS PRO - 724-8919) pouvant être utilisé jusqu'à une température de 1150 °C. Il possède une conductivité thermique de 0,05 W.m⁻¹.K⁻¹ à 200 °C alors que celle de l'air à la même température est égale à 0,038 W.m⁻¹.K⁻¹.

Au-dessus de l'isolant, un filtre de quartz pur (Membranes Quartz 2500 QAT - UP) d'une dimension de 10x10 cm² a été placé et a été fixé à l'aide d'un masque, serré des quatre côtés, de sorte que la surface d'exposition au dépôt soit égale à 9x9 cm². Ce filtre est calciné au préalable, dans un four, à une température de 850 °C.

Les caractéristiques des filtres en quartz pur (Tissuquartz 2500 QAT-UP) utilisés sont résumées dans le tableau 4.

Tableau 4 : Caractéristiques du filtre de quartz pur (Tissuquartz 2500 QAT - UP) (données constructeur)

Paramètre	Valeur
Température maximale d'utilisation	1093 °C
Épaisseur moyenne	432 µm
Masse volumique du filtre	350 kg.m ⁻³
Rétention d'aérosols selon la norme ASTM D 2986-95A	99,9 %
Débit d'air à 0,7 bar	73 mL.min ⁻¹ .cm ⁻²

Au sol et pour des raisons de praticité, les cibles (figure 32 droite) sont constituées de coupelles en verre sur lesquelles sont collés les mêmes filtres en quartz d'une surface de 10x10 cm².

b) Prélèvements par aspiration

Outre les cibles installées sur les parois et déposées au sol, des prélèvements par aspiration sur des surfaces propres à DIVA de différentes natures (verre, isolant, béton, métal) et à proximité des précédentes cibles ont été réalisés directement au sol et sur les surfaces constitutives des parois après l'essai. Cette technique permet de prélever les suies déposées sur les différentes surfaces de façon directe sur des filtres en quartz de 47 mm de diamètre (Tissuquartz 2500QAT-UP). Un dispositif expérimental (cf. figure 33), composé d'un porte-filtre d'un diamètre interne de 47 mm que l'on place dans un porte filtre en acier inoxydable dans la ligne de prélèvement et d'une pompe de prélèvement, a été mis en place.

À noter que les filtres en quartz de 47 mm de diamètre employés lors des prélèvements par aspiration directe n'ont pas été calcinés au préalable.

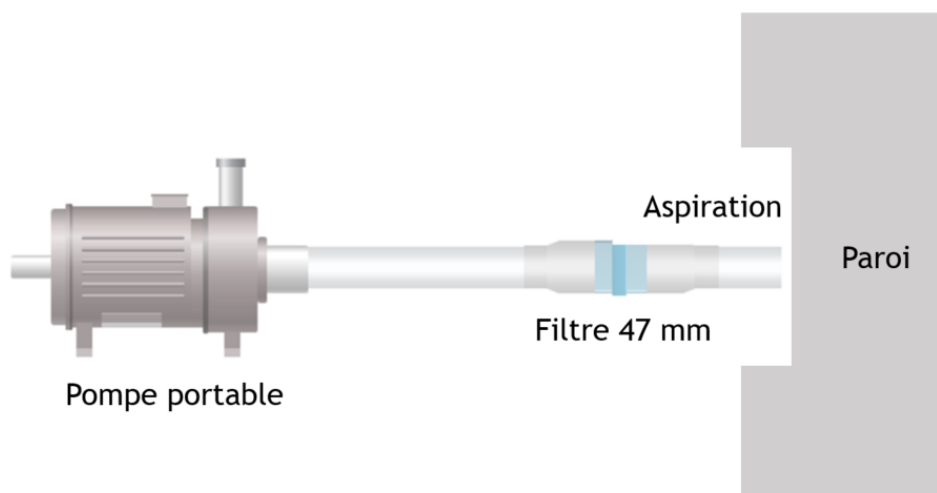


Figure 33 : Schéma d'aspiration des suies sur les différentes parois

Les surfaces prélevées ont par ailleurs été délimitées en plaçant un masque de 9x9 cm², identique à celui utilisé pour maintenir les substrats de prélèvement (cf. figure 32), directement sur la paroi. La surface aspirée est donc identique à celle des cibles murales.

II.1.1.3 Localisation des cibles et des prélèvements par aspiration

a) Cibles aux parois (mur et plafond) et au sol

Lors des deux essais A1 et A2, le dysfonctionnement des équipements électriques (convertisseurs et Détecteurs Automatiques d’Incendie (DAI-Fumées, DAI-Multicritères et DAI-Flamme)) a été testé. Nous avons donc placé nos cibles de dépôt et réalisé nos prélèvements à proximité de ces équipements électroniques afin d’essayer de corrélérer le dysfonctionnement et la quantité des suies déposées.

Les convertisseurs sont placés en partie basse (hauteur 55 cm) et haute (hauteur 255 cm) dans tous les locaux de DIVA mis en jeu dans cet essai, à savoir les locaux L1, L2, L3 et L4.

Les DAI-fumées et DAI-multicritères sont placés au plafond des 4 locaux. Cependant, nous avons préféré installer les cibles exclusivement dans le local L3 d’intérêt afin de disposer d’un maillage conséquent à l’aide du nombre limité de cibles de dépôt disponibles.

Dans toutes les figures qui suivent, les cibles sont les carrés blancs (filtres) encadrés en rouges. Toutes ces cibles ont été prises en photos avant l’incendie pour se rendre compte de l’état des parois.

7 cibles (figure 34), ont été placées de la manière suivante (parois définies sur la figure 35) :

- une cible au plafond du côté Sud-Est à proximité des DAI, une cible en partie haute à proximité des convertisseurs et une cible sur la paroi Sud-Est en partie basse,
- une cible en partie haute de la paroi Sud, au-dessus de la porte,
- une cible en partie haute de la paroi Ouest, au-dessus de la porte,
- une cible sur la paroi nord à côté du foyer et une cible sur le plafond juste au-dessus du foyer.



Figure 34 : Cibles installées respectivement sur les parois est, sud, ouest et nord du Local 3 (photos réalisées avant les essais)

Au sol, afin de quantifier le dépôt, 7 cibles similaires à celle présentée en (figure 32 droite) ont été placées dans le local 3 de la manière suivante (figure 35) :

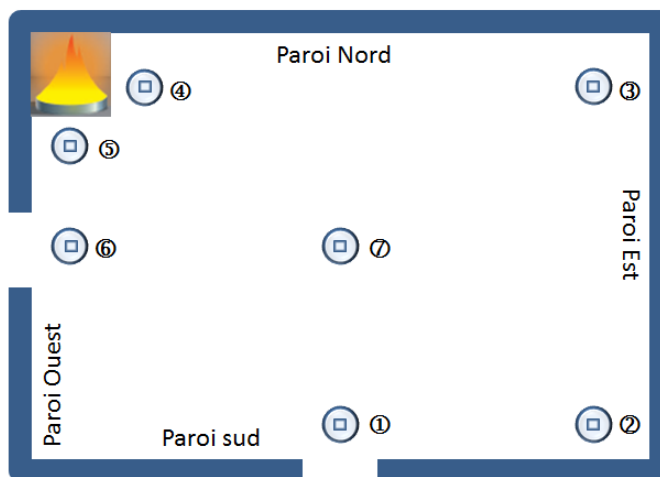


Figure 35 : Disposition des cibles sur le sol du Local 3

CHAPITRE. II

QUANTIFICATION EX-SITU DU DEPOT A GRANDE ECHELLE ET IDENTIFICATION DU BESOIN EN CAPTEURS

b) Prélèvements par aspiration

Cet essai à grande échelle a permis également d'étudier l'effet de la nature de différentes surfaces propres à l'installation DIVA (de gauche à droite : verre (hublot de l'installation), isolant, béton (constructif des parois), métal (porte) (figure 36) sur la quantité de particules déposées. Les zones choisies sont toutes situées à même hauteur et espacées d'environ 20 cm.

Pour ces surfaces, le choix s'est porté sur l'utilisation de la technique d'aspiration (figure 33) qui a été appliquée à proximité des cibles de dépôt.

Les prélèvements par aspiration ont donc été faits, d'une part sur des surfaces de différents matériaux (verre, isolant, béton, métal) d'autre part au plus proche des cibles installées sur les différentes parois du local 3 ou de celles posées au sol.



Figure 36 : Différentes surfaces de dépôt (de gauche à droite : verre, isolant, béton, métal)

II.1.2 Observations qualitatives et quantification des suies

II.1.2.1 Principales observations qualitatives

La majeure partie des équipements ont dysfonctionné lors des essais A1 et A2.

Des vues rapprochées des convertisseurs analogiques et numériques en partie haute du local L3 (figure 37) montrent l'état de ces équipements après l'essai A2. La température dans ce local montée à 160°C.

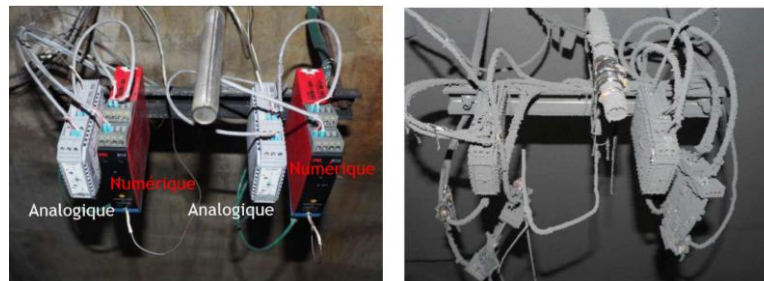


Figure 37 : Vue rapprochée des convertisseurs analogiques et numériques en partie haute du local L3 avant (gauche) et après (droite) l'essai A2

On observe un dysfonctionnement des convertisseurs numériques au bout de 2100 s après l'allumage du feu lors de l'essai A2 (figure 38). Comme les mesures des quantités déposées ne sont pas réalisées en temps réel, nous pouvons uniquement conclure que le dépôt de suie est suffisant pour atteindre le dysfonctionnement. Cependant, en l'état actuel nous ne possédons pas d'informations sur la masse déposée « seuil » induisant le dysfonctionnement, soulignant l'intérêt des mesures temps-réel envisagées dans ce travail.

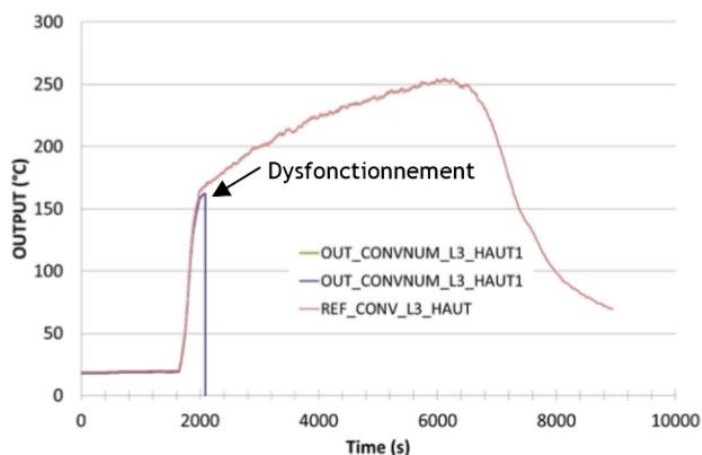


Figure 38 : Signaux de sortie des convertisseurs numériques en partie haute du local L3 lors de l'essai A2

Dans ce qui suit, les observations qualitatives reportées sont similaires pour les deux scénarios A1 et A2.

Les observations faites sur les cibles murales (parois verticales) et posées au sol montre de façon surprenante, au premier abord, un dépôt négligeable (filtres en quartz restés « blancs ») par opposition au dépôt significatif sur les cibles placées au plafond et surtout très prononcé sur toutes les autres surfaces du local (figure 39 à 42) y compris à proximité des cibles.



Figure 39 : Observations des cibles du côté Sud-Est (gauche), près du foyer du côté Nord-Ouest (milieu) et au sol (droite) dans le local L3 après incendie. de l'emplacement (gauche) des cibles du côté Sud-Est, près du foyer du côté Nord-Ouest et au sol dans le local L3 (après essai)

Dans le local 3, le dépôt (figure 40) semble visuellement relativement homogène sur les différentes surfaces (de gauche à droite : verre, isolant, béton, métal) représentées sur la figure 40 et nous reviendrons ensuite sur ce point lors de la présentation des analyses quantitatives.



Figure 40 : Dépôt sur les surfaces représentées sur la figure 36 (de gauche à droite : verre, isolant, béton, métal)

L'observation globale du sol du local (figure 39 à droite) montre aussi une très forte hétérogénéité de dépôt, avec des « traces » et « tas de suies » au sol, qui témoignent du flux convectif d'air très important lié à l'incendie (gradient de température) ainsi que du réseau de ventilation de l'installation DIVA (sur lequel nous reviendrons lors de l'étude numérique du dépôt). De plus, pour les cibles posées au sol, on observe même une différence entre un dépôt conséquent à l'intérieur de la coupelle autour du filtre, et le filtre lui-même resté « blanc » (figure 41).



Figure 41 : Observation d'une cible déposée au sol après incendie

Des prélèvements par aspiration ont été effectués au plus proche des cibles installées sur les différentes parois murales, plafond et sol. Nous pouvons voir sur la figure 42, la marque de la cible passive ① fixée au plafond et, à côté, l'état de la surface après aspiration à l'aide du masque②, comme expliqué auparavant (figure 33). La cible au plafond présente un dépôt plus marqué que celui observé sur les cibles posées au sol et fixées sur les murs, mais nettement plus faible que le dépôt global sur l'ensemble du plafond.

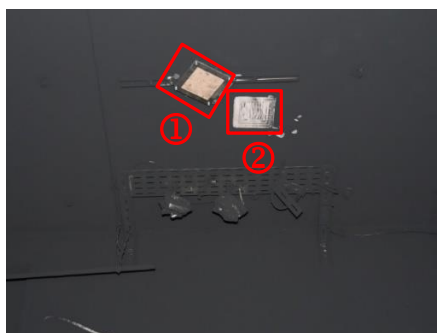


Figure 42 : Photographie du plafond du côté Sud-Est après l'incendie : ① marque de la cible passive, ② surface du plafond après aspiration

CHAPITRE. II

QUANTIFICATION EX-SITU DU DEPOT A GRANDE ECHELLE ET IDENTIFICATION DU BESOIN EN CAPTEURS

Ces disparités peuvent être expliquées de la façon suivante :

- Pour le plafond, la présence d'un dépôt sur le filtre plus conséquent que sur les autres cibles passives peut s'expliquer par un « impact » direct des suies au plafond provoqué par l'écoulement convectif important créé par l'incendie (foyer).
- L'absence de dépôt pour les cibles murales et posées au sol, et le dépôt moindre des cibles fixées au plafond peut s'expliquer le phénomène de thermophorèse. En effet, compte tenu de la présence de l'isolant entre la paroi et le filtre (figure 32 à gauche), celui-ci en contact avec l'air chaud aura une température plus élevée que la paroi elle-même sur laquelle il est déposé.

En ce qui concerne le dépôt sur les différents types de surfaces hors cibles passives (verre, isolant, béton, métal), comme montré sur la figure 40, le dépôt est conséquent (surfaces noires).

Comme expliqué précédemment, afin de mettre en évidence un éventuel effet du matériau sur le dépôt, une aspiration a été effectuée sur ces différentes surfaces. Si, à l'œil nu, les quantités prélevées sur les filtres de 47 mm semblent relativement proches (figure 43), l'analyse des quantités de suie déposées sur ces quatre types de matériau permettra d'apporter des éléments de discussion sur l'effet potentiel de la nature des surfaces.

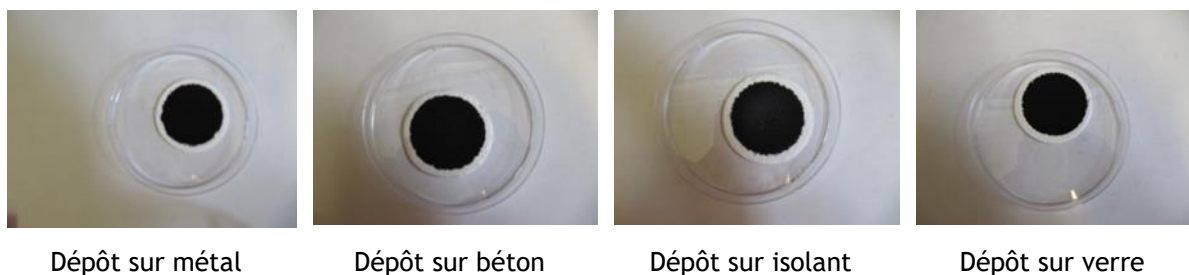


Figure 43 : Filtres obtenus après aspiration sur les parois de différentes natures

Pour conclure sur ces observations qualitatives, compte tenu des disparités observées pour les dépôts sur cible passive, expliquées par le phénomène de thermophorèse, ceux-ci ne sont pas du tout représentatifs des dépôts effectifs sur les parois murales, plafond et au sol.

Nous avons donc fait le choix de quantifier seulement les suies recueillies sur le filtre 47 mm de diamètre à l'aide du système d'aspiration.

II.1.2.2 Analyse quantitative des suies déposées (collectées par aspiration)

Comme annoncé en début du paragraphe II.1.1.2 , l'analyse quantitative des dépôts est effectuée grâce à une méthode thermo-optique avec un analyseur OC/EC (Organic Carbon/ Elemental Carbon) [154]. Le principe de cette analyse est décrit en détail dans le chapitre III où il est comparé avec un autre mode de quantification. La quantité totale (OC + EC) est reportée ci-après.

Sur chaque filtre de 47 mm de diamètre, 3 analyses thermo-optiques ont été effectuées sur des « punches » de 1,5 cm² de surface (figure 44) et la quantité totale du carbone a été mesurée en considérant le protocole « Improve A » (III.3.1).

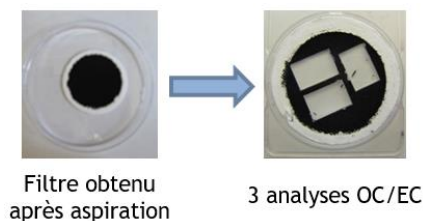


Figure 44 : Illustration d'un filtre après aspiration et après analyses OC/EC

La masse déposée sur les différentes surfaces a été in-fine déterminée en réalisant la moyenne de la masse déposée sur les 3 « punches ».

Les sources d'incertitudes qui seront considérées sont l'incertitude sur la répétabilité entre les 3 punches ($\sigma(\overline{m}_d)$) et l'incertitude de l'appareil d'analyse OC/EC (u_a) donnée par l'analyseur après la quantification. L'incertitude élargie ($k=2$) a ensuite été calculée à partir des écart-types et des incertitudes de mesures expérimentales.

$$u(\overline{m}_d) = \sqrt{\frac{\sigma(\overline{m}_d)^2}{3} + u_a^2} \quad (19)$$

Les moyennes des masses déposées par cm^2 lors de l'essai A2 (en bleu) et A1 (en rouge) ainsi que leurs incertitudes élargies sont résumées dans la figure 45.

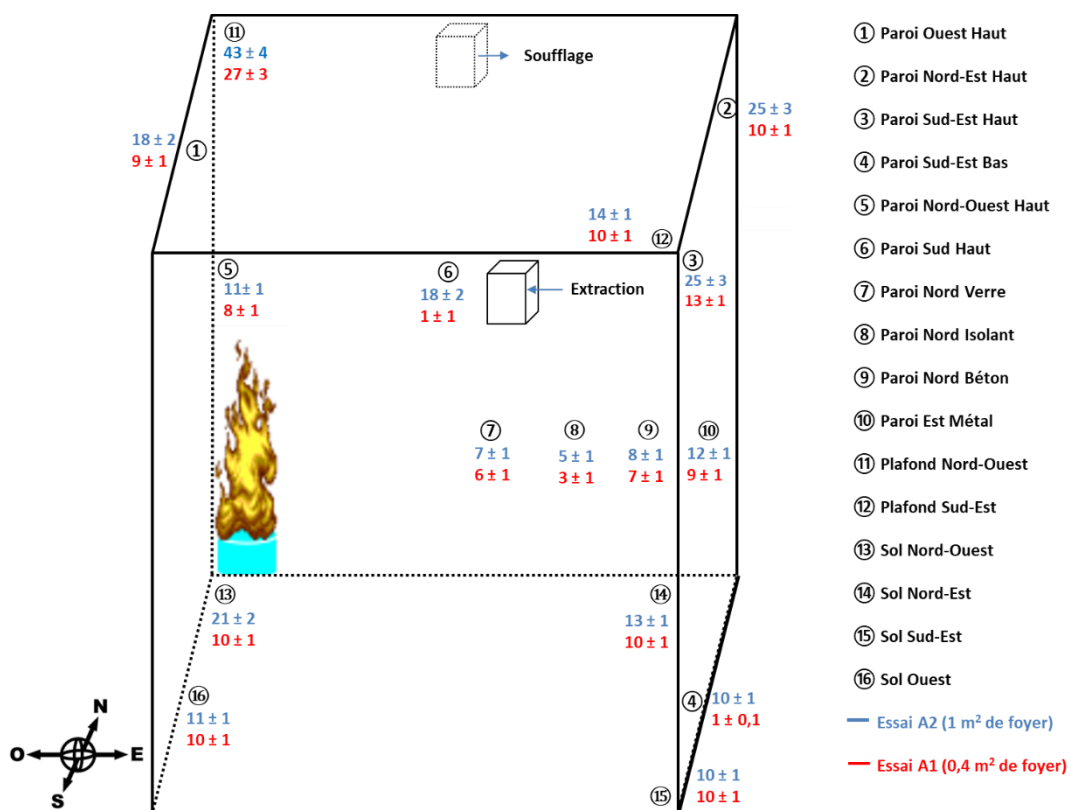


Figure 45 : Dépôts de suies en g.m^{-2} sur les différentes parois du local 3 lors de l'essai A2 (en bleu) et A1 (en rouge)

Lors de l'essai A2, la surface du foyer était égale à 1 m^2 tandis que lors de l'essai A1 celle-ci était égale à $0,4 \text{ m}^2$. Par conséquent, la quantité de suies produite lors de l'essai A2 est tout naturellement supérieure à celle produite lors de l'essai A1. Les mesures des masses déposées confirment ce constat. Des disparités de la masse déposée ont été obtenues en fonction de l'emplacement du prélèvement. Au sol (cibles 13,14, 15 et 16), on remarque un dépôt relativement homogène et compris entre 10 et 20 g.m^{-2} . La plus grande quantité déposée au sol a été retrouvée à côté du foyer (cible 13). Le mécanisme de dépôt à côté du foyer est probablement la thermophorèse.

Sur la paroi Sud-Est, un facteur 2 a été observé entre les quantités déposées en partie haute (cible 3) et en partie basse (cible 4). Cette stratification peut être expliquée par le phénomène de convection.

En partie haute, les mêmes ordres de grandeur ont été observés sur les parois Nord-Est (cible 2), Sud-Est (cible 3), Ouest (cible 1) et Sud (cible 6).

Pour les deux essais A1 et A2, le dépôt apparaît plus important au plafond au-dessus du foyer (cible 11) que sur les parois. Cette zone correspond donc à une zone d'impaction au-dessus du panache, marquée par la plus grande quantité de suies déposées.

La figure 46 met en évidence de façon plus lisible l'effet de la nature du matériau sur le dépôt. Pour rappel, les zones ont été choisies à hauteur identique et sont espacées de 20 cm. La cible 7 en verre est la plus proche du foyer, la cible 8 est un isolant et la cible 9 est en béton, ces trois cibles étant situées sur la paroi Nord. La cible 10 est située sur la paroi Est (porte en métal). La masse déposée sur l'isolant est la plus faible de toute, inférieure à celles déposées sur le verre et le béton qui sont du même ordre de grandeur. La plus grande quantité de suies a été déposée sur la porte en métal. En l'état actuel, nous ne sommes pas en mesure d'associer ces différences à la conductivité thermique des matériaux ou à la rugosité de ces surfaces. On gardera cependant à l'esprit que les différences observées restent relativement limitées.

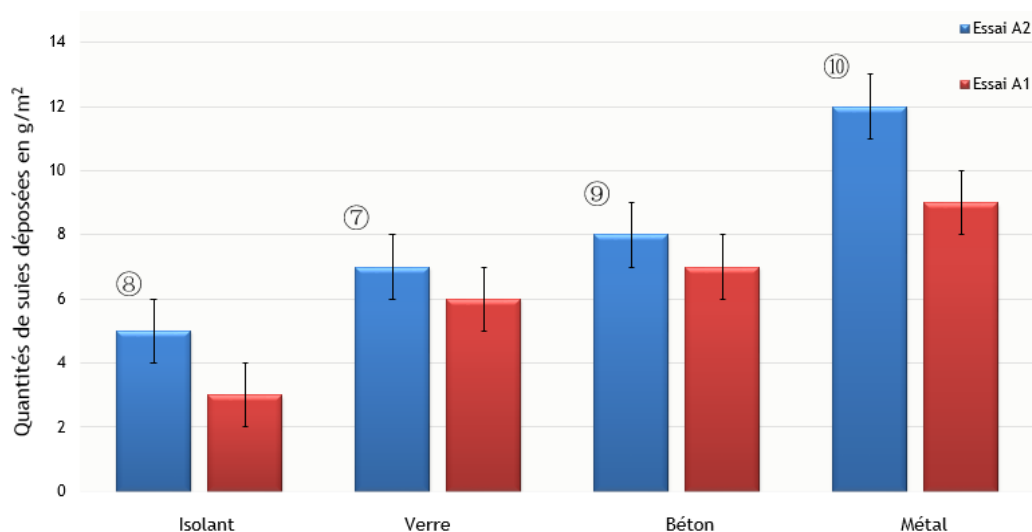


Figure 46 : Masses des suies déposées en fonction de la nature des parois des essais A2 (1 m²) et A1 (0,4 m²)

II.1.2.3 Estimation du flux des suies produites et des caractéristiques des dépôts

A partir des mesures précédentes de dépôts de suie sur les différentes parois, nous allons déterminer les fractions déposées selon la méthodologie présentée dans le chapitre I (section I.1.1, figure 1), et estimer le flux de dépôt ainsi que les épaisseurs de dépôt. En effet, ces grandeurs sont nécessaires pour la détermination des spécifications du capteur qui sera utilisé.

Afin de déterminer la fraction (1-C₂) déposée dans le local, nous procédons comme suit :

1°) Tout d'abord nous calculons la masse de suies produite en considérant qu'à la fin des deux essais, la totalité de la masse du combustible a été consommée (soit 87 kg pour l'essai A2 et 35 kg pour l'essai A1) et en considérant un taux de production de suies de 10 % pour l'huile Medium DTE [12] identique quelle que soit la surface du foyer. Néanmoins, ce facteur est dépendant de la surface du foyer ce qui représente une limite de ce calcul.

La masse totale de suies produites est donc égale à 8,7 kg pour l'essai A2 et 3,5 kg pour l'essai A1.

2°) Pour calculer la fraction de suies déposée (1-C₂), nous avons d'abord estimé la masse déposée par unité de surface de filtre $\sigma_{d_{ij}}$ pour chaque zone. Ceci nous a permis d'estimer une masse déposée pour chaque paroi (6 parois en comptant le sol et le plafond). La procédure consiste à intégrer

chacune des masses déposées par unité de surface sur sa « surface environnante » (en considérant que pour p prélèvements sur une paroi, la surface environnante est égale à $\frac{S_{paroi}}{p}$). Ensuite, la masse totale déposée dans le local sera égale à la somme des masses déposées sur chacune des parois. La fraction $(1-C_2)$ correspondra donc à cette masse divisée par la masse totale de suies produites : m_s (8,7 kg pour l'essai A2 et 3,7 kg pour l'essai A1) tel que le montre l'équation (21) :

$$1 - C_2 = \frac{1}{m_s} \sum_{i=1}^6 \sum_{j=1}^p \left(\frac{S_{paroi_i}}{p} \sigma_{dij} \right), \quad (20)$$

avec p le nombre de prélèvements par paroi, σ_{dij} la masse déposée par unité de surface au niveau du prélèvement « j » sur la paroi « i » ayant une surface S_{paroi_i}

Pendant l'essai A2, 2,1 kg de suies ont été déposés dans l'ensemble du local 3. La fraction $(1-C_2)$ de suies déposées dans le local 3 représente alors $25 \pm 5 \%$ de la quantité totale produite. Lors de l'essai A1, 1,4 kg de suies ont été déposés, soit $40 \pm 9 \%$ de la masse de suies totale produite. Les fractions déposées ne sont pas négligeables. Or, les facteurs d'émission de suies sont généralement mesurés dans les conduites de ventilation, ne tenant pas compte des dépôts préalables sur les parois du local d'essai, ce qui implique une sous-estimation du facteur d'émission réel de suie pour des essais à grande échelle et une surestimation des fractions déposées sur les parois.

D'après les résultats expérimentaux de dépôt sur toutes les parois sauf sur la cible 11 (zone d'impact), en considérant un flux constant de particule (qui représente le nombre de particule traversant une surface par unité de temps (s^{-1})) sur une durée de 1 h, la masse déposée par unité de surface varie entre 1 et 25 $g \cdot m^{-2}$. Elle correspond donc à des ordres de grandeur de flux compris entre 1 et 25 $g \cdot m^{-2} \cdot h^1$ ou encore, pour une fenêtre temporelle plus restreinte, à 17 à 420 $mg \cdot m^{-2} \cdot min^{-1}$.

En rapportant ce flux de dépôt à la surface de l'élément sensible du capteur qui sera utilisé par la suite, $3,5 \times 3,5 \text{ mm}^2$ (cf §1.3.5, figure 19), le taux de dépôt traduisant la dynamique calculée à partir des résultats expérimentaux est de l'ordre de 0,2 à 5 $\mu g \cdot min^{-1}$, compatible avec celle du capteur résistif de Mensch et al. [155].

Ceci confirme la possibilité de l'utilisation de la technologie résistive pour la quantification des suies lors d'un incendie à échelle réelle. D'autre part, l'épaisseur du dépôt sur les parois a été mesurée expérimentalement par laser [156]. Cette épaisseur varie de 5 à $8 \pm 1 \text{ mm}$. Elle est 250 à 400 fois supérieure à l'espace inter-électrodes sur la face sensible du capteur (20 μm). Une telle épaisseur impliquerait une régénération du capteur au cours d'un essai incendie. En effet, le signal électrique du capteur (conductance) va tendre vers une asymptote pour des épaisseurs de dépôt bien inférieures à ces valeurs comme il sera montré dans le chapitre III). Donc au-delà d'une épaisseur critique, il ne sera plus possible d'avoir une mesure du capteur si celui-ci n'est pas régénéré.

Enfin, la porosité ε du dépôt a été évalué à partir des échantillons prélevés sur filtres et a été calculée selon les considérations géométriques et les masses volumiques calculées expérimentalement $\rho_{suie} = 1641 \pm 162 \text{ kg} \cdot m^{-3}$ [145] :

$$\varepsilon = \frac{V_{vide}}{V_{éch}} = 1 - \frac{V_{mat}}{V_{éch}} = 1 - \frac{m_{éch}}{S_{éch} d_{éch} \rho_{suie}} \quad (21)$$

avec $V_{éch}$, $m_{éch}$, $S_{éch}$ et $d_{éch}$, respectivement : le volume (m^3) du dépôt sur le filtre, la masse (kg) du dépôt sur le filtre, la surface (m^2) du filtre et l'épaisseur (m) du dépôt sur le filtre et V_{mat} et ρ_{suie} les volume (m^3) et masse volumique ($kg \cdot m^{-3}$) de la matière constituant les particules. L'incertitude

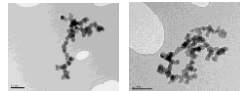
CHAPITRE. II

QUANTIFICATION EX-SITU DU DEPOT A GRANDE ECHELLE ET IDENTIFICATION DU BESOIN EN CAPTEURS

de calcul a été également déterminée pour la porosité. On retrouve alors des porosités variant de 93 à 97 ± 2 %. Cette porosité sera utilisée dans le chapitre III pour évaluer des épaisseurs de dépôt.

Les caractéristiques des dépôts formés à la surface des parois, calculées précédemment sont synthétisées dans le tableau 5 et comparées aux valeurs trouvées dans la littérature.

Tableau 5 : Propriétés des dépôts formés à la paroi

Littérature et cas de référence de cette thèse			Etude actuelle
Nature des suies	Suies de TBP/TPH Morphologie fractale + phase adsorbée	[19]	Suies produites par de l’Huile Médium DTE Morphologie fractale sans phase adsorbée 
Masse de suies déposées	1 à 10 g.m ⁻²	[31]	1 à 25 g.m ⁻²
Épaisseur du gâteau formé	10 - 100 μm	[8]	5 -8 mm
Porosité du gâteau formé	Supérieure à 90 %	[8]	Supérieure à 90 %

II.1.3 Conclusions sur les essais incendies à grande échelle

Les essais de feux à grande échelle A1 et A2 réalisés dans le dispositif expérimental DIVA à Cadarache, ont permis de mettre en évidence un effet des différents paramètres d’incendie sur les quantités de suies déposées.

Les analyses OC/EC effectuées sur les filtres de 47 mm de diamètre ont permis d’estimer les quantités déposées à différents emplacements du local et sur différents types de matériau.

Les quantités déposées sont comprises entre 1 et 25 g.m⁻² avec une zone privilégiée de dépôt sur le plafond au-dessus du foyer, ce qui est, à priori, compatible avec la sensibilité du capteur résistif qui sera retenu pour cette étude (mais impliquera une régénération régulière du capteur).

Par ailleurs, cette partie a mis en évidence plusieurs résultats qualitatifs et quantitatifs permettant d’évaluer la stratégie de mesure et, la complexité des mécanismes de dépôts, justifiant ainsi l’intérêt du travail de thèse en cours.

Dans la partie qui suit, nous allons présenter les résultats des simulations numériques avec le code de calcul ANSYS© CFX. Cette étude numérique vise à justifier la stratégie de mesure via des capteurs positionnés sur les parois, dans le sens où un nombre réduit de capteurs devra permettre de décrire la fraction déposée, même en présence de singularités qui ont été montrées expérimentalement.

II.2 DEMARCHE ET STRATEGIE POUR L’OPTIMISATION DU NOMBRE DE CAPTEURS

Pour une quantification optimale des masses de suies déposées sur les parois du local incendié, il est primordial d’optimiser le nombre et la position des capteurs. Ceci nécessite une évaluation précise du dépôt sur les parois du local.

Vu les moyens financiers et humains qu’impliquent des essais incendie à grande échelle, nous avons participé dans la partie II.1 aux essais incendie menés dans le cadre du programme international (PRISME) afin d’obtenir un ordre de grandeur des quantités déposées et d’étudier la réparation du dépôt. Nous ne pouvons pas modifier les conditions de ces essais.

Dans cette partie numérique, nous fixerons une configuration incendie moins complexe qui se rapproche du cas d’étude du programme de recherche dans lequel la thèse s’inscrit.

En s'appuyant sur la configuration choisie, nous procéderons à la simulation de l'aéroulque du local en prenant en compte les conditions générées par le panache du foyer :

- Dans une première étape, les profils de température dans un milieu confiné seront comparés aux résultats issus d'essais expérimentaux. Étant donné le manque de résultats expérimentaux et l'absence d'une configuration identique au scénario défini dans la section II.2.1, les profils expérimentaux seront issus du rapport détaillant les essais mettant en jeu du TPH dans DIVA [157]. On considèrera dans le local en milieu confiné, trois zones différentes : le panache qui représente le développement de la flamme, une zone où la flamme est intermittente caractérisée par des températures pouvant atteindre 1100 à 1200°C et une zone inférieure (flamme persistante) où la température est de l'ordre de 900°C (figure 47).

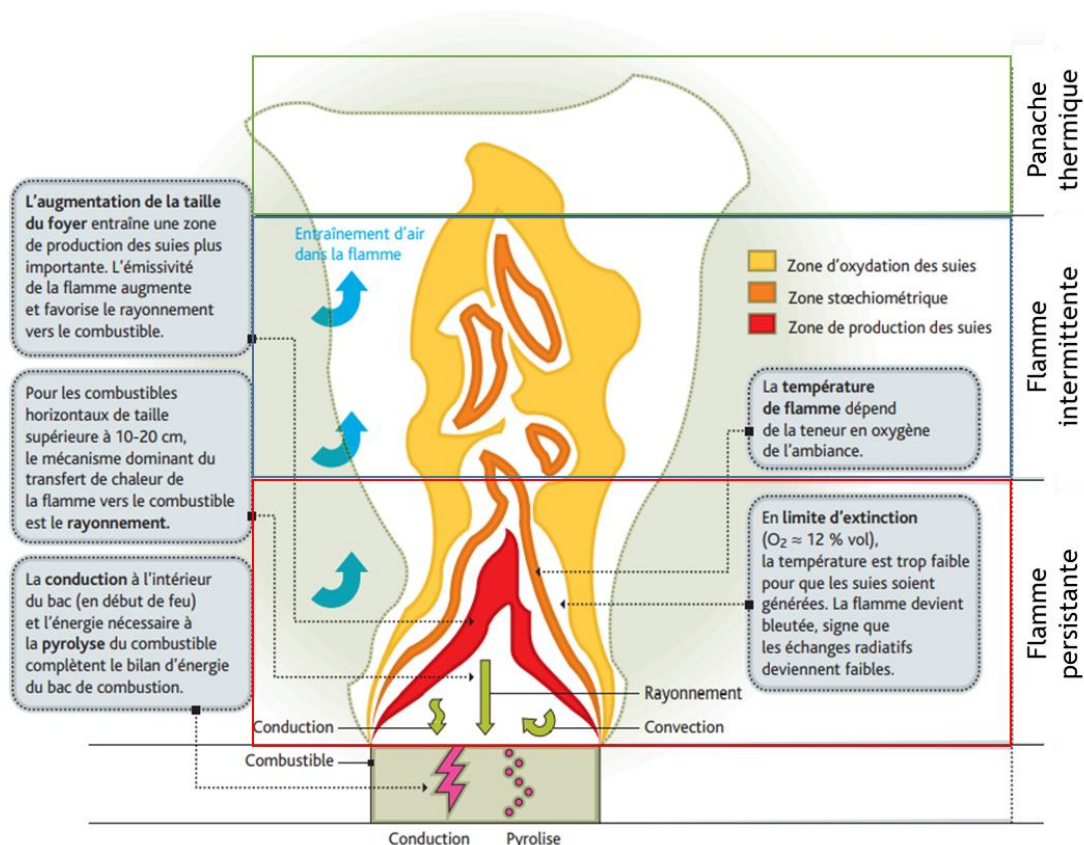


Figure 47 : Représentation idéale de la flamme et principaux mécanismes influençant le débit de pyrolyse du combustible [158]

- Dans une seconde étape, nous injecterons des particules au sein du panache. Le but sera de modéliser les conditions thermiques et aéroulques générées par le foyer et de cartographier les zones de dépôt.

II.2.1 Définition du scénario incendie

L'incendie est une situation accidentelle produite à la suite d'une combustion incontrôlée. Dans cette partie, il ne s'agit pas de réaliser un calcul incendie qui simule le développement d'un incendie avec un modèle de combustion mais il s'agit bien d'effectuer un calcul de transport et de dépôt d'aérosol. Afin d'identifier les zones prioritaires de dépôt de suies dans un local lors d'un incendie, il faut tout d'abord valider les résultats de modélisation d'une source de puissance à l'air libre et dans un milieu confiné.

Pour cela, un scénario sera défini à partir d'études expérimentales, principalement réalisées dans le cadre du programme PRISME-SOURCE [157], représentatives d'une situation réelle dans une installation nucléaire de base.

Ce scénario fixera d'une part la nature du combustible et du comburant ainsi que la surface du foyer, d'autre part les dimensions et les conditions aérauliques du local en feu (taux de renouvellement et position de la ventilation). Ces deux derniers facteurs conditionnent la présence de l'oxygène dans le local et influent sur la cinétique de combustion. Ainsi, le scénario définira les données d'entrée de la simulation et sera reproduit lors de l'étape de validation à échelle réelle.

Les études expérimentales réalisées par l'IRSN nous permettront d'obtenir des profils de température, de vitesse, de puissance et de perte de masse du combustible.

Les courbes de puissance et de production de masse d'aérosol sont des données fondamentales pour pouvoir effectuer des calculs CFD. En effet, dans ce travail de thèse, il ne s'agit pas de valider des codes de simulation incendie (qui comme précisé précédemment ne sont à ce jour pas suffisamment couplés avec des modèles de transport aérosol) mais bien d'étudier le transport des aérosols dans un local soumis à une contrainte thermique visant à reproduire, de manière synthétique et simplifiée, une contrainte induite par un incendie. L'étape de modélisation proposée permettra ainsi d'identifier les mécanismes prépondérants de dépôt à différents endroits d'un local et ce à l'aide des modèles de dépôt implémentés dans le code de calcul ANSYS® CFX par le LEMAC [159] et validés à partir de données expérimentales [160].

II.2.1.1 *Le combustible*

Le choix du combustible s'avère important puisque sa nature conditionne la cinétique de la combustion et la production des suies. Dans notre cas, cette thèse s'inscrivant dans le cadre du programme de recherche PIC-FEUX en collaboration avec Orano, le combustible mis en jeu sera un mélange de Tetra-Propylene hydrogéné ([TPH ($C_{12}H_{26}$)], isomère du dodécane obtenu par polymérisation du propylène et hydrogénation du tétramère formé) et de TriButylPhosphate ([TBP- $((C_4H_9)_3 PO_4)$]) avec des proportions constantes en volume dans le mélange du TPH (70 %) et du TBP (30 %). On notera que ce mélange de solvants est employé par Orano dans le cadre du cycle de retraitement du combustible nucléaire usagé dans son usine de La Hague.

Les caractéristiques du mélange TBP/TPH en phase liquide sont représentées dans le tableau 6.

Tableau 6 : Caractéristiques du TBP/TPH en phase liquide

Propriétés	Valeurs	Méthode d'analyse	Références
Masse volumique en Phase Liquide (PL) : ρ_L (kg.m ⁻³)	824 à 20 °C	Selon la norme NF T 60-100	[161]
Capacité thermique massique ou chaleur spécifique en PL : C_{pL} (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹)	De 2014 à 23 °C jusqu'à 2277 à 100 °C	Selon la norme ISO/DIS 11 357-4 (analyse calorimétrique différentielle DSC)	[162]
Température d'inflammation (°C)	59	Selon la norme NF EN 22719	[161]
Température de flamme (°C)	786 à 826	Série de thermocouples positionnés dans la flamme	
Taux de perte de masse pendant la combustion (g.s ⁻¹ .m ⁻²)	42 flux maintenu à 50 kW.m ⁻²	Selon la norme ISO/DIS 5660-1 (cône calorimètre)	[163]
Production de suies (kg/kg _{combustible})	0,133	Selon la norme ISO/DIS 5660 (cône calorimètre)	[20]

II.2.1.2 Configuration expérimentale d'incendie

L'ouverture d'admission de l'air (soufflage) sera positionnée en partie haute, car elle apportera une distribution uniforme dans la pièce. En effet, elle homogénéise la concentration du gaz dans le local et réduit les concentrations maximales (généralement situées dans la partie supérieure de la pièce) dues à la fourniture d'air frais à cette région. Plus exactement, elle est située en partie haute de la paroi Nord, à 0,6 m du plafond et à 2,3 m de la paroi Ouest. Elle est orientée vers la paroi Ouest du local.

La bouche d'évacuation (extraction) est positionnée en partie haute de la paroi Sud, à 0,6 m du plafond et à 2,3 m de la paroi Ouest. Elle est orientée vers la paroi Est du local (figure 48).

Les bouches de ventilation (soufflage et extraction) possèdent une ouverture latérale, de 30 cm de large sur 60 cm de haut, dotée d'une bride de fixation et d'une grille.

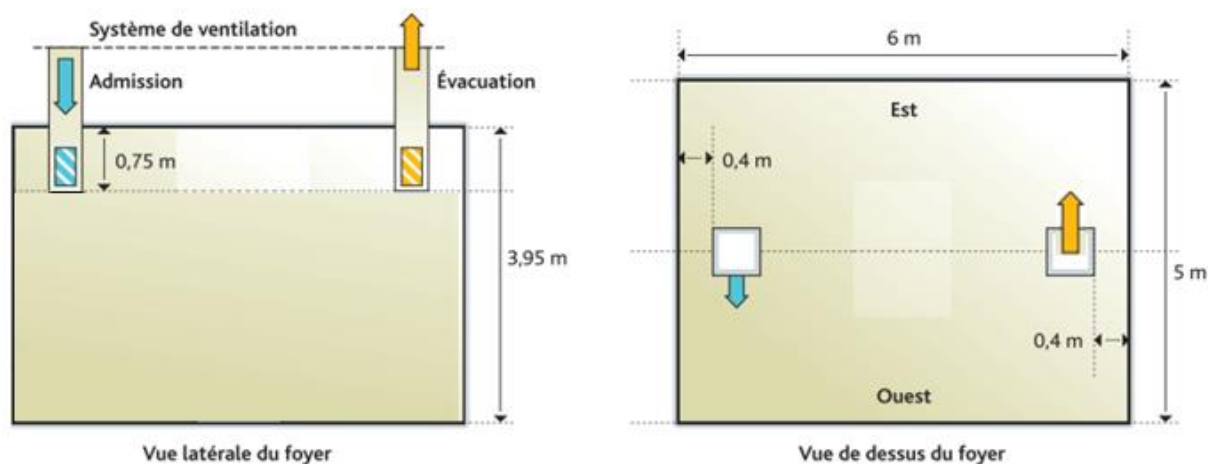


Figure 48 : Représentation de la ventilation de l'installation DIVA [158]

À cause de l'absence de données expérimentales pour un scénario incendie mettant en jeu un mélange de TBP/TPH dans DIVA, les données seront issues des essais effectués dans le cadre du programme PRISME « Propagation d'un Incendie pour des Scénarios Multi-locaux Élémentaires » [157], mettant en jeu le TPH uniquement dans les locaux de DIVA. Ces données (figure 49 a) seront considérées représentatives du mélange TBP/TPH (figure 49 a) composé en grande majorité par du TPH (70 %).

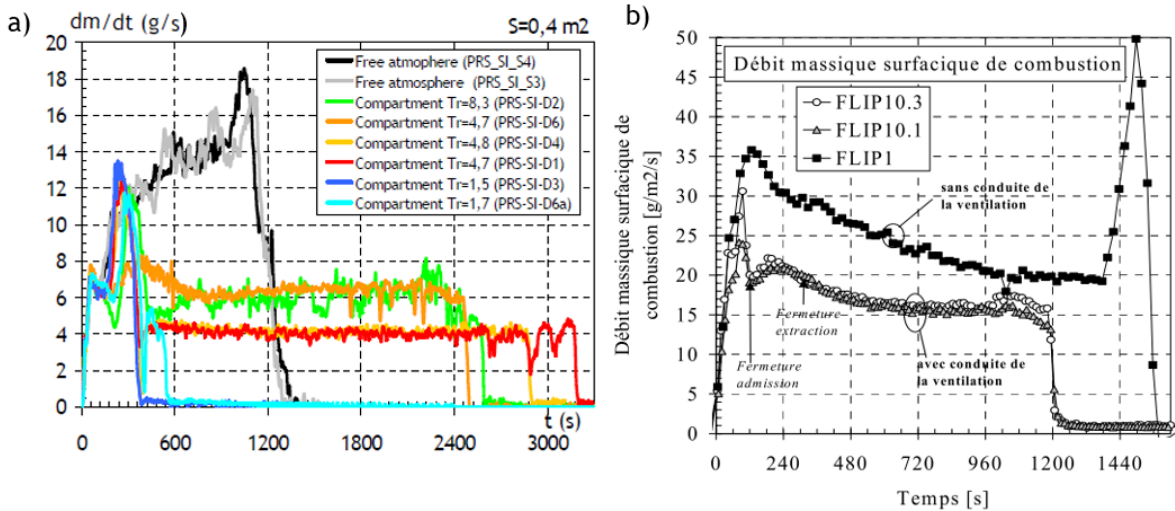


Figure 49 : Taux de perte de masse a) du TPH dans DIVA [157], b) du TBP/TPH dans PLUTON [17] en fonction du temps

Le choix se portera sur un foyer centré dans le local afin de simplifier le calcul et d'éviter les « effets de parois » et sur une surface de la nappe égale à $0,4 \text{ m}^2$ afin de faciliter le maillage. L'influence du taux de renouvellement n'a pas été clairement démontrée, on ne peut donc pas conclure sur ce sujet. Ce taux de renouvellement a été fixé à $4,7 \text{ h}^{-1}$ car il permet une puissance produite constante (Figure 50) et est représentatif d'un grand nombre d'INB.

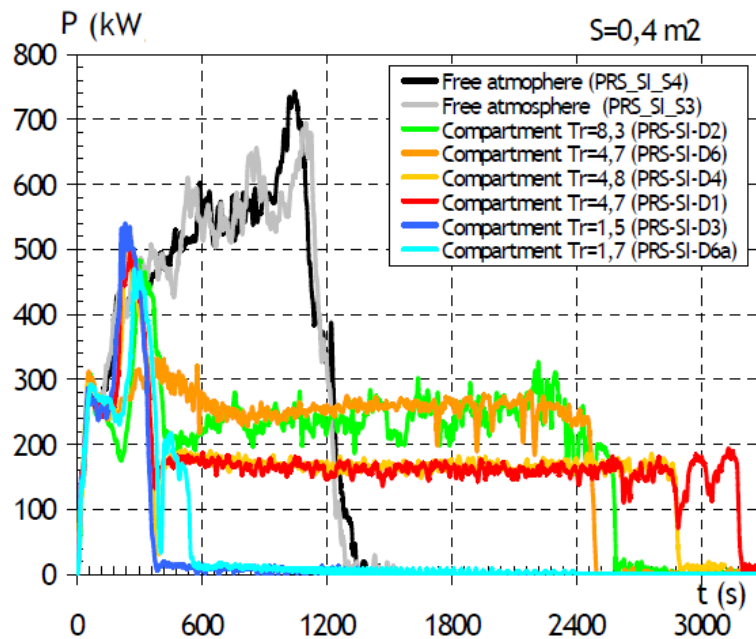


Figure 50 : Courbe de puissance du combustible (TPH) dans DIVA [157]

Le débit d'extraction d'air sera fixé en fonction de la surface de combustion pour limiter l'intensité de la surpression dans le local expérimental au moment de l'inflammation, tout en assurant un apport d'air suffisant pour le développement de la combustion.

Le local incendie a été présenté dans la partie II.1. Notre choix s'est porté par conséquent sur l'installation DIVA (figure 29). Cependant, pour les besoins de la modélisation, seul le local 3 sera considéré et représentera le local incendie pour des raisons de simplification du calcul.

II.2.1.3 Caractéristiques des aérosols émis par un foyer incendie TBP/TPH

Le facteur d'émission permet d'exprimer les quantités des espèces produites par la combustion d'un matériau. Pour des essais à petites échelles, Ouf *et al.* [19] ont établi une corrélation entre le diamètre des particules primaires de l'agrégat fractal et le taux de production des suies pour différents combustibles (Figure 51). Cette corrélation est applicable pour les différents combustibles et a également été utilisée par Lintis [12].

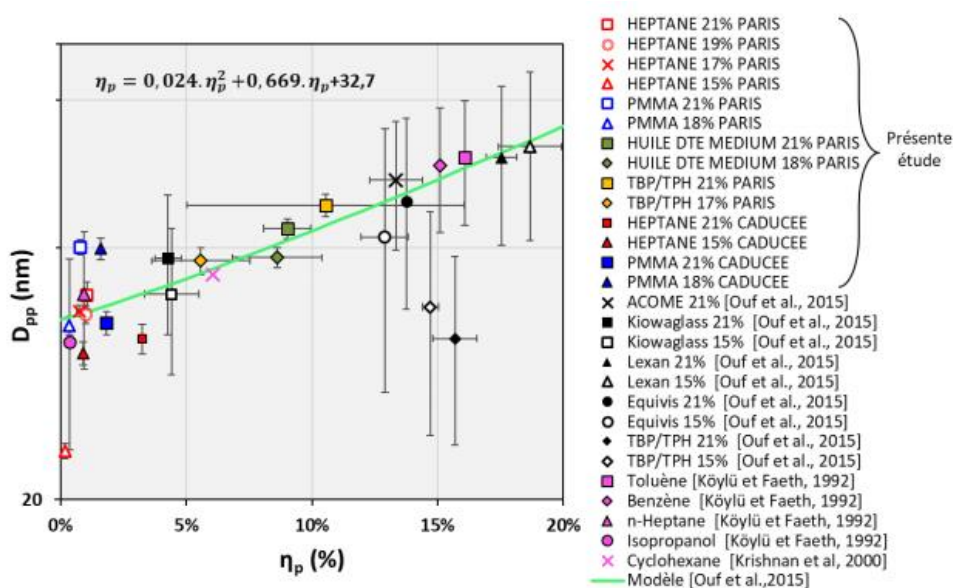


Figure 51 : Evolution du diamètre des particules primaires des suies en fonction du facteur d'émission massique de suies [12]

Pour le TBP/ TPH, nous allons considérer un facteur d'émission entre 9 et 17 %.

La surface de la nappe du combustible influe sur la concentration des suies. En effet, pour une surface de 0,2 m², la concentration de suie est égale à 0,3 g.m⁻³ tandis que pour une surface de 0,4 m², la concentration de suie est égale à 0,6 g.m⁻³ [157].

Lintis [12] a démontré que la granulométrie des suies de TBP/TPH évolue au cours du temps. Celle-ci est monomodale mis à part à l'allumage. Ouf *et al.* [19] ont mesuré un diamètre médian des suies de TPH/TPH à l'aide d'un granulomètre Differential Mobility Sizer (DMS 500). Ce diamètre médian est proche de 233 - 242 nm en accord avec celui mesuré par Lintis [12] avec un SMPS (TSI SMPS 3080).

Ces paramètres sont indispensables pour le calcul du transport des aérosols.

Dans son étude des propriétés physico-chimiques des suies, Lintis [12] a également déterminé l'écart-type géométrique associé à la distribution granulométrique des agrégats produites par le TBP/TPH. Cet écart-type géométrique est égal à 1,9.

Dans la plupart des cas, une phase adsorbée a été signalée (figure 52 b) et l'analyse X-ray energy dispersive spectroscopy (XREDS) montre une importante contribution du phosphore pour toutes les particules [15]. Ce phosphore est associé à l'acide phosphorique H₃PO₄ formé lors de l'hydratation de l'oxyde de phosphore (P₂O₅) produit lors de l'oxydation du TBP. Cette gangue ainsi que la présence de ces nano-gouttelettes pourraient éventuellement modifier les conditions d'oxydation de ces suies ainsi que leur conductivité électrique.

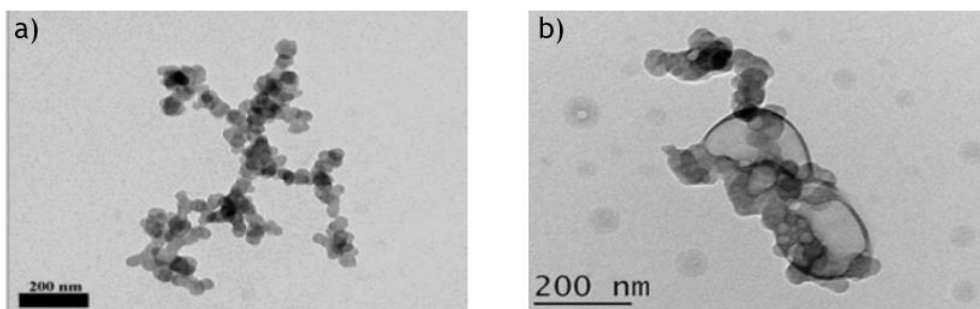


Figure 52 : Cliché MET d'un agrégat a) sans phase adsorbée b) avec phase adsorbée [19]

II.2.1.4 Synthèse

Les caractéristiques du scénario incendie vont être retenues dans l'étude numérique réalisée pour la prédiction du dépôt et la détermination du nombre des capteurs lors d'un incendie à grande échelle. Le scénario se déroulera dans un seul local de l'installation DIVA. Il mettra en jeu comme combustible un mélange de TBP/TPH avec des proportions constantes en volume dans le mélange du TBP (30 %) et TPH (70 %).

Le tableau 7 résume les caractéristiques du scénario défini :

Tableau 7 : Caractéristiques du scénario incendie

Nature du combustible	TBP/TPH (30 %/70 %)
Surface du combustible	0,4 m ²
Taux de renouvellement	4,7 h ⁻¹
Position de la bouche d'admission	en partie haute
Position de la bouche d'extraction	en partie haute
Position du foyer	centrée
Taux de perte de masse	15 g.s ⁻¹ .m ⁻²
Puissance thermique du foyer	250 kW
Facteur d'émission de suies	9 % à 17 %
Morphologie des suies	fractale
Granulométrie des suies	D _{particules primaires} = 31 - 34 nm D _{agrégats} = 233 - 242 nm
Composition des suies	Majoritairement du carbone

Dans le calcul numérique qui va suivre, la composition et la forme des suies ne seront pas prises en compte.

II.2.2 Etude numérique

A l'issue de cette définition du scénario d'intérêt, la seconde partie de ce chapitre vise essentiellement à déterminer les zones privilégiées et les mécanismes prépondérants de dépôt afin de proposer une stratégie expérimentale d'implantation des futurs capteurs. On gardera à l'esprit qu'à cause des limitations des modèles de dépôt d'aérosols intégrés dans les codes de simulations incendie (FDS, OpenFoam [164]), le choix s'est porté sur le code de calcul ANSYS® CFX. Celui-ci est associé à un modèle de transport et de dépôt aérosol ayant fait l'objet d'une validation expérimentale [22] et d'une implémentation dans CFX au cours de travaux antérieurs [159]. Les grandeurs et corrélations empiriques nécessaires à cette modélisation thermique/aérosol sont détaillées dans les parties suivantes.

II.2.2.1 Corrélations des hauteurs, des températures et des vitesses de flamme

Dans notre cas, le foyer est assimilé à une source de puissance dont la hauteur, les profils de température et de vitesse des gaz dans le foyer sont décrits par des corrélations de la littérature.

II.2.2.1.1 Détermination de la hauteur de la flamme

La hauteur moyenne de la flamme est un paramètre important qui indique la frontière entre les réactions de combustion et le panache [165]. Plusieurs expressions de la hauteur moyenne de flamme ont été proposées dans la littérature.

L'une des corrélations de hauteur de flamme les plus utilisées est celle de Heskestad [165], donnée par la relation (22) :

$$H = -1,02 D + 0,235 \dot{Q}^{\frac{2}{5}} \quad (22)$$

avec D est le diamètre du foyer (m) et \dot{Q} la puissance totale du foyer (kW).

Cette hauteur est généralement normalisée par le diamètre du foyer D et est exprimée en fonction du nombre de Froude, \dot{Q}^*

La formulation simplifiée de l'équation (22) est couramment utilisée pour définir la hauteur normalisée H/D selon la relation (24).

$$\frac{H}{D} = 3,7 \dot{Q}^{*\frac{2}{5}} - 1,02 \quad (23)$$

Cette corrélation sera donc utilisée pour fixer la hauteur de la source de puissance (foyer) lors de nos simulations CFD.

II.2.2.1.2 Température et vitesse au sein du panache thermique

De nombreuses corrélations ont été établies pour quantifier la vitesse et la température dans les panaches thermiques de foyer. L'une d'elle est la corrélation de panache de Mc Caffrey [166]. Celle-ci est intéressante et sera utilisée dans nos simulations, car les profils radiaux de température (24) et de vitesse (25) proposés couvrent les zones de flamme persistante et de flamme intermittente.

$$\Delta T(r, z) = \Delta T_0(z) e^{-\frac{r^2}{\sigma_T}} \quad (24)$$

$$u(r, z) = u_0(z) e^{-\frac{r^2}{\sigma_u}} \quad (25)$$

CHAPITRE. II

QUANTIFICATION EX-SITU DU DEPOT A GRANDE ECHELLE ET IDENTIFICATION DU BESOIN EN CAPTEURS

avec z la hauteur par rapport à la position du foyer (m), r le rayon du foyer, σ_T et σ_u les écart-types respectivement des distributions de ΔT et de u .

Les températures sur $\Delta T_0(z)$ (K) et les vitesses des gaz $u_0(z)$ ($m.s^{-1}$) dans l'axe du panache thermique sont données respectivement par les équations (26) et (27).

$$\Delta T_0(z) = \left(\frac{\xi}{0,9 \sqrt{2g}} \right)^2 \left(\frac{z}{\frac{z}{2} Q^{\frac{1}{5}}} \right)^{2\eta-1} T_\infty \quad (26)$$

$$u_0(z) = \xi \left(\frac{z}{\frac{z}{2} Q^{\frac{1}{5}}} \right)^\eta Q^{\frac{1}{5}} \quad (27)$$

Les constantes ξ et η varient selon la zone du panache considérée : région de flamme persistante, région intermittente ou panache thermique.

II.2.2.2 Présentation du logiciel ANSYS CFX et de la modélisation associée

Le logiciel ANSYS CFX ("ANSYS CFX", 2020) est un logiciel CFD commercial généraliste, développé à l'origine par AEA Technology et distribué par ANSYS depuis 2005. Il est utilisé pour des simulations d'écoulements d'air et de transfert de polluants gazeux ou particulaires, avec prise en compte d'éventuels échanges thermiques et changements de phase. La modélisation CFD adoptée dans le logiciel ANSYS CFX version 16.2 (version utilisée pour les simulations) consiste à découper le domaine d'étude en un grand nombre de mailles dans lesquelles sont résolues les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie (équations de Navier-Stokes).

Habituellement, il existe 3 approches de simulation.

Simulation directe DNS (Direct Numerical Simulation) :

Cette méthode est rarement utilisée dans un contexte industriel car elle nécessite un très grand nombre de mailles et des moyens de calculs important. En effet, les structures (de toutes les tailles) de l'écoulement sont résolues explicitement.

Simulations LES (Large Eddy Simulation) :

Les équations de Navier Stokes sont « filtrées ». Cette méthode résout explicitement les « grandes » structures de l'écoulement. Les petites structures quant à elle sont résolues en utilisant des modèles dits de « sous maille ».

Simulation RANS (Reynolds Averaged Navier-Stokes Simulation):

Les équations de Navier Stocks sont moyennées, pour calculer des champs moyens de vitesse et de pression. La méthode RANS est beaucoup plus « économe » en termes de moyens de calcul. Cependant, elle fait intervenir un nouveau terme : le tenseur de Reynolds qui caractérise les fluctuations de la vitesse autour de la vitesse moyenne du fluide.

Dans le cadre de l'approche RANS, on est amené à choisir et valider le modèle de turbulence le plus approprié. Parmi ces modèles de turbulence, on trouve :

- Le modèle $k-\varepsilon$: est un modèle à deux équations où k représente l'énergie cinétique turbulente et ε le taux de dissipation ε). Il est largement utilisé et est mieux adapté aux zones loin des parois « zones de cisaillement libre » avec des faibles gradients de pression [168].
- le modèle $k-\omega$: est un modèle qui introduit deux équations pour k et ω . ω est homogène à l'inverse du temps caractéristique de la dissipation de l'énergie cinétique turbulente. Ce modèle semble être mieux adapté pour le traitement de la proche paroi [169].
- le modèle $k-\omega$ SST : le modèle Shear Stress Transport $k - \omega$ est proposé par Menter [170] est un modèle hybride (combinaison des deux modèles précédents), le modèle $k-\omega$ est utilisé en proche paroi pour prédire l'écoulement dans la région affectée par la viscosité tandis que le modèle $k-\varepsilon$ est appliqué dans les zones de cisaillements internes. La transition d'un modèle vers l'autre se fait progressivement.

L'approche retenue dans cette étude pour la résolution de ces équations est une approche de type RANS (Reynolds Averaged Navier-Stokes). Selon le modèle de turbulence utilisé, la viscosité turbulente est calculée à partir des grandeurs spécifiques du modèle. Dans notre cas, le modèle utilisé est le modèle k- ω SST. Ce modèle est particulièrement satisfaisant (tout au moins en écoulement isotherme) près de la couche limite.

II.2.2.2.1 Equations de transport

Les équations à résoudre dans le cas général d'un mélange multi-composants en écoulement turbulent et faiblement compressible sont les suivantes :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \bar{U}) = 0 \quad (\text{continuité}) \quad (28)$$

$$\frac{\partial \rho \bar{U}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \bar{U} \otimes \bar{U}) = -\nabla \bar{P} + \nabla [\mu_{eff} (\nabla \bar{U} + (\nabla \bar{U})^T)] + \rho g \quad (\text{quantité de mouvement}) \quad (29)$$

$$\frac{\partial \rho \bar{Y}_p}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \bar{U} \bar{Y}_p) = S_p \text{ avec } \bar{U} = \bar{U} + \overline{U_{s,p}} \quad (\text{transport d'une espèce particulaire p}) \quad (30)$$

$$\overline{U_{s,p}} = \left(g_i - \left(\frac{\partial \bar{U}_i}{\partial t} + \bar{U}_j \frac{\partial \bar{U}_i}{\partial x_j} \right) - \frac{1}{C_p} (D_B \delta_{ij} + D_{p,ij}^t) \frac{\partial C_p}{\partial x_i} \right) \tau_p \quad (\text{modèle développé à l'IRSN [22]}) \quad (31)$$

$$\bar{Y}_{air} = 1 - \bar{Y}_p \quad (32)$$

$$\rho = \frac{\bar{P}M}{RT} \quad (\text{loi d'état des gaz parfaits}) \quad (33)$$

avec :

- ρ la masse volumique du mélange gazeux (kg.m^{-3}),
- \bar{U} la composante moyenne du vecteur vitesse (m.s^{-1}),
- $\bar{P} = \bar{P} + \frac{2}{3} \rho k$ la pression moyenne "modifiée" avec k l'énergie cinétique turbulente ($\text{m}^2.\text{s}^{-2}$),
- μ_{eff} la viscosité dynamique effective (Pa.s),
- g l'accélération de la pesanteur (m.s^{-2}),
- \bar{Y}_{air} la valeur moyenne de la fraction massique en air,
- \bar{Y}_p la valeur moyenne de la fraction massique de particules,
- $\overline{U_{s,p}}$ la vitesse de glissement des particules (m.s^{-1}),
- S_p le terme source de particules ($\text{kg.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$),
- τ_p le temps de relaxation des particules (s),
- D_B le coefficient de diffusion brownienne des particules ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$),
- $D_{p,ij}^t$ le tenseur de diffusion turbulente ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$),
- C_p la concentration massique de particules ($C_p = \rho Y_p$) (kg.m^{-3}),
- n le nombre de constituants (-),
- M la masse molaire du mélange gazeux (kg.mol^{-1}),
- T la température du mélange (K),
- R la constante des gaz parfaits ($\text{J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$).

II.2.2.2.2 *Modèle de transport des particules*

On peut remarquer que dans l'équation (31), un modèle de transport de particules développé et validé à l'IRSN a été introduit auquel est associé un modèle de dépôt en paroi [3].

Le modèle de dépôt au niveau des parois du domaine de calcul intègre les phénomènes majoritaires (diffusion brownienne et turbulente, sédimentation et impaction) par l'ajout d'un flux de particules en paroi J exprimé en $\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ et défini par :

$$J = C_M u^* V_d^+ \quad (34)$$

où C_M est la concentration massique dans la première maille à la paroi, u^* la vitesse de frottement en paroi (m.s^{-1}) et V_d^+ la vitesse de dépôt adimensionnée d'une particule (-) définie par :

$$V_d^+ = \frac{\vec{g}^+ \cdot \vec{n}}{1 - e^{(\vec{g}^+ \cdot \vec{n}) I_p}} \quad (35)$$

où \vec{n} le vecteur unitaire normal à la surface considérée \vec{g}^+ le vecteur accélération de la pesanteur adimensionnée par (-) définie par :

$$\vec{g}^+ = \tau_p \frac{\vec{g}}{u^*} \quad (36)$$

avec \vec{g} le vecteur accélération de la pesanteur et I_p une intégrale intervenant dans le modèle de dépôt qui s'exprime par :

$$I_p = \frac{\sigma_t}{\kappa} \ln y^+ + \lambda(S_{c_B}, \tau_p^+) \quad (37)$$

σ_t le nombre de Schmidt turbulent, y^+ la distance adimensionnée à la paroi (-) ($\ln(y^+)$ fait apparaître la distance adimensionnée entre la paroi et le premier point de calcul (centre de la première maille) dans l'expression du flux de particules J (équation (34)) et $\lambda(S_{c_B}, \tau_p^+)$ une constante d'intégration du modèle de couche limite définie par :

$$\lambda(S_{c_B}, \tau_p^+) = \left[\frac{\tau_p^{+2n}}{\omega^n} + \left(\frac{S_{c_B}^{-\lambda_1}}{\lambda_0} \right)^n \right]^{-1/n} \quad (38)$$

avec τ_p^+ le temps de relaxation adimensionné d'une particule (-), S_{c_B} le nombre de Schmidt brownien d'une particule (-), $n = 2$, κ la constante de Von Karman est égale à 0,41, ω égal 1700, $\lambda_0 = 17,5$ et $\lambda_1 = 2/3$.

Une vitesse de thermophorèse a également été ajoutée à la vitesse de dépôt définie par l'équation (39) afin de prendre en compte la migration des particules due à un gradient de température. En l'occurrence, compte tenu des températures en jeu, ce phénomène de dépôt est prépondérant. Le terme de thermophorèse est donc défini sous la forme d'une vitesse adimensionnée de dépôt, notée V_{th}^+ , que l'on va ajouter au terme V_d^+ dans l'équation (39) et qui s'exprime par :

$$V_{th}^+ = \frac{1}{u^*} \left(\frac{\mu_{air} C_c}{\rho_{air} T} H \frac{dT}{dy} (y = 0) \right) \quad (39)$$

CHAPITRE. II

QUANTIFICATION EX-SITU DU DEPOT A GRANDE ECHELLE ET IDENTIFICATION DU BESOIN EN CAPTEURS

où μ_{air} est la viscosité dynamique de l'air (Pa.s), ρ_{air} la masse volumique de l'air (kg.m^{-3}), C_c le coefficient de Cunningham, T la température (K), H le paramètre de thermophorèse et y la distance à la paroi (m).

Dans ce modèle, nous allons considérer des particules sphériques car en l'état actuel aucun modèle analytique de thermophorèse des suies n'est disponible [171].

Une analyse détaillée des modèles disponibles dans la littérature, afin d'exprimer la vitesse de thermophorèse de particules sphériques, est disponible dans l'article de Sagot et al. [172] ainsi que dans la thèse de Brugière [25]. D'après Sagot et al. [172], le modèle théorique le plus représentatif des observations expérimentales est à ce jour le modèle de Beresnev et Chernyak [173]. Si les déterminations expérimentales de la vitesse de thermophorèse sont nombreuses pour des particules de géométrie simple (cube, sphère), ces données sont particulièrement limitées pour le cas des suies. Le modèle de Talbot [33] reste le plus couramment utilisé. C'est donc ce dernier que nous avons retenu même s'il reste limité pour les suies mais dans l'état actuel aucun modèle n'est adapté au cas des suies [174] :

$$H = \left(\frac{2,34}{1 + 3,42Kn} \right) \left(\frac{k_f/k_p + 2,18 Kn}{1 + 2 k_f/k_p + 4,36 Kn} \right) \quad (40)$$

avec Kn le nombre de Knudsen, k_f et k_p les conductivités thermiques respectivement du fluide et des particules ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$).

II.2.2.2.3 Mise en place du domaine de calcul

Dans un premier temps il est nécessaire de définir le domaine de calcul. Dans le cas présent, il représente le local 3 de l'installation DIVA et a été réalisé avec le logiciel ANSYS Design Modeler (cf. figure 53).

Le maillage peut être constitué de différents types d'éléments tels que des hexaèdres, prismes, tétraèdres ou mixtes. Un volume de contrôle est construit autour de chaque nœud de maillage et les flux sont calculés au niveau des points d'intégration situés sur les faces entre deux volumes de contrôle. Les équations discrétisées sont évaluées au niveau des nœuds en utilisant un schéma d'advection de haute résolution.

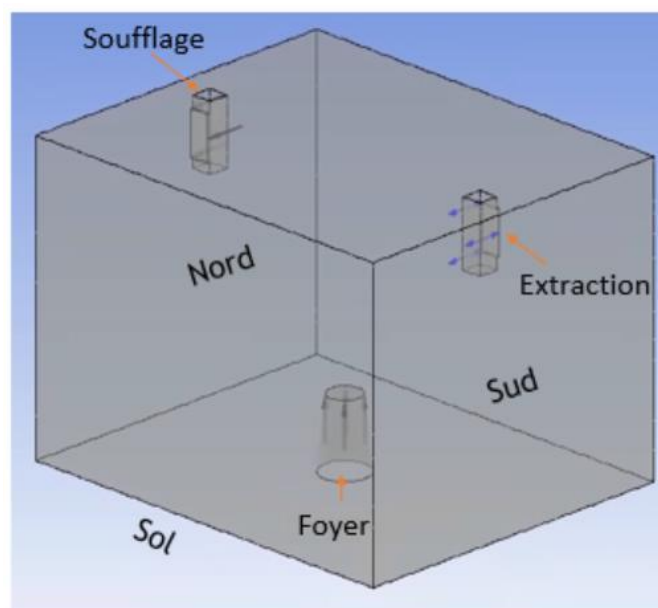


Figure 53 : Domaine de calcul

CHAPITRE. II

QUANTIFICATION EX-SITU DU DEPOT A GRANDE ECHELLE ET IDENTIFICATION DU BESOIN EN CAPTEURS

Ce domaine de calcul est ensuite discrétisé en petits éléments tétraédriques dans lesquels seront résolus les équations de la dynamique des fluides ou de Navier-Stokes. Ce maillage comporte 2 millions d'éléments.

Afin de simplifier la discussion des résultats de modélisation, il s'avère nécessaire de définir différentes notions associées à des régions d'analyse du dépôt des aérosols :

- Paroi : cette notion est associée aux différentes parois composant le local et inclue les parois est, ouest, nord, sud, le plafond et le sol.
- Zone : Lorsque nous aborderons les stratégies de quantification, afin de définir le nombre le plus adapté de capteurs nécessaires afin de caractériser de la manière la plus précise le dépôt des suies, les « parois » seront alors divisées en « zones ». Ces « zones » correspondent aux surfaces géométriques considérées afin de diviser la « paroi ».
- Surface : au sein de ces « zones », des « surfaces » d'analyse seront placées afin de reproduire les « surfaces » des capteurs résistifs ou des cibles passives de prélèvement (cf. II.1.1.3) développés dans cette étude. Ces « surfaces », selon que celles-ci soient associées aux capteurs ou aux cibles, correspondent donc à quelques mailles.

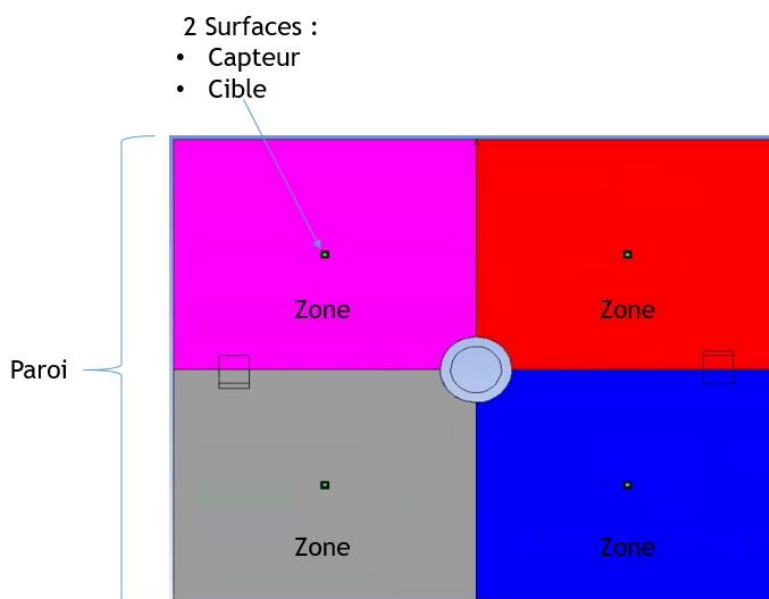


Figure 54 : Schéma d'une paroi (vue de face) divisée en 4 zones et dans chaque zone 2 surfaces (capteur et cible)

II.2.2.2.4 Présentation des conditions du calcul

Le domaine de calcul est constitué du local 3 de l'installation DIVA. On définit les paramètres numériques du calcul qui sont rappelés dans le tableau 8.

Tableau 8 : Paramètres des calculs

Paramètre	Condition
Calcul	Stationnaire
Modèle de turbulence	Modèle k- ω SST (Shear Stress Transport)
Schéma numérique	Schéma hybride High Resolution
Convergence	résidus MAX = 10^{-6}
Nombre d'itérations	2000
Pas de temps physique	1 s

Le lancement des simulations nécessite la réalisation d'un jeu de données à partir du maillage réalisé précédemment. Ce jeu de données permet de définir les données d'entrée ainsi que les conditions aux limites du domaine de calcul. Les conditions aux limites sont matérialisées par les bouches de ventilation (soufflage et extraction), les parois et le foyer. Elles sont décrites dans le tableau 9.

Tableau 9 : Conditions aux limites pour les calculs

Limite		Condition
Soufflage (air)		<p>« Inlet » (vitesse imposée u_{inlet})</p> $k = \frac{3}{2}(IU)^2, \varepsilon = C_{\mu}\rho \frac{k^2}{\mu_t}, \mu_t = 1000I\mu (I = 3,7\%), \omega = \frac{\varepsilon}{k}$ $u_{inlet} = Q_{inlet}/S_{inlet}$ $T_{inlet} = T_{\infty}$
Extractions (air + particules)		« Outlet » (pression statique relative imposée P_{ext})
Limite « Parois »		<p>« Wall » (température extérieure et coefficient d'échange externe hcv imposés)</p> <p>No Slip Condition $U_{wall} = 0$</p> <p>Loi de paroi "automatique"</p> <p>Terme source de dépôt J</p> $T_{w,ext} = T_{\infty}$ $h_w = (1/h_{cv} + e_w/\lambda_w)^{-1}$
Foyer	Face latérale	<p>« Wall » (température imposée)</p> $T_w = \Delta T_0(z) + T_{\infty}$
	Face supérieure	<p>« Inlet » (vitesse imposée u_{foyer})</p> $k = \frac{3}{2}(IU)^2, \varepsilon = C_{\mu}\rho \frac{k^2}{\mu_t}, \mu_t = 1000I\mu (I = 3,7\%), \omega = \frac{\varepsilon}{k}$ $u_{foyer} = u(r, z)$ $T_{foyer} = T(r, z)$

CHAPITRE. II

QUANTIFICATION EX-SITU DU DEPOT A GRANDE ECHELLE ET IDENTIFICATION DU BESOIN EN CAPTEURS

Les données d'entrée pour le calcul sont synthétisées dans le tableau 10. Pour un nombre de renouvellement de $4,7 \text{ h}^{-1}$, le débit de soufflage est égal à $564 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. La pression relative est égale à 0 Pa car il n'y a pas de perte de charge.

Les parois du local sont en béton, l'épaisseur et la conductivité thermique considérées.

Tableau 10 : Données d'entrée pour les calculs

Variable	Valeur considérée
Débit de soufflage Q_{inlet}	$564 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$
Température T_{∞}	$20 \text{ }^{\circ}\text{C}$
Pression statique relative d'extraction P_{ext}	0 Pa
Coefficient d'échange convectif h_{cv}	$5 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$
Épaisseur de la paroi e_w	10 cm
Conductivité thermique de la paroi λ_w	$16 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$

Après avoir défini le scénario incendie, la première étape des simulations est de représenter significativement le foyer. Pour ce faire, la géométrie choisie est un cône avec des profils gaussiens de vitesses et de températures imposées à partir de la corrélation de McCaffrey (équation (26)).

La figure 55 montre la géométrie du local avec les conditions aux limites. La bouche de soufflage (en partie haute) est représentée en rouge et la bouche d'extraction (en partie haute) est représentée en bleu.

Afin de contrôler le bon déroulement des simulations (convergence et atteinte de l'état stationnaire), des "monitoring points" sont disposés dans le domaine de calcul et en chacun de ces points, les variables souhaitées sont suivies en temps réel.

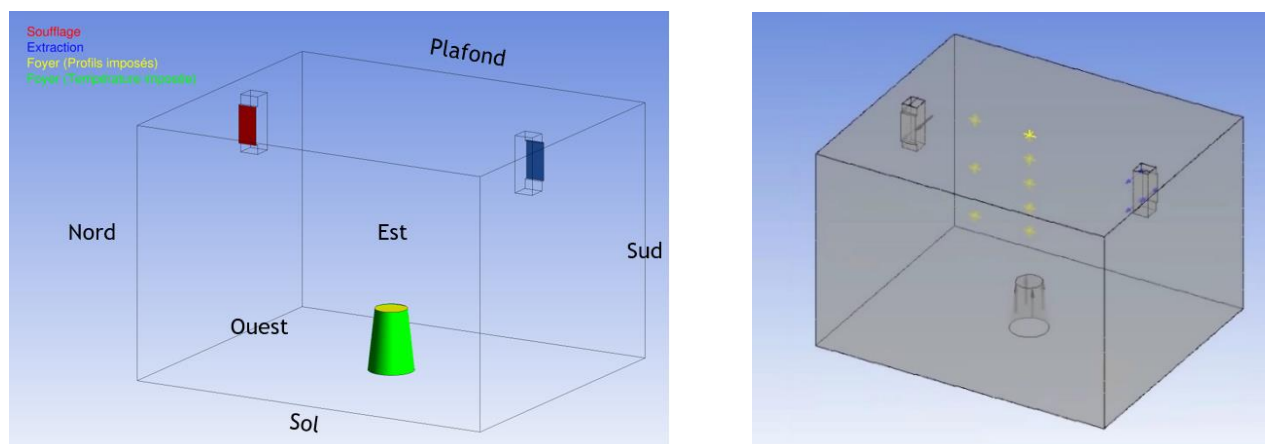


Figure 55 : Modélisation simplifiée d'un incendie (Essai PRISME D1) et emplacement des monitoring points dans le domaine de calcul

Finalement, les caractéristiques des aérosols qui vont être injectés dans la flamme sont représentées dans le tableau 11. Une étude de sensibilité a été réalisée pour des diamètres médians de particules compris entre 100 à 500 nm . Le diamètre donnant lieu au plus grand dépôt a été identifié à 300 nm . Ce diamètre, relativement proche du diamètre médian des suies de TBP/TPH, a été considéré dans cette étude numérique.

Tableau 11 : Caractéristiques des aérosols injectés

Variable	Valeur considérée
Diamètre médian de la distribution des particules d_g	300 nm
Ecart-type géométrique de la distribution des particules σ_g	1,9 [12]
Masse volumique	1534 ± 78 (kg.m ⁻³) [145]
Hypothèse	Particules sphériques sans gangue

II.2.2.3 Résultats numériques

II.2.2.3.1 Comparaison des profils de température simulés aux profils expérimentaux

Afin de valider la géométrie du foyer, il faut tout d'abord valider les profils de température et de vitesse sans injection de suies.

La comparaison des profils de température s'est faite avec les données expérimentales recueillies lors de la campagne PRISME D1 sur les parois Sud-Ouest, Sud-est et Nord-est.

Les calculs d'écoulements sans aérosols dans la géométrie du local (figure 56) sans tenir compte des transferts radiatifs, ont été réalisés et les profils de température obtenus sont représentés sur la figure 56 :

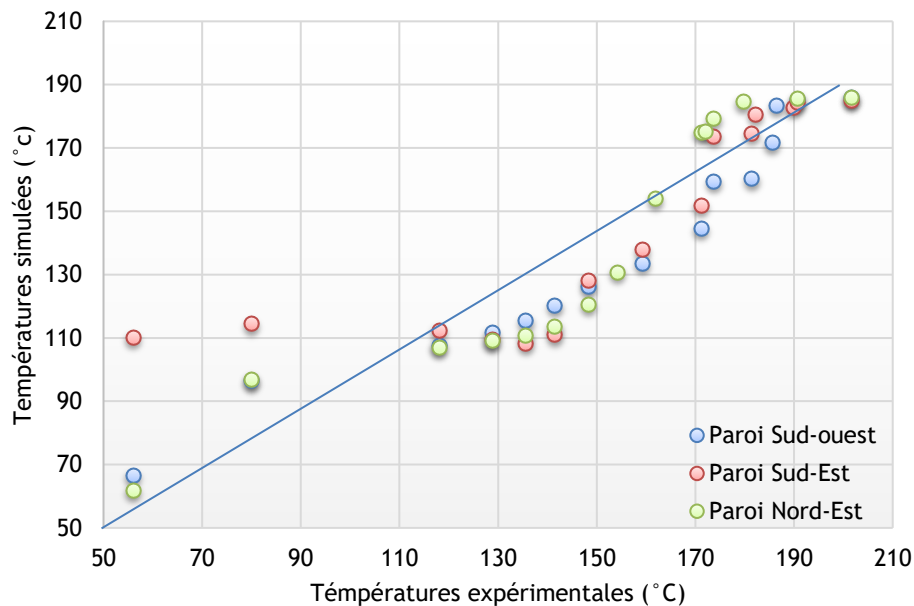


Figure 56 : Comparaison des profils de température

Sur les 3 parois (Sud-ouest, sud-Est et Nord-Est), on retrouve une bonne concordance entre les profils de température expérimentaux et simulés sauf lorsque les températures sont inférieures à 100°C (associées à de faibles hauteurs pour lesquelles la température mesurée expérimentalement est sensible à la présence du sol, i.e. à un effet de bord). La géométrie choisie pour le foyer (représentativité du foyer considéré) est ainsi validée.

II.2.2.3.2 Dépôt de suies par thermophorèse

Dans les sections précédentes, nous avons validé la géométrie du foyer considéré. On s'intéresse dans cette section à l'injection des particules dans le foyer, afin d'évaluer les mécanismes prépondérants de dépôt des suies.

D'après les résultats expérimentaux de quantification à échelle réelle, la plus grande quantité de suies déposée a été identifiée sur le plafond au-dessus du foyer et est vraisemblablement associée au mécanisme d'impaction du panache thermique.

Un autre mécanisme prépondérant lors de l'incendie, largement étudié dans la littérature, est la thermophorèse. Ce mécanisme a été mis en évidence en évaluant le dépôt sur des cibles chauffées et refroidies. Ce résultat a été confirmé, lors des essais à grande échelle, car la quantité déposée à côté de la bouche de soufflage est supérieure aux quantités déposées dans le local (mise à part au-dessus du foyer).

Afin de confronter ces résultats avec la modélisation, on va évaluer les champs de dépôt des suies dans le local sans et avec thermophorèse. Dans la suite de ce chapitre, nous discuterons du dépôt des suies en nous reposant sur l'information fournie par le calcul numérique, à savoir une quantité de particules déposées sur la surface d'une maille composant le domaine. Cette grandeur est donc intrinsèquement le flux de dépôt, numérique, des particules sur la maille étudiée.

On remarque que les champs de dépôt dans le local sans thermophorèse sont faibles (figure 57 b).

Sur la figure 57 c, l'effet de la thermophorèse est particulièrement marqué, conforté par la figure 57 a qui présente les gradients de température aux parois (en valeur absolue), directement reliés à la vitesse de dépôt par thermophorèse et donc aux flux de dépôt.

Les flux de dépôt les plus importants se situent au regard du foyer du fait de la convection thermique et de l'impaction au plafond. Au sol, la thermophorèse n'est pas le mécanisme prépondérant.

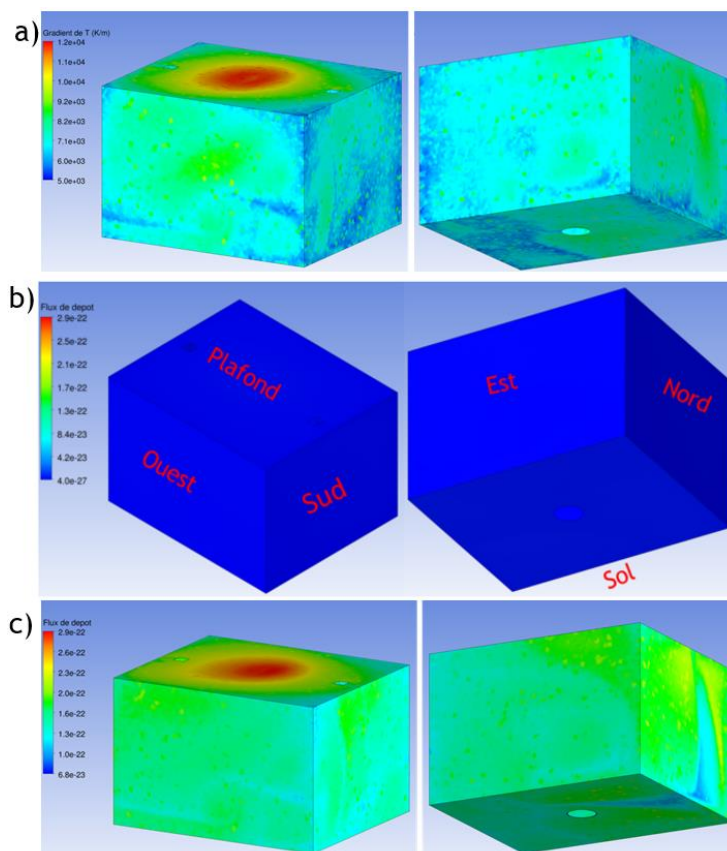


Figure 57 : a) Champs de gradients de température aux parois du local, b) Champs de dépôts aux parois du local (sans thermophorèse), c) Champs de dépôts aux parois du local (avec thermophorèse)

II.2.2.3.3 Taux de dépôt

Dans cette partie, nous allons évaluer qualitativement le taux de dépôt de suies sur les parois. On s'intéressera à trois types de parois selon les effets attendus :

- 1°) Parois est et ouest subissant le soufflage et l'extraction afin de discuter de leurs effets respectifs.
- 2°) Parois nord et sud qui ne sont pas censées subir l'effet du soufflage et de l'extraction.
- 3°) Le sol et le plafond afin de discuter de l'effet de la sédimentation et du panache thermique.

Le taux de dépôt correspond au ratio entre le flux du dépôt sur une surface $Q_{d\ surface}$ et le flux de dépôt maximal sur une paroi considérée $Q_{dmax\ paroi}$.

$$\text{Taux de dépôt} = \frac{Q_{d\ surface}}{Q_{dmax\ paroi}} \quad (41)$$

II.2.2.3.4 Taux de dépôt sur les parois exposées aux bouches de ventilation

La figure 58 présente la répartition du dépôt au niveau de la « paroi est ». À noter que sur cette figure l'extraction est dirigée vers la « paroi est » et que le soufflage est dirigé à l'opposé de cette paroi.

La figure 58 montre un dépôt préférentiel en partie supérieure gauche de la « paroi Est », dépôt préférentiel induit par l'extraction. Sur le reste de la « paroi Est », le dépôt semble assez homogène.

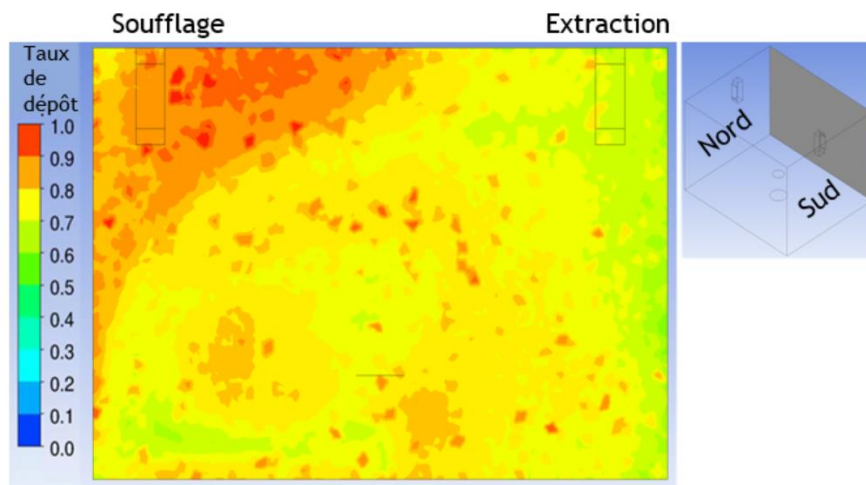


Figure 58 : Taux de dépôt sur la paroi Est

La figure 59 présente la répartition du dépôt au niveau de la « paroi ouest ». Dans ce cas, la bouche de soufflage est dirigée vers la « paroi ouest » et l'extraction vers la direction opposée.

La figure 59 montre un dépôt préférentiel face au soufflage ainsi qu'une répartition plutôt homogène sur le reste de la paroi.

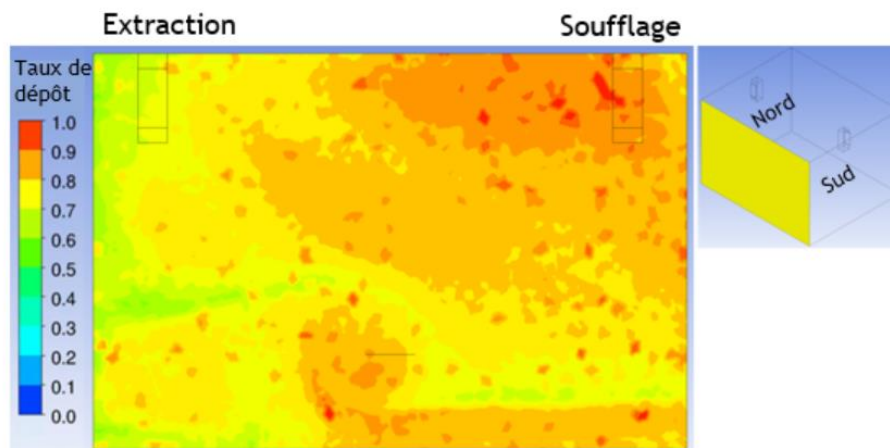


Figure 59 : Taux de dépôt adimensionné sur la paroi Ouest

On remarque que sur les parois Est et Ouest subissant respectivement l'extraction et le soufflage, le dépôt est influencé par les bouches d'extraction et de soufflage. Cette influence reste cependant relativement limitée et le dépôt apparaît assez homogène sur ces parois.

II.2.2.3.5 Taux de dépôt sur les parois non exposées aux bouches de ventilation

La figure 60 présente la répartition du taux de dépôt au niveau de la « paroi Nord ». À noter que sur cette figure le soufflage est situé en arrière-plan (le plus proche de la « paroi Nord ») et l'extraction au premier-plan (le plus éloigné de la « paroi Nord »).

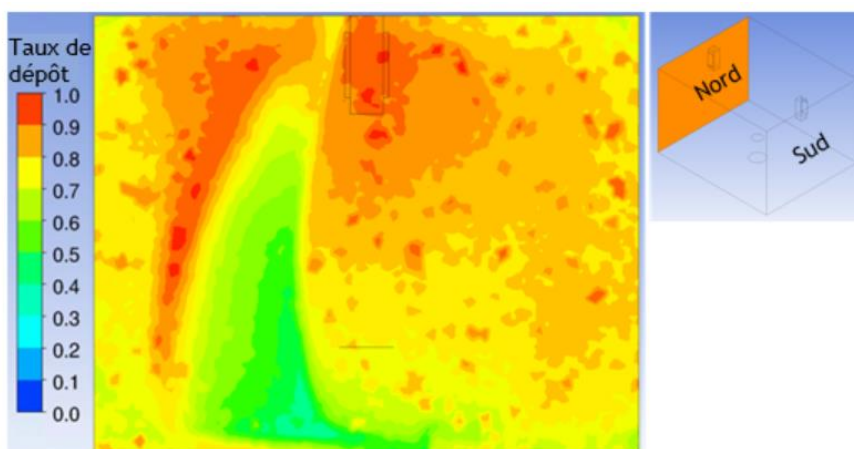


Figure 60 : Taux de dépôt sur la paroi Nord

La figure 60 montre une répartition du dépôt sur la paroi Nord plus hétérogène avec un dépôt préférentiel en partie haute. On note une influence notable de la bouche de soufflage sur le dépôt de cette paroi, placée sur le côté de cette bouche de ventilation.

La figure 61 présente la répartition du dépôt au niveau de la paroi Sud. À noter que sur cette figure, l'extraction est située en arrière-plan (le plus proche de la paroi Sud) et le soufflage au premier-plan (le plus éloigné de la « paroi Sud »).

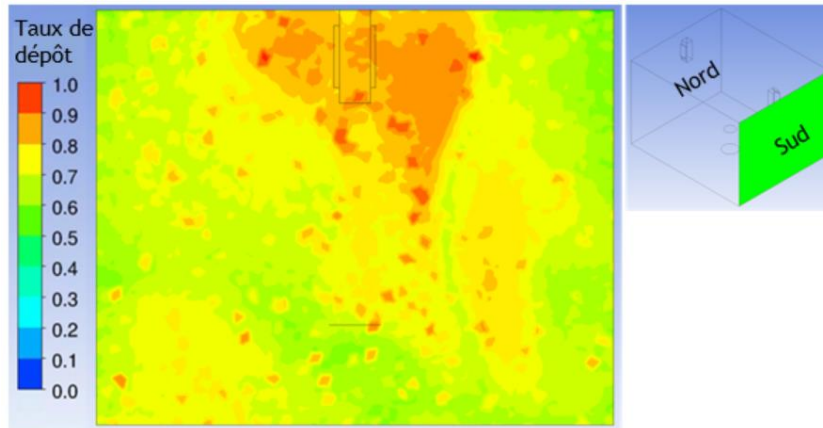


Figure 61 : Taux de dépôt sur la paroi Sud

Un dépôt préférentiel se forme sur la partie haute de la paroi Sud juste à côté de la bouche d'extraction, zone a priori peu ventilée avec probablement un gradient de température un peu plus élevé favorisant le dépôt par thermophorèse. Pour cette paroi, la répartition semble relativement homogène, mais le dépôt est sensiblement inférieur à la paroi Ouest. On remarque que l'influence de l'extraction sur le dépôt est moindre.

II.2.2.3.6 Taux de dépôt sur le sol et le plafond

La figure 62 montre la répartition du taux de dépôt au niveau du sol.

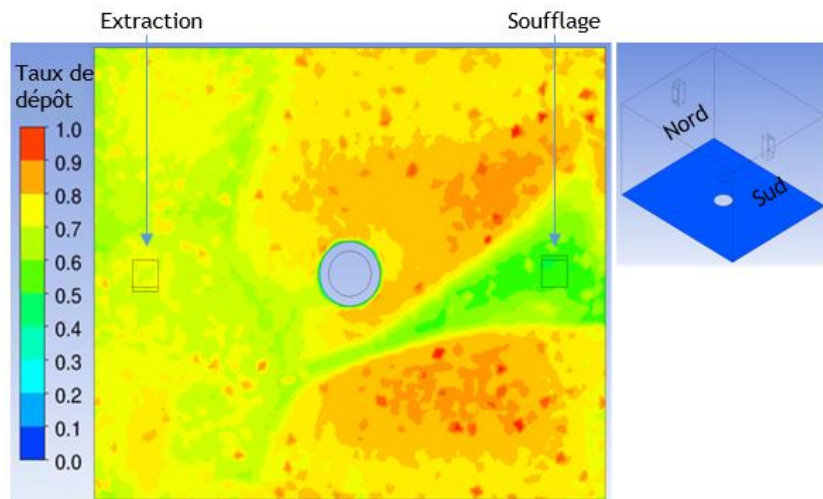


Figure 62 : Taux de dépôt sur le sol

Cette figure montre un dépôt préférentiel du côté du soufflage même si la répartition reste assez homogène. La bouche de soufflage vient lécher le sol.

On termine cette analyse du dépôt sur les parois du local par le plafond, zone d'impact du panache thermique.

La figure 63 présente la répartition du taux de dépôt au niveau du plafond. On remarque un dépôt préférentiel au centre du plafond du fait de l'impact du panache thermique, impliquant un dépôt relativement hétérogène.

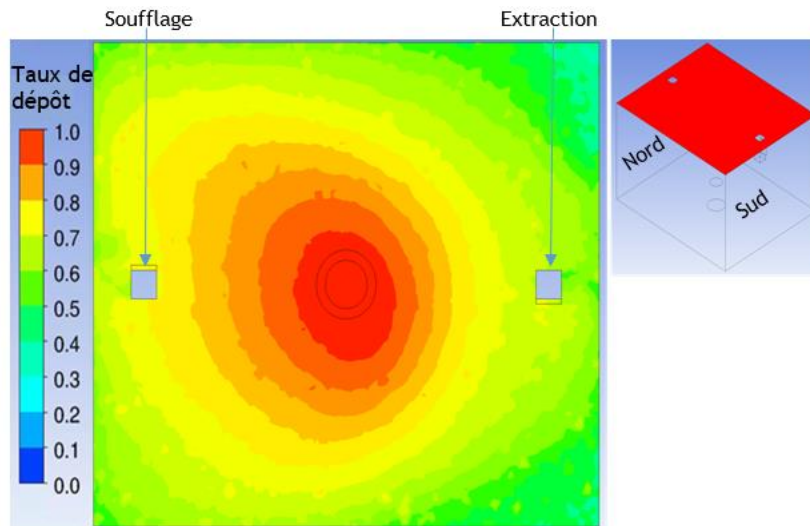


Figure 63 : Taux de dépôt sur le plafond

II.2.2.3.7 Part de dépôt de la paroi par rapport au dépôt total dans le local

Afin de quantifier le degré d'hétérogénéité des parois, nous calculons la moyenne du flux de dépôt sur chaque paroi $\overline{Q_{d_{paroi}}}$ calculé à partir des valeurs de flux de dépôt associées à chacune des mailles composant la paroi et son coefficient de variation sur la paroi $COVD_{paroi}$ défini respectivement par les équations (42) et (43):

$$\overline{Q_{d_{paroi}}} = \frac{\sum Q_{d_{paroi}}}{\text{nombre des mailles}} \quad (42)$$

$$COVD_{paroi} = \frac{\sigma_{d_{paroi}}}{\overline{Q_{d_{paroi}}}} * 100 \quad (43)$$

avec $\sigma_{d_{paroi}}$ l'écart-type du flux de dépôt sur la paroi.

Par la suite, nous évaluons pour chaque cas, la part de dépôt sur la paroi par rapport au dépôt total dans le local. Elle est définie par

$$\text{Part de dépôt} = \frac{\overline{Q_{d_{paroi}}}}{\overline{Q_{d_{local}}}} * 100 \quad (44)$$

avec $\overline{Q_{d_{local}}}$ la moyenne du flux de dépôt dans le local.

Cette grandeur sera plus pertinente pour évaluer la répartition du dépôt de manière globale dans le local et comparer les parois entre elles. Les résultats obtenus sur les différentes parois sont reportés dans le tableau 12.

Tableau 12 : Part de dépôt et $COVd_{paroi}$ sur les différentes parois

	Part de dépôt de la paroi (%)	$COVd_{paroi}$ (%)
Est	15,3	8
Ouest	15,2	8
Nord	11,9	10
Sud	13,8	14
Sol	18,6	11
Plafond	25,2	18

On remarque que les parts de dépôt sur les parois sont relativement homogènes sur les différentes parois sauf sur plafond (zone de singularité). Cela se confirme par le COV qui est plus élevé est au niveau du plafond confirmant ainsi l'hétérogénéité au niveau de cette paroi. Au sol, On retrouve aussi un niveau élevé d'hétérogénéité dû à l'effet du soufflage. Les parois où l'on constate le moins d'hétérogénéité sont les parois ne subissant pas le soufflage et l'extraction. Afin de s'affranchir des effets de ces hétérogénéités, nous allons proposer dans la section suivante une stratégie permettant de prendre en compte les écarts de mesure selon le positionnement des cibles /capteurs.

II.2.2.4 Stratégie de quantification

L'objectif est de déterminer la disposition optimale en termes de nombre de cibles ou capteurs pour une quantification représentative du dépôt sur chaque paroi du local.

En effet, une stratégie de quantification consiste à étudier différentes dispositions de cibles/capteurs, comportant chacune un nombre de cibles ou capteurs défini sur chaque paroi du local, et d'évaluer leur représentativité par rapport au dépôt global de la paroi.

Dans cette étude l'effet de la rugosité n'a pas été étudié. On suppose que toutes les parois sont lisses.

Pour chaque paroi, 3 cas, à minima, sont étudiés :

- un premier cas, intitulé « cas 1x1 », pour lequel est placée une surface (soit un capteur 3,5 x 3,5 mm² (en vert) soit une cible de 9 x 9 cm² (en noir)) au milieu de chaque paroi (Figure 64).

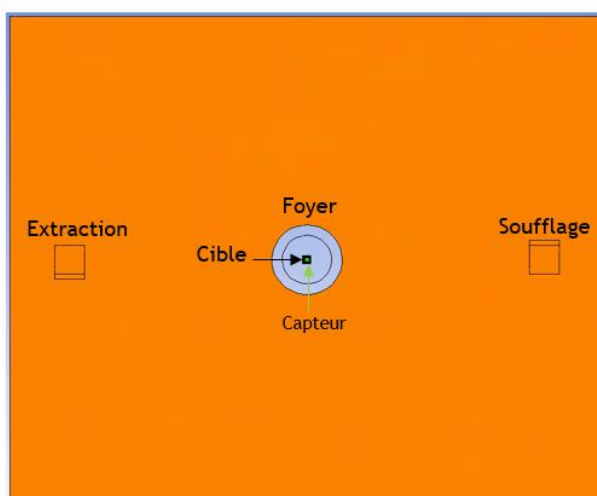


Figure 64 : Stratégie de quantification 1x1 - 1 zone par paroi et vue de dessus de l'emplacement de la cible (en noir)/capteur (en vert)

On notera toutefois que pour le sol, le cas « 1x1 » ne s'avère pas pertinent puisque le capteur ou la cible sont disposés soit directement dans le foyer, soit dans la zone d'impaction du panache. Deux cas supplémentaires ont alors été considérés : « cas 1x2 » et « cas 2x1 ». Chaque cas supplémentaire consiste à diviser la « paroi » (sol ou plafond) en 2 « zones » (zone orange et zone bleue) et à disposer une cible/capteur sur chacune de ces 2 zones, comme présenté sur la Figure 65.

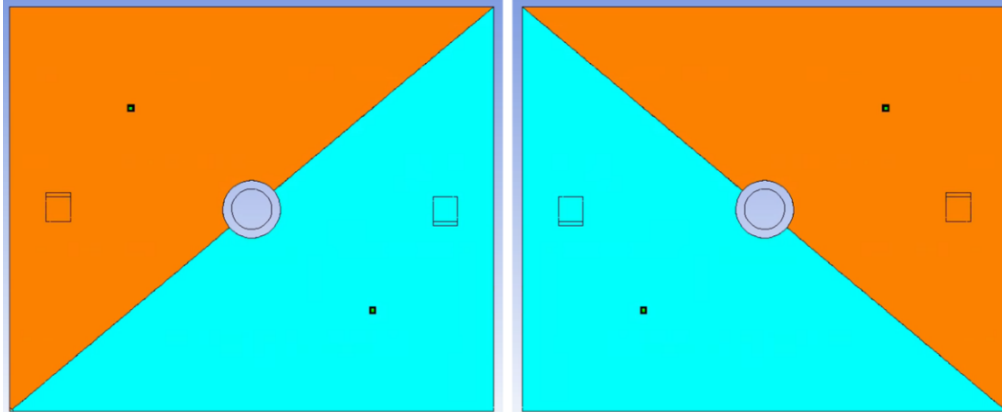


Figure 65 : Stratégie de quantification 1x2 et 2x1 - 2 zones par paroi (sol (à gauche) et plafond (à droite))

- un deuxième et un troisième cas, intitulés « cas 2x2 » et « cas 3x3 », consistent à diviser respectivement chaque « paroi » en 2x2 zones égales et 3x3 zones égales, au milieu desquelles sont matérialisées une cible (en noir) et un capteur (en vert) (Figure 66).

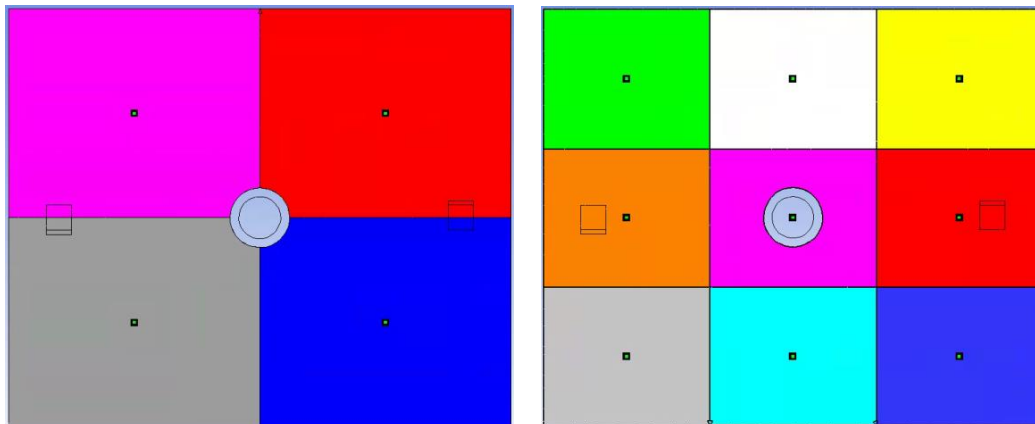


Figure 66 : Stratégie de quantification 2x2 et 3x3 zones par paroi et emplacement des cibles/capteurs

Nous allons adopter cette stratégie pour évaluer la représentativité du flux de dépôt moyen sur le capteur par rapport au flux de dépôt moyen sur la paroi pour chaque stratégie. L'objectif est de déterminer, parmi ces zones celles dont les taux de dépôt sont les plus représentatifs du dépôt sur toute la paroi afin de fixer le nombre et les emplacements optimaux des capteurs.

Nous allons donc procéder comme suit :

ayant déjà calculé la moyenne du flux de dépôt de chaque paroi $\overline{Q_{d_{paroi}}}$ et son coefficient de variation sur la « paroi » $COV_{d_{paroi}}$, on calcule pour chaque « zone » de la paroi (dépendant de la stratégie considérée) la valeur moyenne du flux de dépôt sur la zone $\overline{Q_{d_{zone}}}$ et son coefficient de variation $COV_{d_{zone}}$ avec $\sigma_{d_{zone}}$ l'écart-type du flux de dépôt sur la zone considérée.

$$COVD_{zone} = \frac{\sigma_{dzone}}{\overline{Q}_{dzone}} \quad (45)$$

Le $COVD_{zone}$ est lié à l'hétérogénéité du flux de dépôt sur la zone où est installée la « surface » du capteur, en fonction du nombre de capteurs de cette « zone » qui n'est pas de la même dimension selon la stratégie adoptée, donc le $COVD_{zone}$ diffère selon la stratégie.

Pour la « surface » associée (capteur dans ce cas), nous calculons la valeur moyenne du flux de dépôt associée à la surface du capteur $\overline{Q}_{d_{surface}}$, ainsi que son écart relatif à la valeur moyenne de la « zone » associée $ECART_{surface-zone}$ défini par :

$$ECART_{surface-zone} = \frac{\overline{Q}_{d_{surface}} - \overline{Q}_{d_{zone}}}{\overline{Q}_{d_{zone}}} \quad (46)$$

Cet écart entre la valeur moyenne du flux de dépôt sur la « surface » du capteur et la valeur moyenne du flux de dépôt sur la « zone » associée permet d'évaluer la représentativité de la valeur du flux de dépôt déterminée à l'aide capteur vis-à-vis du flux moyen de dépôt associé à la zone considérée.

Pour chaque surface de capteur, on considère la moyenne quadratique de $COVD_{zone}$ et $ECART_{surface-zone}$ comme incertitude sur la valeur du flux de dépôt sur la « surface » du capteur afin

de prendre en considération l'hétérogénéité du flux de dépôt sur la « zone » et l'écart relatif du flux de dépôt mesuré sur la « surface » du capteur par rapport à la valeur moyenne de la « zone » associée.

$$u_{surface} = \sqrt{(COVD_{zone})^2 + (ECART_{surface-zone})^2} \quad (47)$$

On calcule enfin l'écart relatif entre la valeur moyenne du flux de dépôt au niveau de la surface du capteur $\overline{Q}_{d_{surface}}$ et la valeur moyenne de dépôt sur la paroi $\overline{Q}_{d_{paroi}}$ que l'on représente sous la forme d'un diagramme.

$$ECART_{surface-paroi} = \frac{\overline{Q}_{d_{surface}} - \overline{Q}_{d_{paroi}}}{\overline{Q}_{d_{paroi}}} \quad (48)$$

Pour chacun de ces écarts on associe des barres d'erreur (figure 67) calculée à l'aide de l'incertitude quadratique moyenne $\overline{u}_{surface}$ (moyenne des incertitudes au niveau de la surface du capteur dans une zone).

Ainsi, on prend en compte la dispersion du flux de dépôt sur la paroi et sur la zone ainsi que la représentativité de la valeur moyenne de dépôt des capteurs par rapport à la valeur moyenne de la zone et de la paroi.

$\overline{u}_{surface}$ représente donc les barres d'erreur dans la figure 67.

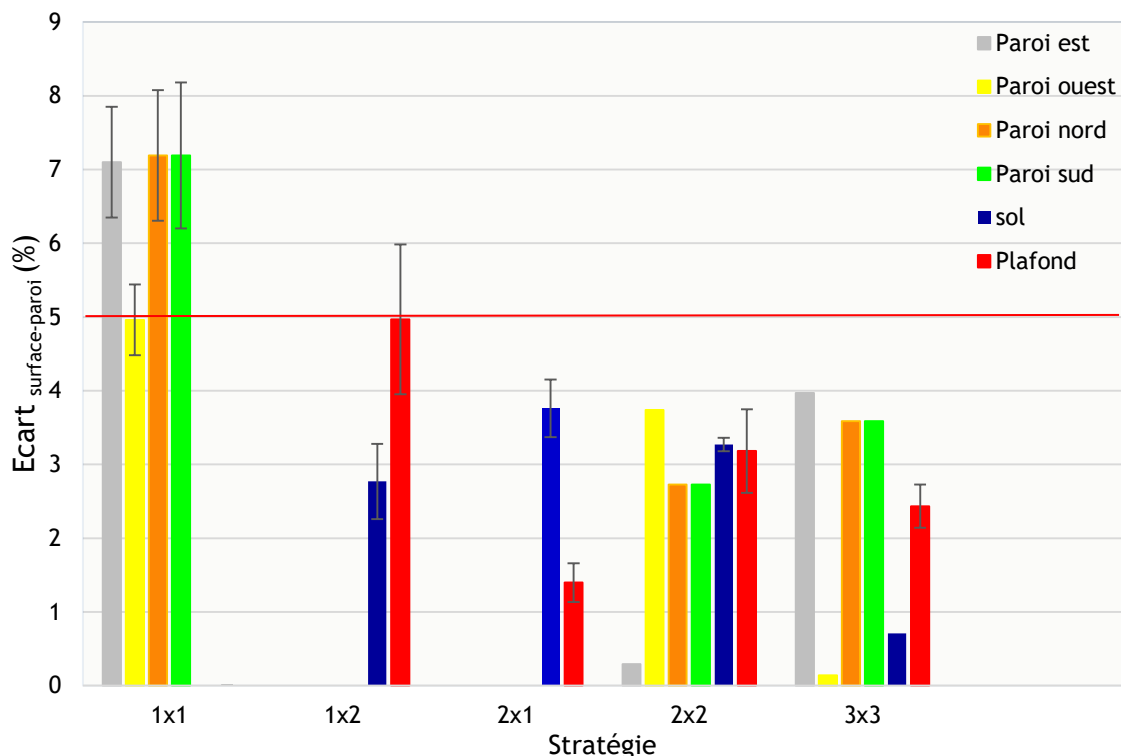


Figure 67 : Evolution de l'écart du flux de dépôt moyen sur le capteur à la valeur moyenne de dépôt sur la paroi (%) en fonction de la stratégie

Les principales conclusions de cette analyse sont les suivantes :

Les écarts à la valeur moyenne de dépôt sur la « paroi Est » sont compris entre 0,29 % pour le cas 2x2 et 7,1 % pour le cas 1x1, tandis que sur la paroi Ouest, ces écarts sont compris entre 0,1 % pour le cas 3x3 et 5 % pour le cas 1x1.

Sur la paroi Nord, les écarts à la valeur moyenne de dépôt sur la paroi sont compris entre 3,5 % pour le cas 2x2 et 7 % pour le cas 1x1, alors que sur la paroi Sud, ces écarts sont compris entre 3,5 % pour le cas 2x2 et 7 % pour le cas 3x3.

En fixant comme critère un écart relatif < 5 %, il est judicieux de privilégier la configuration 2x2 qui est largement représentative du dépôt global sur les parois précédemment mentionnées.

Au sol, l'ensemble des cas étudiés montrent une assez bonne représentativité avec un écart à la valeur moyenne de dépôt sur le sol inférieur à 4 % et des incertitudes faibles.

Au plafond, les écarts à la valeur moyenne de dépôt sont compris entre 1,4 % pour le cas 2x1 et 38 % pour le cas 1x1 (non représenté sur la figure 67).

Ce dernier graphe montre qu'une configuration 2x1 est suffisamment représentative du dépôt global sur le plafond. Cependant, nous adopterons la même stratégie que pour toutes les autres parois, soit 2x2 capteurs.

Au final, en fixant comme critère un écart relatif $ECART_{surface-paroi} < 5 \%$, il apparaît donc judicieux de privilégier la configuration 2x2 qui permet de déterminer, de manière représentative, le dépôt global sur les « parois » tout en maintenant un nombre raisonnable de capteurs (24).

CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons spécifié dans la première partie les ordres de grandeur du dépôt à échelle réelle en comparant les quantités déposées à différents emplacements du local pour les deux essais réalisés dans le dispositif expérimental DIVA à Cadarache.

A partir des fractions déposées (1-C2), nous avons calculé des flux et des taux de dépôt de suies qui ont été employés pour s'assurer de la pertinence de la solution capteur résistif qui sera développée dans la suite de cette étude.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, dans le but de déterminer sur chaque paroi du local le nombre de capteurs représentatifs du dépôt sur la totalité de la surface, ainsi que la pertinence d'une stratégie de quantification « localisée » du dépôt, nous avons procédé selon la méthodologie suivante :

- 1) Définition d'un scénario incendie à simuler.
- 2) Réalisation d'une étude numérique avec ANSYS CFX, où nous avons modélisé le foyer par un cône rayonnant et nous avons fixé les conditions de calcul.
- 3) Validation de la géométrie du foyer considérée à l'aide de corrélations de la littérature et en comparant les profils de température simulés à des profils expérimentaux.
- 4) Injection des particules de suies et simulations des taux de dépôt pour chaque paroi du local, à savoir : le sol, la paroi est, la paroi nord, la paroi sud, la paroi ouest et le plafond.

Le taux de dépôt a été représenté sur chaque paroi et le degré d'hétérogénéité a été évalué quantitativement.

Sur les parois subissant le soufflage et l'extraction, un dépôt préférentiel a été observé du côté du soufflage mais la répartition reste plutôt homogène. Au niveau des parois ne subissant ni le soufflage ni l'extraction, nous avons constaté un dépôt préférentiel à proximité de la bouche de soufflage tandis que la présence à proximité de la bouche d'extraction n'induit qu'une hétérogénéité très limitée du dépôt.

Au sol, le taux de dépôt préférentiel est du côté du soufflage même si la répartition reste assez homogène.

Finalement, au plafond, nous avons constaté un dépôt préférentiel au centre du fait de l'impact du panache thermique, impliquant un dépôt relativement hétérogène.

Afin d'avoir une analyse fine de la répartition du taux de dépôt sur les surfaces considérées, chaque paroi a été respectivement découpée en 1 zone (cas 1*1), 4 zones (cas 2*2) et 9 zones (cas 3*3). La représentativité des taux de dépôt pouvant être déterminés localement selon ce découpage a ensuite été étudiée quantitativement par rapport aux parois.

Nous avons privilégié la configuration 2x2 qui est la plus représentative du dépôt global sur les parois.

Nous pouvons conclure à travers ce chapitre, qu'il existe des hétérogénéités qui pour autant n'induisent pas des écarts énormes dans les ordres de grandeurs de dépôt. Néanmoins, ces écarts sont pris en compte dans la méthodologie employée. Cela amène à un nombre raisonnable de capteurs (24) qui pourraient être déployés lors de futurs essais incendies.

Chapitre.III VERS LA QUANTIFICATION **IN-SITU ET TEMPS-REEL DU DEPOT DE** **SUIES**

INTRODUCTION

Afin de qualifier les modèles de dépôts d'aérosol implémentés dans des outils de simulations de type CFD (Computational Fluid Dynamics) ou dédiés à l'incendie tels que FDS (Fire Dynamics Simulator), OpenFOAM ou ISIS, il convient de disposer de données quantifiables de fractions de suies déposées sur les parois d'un local industriel soumis à un incendie. Par conséquent, des dispositifs de mesure appropriés doivent être développés pour réaliser de telles mesures dans des situations relativement complexes telles que celles rencontrées lors d'incendies dans des installations nucléaires confinées et sous-ventilées. Nous avons présenté précédemment les résultats de quantification à posteriori de masse déposée sur les parois dans les locaux incendie, données essentielles à l'établissement des spécifications de dispositifs d'analyse en temps réel. Afin de répondre au besoin d'une quantification dynamique de la masse déposée, plusieurs méthodes directes ou indirectes existent et le présent chapitre vise à utiliser 4 méthodes différentes de mesure de la masse déposée de suies.

Parmi celles-ci, deux sont basées sur des équipements de laboratoire et nécessitant une analyse ex-situ d'un échantillon de suies prélevé.

- **L'analyse OC/EC** : permet de déterminer les masses de Carbone Organique (OC) et Élémentaire (EC) contenues dans un échantillon. Elle sera utilisée comme une mesure de référence de masse déposée. Elle est utilisée pour des masses déposées inférieures à 20 µg.
- **La micro-balance (pesée)** : possède une limite de détection plus élevée que l'OC/EC et sera moins efficace pour détecter les faibles masses. Cependant, contrairement à l'OC/EC, il s'agit d'une méthode non destructive et est adaptée à des masses déposées élevées telles que celles reportées lors des expérimentations incendie. Elle constituera donc la 2^{ème} méthode de référence pour la mesure de masse déposée supérieure à 20 µg.

Cependant, ces deux méthodes ne permettent pas de suivre de façon continue un dépôt dans un local incendie. Nous avons donc choisi deux dispositifs basés sur des capteurs qui permettent d'avoir, après étalonnage, un suivi dynamique de la masse déposée, et transférables pour des mesures in situ en conditions représentatives d'incendie :

- **Le capteur résistif de suies** : il fournit à travers la mesure de sa conductance électrique une information qui pourra être reliée à la masse déposée sur sa surface sensible.
- **Le capteur CO₂ (couplé au capteur résistif de suies)** : fournit une information sur la concentration en CO₂ présente dans une cellule de mesure suite à la combustion de suies déposées préalablement sur le capteur résistif. Cette méthode nécessite un système d'échantillonnage adéquat. Elle ne permet, cependant, pas un suivi temps réel du dépôt mais par intervalle régulier (intervalle de temps qui sera discuté dans la suite de ce chapitre).

Ces deux méthodes indirectes de suivi de la masse déposée nécessitent cependant un étalonnage qui permettra d'établir un lien entre l'information délivrée par les capteurs (conductance et concentration CO₂) et la masse déposée sur la surface sensible du capteur résistif (considérée représentative de la masse déposée sur une surface équivalente à proximité du capteur). Pour ces deux étalonnages, une des deux mesures de référence de la masse déposée est utilisée (figure 68).

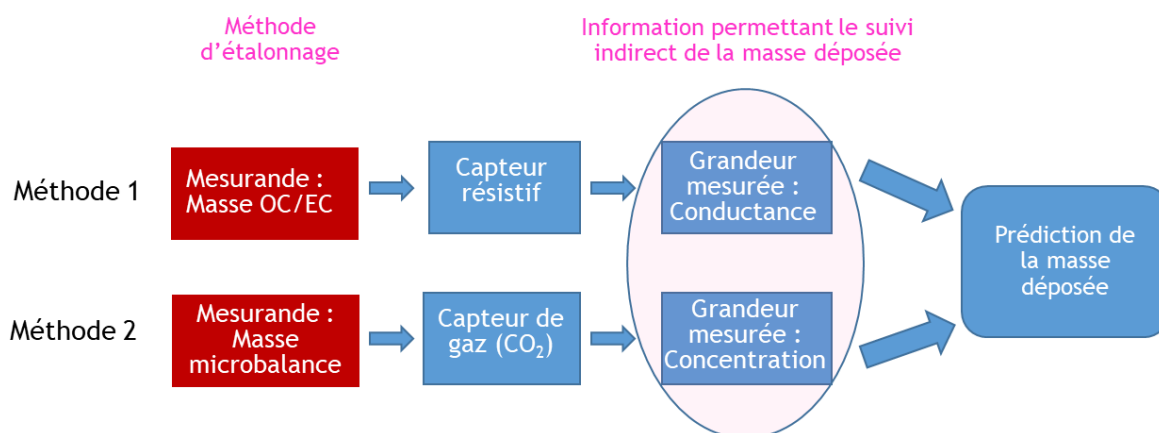


Figure 68: Synoptique des deux méthodes de mesure

Dans ce chapitre, avant d'aborder les aspects quantitatifs pour chacune de ces méthodes, nous commencerons par présenter la fabrication du capteur résistif, les systèmes permettant la génération des suies, le dépôt de celles-ci et la mesure en continu du signal de conductance du capteur résistif. Deux types de suies seront étudiées : celles issues de la combustion du propane dans un générateur appelé « MiniCast » et celles issues de la combustion d'un mélange liquide de solvants TBP/TPH considérées plus représentatives des suies produites lors d'un incendie dans l'industrie nucléaire et plus spécifiquement lors du processus de retraitement du combustible nucléaire.

Pour le capteur résistif, au-delà de l'aspect métrologique, une étude de l'influence potentielle du capteur lui-même sur le phénomène de dépôt de suies sera réalisée, en particulier sur un éventuel effet d'électrophorèse associé à la tension de polarisation appliquée pour mesurer la conductance du capteur.

Enfin, ces deux méthodes d'étalonnage seront évaluées et comparées sur un plan métrologique. Une discussion sur la pertinence de ces solutions en regard des spécifications identifiées dans le chapitre précédent sera menée, en particulier en ce qui concerne la mesure in-situ et temps réel.

III.1 MATERIELS ET METHODES

Le capteur résistif a été fabriqué à l'Ecole des Mines de Saint-Etienne sur la base du capteur de particules développé par ElectricFil lors des projets Cyclamen 1 et 2 [127].

La technique de gravure laser a été choisie pour l'élaboration de la face sensible du capteur. Pour la réalisation de toutes les autres étapes de fabrication du capteur, la technique de sérigraphie a été retenue. Nous présentons, dans un premier temps, les étapes de fabrication du capteur résistif et la validation du procédé de fabrication. Puis, nous nous attacherons à la présentation des systèmes expérimentaux utilisés pour la génération des suies et l'exposition du capteur résistif.

III.1.1 Fabrication et qualification des capteurs

III.1.1.1 Étapes de fabrication du capteur résistif de suies

La sérigraphie est un procédé d'impression qui fonctionne sur le même principe que celui du pochoir. En effet, celle-ci utilise un écran souple (de type mailles en inox), sur lequel des motifs ont été obtenus par photolithographie d'une résine photosensible, pour déposer le matériau d'intérêt sur un substrat. En utilisant le procédé couches épaisses « standard », les microcomposants sont fabriqués d'une manière collective et à faible coût. Ce procédé, largement utilisé dans le domaine de la microélectronique, permet de réaliser des dépôts de motifs variés avec une épaisseur contrôlée variant de 10 μm à quelques dizaines de μm par dépôt. La figure 69 résume les étapes du procédé de sérigraphie de couches épaisses.

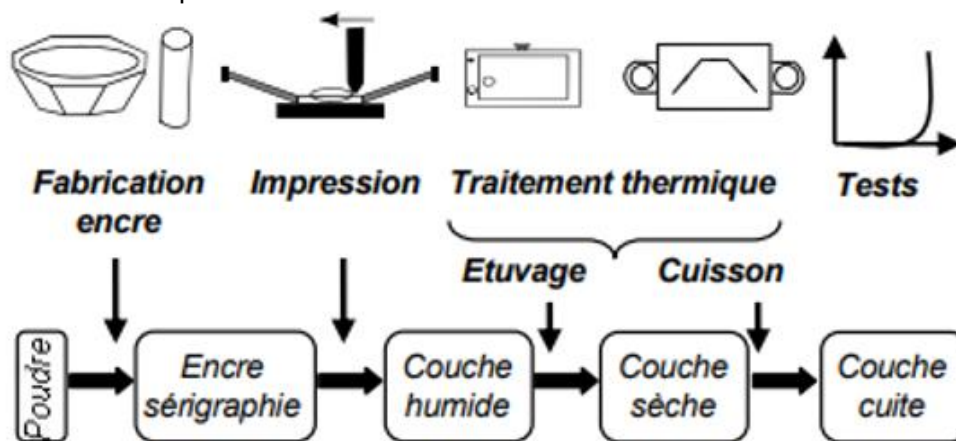


Figure 69: Procédé standard « couche épaisse » [175]

Les couches épaisses sont souvent sérigraphiées sur un substrat d'alumine (Al_2O_3). Une fois sérigraphiée, l'encre est étuvée à une température comprise entre 100 et 150 °C (pour évaporer les solvants) puis cuite à haute température (dépendante du matériau sérigraphié) afin de densifier et fritter la couche.

Les différentes étapes de la fabrication du capteur sont décrites ci après, successivement la face avant (élément sensible de détection des suies) et la face arrière (élément chauffant). Cette description ne reflète pas l'ordre chronologique des opérations qui est imposé par une température de recuit décroissante des couches déposées pour ne pas endommager les éléments déposés aux étapes précédentes.

a) Face avant

- **Étape 1 : Dépôt du platine à travers un masque rectangulaire**

La première étape consiste à déposer, par sérigraphie (sérigraphieuse utilisée : R-23 Meteor Semi-Automatic de REPRINT), une encre commerciale de platine (réf. ESL5545) sous forme d'un motif rectangulaire d'environ 3 cm^2 sur des substrats d'alumine dense (Coorstek) (Figure 70) d'une épaisseur de 0,89 mm. Après un temps de séchage de 20 minutes à 130 °C, les plaques sont cuites à 980 °C pendant 2 heures selon une rampe de montée/descente en température de 15 °C.min⁻¹.

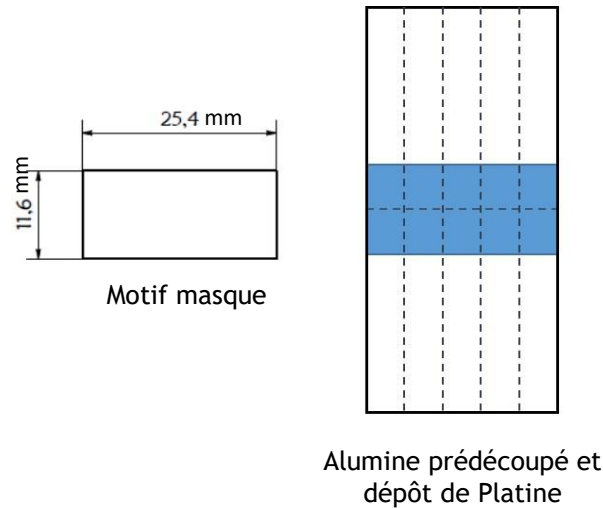


Figure 70 : Dépôt du platine à travers un masque rectangulaire

- **Étape 2 : Structuration des peignes interdigités par laser**

La deuxième étape consiste à structurer l'élément sensible constitué d'électrodes de platine en forme de peignes interdigités réalisés par gravure laser (Technifor - G5 - LW1) du platine déposé par sérigraphie à l'étape 1 (figure 71).

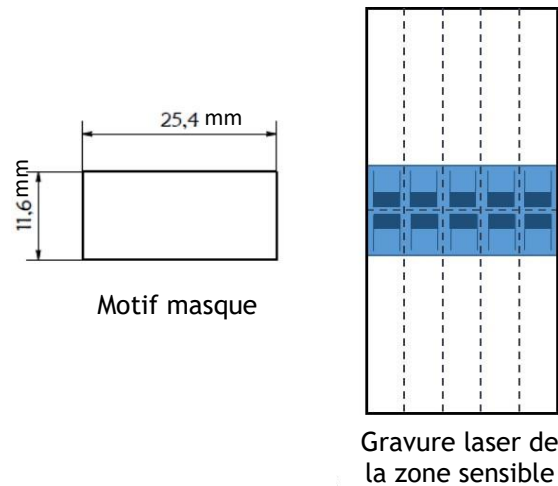


Figure 71 : Structuration des peignes interdigités par laser

Le motif réalisé par gravure laser est représenté en figure 72.a. Chaque électrode comporte 30 branches, chaque branche ayant une longueur de 3,5 mm, une largeur de 40 μm et une hauteur de 15 μm environ. L'espace inter-électrode visible en figure 72.b est de 20 μm et d'une profondeur de 15 μm . On peut remarquer la présence de boules de refusion du platine qui constitueront des lieux de germination privilégiés pour la croissance des ponts comme nous le verrons ultérieurement.

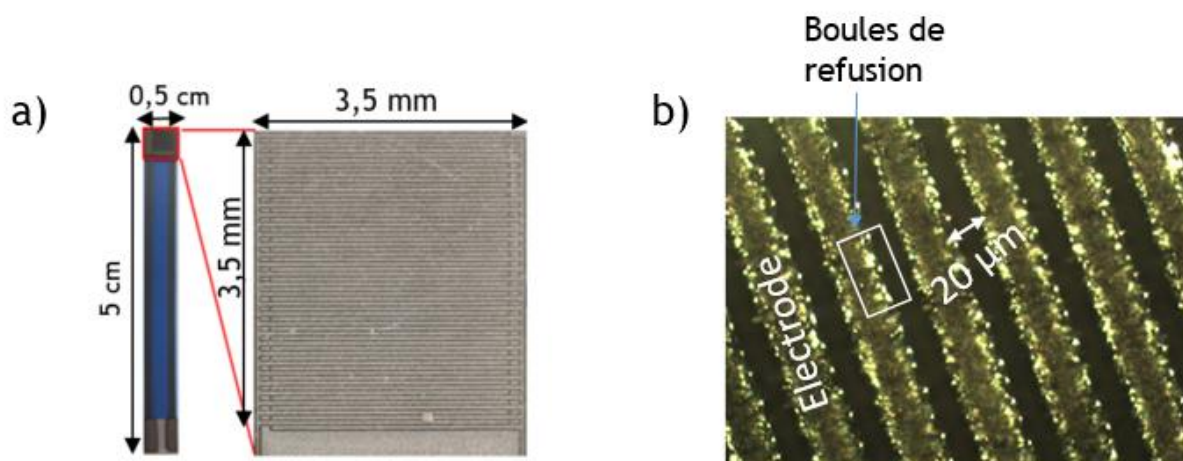


Figure 72 : a) Clichés de microscopie optique de a) la face sensible du capteur, b) des électrodes et des espaces inter-électrodes de 20 µm

- **Étape 3 : Dépôt des pistes et des plots de contact sur la face avant du substrat**

L'élément sensible est relié aux plots de soudure (grâce auxquels nous pourrions polariser le capteur) par les pistes en or. La troisième étape consiste à déposer les pistes en or (encre commerciale ESL8880H) et les plots de soudure en Ag-Pd (encre commerciale ESL9635-BT) selon les motifs définis dans la figure 73. Leurs cuissons respectives sont effectuées à 850°C pendant une heure (rampe de montée/descente en température de 15°C.min⁻¹) après une étape de séchage de 20 minutes à 130°C dans une étuve.

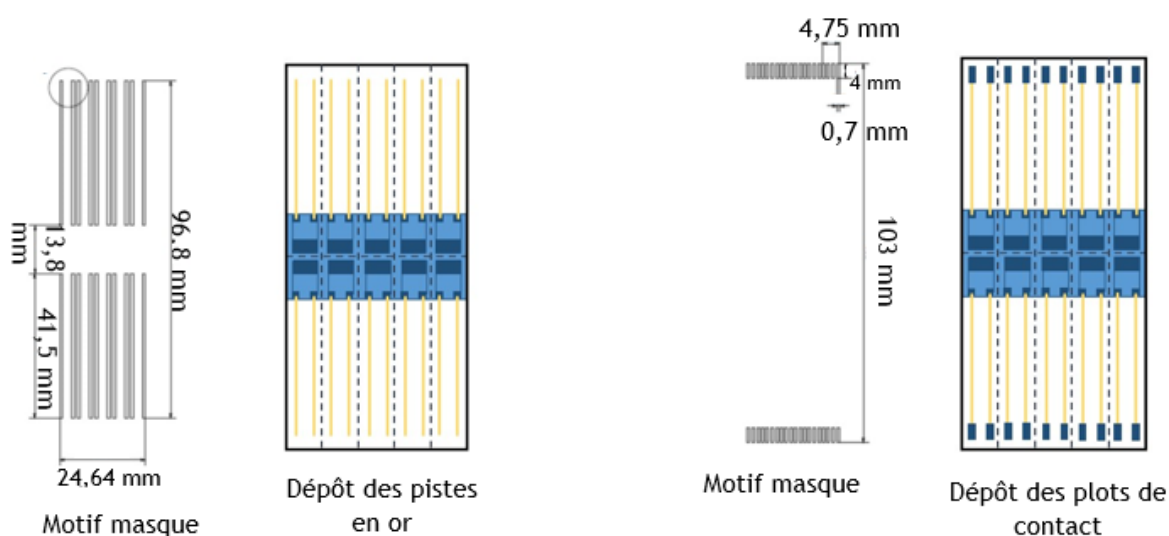


Figure 73 : Dépôt des pistes en or et des plots de contact en Ag-Pd sur la face avant du capteur

- **Étape 4 : Dépôt de l'encre diélectrique**

Dans cette dernière étape finale de préparation de la face avant du capteur, un film diélectrique (encre à base de verre, d'alumine et de silice) est déposé par sérigraphie sur la face avant. Ce dernier recouvre les pistes en or (figure 74) et permettra, grâce à ses propriétés isolantes, de limiter de façon précise la zone de conductance électrique lors de l'exposition du capteur aux suies. Le protocole de séchage et de cuisson est identique à celui opéré à l'étape précédente.

La fenêtre côté mesure du capteur ne laisse apparaître que les électrodes interdigitées (élément sensible qui doit être exposé aux suies) et une partie du platine sérigraphié.

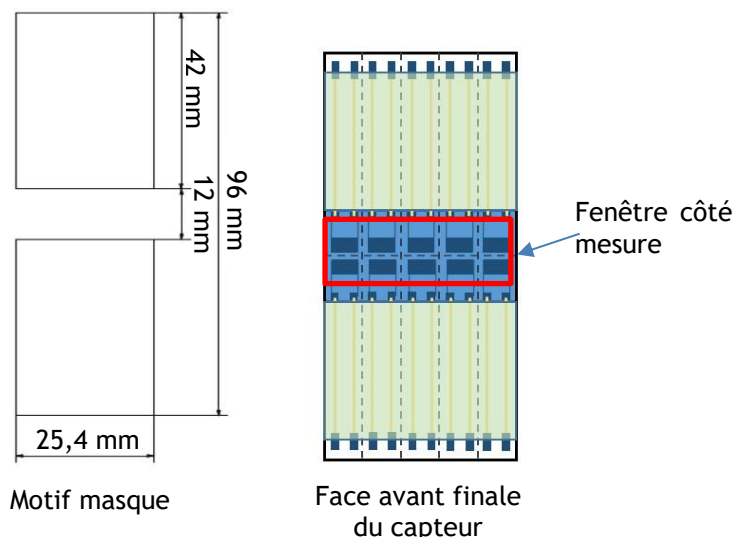


Figure 74 : Dépôt du film diélectrique de protection

b) Face arrière

• **Étape 5 : Dépôt de la résistance en Platine**

Afin de brûler les suies déposées et ainsi régénérer la face sensible du capteur, un élément chauffant en platine a été serigraphié sur la face arrière du support alumine (figure 75). Ce dernier permet de chauffer l'élément sensible par effet Joule.

Dans cette étape, le recuit est réalisé à 980 °C pendant 1 heure avec des rampes de montée et de descente en température de 15 °C.min⁻¹. La résistance de cet élément chauffant peut varier avec l'épaisseur de la couche mais est généralement entre 8 et 8,7 Ω à 20 °C.

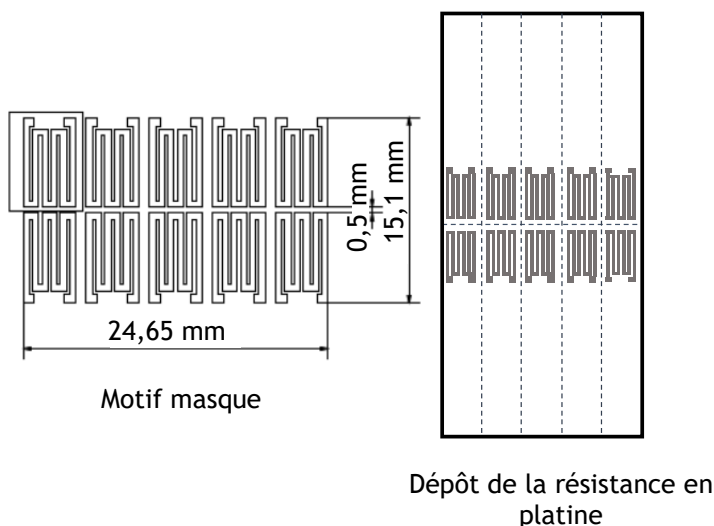


Figure 75 : Dépôt de la résistance en platine sur la face arrière (pour régénération)

• **Étape 6 : Dépôt des pistes et des plots de contact sur la face arrière**

Dans cette étape, des pistes en or et des plots de soudure en Ag-Pd sont déposés par sérigraphie (figure 76) pour assurer les contacts électriques de la résistance de chauffage avec le circuit extérieur. L'encre composée d'or est utilisée pour les pistes car celui-ci a une résistivité électrique 4 fois plus faible que le platine (Pt). Cela permet donc de ne pas trop influencer la valeur de

la résistance de platine et ainsi d'avoir un contrôle plus précis de la valeur de température et une chauffe plus « localisée ». La cuisson de ces éléments s'effectue à 850 °C pendant une heure. Les étapes de séchage de l'encre, ainsi que les étapes de montée et descente en température restent identiques.

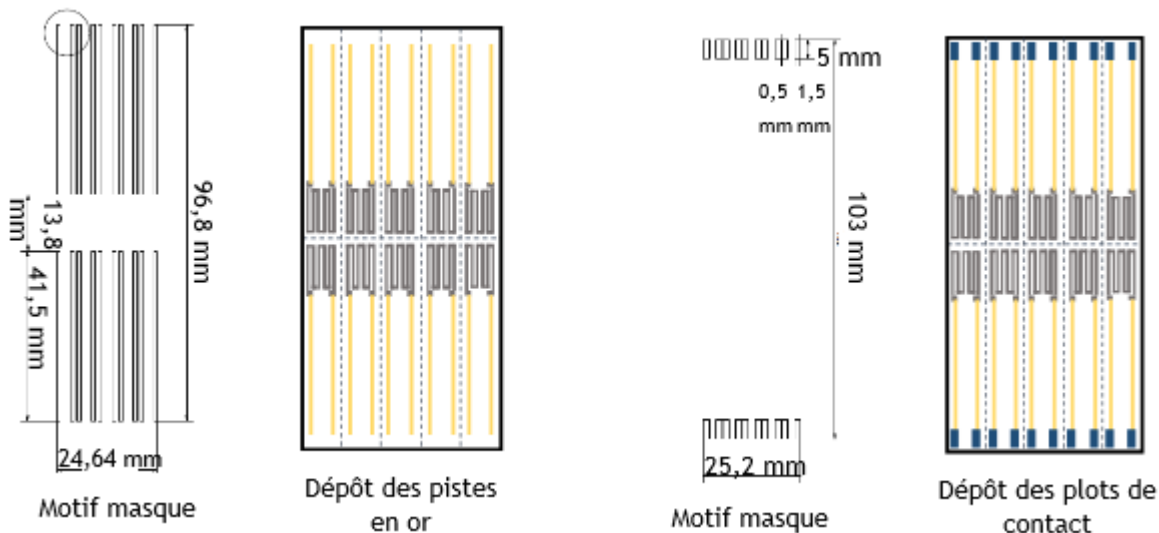


Figure 76 : Dépôt des pistes en or et des plots de contact sur la face arrière

• **Étape 7 : Dépôt du diélectrique**

Dans l'étape finale de fabrication du capteur, un film diélectrique est sérigraphié sur la totalité de la face arrière sauf sur les plots de soudure afin d'éviter les court-circuits au niveau de la résistance de platine et des pistes d'or lors de l'exposition du capteur aux suies (figure 77).

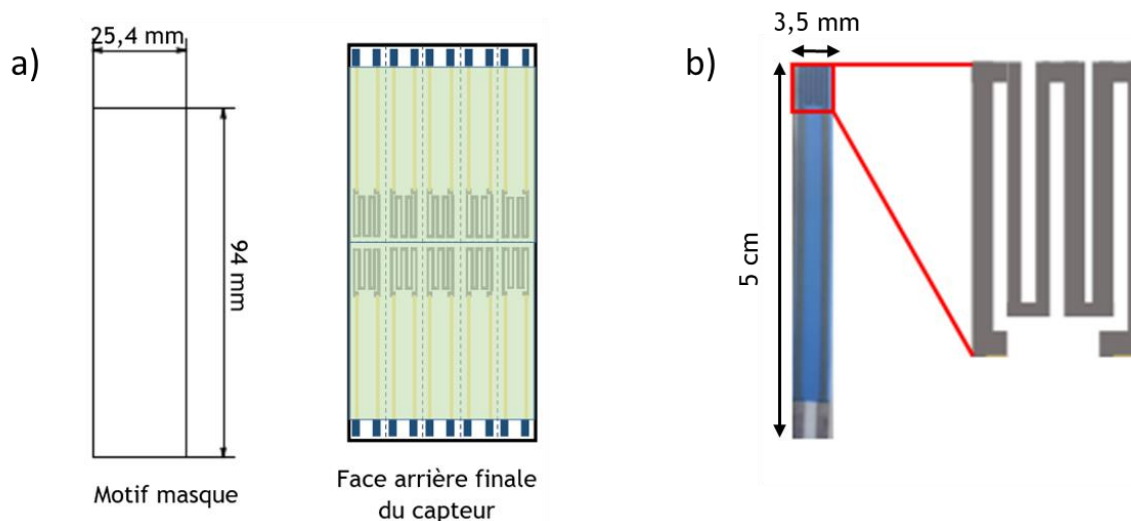


Figure 77 : a) Dépôt du diélectrique sur la face arrière, b) Résistance de chauffe pour la régénération des suies (8 Ω à 20 °C)

III.1.1.2 Validation du procédé de fabrication des capteurs résistifs

Afin de valider le procédé de fabrication des capteurs, il convient de s'assurer de l'absence de court-circuit entre les électrodes ou de rupture de ces dernières.

Alors qu'un court-circuit est facilement détectable (résistance très faible du capteur vierge de toutes particules), une rupture d'une ou plusieurs électrodes sur la face sensible est impossible à détecter sans présence de suies et se traduira par une variation plus ou moins importante de la conductance du capteur pour les mêmes conditions d'exposition (type de suies, concentration de suies, temps, tension de polarisation..). Ces ruptures modifient donc la sensibilité du capteur résistif. Afin de s'assurer de l'absence de telles ruptures d'électrodes, un protocole expérimental a été proposé et repose sur la détermination de la constante de cellule du capteur.

On appelle constante de cellule k le facteur de proportionnalité entre la conductance G du capteur plongé dans une solution conductrice et la conductivité σ de cette solution. On peut donc écrire la relation :

$$G = k \sigma , \quad (49)$$

k ne dépend que de la géométrie du capteur, et est donc sensible à l'intégrité des électrodes.

La confrontation des constantes de cellule mesurées expérimentalement pour une solution électrolytique étalon à celles calculées théoriquement permettra de s'assurer de la maîtrise et de la reproductibilité du processus de fabrication des capteurs.

Dix capteurs identiques, fabriqués dans les mêmes conditions et présentant les mêmes dimensions et les mêmes paramètres géométriques, ont été caractérisés afin de vérifier la reproductibilité de la constante de cellule.

Ces constantes de cellule ont d'abord été déterminées théoriquement à l'aide du modèle d'Olthuis [176] (Équation (50)), adapté au calcul de la constante de cellule k pour le cas particulier des cellules à électrodes interdigitées.

$$k = \frac{1}{(N-1)L} \frac{2K(k)}{K[(1-k^2)^{\frac{1}{2}}]} , \quad (50)$$

avec L la longueur des électrodes, N le nombre d'électrodes et $K(k)$ une intégrale elliptique de première espèce :

$$K(k) = \int_{t=0}^1 \frac{dt}{[(1-t^2)(1-k^2t^2)]^{\frac{1}{2}}} , \quad (51)$$

k est un modulo qui représente la périodicité de l'élément sensible $N > 2$. Il dépend de la largeur des électrodes (W) et l'espace inter-électrodes (S).

$$k = \cos\left(\frac{\pi}{2} \frac{W}{S+W}\right) , \quad (52)$$

Les valeurs des paramètres L , N , W et S ont été mesurées à l'aide d'un microscope numérique (Keyence VHX-6000) et sont respectivement $L = 3,5 \pm 0,006$ mm, $N = 30$, $W = 40 \pm 3$ μ m et $S = 20 \pm 2$ μ m. La valeur moyenne des constantes théoriques de cellule, calculée pour 10 capteurs, est égale à $0,21$ cm^{-1} avec une incertitude relative élargie ($k=2$) de 10 % en raison des incertitudes liées à la détermination des paramètres géométriques (figure 78).

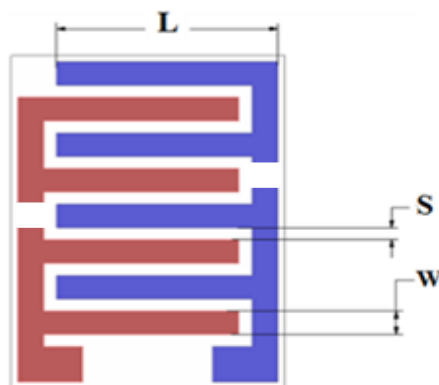


Figure 78 : Schéma de principe de la face sensible du capteur résistif, paramètres géométriques associés

Ensuite, une détermination expérimentale des constantes de cellule a été effectuée. Pour ce faire, une solution électrolytique étalon de chlorure de potassium (KCl) de conductivité connue ($12,88 \pm 0,1 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$) a été choisie. Les électrodes du capteur ont été plongées dans la solution électrolytique et la conductance a été mesurée. Cette mesure a été réalisée grâce à un pont diviseur alimenté par une tension sinusoïdale de 200 mV efficace et de 5 kHz et une résistance R_0 d'une valeur connue de $10 \pm 0,1 \text{ k}\Omega$ (figure 79).

La tension a été appliquée entre les deux électrodes interdigitées à l'aide d'un Générateur Basse Fréquence (GBF, Tektronix AFG 3022) et la valeur efficace de la différence de potentiel aux bornes de la résistance R_0 a ensuite été mesurée grâce à un multimètre Keithley 2001. La conductance entre les électrodes de chaque capteur a été calculée à partir du pont diviseur (équation (53)) :

$$G = \frac{1}{R_0} \frac{V}{E - V}, \quad (53)$$

avec V la tension calculée aux bornes de la résistance et E la tension délivrée par le GBF. Enfin la valeur de la constante de cellule est déduite en utilisant la formule (49).

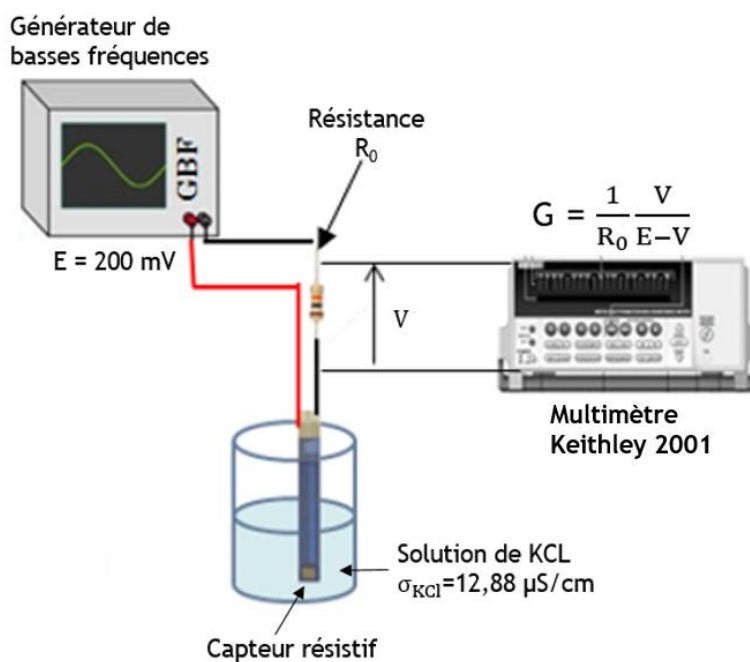


Figure 79 : Détermination expérimentale de la constante de cellule

Expérimentalement, la procédure de caractérisation consiste à mesurer la conductance G dans les conditions définies en figure 79 et à température ambiante. La valeur moyenne, déduite à partir de la caractérisation des 10 capteurs, de cette constante de cellule déterminée expérimentalement est de $0,23 \text{ cm}^{-1}$ avec une incertitude relative élargie ($k=2$) de $0,5 \%$.

Au niveau reproductibilité, entre les 10 capteurs, un écart-type relatif de moins de 1% a été observé sur les valeurs expérimentales.

Outre les valeurs « expérimentales » des constantes de cellules assez proches pour les 10 capteurs testés (démontrant la bonne reproductibilité du procédé de fabrication), une cohérence a pu être établie, aux incertitudes près, avec les valeurs théoriques de constantes de cellules déterminées à l'aide du modèle d'Olthuis [176]. Ces premières caractérisations nous permettent de détecter une coupure au niveau des électrodes.

III.1.2 Pilotage et acquisition du signal du capteur résistif

III.1.2.1 Acquisition du signal et polarisation

Afin de polariser le capteur et ainsi mesurer sa conductance, un multimètre-source à très forte impédance d'entrée et présentant un courant d'entrée de l'ordre de la dizaine de mA (Keithley 6517A) a été utilisé. Ce multimètre-source permet de mesurer de très grandes résistances dans une large gamme de mesure (de 10Ω à $210 \text{ T}\Omega$), et donc de réaliser cette mesure dès le début du dépôt des suies sur la surface du capteur. De plus, cet instrument est capable de générer une tension de polarisation du capteur stable et comprise entre $1 \mu\text{V}$ et 210 V . Le Keithley 6517 A est néanmoins limité en intensité et ne peut mesurer un courant continu au-delà de 21 mA . Cette limitation s'est montrée contraignante lors des mesures de fortes conductances ($G > 1300 \mu\text{S}$) et ce même pour les faibles tensions de polarisation. Afin d'étendre la gamme de mesure et pouvoir mesurer des conductances supérieures à $1000 \mu\text{S}$, nous avons alors aussi utilisé un pont diviseur.

L'acquisition du signal ainsi que la polarisation du capteur sont pilotés par un programme LabVIEW spécialement développé pour cette étude. Cela permet à l'utilisateur de gérer la grandeur d'influence de la réponse du capteur de suies (tension de polarisation).

III.1.2.2 Régénération du capteur résistif

La résistance chauffante, située sur sa face arrière, permet de régénérer le capteur en oxydant les suies déposées sur sa partie sensible (en générant principalement du CO_2 comme nous le verrons dans la suite de ce chapitre).

La température T à la surface du capteur lors de cette phase de régénération est liée à la résistance R de l'élément chauffant en platine par la relation :

$$T = T_0 + \frac{R - R_0}{\alpha R_0}, \quad (54)$$

avec R_0 la résistance de chauffe mesurée à la température T_0 et $\alpha = 3,1 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ le coefficient de température du platine déposé par sérigraphie. Les paramètres de montée et tenue en température du capteur sont pilotés par un programme LabVIEW [73]. La résistance R_0 et la température T_0 sont calibrées pour chaque capteur par le biais de ce programme. La température lors de la régénération monte de la température ambiante jusqu'à 650°C (figure 80) avec une vitesse de montée de $10^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$.



Figure 80 : Illustration photographique du capteur lors de la phase de régénération (la face sensible du capteur apparaît ici en rouge car portée à une température de 650°C)

III.1.3 Exposition du capteur aux suies

III.1.3.1 Sources de génération des suies

a) Génération des suies du CAST

Un brûleur de type Mini-CAST (modèle 5201, Jing) a été utilisé dans cette étude pour produire des suies représentatives de celles émises lors d'un incendie à grande échelle. Les particules de suies sont générées grâce à une flamme de diffusion laminaire propane-azote assistée par un jet d'air (cf. figure 81).

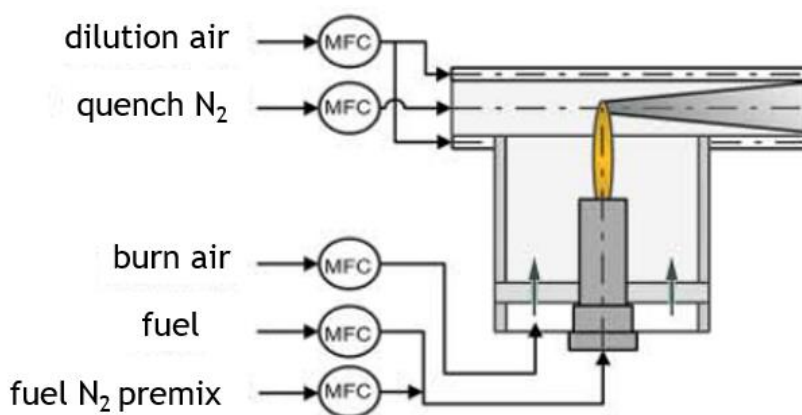


Figure 81 : Schéma de principe du Mini-CAST [177]

La réaction de combustion en jeu est alors décrite par :



La flamme est refroidie par de l'azote sous forme gazeuse (quench N₂ sur la figure 81), stoppant le processus de combustion et prévenant l'oxydation des particules de suies.

L'aérosol constitué des particules ainsi générées est dilué par l'azote pour éviter une croissance incontrôlée des particules par des processus d'agglomération. Les propriétés des suies, ainsi que leur concentration et leur distribution en taille peuvent être modifiées en changeant les débits des gaz en jeu : le propane, l'azote de pré-mélange, l'air d'oxydation, l'air de dilution et l'azote de trempe (fixé pour ce dernier à 7,5 NL.min⁻¹). Ce sont ces débits qui définissent les différents points de fonctionnement. Dans notre travail, nous nous sommes intéressés à un seul point de fonctionnement

largement étudié dans la littérature [111]. Ce point est nommé PF1 et les différents débits de gaz utilisés sont détaillés dans le tableau 13.

Tableau 13 : Débits de gaz utilisés en PF1

Débit	C ₃ H ₈ [mL.min ⁻¹]	Gaz de pré-mélange (N ₂) [mL.min ⁻¹]	Air d'oxydation [L.min ⁻¹]	Air de dilution [L.min ⁻¹]
PF1	60	0	1,5	20

b) Génération des suies de TBP/TPH

La génération des particules de suies TBP/TPH est assurée par l'installation PARIS (Production d'Aérosols Représentatifs d'un Incendie Sous-ventilé) [12], qui comporte un cône calorimètre à atmosphère contrôlée.

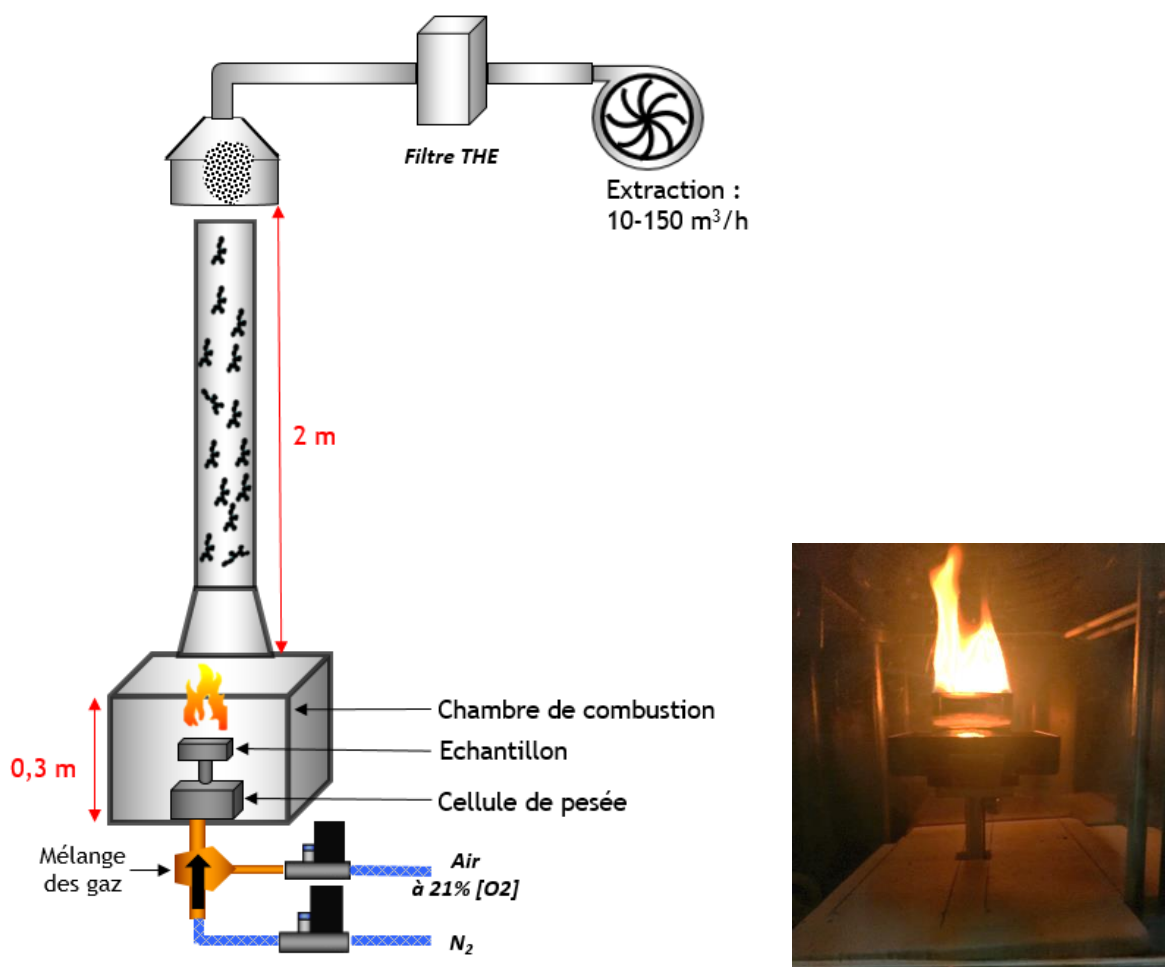


Figure 82 : Schéma général du banc PARIS [178] et aspect de la flamme produite par le mélange TBP/TPH

En se basant sur la norme ISO 5660-1 & 2, de nombreux dispositifs basés sur la consommation d'oxygène ont été développés pour l'étude des propriétés du feu [179]. Le banc PARIS [12] produit des suies issues de la dégradation du TBP/TPH qui se déposeront sur le capteur résistif pour d'abord étudier sa réponse électrique puis quantifier les suies qui y sont déposées pour proposer une corrélation masse/conductance. Le banc est composé d'une chambre de combustion dans laquelle est placé le combustible (mélange de TBP/TPH) et où le gaz comburant (air) est injecté. L'atmosphère

dans la chambre de combustion permet de reproduire les conditions d'une atmosphère viciée car la teneur en dioxygène est maîtrisée. Dans la présente étude, seule la concentration en dioxygène de 21 % a été considérée. Le banc PARIS est composé d'une chambre de combustion surmontée d'une colonne dans laquelle les aérosols vont être transportés. Ces deux éléments sont calorifugés et la colonne est chauffée pendant les essais à 150 °C afin d'éviter les dépôts de suies par thermophorèse. La colonne est surmontée d'une hotte et est dotée de plusieurs piquages afin de prélever des quantités significatives de suies et de relier les appareils métrologiques effectuant l'analyse de l'aérosol [12]. Le débit de gaz comburant acheminé dans la chambre de combustion (de 0,03 m³ de volume) est égal à 180 NL.min⁻¹. Le temps de résidence est quant à lui de l'ordre de la dizaine de secondes, ce qui correspond à un taux de renouvellement de 400 h⁻¹. Pour notre étude, un seul piquage sera utilisé, à travers lequel les aérosols sont acheminés jusqu'au capteur.

Les contrôleurs de débits BROOKS (modèle 5853S) sont pilotés par le logiciel de l'installation PARIS et assurent l'apport du gaz comburant et permettent de fixer les débits d'air injectés. Dans notre application, nous injectons de l'azote à un instant donné afin de conduire à l'extinction prématurée de la flamme.

Nous commençons l'essai par introduire l'échantillon dans la chambre de combustion. L'échantillon est donc posé sur le porte échantillon raccordé à la cellule de pesée préalablement tarée. L'enregistrement des données est synchronisé avec l'allumage. Cet allumage est effectué au moyen d'un chalumeau. Lorsque l'essai est effectué à une teneur inférieure à 21% en dioxygène, les débits de diazote et d'air sont ajustés après l'allumage. Afin de faciliter le traitement des données, le même repère temporel est utilisé pour un même essai (allumage, lancement des enregistrements, réglages des débits) [12].

III.1.3.2 *Protocole expérimental*

Au cours de cette thèse, deux bancs expérimentaux inspirés de celui de Grondin [73] et de Lintis [12] ont été élaborés.

Ils permettent, en outre, la génération et le dépôt des suies sur le capteur résistif ainsi que l'acquisition du signal de conductance et la caractérisation des particules de suies :

- Le premier banc permet la génération des particules de suies grâce au brûleur Mini-CAST décrit en figure 81. A la sortie du Mini-CAST, la concentration en particules est de l'ordre de 2.10⁷ part.cm⁻³ et la température est de 70 °C. L'aérosol est ensuite conduit à travers un tube en verre vers un four tubulaire régulé à 360 °C ce qui permet d'obtenir à sa sortie une température des gaz de 150 °C (la température moyenne des parois lors d'un incendie). L'aérosol se dépose, par la suite, sur le capteur de suies introduit à travers un piquage sur le tube en verre. A l'extrémité du tube en verre sont raccordés deux systèmes de dilution VKL 10 (Palas GmbH, Karlsruhe, Germany) (Annexe A.1). L'aérosol est ainsi dilué 100 fois par de l'air comprimé, filtré et séché en utilisant un déshumificateur afin d'éviter la condensation de l'humidité présente dans les gaz de combustion lors du refroidissement de ceux-ci. L'aérosol est alors caractérisé par un Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS, TSI, Shoreview, MN, USA) (Annexe A.2) afin de mesurer la granulométrie de l'aérosol. Le SMPS est constitué d'un classifieur Differential Mobility Analyser (DMA 3081, TSI, Shoreview, MN, USA) qui est couplé avec un compteur de particules : Condensation Particle Counter (CPC 3776, TSI, Shoreview, MN, USA). Les mesures des distributions granulométriques avec un diamètre variant de 17,2 à 562,3 nm sont réalisées toutes les 140 s. Les principes de fonctionnement des diluteurs VKL et de l'analyseur SMPS sont rappelés dans l'annexe A.
- Le deuxième banc diffère du premier par le système de génération des particules assurée par l'installation PARIS (détaillé en figure 82). L'instrumentation utilisée en aval de PARIS est la même que celle à la sortie du Mini-CAST et est décrite dans le paragraphe ci-dessus. La température à la sortie de la colonne est aux alentours de 140 °C. Afin d'obtenir une température de gaz autour de 150 °C à la sortie du four tubulaire, ce dernier est régulé à une température de 360 °C.

Outre l'étalonnage du capteur résistif avec les deux types de suies décrites précédemment, ces deux bancs expérimentaux ont permis d'étudier l'influence de la tension de polarisation sur l'évolution temporelle de la conductance mesurée entre les électrodes ainsi que sur la masse de suies déposée. L'objectif dans ce dernier cas, est de s'assurer que la tension de polarisation n'influe pas sur la dynamique de dépôt des suies. Nous représentons les deux bancs d'essai dans la (figure 83), où seule la source de génération diffère (Mini-CAST ou le banc PARIS).

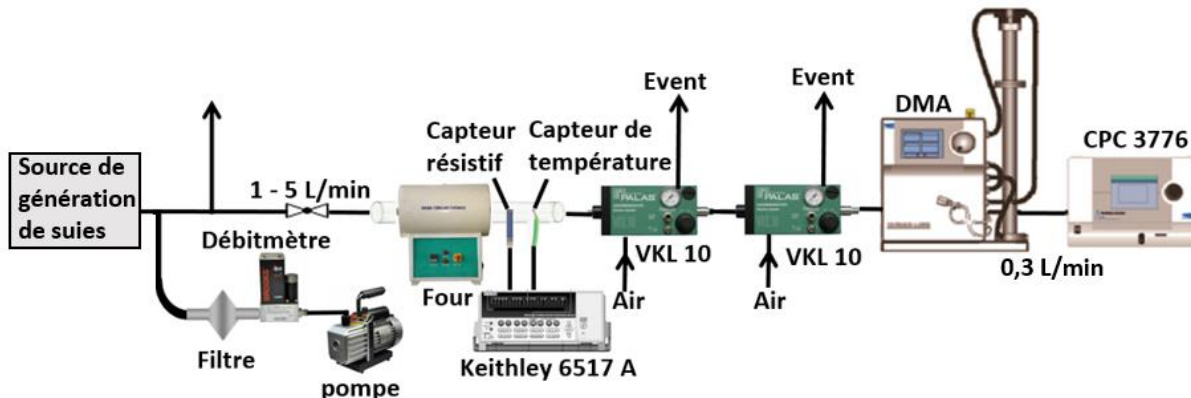


Figure 83 : Schéma général du banc d'essai

Afin de choisir l'orientation du capteur dans le flux, une étude de l'orientation du capteur a été réalisée afin de déterminer son influence sur la réponse obtenue. Le capteur a ainsi été testé dans 3 positions extrêmes : parallèle au flux, dos au flux et face au flux (figure 84).

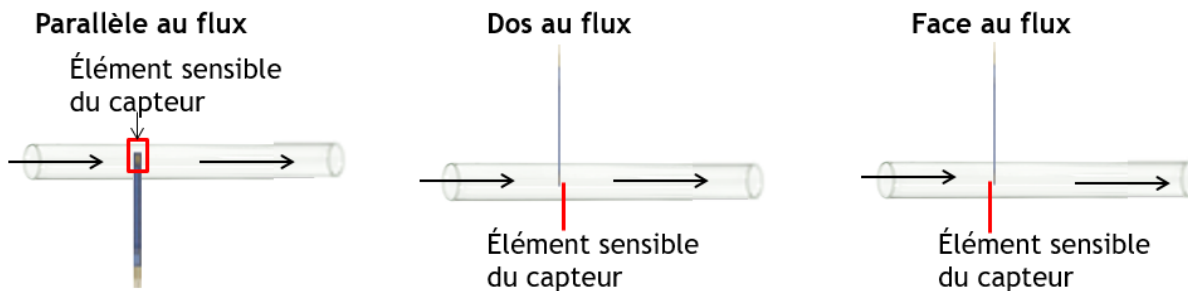


Figure 84 : Différentes configurations du capteur dans le flux

Pour notre application, il est indispensable que la polarisation n'influe pas la masse de suies déposée, nous avons donc fait le choix d'acquérir les signaux à la plus faible tension de polarisation (10 V) testée par Grondin [73].

La figure 85 montre la réponse du capteur à 10 V de tension de polarisation selon la configuration du capteur dans le flux.

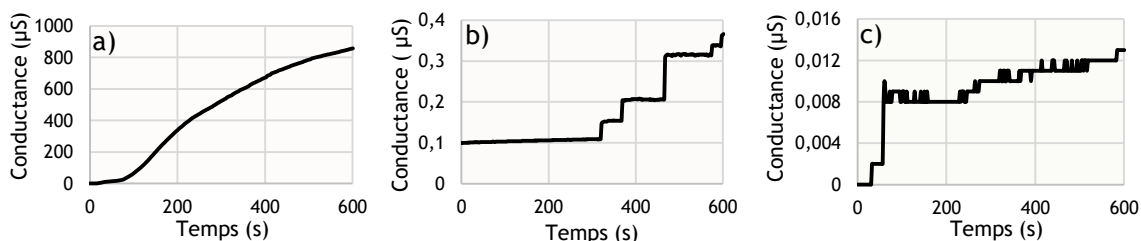


Figure 85 : Réponse du capteur a) parallèle au flux, b) dos au flux et c) face au flux

En comparant les signaux obtenus pour les différentes positions du capteur, on remarque qu'au bout de 600 s lorsque le capteur est orienté parallèlement au flux, la conductance mesurée par le capteur augmente sensiblement plus vite que pour les autres orientations. Lorsque le capteur est face ou dos au flux, les réponses présentent des conductances n'évoluant pas de manière continue. De plus, le niveau de conductance atteint après 600 s d'exposition à l'aérosol n'est que de 0,4 ou 0,014 μS , contre 820 μS dans le cas d'une orientation parallèle au flux. Ces résultats diffèrent de ceux obtenus par Grondin [73] pour les trois orientations. Ces différences pourraient résulter de la tension de polarisation beaucoup plus importante utilisée par Grondin (60 V) pour ces essais d'orientation. Nous avons donc choisi une orientation parallèle au flux pour la suite des essais qui convient mieux à l'application finale du capteur : la quantification du dépôt sur les parois d'un local lors d'un incendie.

III.1.3.3 Granulométrie des suies produites par le Mini-CAST et par le TBP/TPH

a) Suies produites par le Mini-CAST

La concentration des particules produites étant l'un des paramètres influençant la réponse électrique du capteur résistif [73], nous avons donc caractérisé la granulométrie et la concentration des suies avec un granulomètre de type SMPS.

Au cours de ces tests, la concentration en nombre et le diamètre de mobilité médian ont également été mesurés et se sont révélés relativement stables dans le temps. La moyenne du diamètre médian de mobilité électrique des particules est égal à 197 ± 6 nm avec une moyenne pour l'écart-type géométrique de $1,6 \pm 0,1$ tandis que la concentration moyenne en nombre au voisinage du capteur était égale à $1,93 \cdot 10^7 \pm 12\%$ ($\# \cdot \text{cm}^{-3}$) (à noter que cette concentration a été corrigée d'un facteur de dilution de 100).

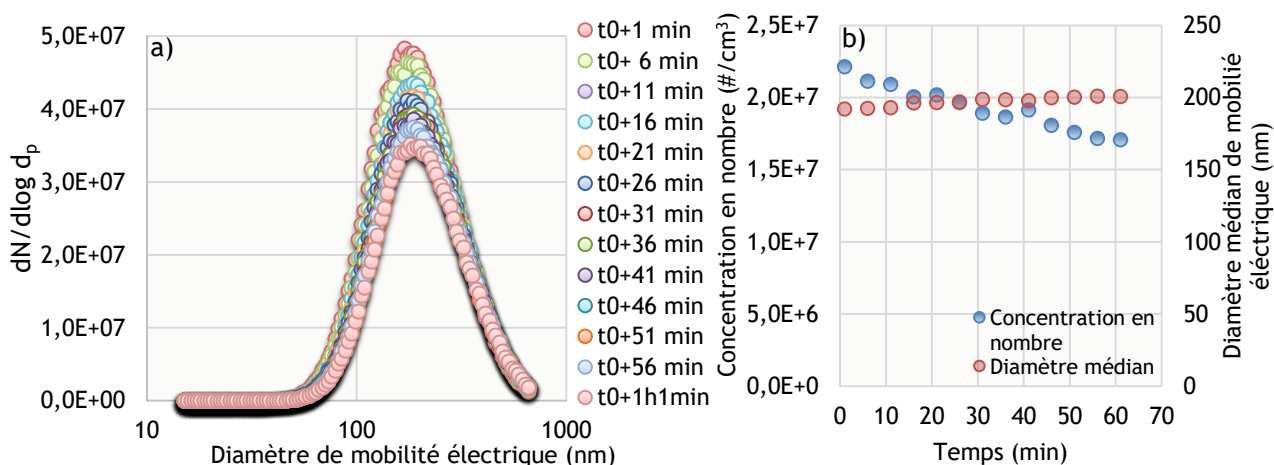


Figure 86 : a) Distributions granulométriques en termes de diamètre de mobilité électrique pour les suies produites par le Mini-CAST b) Evolution de la concentration en nombre et du diamètre médian de mobilité électrique au cours du temps

b) Suies produites par le TBP/TPH

A la différence des suies produites par le brûleur Mini-CAST, la granulométrie des suies auxquelles le capteur est exposé lors de la combustion de la nappe de solvant évolue au cours du temps (figure 87). La distribution est tout d'abord bimodale (induite par la phase de l'allumage) avant de devenir monomodale 3 minutes après l'allumage. Entre 3 et 18 min les suies produites possèdent les caractéristiques suivantes : une concentration en nombre égale à $1,77 \cdot 10^7 \pm 12\%$ ($\# \cdot \text{cm}^{-3}$), et des valeurs moyennes du diamètre médian de mobilité électrique de 216 ± 15 nm et de l'écart-type géométrique de $1,5 \pm 0,1$. Ces particules présentent une granulométrie et une concentration proches de celles produites par le Mini-CAST même si leur composition chimique s'avère plus complexe.

La dégradation du TBP ne commence que 21 min après l'allumage et donne lieu à une granulométrie présentant un mode de 174 nm juste avant l'extinction du foyer. Nous procédons à la régénération du capteur après l'extinction de la flamme ($t_0 + 27$ min), ce qui se traduit par un effet très marqué avec une granulométrie centrée à 35 nm et associée à cette phase de combustion du dépôt de suies sur la face sensible du capteur.

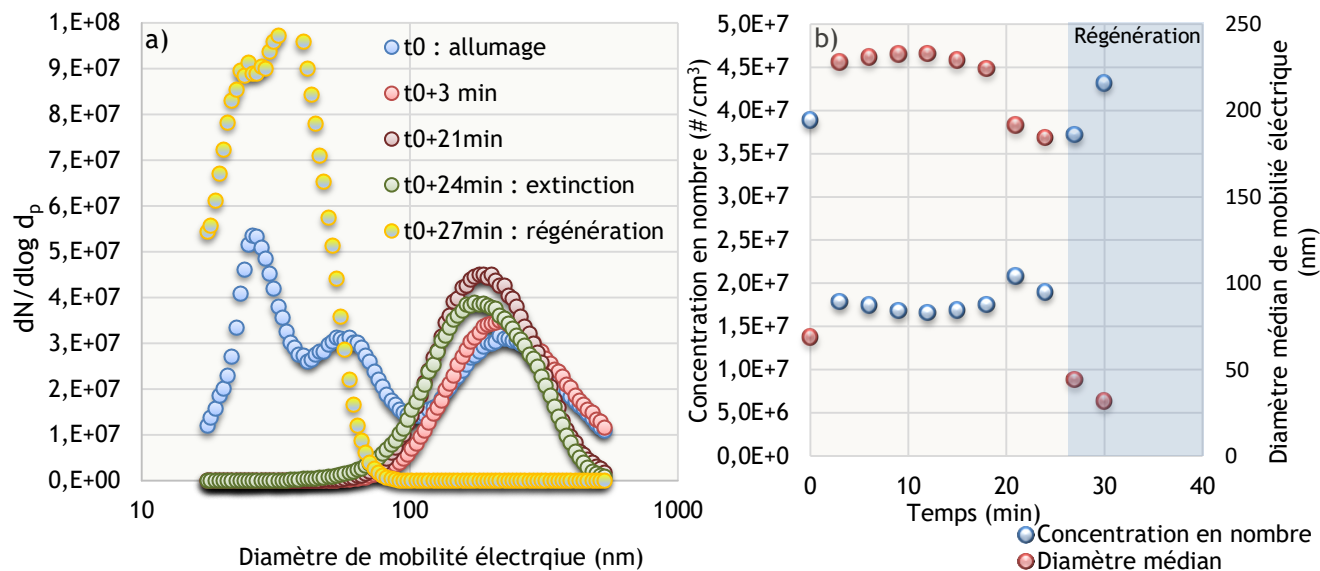


Figure 87 : a) Distributions granulométriques en termes de diamètre de mobilité électrique pour des suies produites par la combustion du TBP/TPH, b) Evolution de la concentration en nombre et du diamètre médian de mobilité électrique au cours du temps

III.2 METHODE DE MESURE 1 : CONDUCTANCE ELECTRIQUE

Le but de cette partie est de développer une méthodologie permettant d'étalonner le capteur résistif aussi bien pour les suies issues du CAST que pour les suies issues de la combustion du TBP/TPH. A ce titre :

- L'évolution de la conductance (grandeur mesurée) en fonction du temps d'exposition du capteur aux suies sera étudiée expérimentalement en fonction de la tension de polarisation appliquée.

En outre, des modèles de percolation et de croissance dendritique seront proposés pour expliquer les différentes dynamiques d'évolution de la conductance en fonction de la tension de polarisation. Enfin, une limite asymptotique de l'évolution temporelle de la conductance en fonction de l'épaisseur sera proposée. Nous verrons que cette limite asymptotique pourrait être due à la combustion par effet Joule.

- L'évolution temporelle de la masse déposée sur le capteur (mesurande) sera déduite à partir d'analyses thermo-optiques (OC/EC).

A partir de ces données, les courbes d'étalonnage $G=f(m)$ (où « G » est la conductance du capteur et m la masse de suies présente au même moment sur le capteur) seront établies et discutées pour les deux types de suies.

III.2.1 Réponse électrique du capteur résistif

III.2.1.1 *Eléments théoriques liés au signal de conductance du capteur*

Préalablement à l'étude expérimentale des signaux de conductance du capteur résistif, il nous a paru essentiel de s'intéresser à deux phénomènes primordiaux pour l'analyse de la réponse du capteur :

- la percolation qui permettra d'appréhender la réponse du capteur résistif pour les premiers instants d'exposition aux suies (temps courts).
- le comportement asymptotique géométrique qui peut apporter des éléments d'explication relatifs à l'évolution du signal de conductance pour de longues durées d'exposition.

III.2.1.1.1 *Modélisation de la percolation du capteur*

L'aspect théorique du mode de dépôt dendritique a déjà été développé dans des travaux antérieurs [73], [86], il n'en est pas de même pour le mode dit de percolation qui sera traité dans ce paragraphe.

a) Notions théoriques :

Broadbent et Hammersley [180] ont introduit pour la première fois, lors de leur étude de l'écoulement d'un fluide dans un milieu poreux, le terme de percolation. La théorie développée, prend en compte des considérations statistiques pour caractériser un chemin « connectant » ou « percolant » qui se forme entre des objets initialement non-connectés.

La transition entre le régime « non percolant » et le régime « percolant » est repérée lorsque le paramètre décrivant la « connectivité » prend une valeur critique, définissant ainsi le seuil de percolation. On définit le « temps de percolation » comme étant le temps à partir duquel le « seuil de percolation » est franchi. Ainsi, en franchissant ce seuil les propriétés du système changent brusquement et la « connectivité » (pilotant, dans notre cas, la conductance) passe de très faible, voire nulle, à une croissance continue. Cette théorie est désormais appliquée dans plusieurs domaines : les transitions para-ferromagnétique dans les alliages magnétiques dilués [181], métal-supraconducteur [182] ou encore l'étude de la conductivité électrique d'un milieu formé d'un mélange aléatoire d'éléments isolants et conducteurs [183]. C'est en particulier à cette dernière transition que l'on s'intéressera dans cette étude en réalisant un parallèle avec les matériaux composites.

Par analogie, et ce pour notre application, le paramètre prépondérant régissant le comportement des nano-composites conducteurs est la variation de conductivité électrique en fonction de la concentration des particules (masse déposée). Ainsi, pour une certaine masse critique, une augmentation significative de la conductivité électrique (ou de la conductance) du système se produit et peut être expliquée par la théorie de la percolation.

Dans notre travail, nous allons utiliser la même logique pour expliquer l'évolution de la conductance, induite par le dépôt des particules de suies sur le capteur résistif, dès lors que ce dépôt est réalisé de manière aléatoire et non pas selon un régime induit par une force extérieure, comme une force électrostatique.

Plusieurs modèles de percolation ont été développés pour décrire ce phénomène [184]. Parmi les méthodes utilisées pour la simulation du phénomène de percolation, la méthode de Monte Carlo a donné des résultats satisfaisants car elle est associée à la génération de données numériques aléatoires pour obtenir des valeurs déterministes difficiles à définir [185], [186].

L'évaluation du « seuil de percolation » des systèmes simulés consiste à générer aléatoirement une fraction d'éléments définis comme des particules conductrices dans une matrice isolante de taille fixée. Cette procédure est dérivée de la théorie de la percolation classique [187] et conduit à une valeur théorique du « seuil de percolation » de la concentration en particules conductrices.

Le cas le plus simple concerne des particules sphériques conductrices déposées en monocouche entre 2 électrodes sur un substrat isolant. Le nombre sans dimension C_p , appelé « coefficient de

percolation », est défini comme étant le « taux de couverture » d en monocouche lorsque la percolation a lieu, c'est-à-dire quand le premier chemin conducteur est créé.

Pour N particules conductrices carrées ou sphériques de taille h aléatoirement déposées sur un substrat isolant de dimensions $L \times L$ (figure 88), le « taux de couverture » d (le rapport du nombre de particules réellement déposées sur le nombre de particules maximum composant une monocouche) peut s'écrire comme :

$$d = \frac{N}{\left(\frac{L}{h}\right)^2}, \quad (56)$$

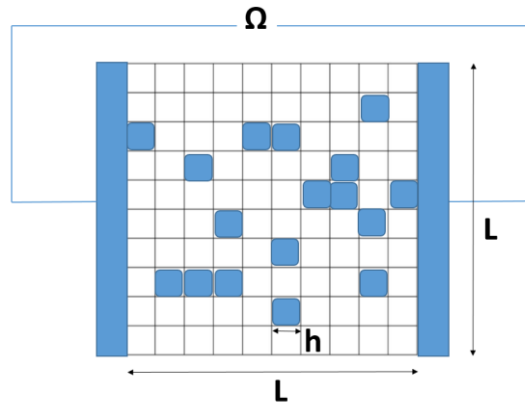


Figure 88: Schéma simplifié du taux de couverture

Dans le cas d'une monocouche complète composée de particules carrées et formée sur une surface de $L \times L$, $d=1$.

Le nombre de particules déposées augmente linéairement avec le temps sous l'action du flux de particules incident :

$$N = F_N \cdot t \cdot L^2, \quad (57)$$

avec F_N le flux de particules exprimé en nombre ($\#.m^{-2}.s^{-1}$) défini par :

$$F_N = C_N \cdot v, \quad (58)$$

avec C_N : la concentration en nombre de particules dans l'aérosol (en $\#.m^{-3}$) et v la vitesse des particules se déposant sur la surface (en $m.s^{-1}$).

Le « coefficient de percolation » C_p est égal au taux de couverture associé au phénomène de percolation. Il est égal à (en combinant (56) et (57)) :

$$C_p = F_N \cdot t_p \cdot h^2, \quad (59)$$

avec t_p le « temps de percolation » qui, en combinant les équations (58) et (59), est défini selon l'équation (60) :

$$t_p = \frac{C_p}{h^2 F_N} = \frac{C_p}{h^2 C_N v}, \quad (60)$$

La théorie et la modélisation montrent alors que la couche conduit (ou « percole ») dès que le « coefficient de percolation » C_p atteint une valeur comprise entre 0,6 à 0,8 (soit 60 à 80 %) [188].

Néanmoins, dès que les particules ne sont plus carrées ou sphériques, le « coefficient de percolation » va être affecté. Ainsi, selon Da Silva Leite Coelho et al. [189], pour les agrégats de particules primaires de suies ayant une morphologie fractale (ce qui est le cas pour nos suies), un facteur correctif α doit être appliqué au « coefficient de percolation » généralement associé à une forme de particules simplifiées (sphérique ou carrée). Dans le cas de particules de morphologie fractale, la probabilité qu'un « chemin préférentiel », inhérent à la théorie de la percolation, soit formé est plus élevée que pour des particules sphériques. Dans ce cas, le facteur correctif α permet de prendre en compte cette spécificité morphologique et vient donc « diminuer » le « coefficient de percolation ». De même, la morphologie fractale des suies induira une modification du coefficient de percolation. Dans notre cas et pour des valeurs de α comprises entre 5 et 10, le « coefficient de percolation » C_p estimé numériquement par Da Silva Leite Coelho et al. [189] serait compris entre 35 et 45 %. Ce sont ces valeurs qui seront considérées dans le paragraphe suivant.

b) Application du modèle au temps de percolation obtenus expérimentalement

Nous nous proposons de vérifier si la valeur du « temps de percolation » déterminée pour la réponse du capteur à 0,1 V (la tension la plus proche du régime de percolation pure comme nous le verrons dans la partie III.2.1.2) vérifie la théorie de la percolation présentée précédemment.

Nous considérons les paramètres moyens suivants pour notre écoulement et pour le capteur :

- une concentration en nombre de particules dans l'aérosol C_N égale à $1,9 \cdot 10^{13}$ ($\# \cdot m^{-3}$) mesurée par le SMPS,
- un diamètre géométrique des agrégats : $D_{geo} = 200$ nm,
- un « coefficient de percolation » compris entre 0,35 et 0,45 [189].
- Une vitesse v des suies se déposant sur la surface calculée dans l'équation :

$$v = \frac{F_d}{C_a}, \quad (61)$$

avec F_d le flux de dépôt massique ($mg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$) et C_a la concentration massique des aérosols ($mg \cdot m^{-3}$).

Afin de mesurer la concentration massique, nous avons effectué des prélèvements sur filtre. Les filtres en quartz (Membranes Quartz 2500 QAT - UP) d'un diamètre de 37 mm sont placés dans un porte filtre en acier inoxydable.

Ce porte filtre est isolé de la ligne de prélèvement par une vanne manuelle qui permet l'installation et le retrait du filtre lors des expériences. Un débitmètre Brooks® est connecté entre le porte-filtre et la pompe pour la régulation du débit d'air. Ce débit d'échantillonnage est fixé à $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$.

La concentration massique C_a en aérosol dans le banc dans les conditions standards ($T_s = 20^\circ \text{C}$ et $P_s = 1013 \text{ hPa}$), s'exprime grâce à la relation :

$$C_a = \frac{\Delta m}{V_s} = \frac{\Delta m}{10^{-3} \cdot t \cdot Q_s}, \quad (62)$$

avec Δm la masse nette d'aérosols prélevés (mg), V_s le volume prélevé ramené aux conditions standards (m^3 à 20°C et 1013 hPa), Q_s le débit de prélèvement dans les conditions standards ($L \cdot \text{min}^{-1}$ à 20°C et 1013 hPa) et t la durée de prélèvement (min). Celle-ci est égale après 30 min de prélèvement à $83,3 \text{ mg} \cdot m^{-3}$.

Le flux de dépôt est calculé à partir de masse déposée sur le capteur après 30 min d'exposition par analyse OC/EC (cf. partie III.2.3). Celui-ci est égal à $0,55 \text{ mg} \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$.

Finalement, la vitesse des particules se déposant sur la surface obtenue est $v = 6,6 \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot s^{-1}$, valeur en accord avec celles reportées (entre 16 et $19 \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot s^{-1}$) par Brugière et al. [174] pour un dépôt imposé par thermophorèse au sein d'un gradient très significatif de température ($50 \text{ K} \cdot m^{-1}$).

En prenant en considération ces données ainsi que l'équation (60) définie dans le paragraphe précédent, un ordre de grandeur modélisé du temps de percolation « t_p » compris entre 69 et 90 s a été obtenu. Cette valeur du temps de percolation modélisé reste sous-estimée mais assez proche de la valeur $t = 400$ s obtenue pour le temps pour lequel un saut de conductance est observé comme nous verrons dans la partie III.2.1.2.

III.2.1.1.2 Comportement asymptotique géométrique

Grondin [73] a observé lors de ses essais à 60 V de polarisation, une limite asymptotique expliquée par un état d'équilibre de construction et de destruction de ponts par effet Joule.

Si cette limite n'est pas atteinte, notamment en raison d'une tension de polarisation faible, ce qui est généralement le cas dans nos expériences, il existe une limite asymptotique de la conductance liée à des considérations géométriques.

Ainsi, pour des temps d'exposition suffisamment longs, une limite asymptotique géométrique sera atteinte lorsque la couche de suie atteint une épaisseur grande devant l'espace inter-électrodes.

Afin d'évaluer théoriquement l'épaisseur de la couche de dépôt permettant d'atteindre une limite asymptotique géométrique, nous avons réalisé des simulations de conductance d'une couche compacte (électrodes minces épaisses ou) par éléments finis en utilisant la Toolbox « Partial Differential Equations » de Matlab.

Une conductivité arbitraire $\sigma = 1 \text{ S.m}^{-1}$ et des épaisseurs de couche de dépôt variables de 0 à 300 μm ont été utilisées, pour un espace inter-électrodes de 20 μm . La modélisation est réalisée en 2D et pour une longueur d'électrode unitaire de 1 m.

Le problème le plus simple consiste à modéliser une électrode mince "affleurante" (figure 89 a). Dans ce cas, le substrat sépare les électrodes.

Dans un second temps, et pour représenter plus fidèlement la face sensible du capteur, une électrode épaisse « non-affleurante » (figure 89 b) d'une épaisseur de 20 μm a été modélisée avec un espace inter-électrodes de 20 μm également. Le maillage utilisé est triangulaire avec une taille de maille comprise entre 1 et 2 μm . Au niveau des conditions limites, une isolation électrique a été imposée sur les surfaces extérieures du système et un potentiel de respectivement un volt et zéro volt a été appliqué sur les faces latérales des électrodes.

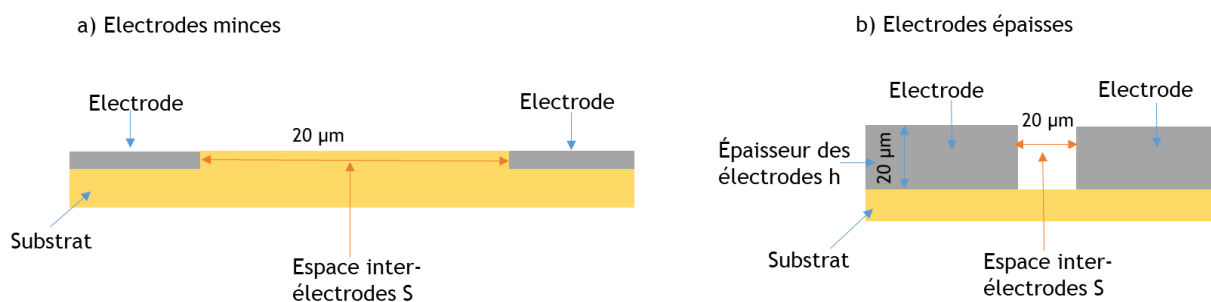


Figure 89: Géométrie a) des électrodes minces « affleurantes » et b) des électrodes épaisses « non-affleurantes »

Nous avons ainsi modélisé la densité de courant passant à travers le dépôt sur les électrodes et dans l'espace inter-électrode. Les figure 90 b haut et bas montrent respectivement cette évolution avant et après comblement de cet espace inter-électrode par le dépôt.

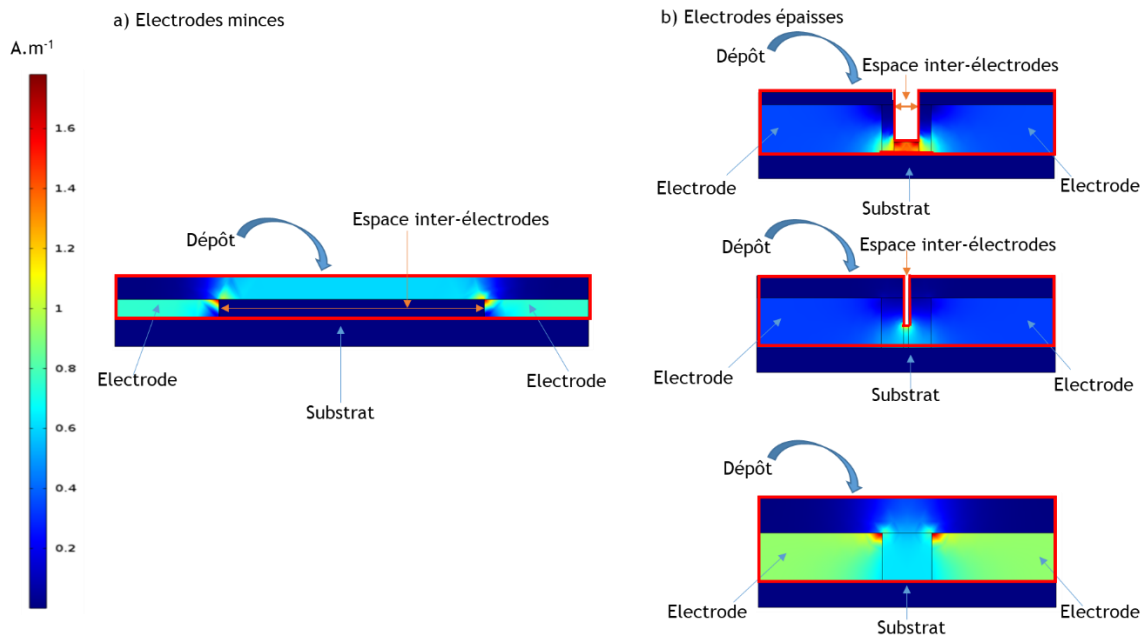


Figure 90: Evolution de la densité de courant au niveau a) des électrodes minces et b) des électrodes épaisses en fonction du dépôt formé (sur et au-dessus des électrodes)

La conductance linéique (estimée ici pour une longueur d'électrode unitaire) a été calculée en intégrant la densité de courant sur la face latérale de l'électrode et en divisant par la tension de polarisation.

La figure 91 montre l'évolution de la conductance linéique en fonction de l'épaisseur de la couche. Pour les électrodes épaisses, il se constitue un « effet canyon » juste avant le comblement de l'espace inter-électrodes par le dépôt (cas illustré sur la figure 90 b milieu), marqué par une discontinuité de la conductance. Il faut noter néanmoins que cette évolution de la conductance linéique dépend de la façon dont l'espace inter-électrodes se comble.

La différence des conductances linéiques asymptotiques ΔG_A correspond à la conductance des suies accumulées dans l'espace inter-électrodes uniquement. Elle s'écrit selon l'équation (63):

$$\Delta G_A = \sigma \cdot \frac{h}{S}, \quad (63)$$

Lorsque le comportement asymptotique est atteint, la différence entre les conductances linéiques asymptotiques pour les électrodes « épaisses » et « minces » est égale à $\Delta G_A = 1 \text{ S.m}^{-1}$ (figure 91) car h (l'épaisseur des électrodes) et S (la largeur de l'espace inter-électrodes) sont égales respectivement à $20 \mu\text{m}$.

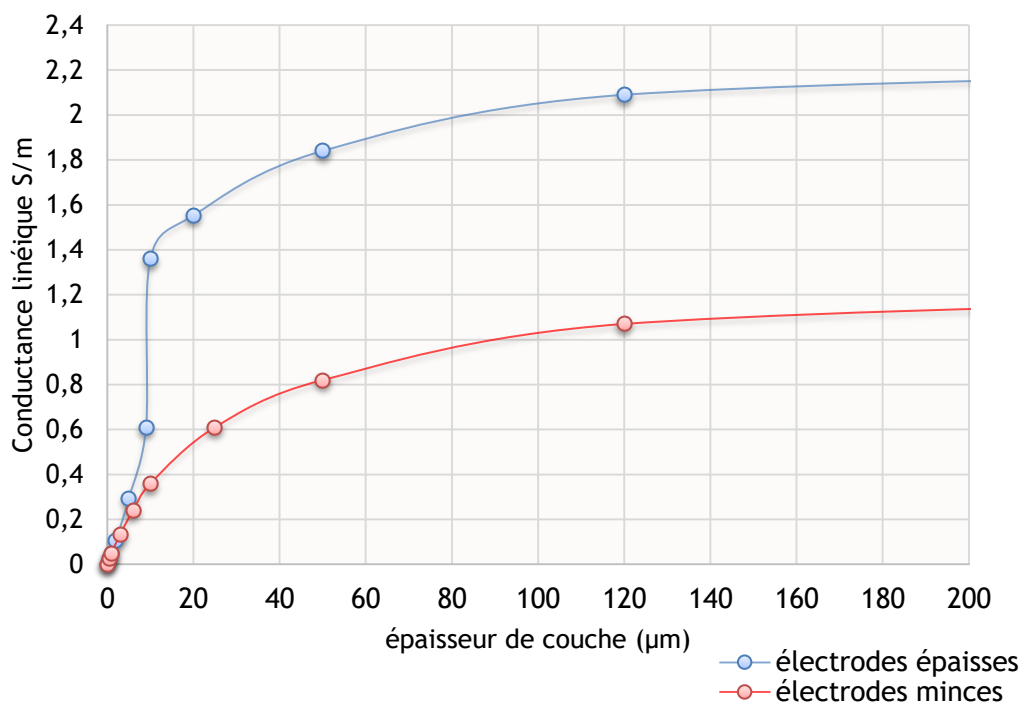


Figure 91: Evolution de la conductance linéique en fonction de l'épaisseur de la couche pour des électrodes minces et épaisses pour une épaisseur et un espace inter-électrodes de 20 μm

Le principal élément à retenir de cette étude est que dans le cas des électrodes « minces » comme dans celui des électrodes « épaisses », une asymptote à 95% est atteinte par la conductance linéique lorsque l'épaisseur de couche de dépôt formé est égale à environ 6 fois la largeur inter-électrodes (ici égale à 20 μm), et donc que tant qu'une asymptote n'est pas atteinte, l'épaisseur de la couche est forcément inférieure à cette valeur limite. Ce comportement asymptotique du capteur est donc potentiellement à craindre pour des situations incendies, nos expérimentations ayant mis en évidence des épaisseurs de dépôt pouvant atteindre plusieurs millimètres (cf. partie II.1.2.3).

III.2.1.2 Effet de la tension de polarisation sur la réponse en conductance du capteur résistif

Dans cette partie, la réponse du capteur a été caractérisée sous différentes tensions de polarisation afin de déterminer la tension la plus adéquate permettant d'étalonner le capteur. L'influence de la polarisation d'un capteur résistif a été étudiée dans la littérature au cours de plusieurs études [10], [73], [190]. Le travail de Grondin et al. portait sur la même technologie de capteur (avec sensiblement la même géométrie d'électrodes) et la même source de particules (Mini-CAST) que pour la présente étude. La gamme de tension appliquée par Grondin et al. variait entre 10 et 150 V, avec une sensibilité maximale pour une tension de 30 V.

Pour notre application, nous allons étudier des tensions de polarisation comprises entre 0,1 et 10 V, significativement plus faibles afin de minimiser l'effet du champ électrique sur le phénomène de collecte des particules de suies.

La conductance a ensuite été enregistrée pendant le temps d'exposition (typiquement 600 s) pour chaque tension de polarisation puis le capteur a été régénéré afin de « retrouver » la conductance intrinsèque du capteur (dont la valeur très faible est proche de 0 μS). Les tests seront menés pour des suies issues du CAST avec le point de fonctionnement PF1 décrit précédemment dans un premier temps. Ensuite, le cas des suies issues de la combustion du TBP/TPH sera considéré. A noter que la réponse du capteur, à l'inverse des suies CAST Grondin [73], n'avait pas été étudiée expérimentalement avec de telles particules.

III.2.1.2.1 Réponse électrique du capteur résistif aux suies issues du CAST

L'effet de la tension de polarisation sur la réponse du capteur résistif est présenté sur la figure 92. L'évolution de la conductance du capteur en fonction du temps y est représentée à des tensions de polarisation comprises entre 0,1 et 10 V et pour une durée d'exposition aux suies de 600 s. La figure 92 b présente de plus l'évolution de la conductance pour une durée d'exposition de 3600 s et ce pour une tension de polarisation de 0,1 V.

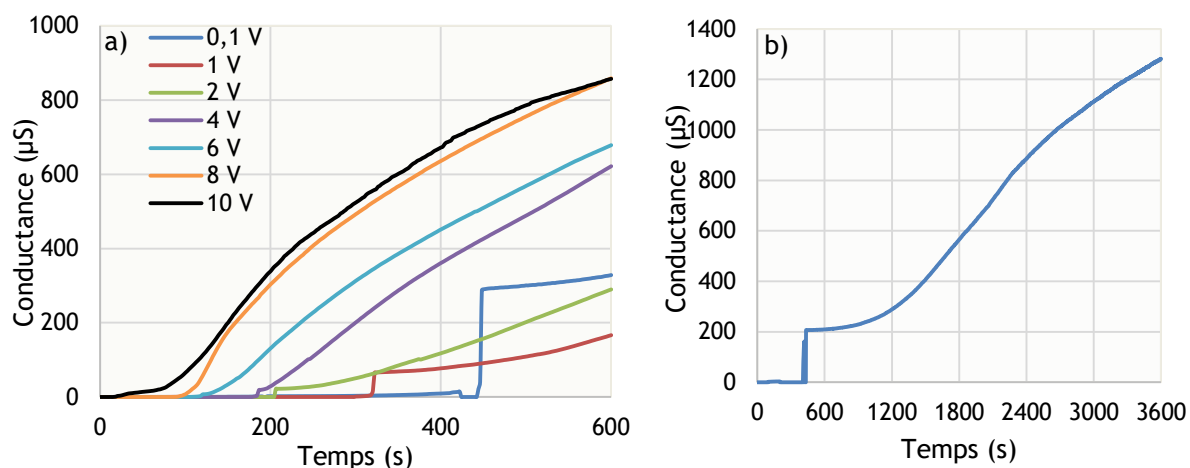


Figure 92 : Évolution de la conductance en fonction du temps d'exposition (origine prise à la fin de la phase de régénération) a) pour différentes tensions de polarisation b) à 0,1 V

Nous observons alors deux comportements très différents pour les tensions de polarisation extrêmes (0,1 et 10 V), et un comportement intermédiaire entre ces deux valeurs.

Pour des tensions de polarisation supérieures à 6 V (correspondant à un champ électrique de $300\,000\text{ V}\cdot\text{m}^{-1}$), la conductance augmente de manière continue. En accord avec les résultats de Li et al. [191] qui ont rapporté un alignement complet des particules de suies de près de 200 nm de diamètre dans un champ électrique de $600\,000\text{ V}\cdot\text{m}^{-1}$, les ponts formés entre les électrodes apparaissent très orientés selon le champ. L'intensité de ce champ électrique entre les électrodes du capteur tend ainsi à aligner les particules de suies, entraînant la croissance de plusieurs « dendrites » en parallèle et en alignement quasi parfait avec le champ électrique. Ensuite, l'augmentation continue de la conductance correspond à la croissance de telles dendrites, qui forment successivement des ponts entre les électrodes. La formation des ponts semble être répétable dans le temps et est donc régie, pour un champ électrique supérieur à $300\,000\text{ V}\cdot\text{m}^{-1}$, par le régime « dendritique ». Ce mode de formation de dépôt est illustré sur le cliché de Microscopie Electronique à Balayage (MEB) rapporté sur la figure 93 a.

Rappelons toutefois qu'en faisant un échantillonnage haute fréquence, Grondin (Grondin, 2017) a observé un premier saut de très faible amplitude (de l'ordre de $0,04\text{ }\mu\text{S}$) correspondant à la conduction du premier pont au bout d'un temps alors qualifié de « temps de percolation ».

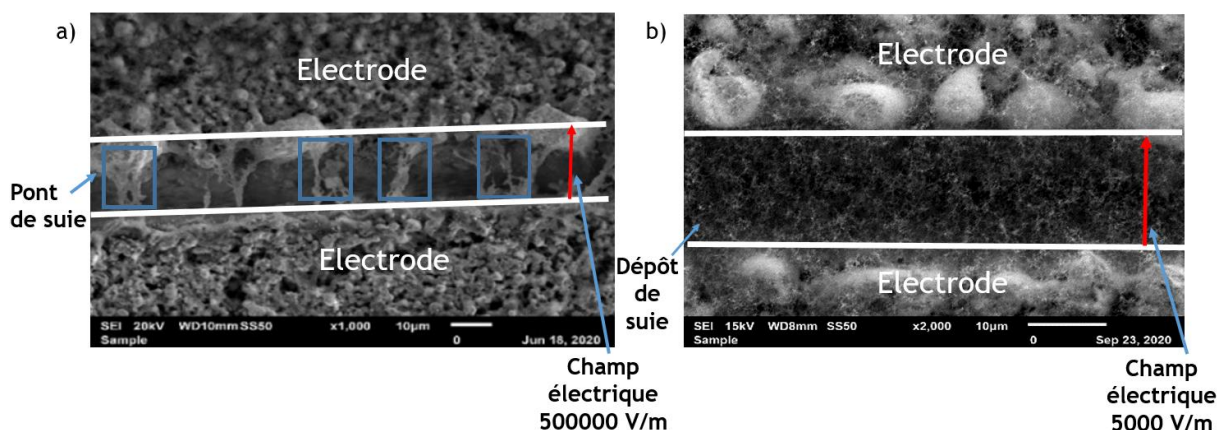


Figure 93 : Images MEB montrant après une heure d'exposition a) les ponts formés entre les électrodes à 10 V de polarisation b) le dépôt homogène formé entre les électrodes à 0,1 V

Pour une faible tension de polarisation (c'est-à-dire égale à 0,1 V dans notre cas, car un minimum de polarisation est nécessaire pour mesurer la conductance), une augmentation brusque d'une centaine de μS de la conductance est observée au bout de plus de 400 s (cf. figure 92).

Par ailleurs le cliché MEB (figure 93 b) montre, pour le dépôt de suies formé pour une faible tension de polarisation, une texture filamentaire relativement homogène, et surtout l'absence de dendrites généralement observables à plus haute tension de polarisation.

Dans ce cas, on peut supposer que les forces électrostatiques ne sont pas prédominantes et ne forcent pas les particules de suies à être alignées sous forme de « dendrites » donnant lieu à la formation de « ponts » entre les électrodes du capteur. Le dépôt de suies se produit de manière homogène et aléatoire sur la surface sensible du capteur sans formation de « ponts » de structure relativement linéaire entre les électrodes.

La création de jonctions entre les électrodes sera alors régie par un régime de percolation définie par une augmentation brutale de la conductance (comme indiqué sur la figure 92 pour 0,1 V) lorsqu'un premier chemin électrique est formé.

Pour des tensions comprises entre 0,1 V et 6 V (correspondant à un champ électrique compris entre 5000 et 300 000 $\text{V}\cdot\text{m}^{-1}$), on observe un régime « intermédiaire » toujours caractérisé par une forte augmentation de la conductance, suivie d'une évolution continue qui conduit à une courbe de forme sigmoïdale même pour une tension de polarisation de 0,1 V lorsque l'exposition du capteur est poursuivie au-delà de 600 s (figure 93 b). Le pas brusque et le temps pour atteindre ce pas, observés pour ces tensions, augmentent à mesure que la tension de polarisation diminue. Notons également que pour toutes les tensions étudiées, la conductance devient continue après l'observation de ce pas.

A titre de synthèse, l'analyse des réponses des capteurs pour différentes tensions de polarisation comprises entre 0,1 et 10 V a permis d'identifier les 3 régimes suivants :

- un régime "dendritique", pour des tensions de polarisation au-delà de 6 V, se caractérisant par une augmentation régulière et continue de la conductance après un premier saut de très faible amplitude dû à la formation du premier pont.
- un régime de "percolation pure", pour des tensions de polarisation inférieure à 0,1 V, avec un saut de percolation de grande amplitude suivi d'une augmentation continue de la conductance. Remarquons ici que nous ne sommes pas certains d'avoir rigoureusement atteint ce régime, qui par définition doit être indépendant de la tension de polarisation.
- un régime "intermédiaire" pour des tensions de polarisation comprises entre 0,1 V et 6 V avec des sauts de percolation de moins grande amplitude que ceux rapportés pour la "percolation pure", suivie d'une augmentation continue de la conductance.

A l'issue de cette étude de sensibilité de la réponse du capteur à la tension de polarisation, la répétabilité de la réponse du capteur a été caractérisée trois fois dans des conditions similaires d'exposition aux suies et pour les deux tensions de polarisation extrêmes de 0,1 V et 10 V.

Afin de quantifier la fiabilité des signaux obtenus, nous avons aussi tracé le coefficient de variation défini comme l'écart type divisé par la valeur moyenne, obtenus à partir de 3 mesures pour la même tension de polarisation. Une mesure sera considérée répétable et donc exploitable si ce coefficient de variation est inférieur à 20 %.

Les courbes (figure 94) représentent l'évolution de la conductance pour 3 essais successifs à 10 V et 0,1 V (trait plein) et le coefficient de variation (pointillé).

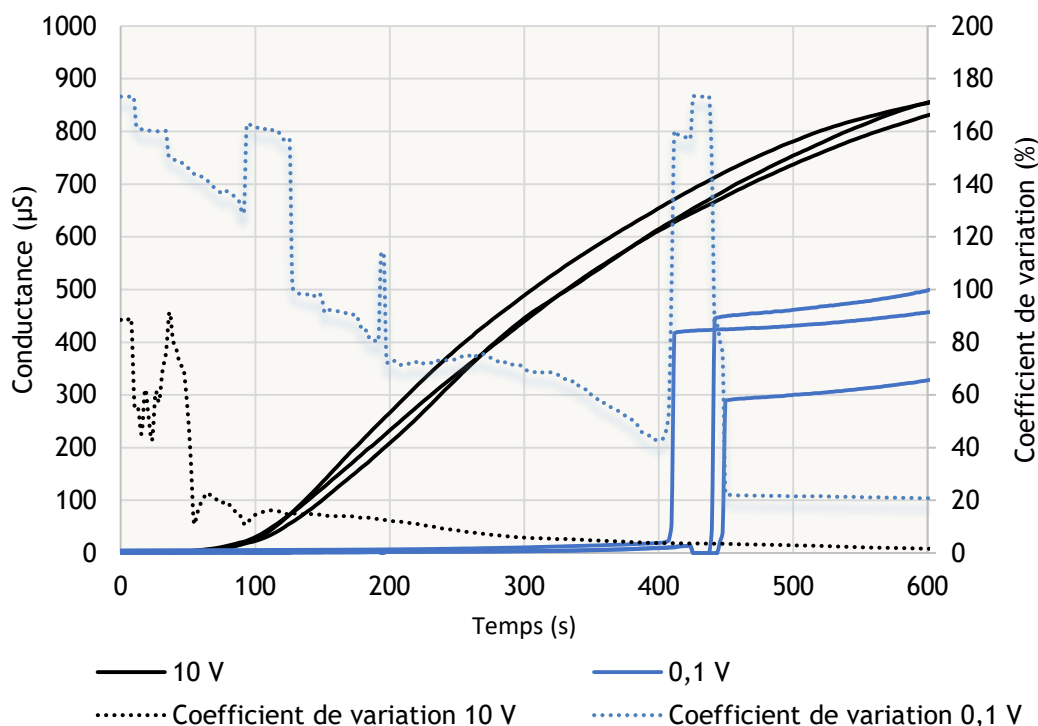


Figure 94 : Evolution de la conductance et du coefficient de variation pour deux tensions de polarisation (0,1 et 10 V)

Pour une tension de polarisation de 10 V (régime « dendritique »), le coefficient de variation est inférieur à celui de 0,1 V et atteint des valeurs basses en un temps plus court (inférieur à 20 % au bout d'environ 100 s). Pour une tension de polarisation 0,1 V (régime proche de la « percolation »), le coefficient de variation est beaucoup plus élevé et n'atteint pas des valeurs proches de 20 % avant le saut de conductance.

En conclusion, en accord avec les explications précédentes sur les 3 régimes observés, une tension plus élevée (> 6 V), correspondant au « régime dendritique », est nécessaire pour atteindre une évolution de conductance répétable et pour réduire la durée de la phase où le capteur est aveugle (durée pendant laquelle la conductance n'évolue pas de façon notable).

III.2.1.2.2 Réponse électrique du capteur résistif aux suies issues du TBP/TPH

Afin d'étudier l'effet de la tension de polarisation sur la réponse du capteur, un même capteur a été exposé aux suies dans les mêmes conditions dans le banc figure 83 mais seulement pour les deux tensions de polarisation (0,1 V et 10 V) en utilisant un volume de combustible égal à 40 mL. La conductance a alors été enregistrée juste après l'extinction de la flamme. Trois cycles d'exposition successifs ont été réalisés avec une régénération intermédiaire du capteur sans le manipuler ou le déplacer.

Les valeurs initiales de conductance de la figure 95 correspondent à celles mesurées à la fin de la phase de régénération du capteur ($25 \pm 8 \mu\text{S}$), soit un capteur exempt de toute suie entre les électrodes de mesure. On note que la flamme s'éteint vers 1600 s.

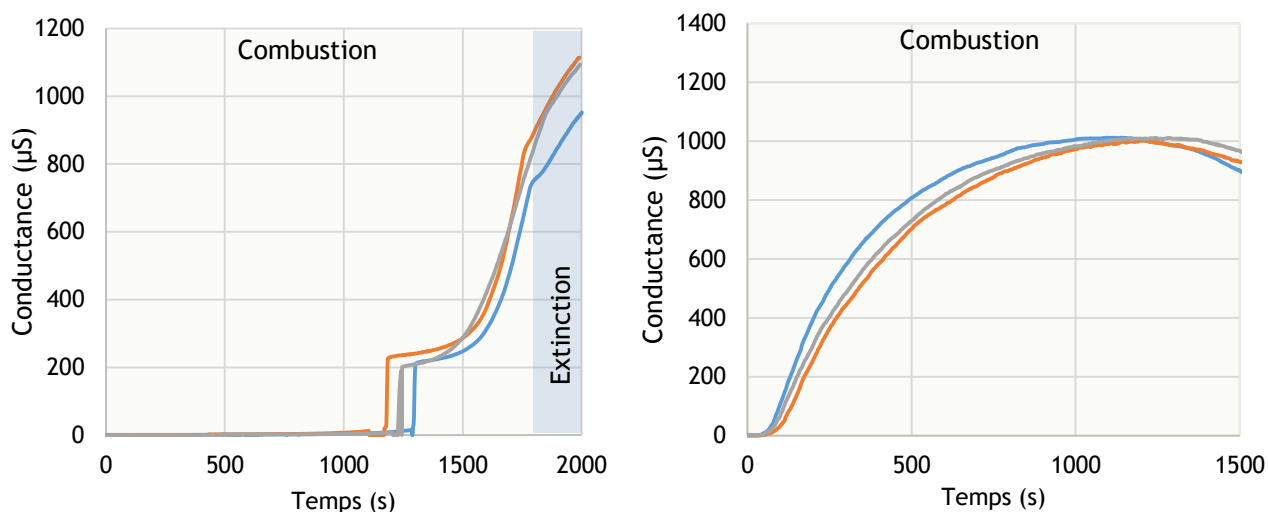


Figure 95 : Evolution de la conductance en fonction du temps d'exposition (origine prise à la fin de la phase de régénération) pour une tension de polarisation de 0,1 V (à gauche) et de 10 V (à droite) pour 3 essais successifs

A l'inverse du cas du Mini-CAST, la réponse du capteur apparaît relativement répétable pour les deux tensions étudiées.

On peut retrouver les caractéristiques des 2 régimes déjà identifiés pour le cas des suies produites par le Mini-CAST : un régime « intermédiaire » lorsque la tension de polarisation est égale à 0,1 V et un régime « dendritique » lorsque la tension est égale 10 V.

Ainsi, pour la tension de 0,1 V, on observe un palier consécutif à une augmentation brusque de la conductance déjà observée lorsque le capteur était exposé aux suies produites par le Mini-CAST. Le dépôt est alors peu structuré et la création de jonctions entre les électrodes ne se fait que par percolation après une certaine durée d'exposition. Ce palier est ensuite suivi d'une augmentation continue de la conductance.

Pour une tension de polarisation de 10 V, la conductance progresse de façon continue et sans saut brutal. Cette augmentation continue de la conductance correspond alors à la formation de ponts entre les électrodes. En revanche, pour cette tension, et à l'inverse des suies produites par le Mini-CAST, nous observons un maximum de conductance puis une diminution notable et continue de la conductance même avant l'extinction de la flamme.

Pour essayer d'expliquer cette diminution de la conductance, nous avons diminué le volume du combustible (de 40 mL à 10 mL) et nous avons suivi l'évolution du signal (figure 96) en appliquant une tension de polarisation de 10 V. Nous remarquons que le foyer s'éteint plus rapidement, conduisant à des valeurs moindres de conductance. Néanmoins, le volume du combustible n'a pas d'influence sur la forme générale de la réponse du capteur, la décroissance étant la aussi observée.

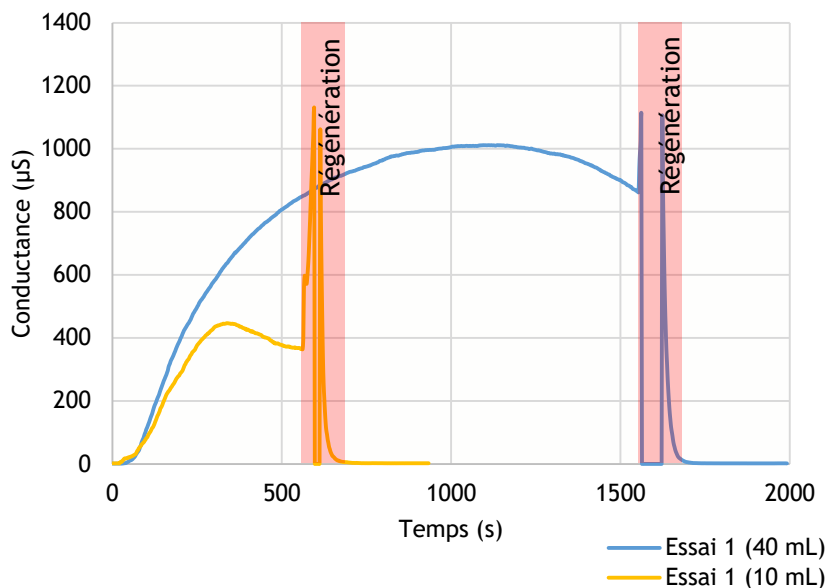


Figure 96 : Evolution de la conductance en fonction du temps d'exposition (origine prise à la fin de la phase de régénération) à une tension de polarisation de 10 V pour 2 volumes de combustible

Nous avons également suivi l'évolution de la conductance en parallèle avec celle de l'évolution de la concentration en nombre et du mode des suies de TBP/TPH du signal à 10 V de polarisation. Le maximum de conductance est ainsi atteint lorsque les suies changent de mode (diminution du diamètre modal de 200 nm à 187 nm). A l'inverse, bien qu'à 0,1 V le capteur soit soumis aux mêmes particules de suies, ce maximum et cette diminution du signal n'ont pas été observés pour cette faible tension de polarisation.

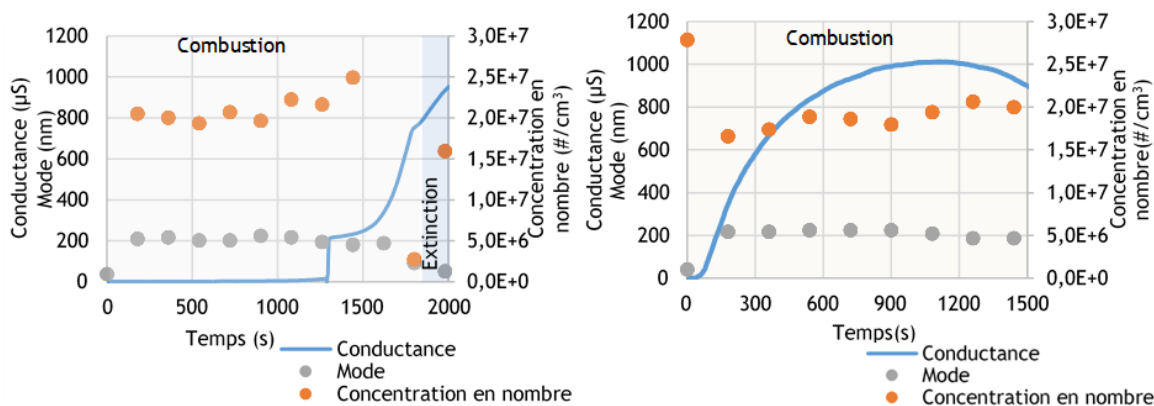


Figure 97 : Evolution de la conductance du capteur, de la concentration et du mode des suies produites en fonction du temps (0,1V à gauche, 10V à droite)

Dans l'état actuel de nos connaissances, nous ne pouvons pas encore conclure sur l'origine de cette diminution et présentons ci-dessous, l'état de nos réflexions et les hypothèses associées. La première implique une modification physico-chimique des suies induite par effet Joule à la surface du capteur et ce essentiellement pour une tension de polarisation de 10 V. Cette modification chimique entrainerait une modification de la conductivité des suies déposées tout particulièrement pour celles produites par la dégradation thermique du TBP qui ne se réalise qu'en fin de combustion. Il est ainsi connu que la dégradation du mélange TBP/TPH donne lieu à la production de suies composant de fortes teneurs en phosphore (inhérentes à la formation d'acide phosphorique lors de la

combustion du TBP [19] et présentant une plus faible conductivité du fait de la présence de cet élément inorganique non conducteur [134].

La deuxième hypothèse est une combustion des suies du fait de l'augmentation de température locale induite elle aussi par l'effet Joule. Ainsi, pour une tension de polarisation de 10 V, la puissance électrique générée par effet Joule (soit 100 mW pour 1000 μ S) est 10 000 fois plus importante qu'à 0,1V, pouvant expliquer les dynamiques de réponse du capteur très différentes entre 0,1V et 10V. Ces hypothèses sont à mettre en regard des résultats présentés dans la partie III.2.3 sur l'évolution de la masse de suies TBP/TPH déposée à 10 V au cours du temps. Cependant, aucune baisse de masse déposée n'est clairement constatée ni infirmée (au vu du bruit sur le signal) après avoir dépassé le pic de conductance. Aucune de ces deux hypothèses n'est donc écartée en l'état actuel de nos connaissances.

III.2.2 Développement et exploitation d'une méthode d'étalonnage en masse déposée du capteur résistif

Dans le but d'avoir une méthode de référence d'étalonnage en masse déposée du capteur résistif, un protocole de quantification décrit ci-après a été développé et appliqué aux suies générées par un Mini-CAST. L'idée consiste à utiliser une méthode « hors ligne » permettant de quantifier les gaz issus de la phase de régénération du capteur dans un analyseur thermo-optique afin de déterminer les masses de suies déposées sur la surface sensible du capteur.

Cette méthode nous permettra in fine de relier la masse déposée sur le capteur avec le signal de conductance de ce dernier.

Pour ce faire, le capteur est d'abord contaminé, dans les bancs dédiés à la génération, au dépôt et à la caractérisation de suies. Ces suies seront soit issues d'un Mini-Cast (sur le point de fonctionnement PF1) ou de la combustion de TBP/TPH. Comme il sera décrit dans le paragraphe suivant, le capteur est ensuite placé dans une nacelle à l'intérieur du four principal de l'analyseur OC/EC pour la détermination de la masse de carbone déposée.

III.2.2.1 Protocole de quantification

III.2.2.1.1 Principe de la quantification du carbone

Les particules de suies sont généralement définies selon deux fractions carbonées principales, le carbone organique (OC) qui est un composant semi-volatile et le carbone élémentaire (EC) qui est formé par combustion incomplète et est un composant non volatil.

Un instrument semi-continu, l'analyseur OC/EC (Sunset Laboratory), a été utilisé pour la quantification du carbone après l'exposition du capteur aux particules de suies.

Le principe général de cet analyseur est de chauffer les échantillons dans une atmosphère inerte puis oxydante. La masse de carbone émise par l'échantillon pendant ce traitement thermique est quantifiée à l'aide d'un détecteur à ionisation de flamme (FID) [154]. La figure 98 présente un thermogramme caractéristique avec en vert et rose les signaux FID utilisés pour la quantification du carbone, en bleu l'évolution de la température au niveau de l'échantillon et en rouge l'intensité du faisceau laser à travers l'échantillon.

La quantification du carbone est réalisée en trois phases :

Au cours d'une première phase, dans une atmosphère inerte d'hélium (totalement exempte d'oxygène), l'échantillon est chauffé selon quatre paliers de température pour volatiliser le carbone organique de l'échantillon. Cependant, il existe généralement des composés organiques qui sont convertis par pyrolyse en carbone élémentaire. Pour réduire la conversion pyrolytique du OC en EC, le protocole de température IMPROVE A [192] a été utilisé. Cette conversion est généralement réalisée en analysant le signal de transmission laser à travers les échantillons analysés.

La correction optique consiste à considérer que le carbone qui sera mesuré lors de la seconde phase sous oxygène, est associé à la conversion pyrolytique du OC tant que l'on n'a pas eu retour à la valeur d'origine de transmission du faisceau laser à travers l'échantillon (mesurée avant analyse thermo-optique et présentée en rouge sur la figure 98).

Tout le carbone observé après ce point (appelé split point) est de l'EC (figure 98).

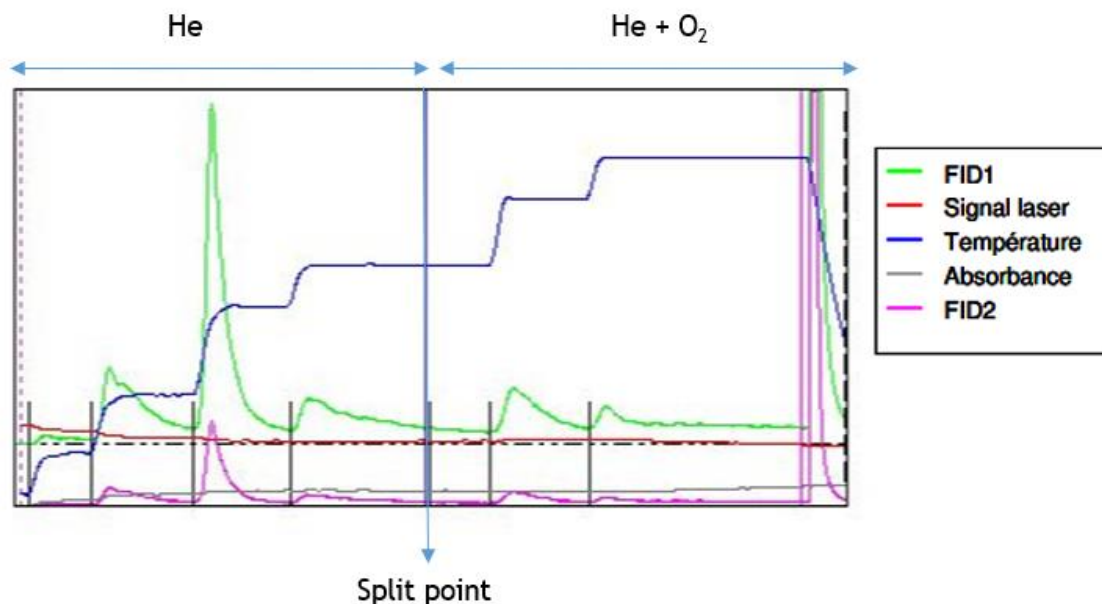


Figure 98 : Thermogramme caractéristique d'une mesure OC/EC (Sunset Laboratory)

Dans le présent cas et en raison de l'opacité du capteur, la transmittance lumineuse n'a pas été prise en compte et le temps de l'injection d'oxygène a été considérée comme « split point » entre le carbone élémentaire formé par pyrolyse du carbone organique et le carbone élémentaire initialement présent dans l'échantillon [193], [194]. Les durées de montées en température sont conditionnées entre 150 s et 580 s selon la quantité de carbone dans l'échantillon. La température augmente lorsque le signal FID revient à la ligne de base ou reste constant pendant plus que 30 s [195].

Lors d'une deuxième phase, une fois le four à échantillon refroidi à 525 °C, l'hélium pur est remplacé par un mélange d'hélium avec 2 % d'oxygène. Puis la température du four augmente par paliers jusqu'à atteindre les 850 °C et permet d'oxyder le carbone présent sous forme élémentaire.

Au fur et à mesure que les composés carbonisés sont émis, ils sont oxydés en dioxyde de carbone dans un four oxydant placé à la suite du four à échantillon. Le flux d'hélium, contenant le CO₂, se dirige alors vers un four « Méthanateur » où le CO₂ est réduit en méthane. Le méthane est ensuite détecté par un détecteur à ionisation de flamme (FID) dont les signaux sont présentés en vert et rose sur la figure 98.

Enfin, dans une troisième phase, lorsque toute la quantité de carbone a été oxydée, un volume et une concentration connus de méthane sont injectés dans le four à échantillons, permettant ainsi la calibration de chaque échantillon analysé à une quantité connue de carbone.

Les gammes de détection de l'appareil fournies par le constructeur sont les suivantes :

- OC : 0,1 à 1000 µg;
- EC : 0,1 à 20 µg;
- Limite de détection : 0,2 µg.

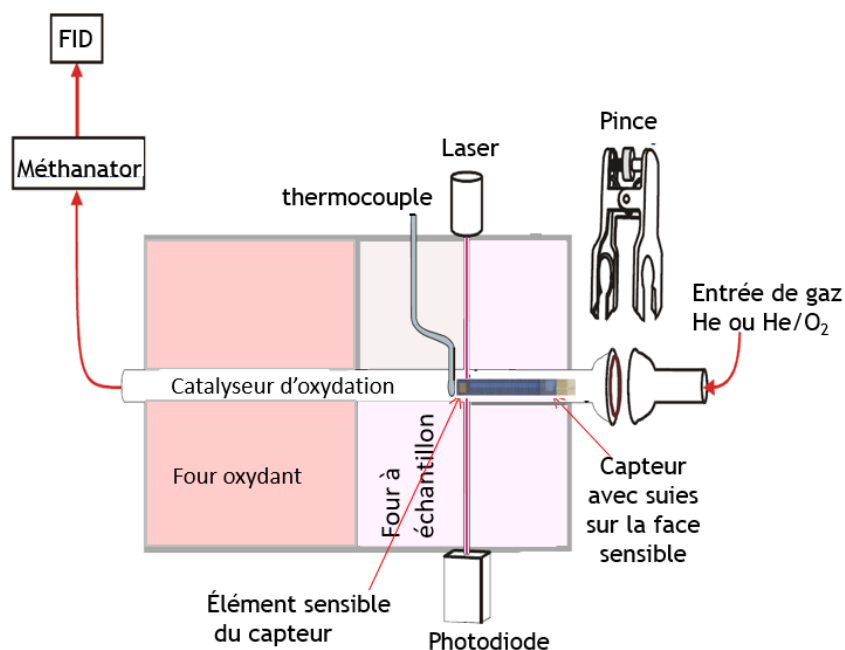


Figure 99 : Schéma de principe de l'analyseur OC/EC

Avant chaque série de mesure, l'analyseur OC/EC est étalonné avec 4 solutions étalons de saccharose de concentration allant de 0,42 à 42 μg de OC. Trois mesures ont ensuite été effectuées pour chaque solution de saccharose et les concentrations mesurées ont été vérifiées à moins de 5% des valeurs calculées.

Afin de connaître les caractéristiques intrinsèques des suies produites, des analyses thermo-optiques préalables ont été réalisées, le but étant de déterminer la proportion en OC et en EC des suies produites par le Mini-CAST en PF1 ou par combustion de TBP/TPH.

Pour ce faire, les suies sont déposées sur un filtre vierge en fibre de quartz (Pall Tissuquartz™ filters, 2500 QAT-UP, diamètre de 47 mm), préalablement calciné à 850°C pendant 1 heure.

Au préalable, afin de déterminer la contribution des filtres vierges dans le signal de l'OC/EC, un filtre a été calciné pendant une heure à 850°C, puis analysé en OC/EC.

Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau 14.

Tableau 14: Analyse de la contribution d'un filtre vierge (TC = carbone total)

Filtre vierge	OC (μg)	EC (μg)	TC (μg)
1	1,46	0	1,46
2	4,72	0	4,71
3	4,84	0	4,84

On remarque que la proportion de EC dans un filtre vierge est nulle. Le carbone total quantifié est exclusivement dû à la contribution du carbone organique issu de la contamination atmosphérique inhérente à la manipulation et au stockage de ces filtres préalablement à leur analyse.

Des prélèvements sur filtre ont ensuite été réalisés à proximité du point d'émission (afin d'être le plus représentatif possible des aérosols de combustion déposés sur le capteur lors de son exposition), à des températures proches de 100°C.

L'analyse OC/EC a confirmé que les particules de suies produites par le mini-CAST contiennent principalement du carbone élémentaire (EC / TC = $92 \pm 6\%$) en accord avec les résultats rapportés dans la littérature [112]. Cette faible teneur en OC est en accord avec l'hypothèse principale des échantillons de suies EC quasi-purs considérés dans notre processus de quantification.

De la même façon, Lintis [12] a démontré, à partir d'analyses OC/EC réalisées sur des suies de TBP/TPH produites dans les mêmes conditions que la présente étude (installation PARIS à 21 % de concentration en dioxygène) que le ratio EC/TC est égal à $96,5 \pm 2,6$ %. L'hypothèse de suies principalement composées de EC est donc elle aussi pertinente pour des suies TBP/TPH.

III.2.2.1.2 Calibrage de la mesure sur le capteur résistif de suies

Pour déterminer correctement la masse de suies déposées sur la face sensible du capteur, un protocole expérimental a été qualifié. Celui-ci comprend plusieurs étapes qui seront décrites ci-après. Lors de son exposition aux particules de suies, toute la surface du capteur (sensible et non sensible) est soumise à des dépôts de suies.

Pour mesurer correctement la masse déposée sur la surface sensible du capteur, il est nécessaire de quantifier uniquement les particules déposées sur la zone sensible du capteur ($3,5 \times 3,5$ mm²). A cet effet, la surface non sensible du capteur a été nettoyée à l'aide d'un coton-tige micropoint Chemtronics © avec un volume constant de 0,2 mL d'éthanol (éthanol absolu anhydre 99,9% de Carlo ERBA). Ensuite, il a été étuvé pendant 30 min à une température de 150°C afin d'éliminer toute contamination en carbone organique associée à l'éthanol.

De plus, la mesure de masse brute quantifiée par l'analyseur inclut également des biais qui doivent être soustraits. Pour évaluer leur influence, des analyses OC/EC ont été réalisées sur le capteur dans 3 conditions de test :

1°) Résidu : Pendant l'analyse OC/EC, le capteur est soumis à des paliers de température allant jusqu'à 850°C visant à éliminer les particules de suies de la surface du capteur. Néanmoins, on peut suspecter un biais associé aux particules de suies résiduelles même en fin d'analyse. Ce biais a été quantifié en mesurant la teneur en OC et en EC d'un capteur préalablement calciné (jusqu'à 850°C) sans le sortir de l'analyseur.

2) Résidu + pollution atmosphérique : dans cette seconde condition, le capteur est nettoyé à 850°C dans l'analyseur OC/EC, sorti de l'appareil pour reproduire sa manipulation à l'air ambiant après exposition à la suie et avant analyse, puis une mesure OC/EC est effectuée.

3) Résidu + pollution atmosphérique + contribution de l'éthanol : dans ce cas, nous avons ajouté à la deuxième condition, une phase de nettoyage à l'éthanol afin de déterminer la contribution du solvant en carbone élémentaire et organique détectés par analyse OC/EC. Le capteur est ensuite étuvé à 150°C pendant 30 min pour reproduire son protocole de préparation et des mesures OC/EC ont été effectuées.

Pour quantifier ces biais, trois mesures OC/EC ont été effectuées pour chaque condition et les valeurs moyennes sont reportées dans le tableau 15.

La masse déposée par unité de surface donnée par l'analyseur est exprimée en $\mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ tout en considérant une surface d'analyse de 1 cm², nous représentons donc en μg cette masse déposée sur la surface sensible du capteur.

Tableau 15 : Biais, en termes de masse quantifiée de EC et de OC, associés aux différentes étapes du protocole de quantification

Masse déposée (μg)	Résidu	Résidu + Pollution atmosphérique	Résidu + Pollution atmosphérique + Contribution de l'éthanol
EC	$0,23 \pm 0,02$	$0,91 \pm 0,07$	$1,45 \pm 0,05$
OC	$6,85 \pm 0,13$	$8,12 \pm 0,6$	$10,67 \pm 0,33$

Une contribution significative de carbone organique (OC) est associée au processus global (résidu + pollution atmosphérique + contribution de l'éthanol). Néanmoins, et comme mentionné précédemment, nous ne considérerons que la fraction EC puisque les suies produites par le Mini-CAST et la combustion du mélange TBP/TPH sont majoritairement composées de EC (à plus de 90 %). Nous

avons ainsi fait le choix de proposer une corrélation entre la masse du carbone élémentaire et la conductance délivrée par le capteur.

Concernant les biais associés à la quantification de la fraction élémentaire en carbone (EC), un biais moyen de $1,45 \pm 0,05 \mu\text{g}$ est rapporté pour l'ensemble du protocole d'analyse et sera soustrait de notre mesure de la masse de carbone EC mesurées pour les capteurs exposés aux suies.

III.2.2.2 Effet de la tension de polarisation sur la masse déposée

Rappelons que l'objectif est ici de vérifier si la tension de polarisation a une influence sur le phénomène de dépôt des suies à la surface du capteur afin de s'assurer que celui-ci peut être pleinement considéré comme « passif ».

Pour étudier l'effet de la tension de polarisation sur la masse déposée, nous avons exposé le capteur à des particules de suies pendant 600 s à l'aide du banc d'essai (figure 83). Ensuite, nous avons appliqué le protocole expérimental décrit précédemment pour le dépôt de suies et la quantification du carbone.

Comme mentionné ci-dessus, seule la teneur en EC est considérée pour déterminer la masse déposée sur la surface sensible du capteur et un biais de $1,45 \mu\text{g}$ est soustrait de la masse déposée de EC déterminée par l'analyseur OC/EC.

La figure 100 montre, pour des tensions de polarisation comprises entre 0 et 20 V, l'ensemble des mesures de masses de EC déposées sur le capteur. On notera que 3 mesures ont été réalisées pour chaque tension de polarisation.

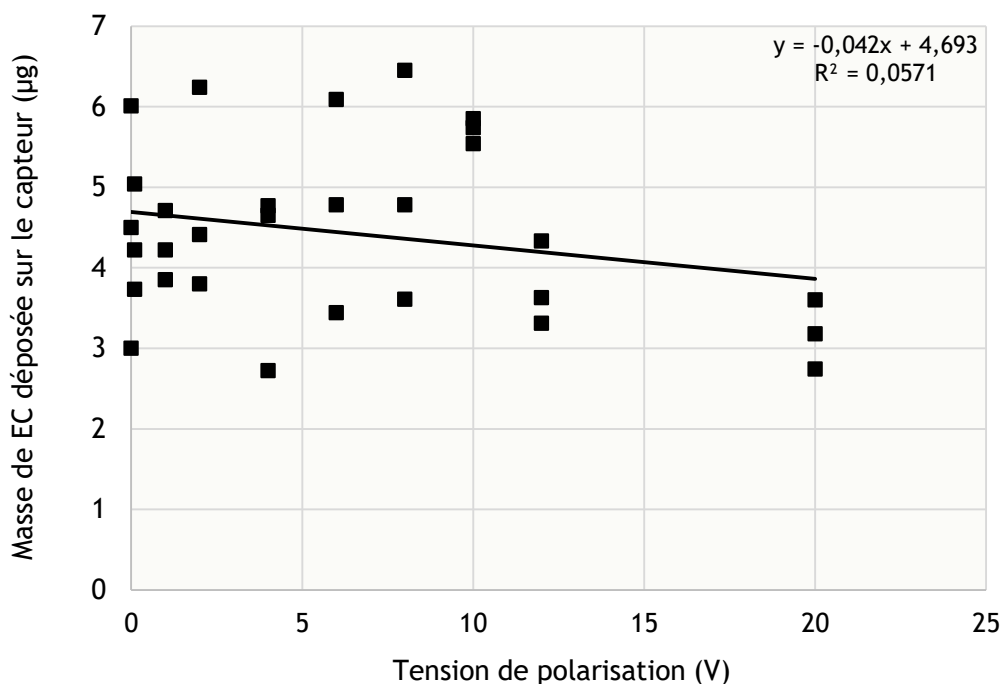


Figure 100: Masse déposée de EC pour différentes tensions de polarisation

Afin de déterminer si la pente est significativement différente de 0, ce qui impliquerait une influence de la tension de polarisation sur la masse déposée, un test d'hypothèse statistique a été réalisé.

La régression linéaire effectuée sur la figure 100 permet de calculer une pente de $-0,042 \mu\text{g V}^{-1}$ avec un écart-type de $0,031 \mu\text{g V}^{-1}$. La pente obtenue, dans notre cas, même si elle semble différente de 0 est associée à un écart-type proche de 100 % de sa valeur. Il apparaît donc que, pour des tensions de polarisation comprises entre 0 V et 20 V, l'effet de la polarisation sur la masse de carbone élémentaire déposée est négligeable devant l'erreur aléatoire de la mesure.

III.2.3 Etalonnage du capteur résistif

III.2.3.1 Etalonnage du capteur résistif pour les suies issues du CAST

Nous procédons ici à l'étalonnage du capteur résistif, c'est-à-dire à l'élaboration d'une loi d'évolution de la conductance en fonction de la quantité de suies déposées.

Pour cela, deux cas extrêmes ont été considérés; un associé à une conductance répétable et reproductible (10 V, régime « dendritique ») et un autre associé à une évolution de conductance significativement moins répétable (0,1 V, régime « proche percolation »).

La masse de EC déposée a été mesurée pour des conductances allant jusqu'à 3000 μS . Chaque point représente donc une expérience pour laquelle le capteur a été exposé pendant un temps variable, puis la masse de carbone élémentaire EC évaluée.

Pour chaque point, 3 mesures ont été effectuées sur le même capteur dans des conditions similaires (durée d'exposition et tension de polarisation).

Nous représentons sur la figure 101, la masse déposée EC et la conductance en fonction du temps de dépôt de suies lors de l'application d'une tension de polarisation de 0,1 V et de 10 V.

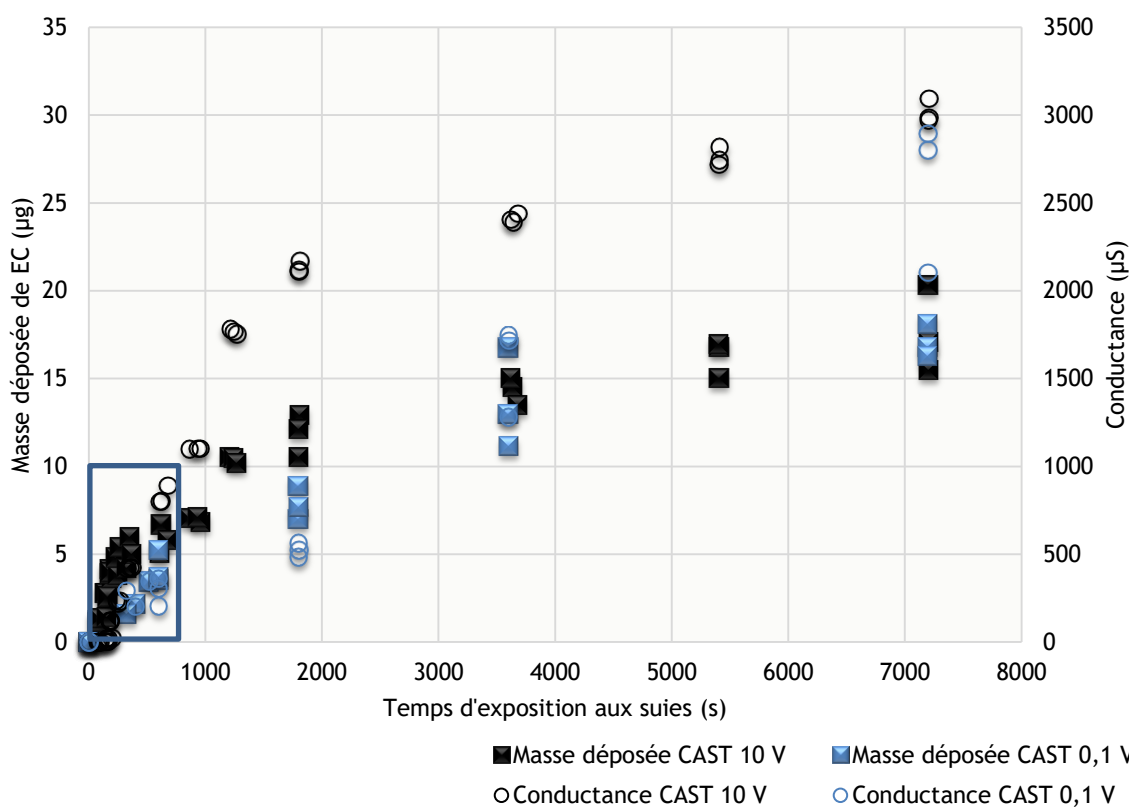


Figure 101: Evolution de la masse de EC déposée et de la conductance en fonction du temps pour une tension de polarisation de 0,1 et de 10 V

Afin d'évaluer plus finement l'évolution de la masse en fonction du temps un zoom a été réalisé pour des temps de d'exposition aux suies inférieures à 800 s (figure 102).

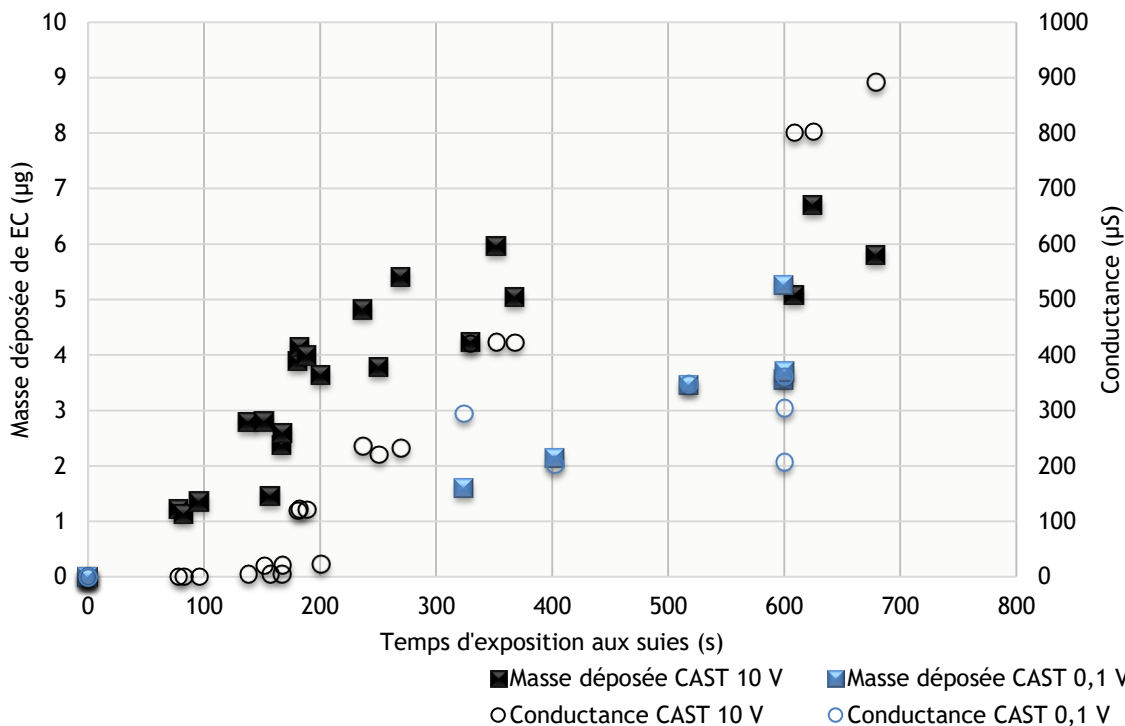


Figure 102: Zoom sur l'évolution de la masse de EC déposée et de la conductance en fonction du temps (jusqu'à 800 s) pour une tension de polarisation de 0,1 et de 10 V

Sur la figure 101, l'évolution de la masse déposée en fonction du temps ne semble pas suivre une tendance linéaire.

Les deux courbes pour 0,1 V et 10 V, respectivement pour la masse et la conductance, présentent des tendances similaires. Ceci confirme, comme le montre la figure 100, que la tension de polarisation n'a pas d'influence significative ni sur la masse déposée ni sur la conductance pour des durées d'exposition supérieures à 400 s aussi bien pour 0,1 V que pour 10 V. La principale différence est la dispersion plus élevée des données mesurées pour 0,1 V, associée à une moins bonne répétabilité de la réponse du capteur comme expliqué précédemment.

Pour un temps de dépôt relativement court ($t < 100$ s pour 10 V, $t < 200$ s pour 0,1 V), la conductance reste proche de 0 et augmente très lentement confirmant le début de la construction des ponts ou la percolation. Pour ces durées d'exposition, la masse déposée n'a pas été mesurée en raison de la limite de détection de l'analyseur OC / EC.

Passé cette première phase, la conductance augmente selon une évolution sigmoïdale. Une modélisation quantitative de telles courbes a été proposée par Grondin et al. [196], mais pour une polarisation plus élevée. Nous avons également montré dans la partie III.2.1.1.2 qu'un tel comportement asymptotique géométrique de la conductance est atteint lorsque l'épaisseur du dépôt est environ 6 fois supérieure à l'espace inter-électrodes (ici 20 μm).

La figure 103 présente les mêmes résultats expérimentaux sous forme de conductance obtenus en fonction de la masse de EC déposée, fournissant ainsi la courbe d'étalonnage du capteur résistif.

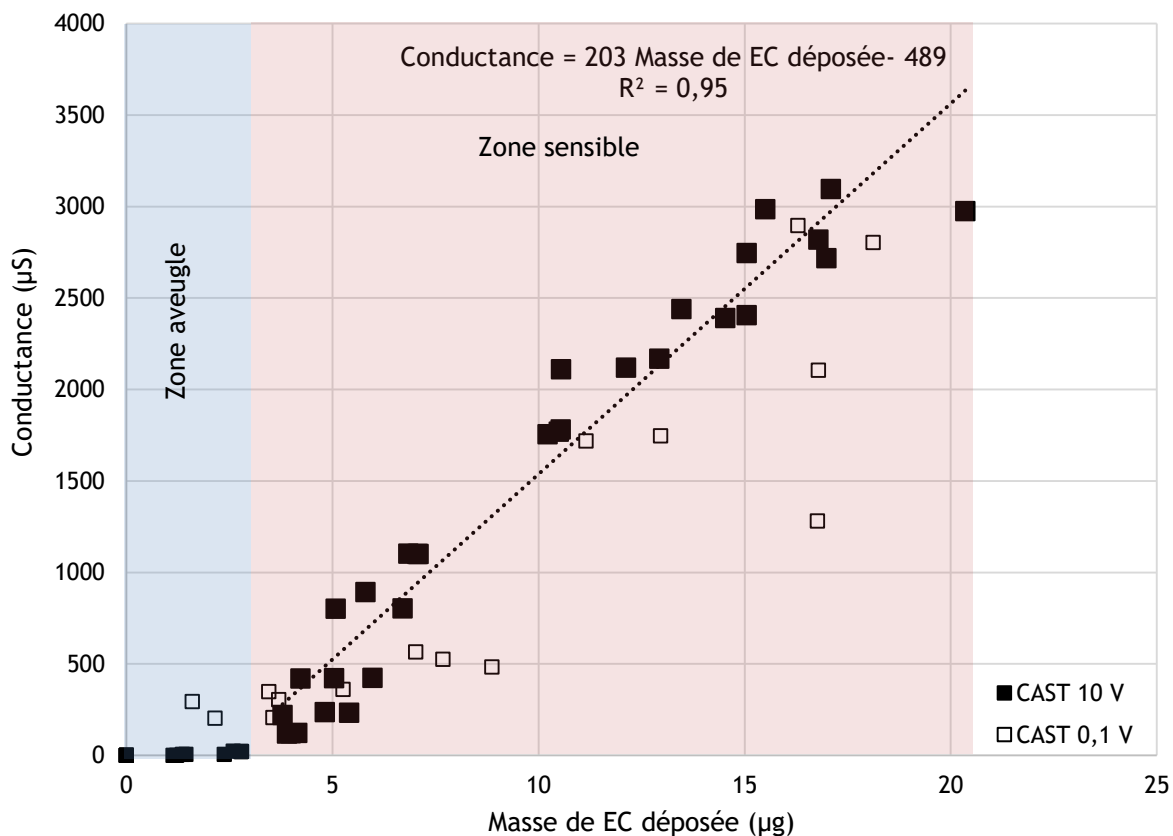


Figure 103: Courbe d'étalonnage du capteur résistif pour 0,1 et 10 V

Sur la cette figure, nous pouvons constater une dispersion plus importante sur la courbe relative à une tension de polarisation de 0,1 V, en raison d'une évolution de conductance moins répétable (cf. figure 94) confirmant le fait que l'étalonnage est moins performant à cette tension de polarisation. Pour une polarisation de 10 V, la courbe obtenue peut être divisée en deux phases:

- une première phase lorsque la masse est inférieure à $2,4 \mu\text{g}$ où la conductance reste proche de zéro. Cette zone correspond au début de la construction des ponts. Au fur et à mesure que les particules de suies se déposent, de nombreux ponts commencent à se former, mais comme la plupart d'entre eux ne sont pas achevés (faible taux de connexion entre les électrodes), la contribution totale de la masse à l'augmentation de la conductance reste faible. Dans cette zone, le capteur est presque « aveugle » car sa sensibilité est proche de 0 ($5 \mu\text{S} \cdot \mu\text{g}^{-1}$).
- Une deuxième phase est observée dans la gamme $2,4 - 20 \mu\text{g}$ de suies déposées. Nous pouvons observer une tendance linéaire entre la masse EC déposée et la conductance du capteur (même si pour une tension de 0,1 V, cette tendance est beaucoup moins évidente en raison de la dispersion obtenue sur la conductance), indiquant que la conductance (formation de ponts) augmente proportionnellement avec la masse de suies déposée. Dans cette zone, la sensibilité du capteur est significative et est égale à $203 \pm 9 \mu\text{S} \cdot \mu\text{g}^{-1}$.

Afin d'évaluer l'épaisseur du dépôt (Z) sur la face sensible du capteur et ce pour les deux zones, il est alors nécessaire de connaître la conductivité réelle des suies en tenant compte de la porosité. On utilise alors l'équation (64) [8] :

$$\frac{dZ}{dm_s} = \frac{1}{\rho_p \cdot (1 - \varepsilon)}, \quad (64)$$

en supposant une porosité du dépôt ε de 95% (II.1.2.3) (la porosité représente le rapport entre le volume de vide dans le dépôt et le volume total du dépôt) et une masse volumique de 1650 kg.m^{-3} [197]. Selon l'équation (64) et au début de la seconde phase, pour un dépôt de masse $m_s = 2,4 \mu\text{g}$ sur une surface approximative de $12,25 \text{ mm}^2$, l'épaisseur du dépôt est alors de $2,4 \mu\text{m}$. En fin de seconde phase, pour une masse $m_s = 20 \mu\text{g}$, l'épaisseur du dépôt atteint une valeur de $19,8 \mu\text{m}$, proche de l'espace inter-électrodes ($20 \mu\text{m}$). Ceci montre que le comportement presque asymptotique observé du capteur (figure 101) n'est pas dû à l'effet dit « géométrique » exposé dans la partie III.2.1.1.2, car cet effet n'apparaîtrait que pour des épaisseurs beaucoup plus élevées (représentant environ 6 fois l'espace inter-électrodes, à savoir ici $120 \mu\text{m}$).

III.2.3.2 Étalonnage du capteur résistif pour les suies issues du TBP/TPH

Nous avons, comme pour les suies produites par le mini-CAST, appliqué le protocole expérimental d'étalonnage du capteur résistif au cas des suies émises par la combustion du TBP/TPH.

La masse de EC déposée a été mesurée pour des conductances comprises entre 0 et $980 \mu\text{S}$. Pour chaque point de mesure, 3 mesures ont été effectuées sur le même capteur dans des conditions similaires.

Nous représentons, sur la figure 104, l'évolution de la masse de EC déposée et de la conductance en fonction du temps. Les points mesurés après le maximum de conductance observé à 10 V (figure 95 droite) sont identifiés en rouge.

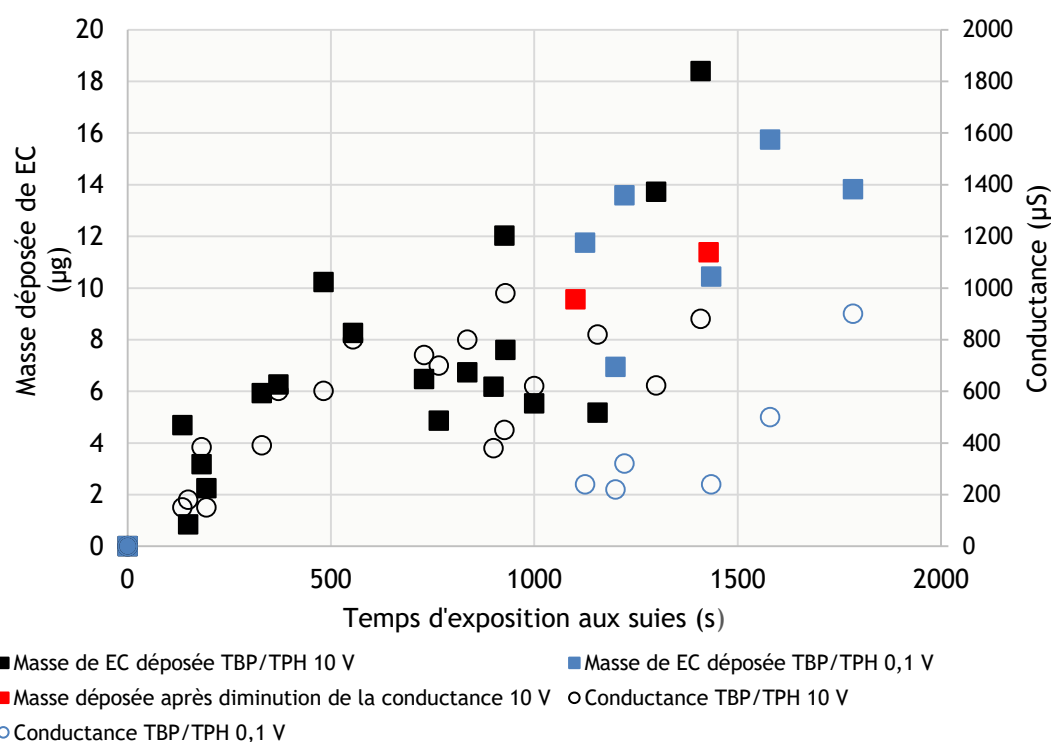


Figure 104 : Evolution de la masse déposée de EC et de la conductance du capteur en fonction du temps

A l'inverse des suies produites par le mini-CAST, pour lesquelles les conditions de génération et d'exposition étaient plus aisément maîtrisées, l'évolution de la conductance est soumise à une plus grande dispersion expérimentale qui ne permet pas de souligner l'évolution vers une valeur asymptotique comme vu précédemment. Nous ne pouvons donc pas dégager de tendance concernant l'évolution de la masse en fonction du temps comme pour le mini-CAST (figure 101).

La Figure 105, relative aux mêmes expériences, présente l'évolution de la conductance en fonction de la masse déposée EC des suies produites par le TBP/TPH pour les deux tensions extrêmes de polarisation (10 V et 0,1 V). Nous remarquons que la quantification en masse est peu répétable.

Cette mauvaise répétabilité nous empêche à 0,1 V de proposer une équation d'étalonnage à cette tension de polarisation. Il est même impossible d'affirmer si cette masse croît ou atteint un palier, du moins au-delà d'une conductance de 800 à 1000 μS .

Nous nous sommes donc intéressés à proposer un étalonnage du capteur résistif exposé à une tension de polarisation de 10 V et pour lequel nous pouvons distinguer 3 zones :

- Comme pour les suies mini-CAST, une première zone, moins évidente à repérer pour les suies de TBP/TPH, où le capteur résistif est « aveugle » pour une masse déposée inférieure à 2,4 μg .
- une deuxième zone où le capteur résistif semble avoir un comportement linéaire sur un intervalle de masse déposée compris entre 2,4 et 8 μg .
- une troisième zone où la sensibilité du capteur semble nulle. La masse augmente sans pour autant avoir une grande influence sur l'évolution de la conductance. Ceci signifie que pour une utilisation du capteur en situation incendie, celui-ci doit être régénéré avant d'atteindre cette zone, c'est-à-dire dès qu'il atteint une valeur de conductance proche de 1000 μS et une masse déposée supérieure à 8 μg .

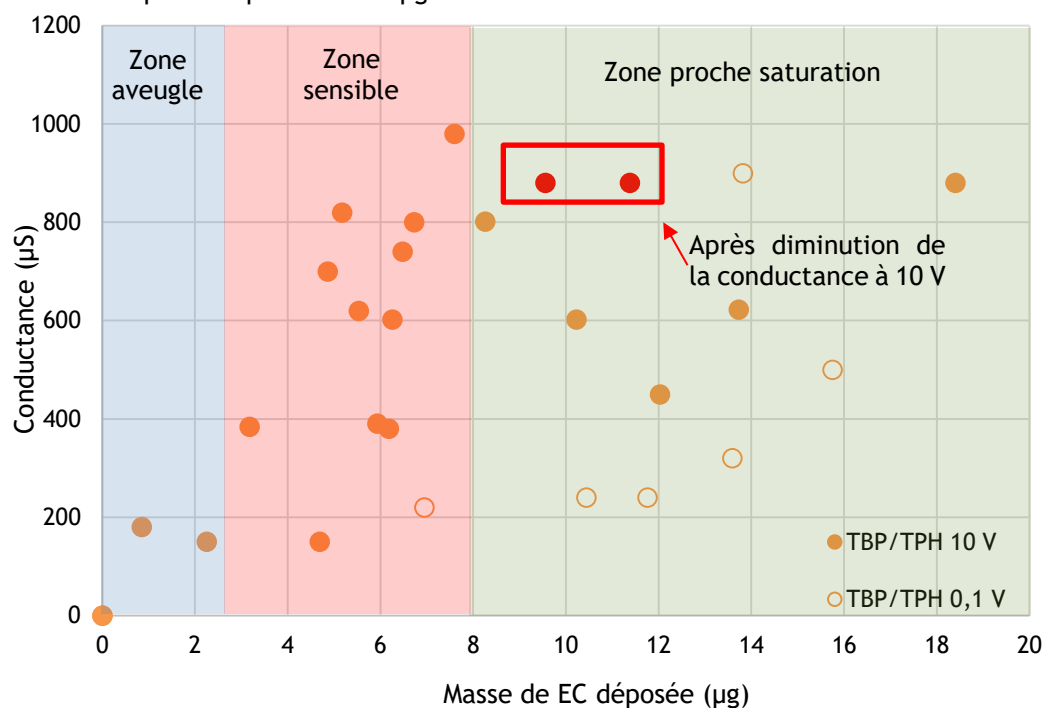


Figure 105 : Courbe d'étalonnage du capteur résistif avec les suies produites par du TBP/TPH

Nous remarquons donc que le capteur ne semble « sensible » que sur un intervalle de masse compris entre 2,4 et 8 μg , ce qui limite l'utilisation du capteur qui devrait être régénéré plus fréquemment. Dans cet intervalle, la sensibilité du capteur pour les suies de TBP/TPH est proche de celle pour les suies du CAST.

En utilisant l'équation (64) et en supposant une porosité du dépôt ϵ de 95 % et une masse volumique de $1534 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ [145], nous retrouvons une épaisseur de dépôt égale à 2,6 μm pour une masse de $m_s = 2,4 \mu\text{g}$ sur une surface approximative de $12,25 \text{ mm}^2$. Pour une masse déposée $m_s = 8 \mu\text{g}$ sur une surface approximative de $12,25 \text{ mm}^2$, cette épaisseur du dépôt atteint une valeur de 8,5 μm . Cette valeur est très inférieure à la valeur nécessaire pour atteindre le comportement asymptotique géométrique (6 fois l'espace inter-électrodes). Ce comportement du capteur pourrait alors être expliqué par les

hypothèses énoncées dans la partie III.2.1.2.2, à savoir la modification physico-chimique et/ou l'oxydation des suies par effet Joule.

III.2.3.3 Comparaison des courbes d'étalonnage des suies issues du CAST et du TBP/TPH

Nous représentons dans la figure 106 une comparaison de l'évolution de la conductance en fonction de la masse déposée EC des suies produites par le Mini-CAST (voir paragraphe III.2.3.1) et par le TBP/TPH pour les deux tensions extrêmes de polarisation (0,1 V et 10 V).

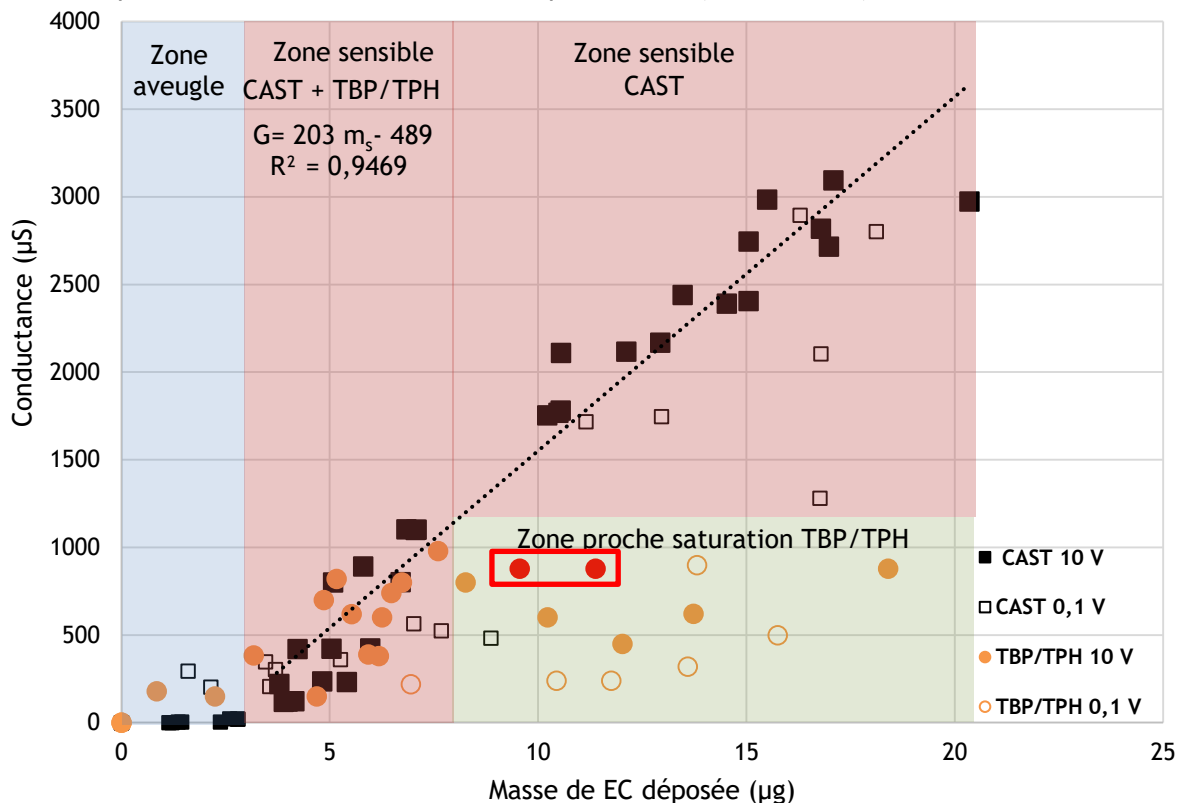


Figure 106 : Courbe d'étalonnage du capteur résistif avec les suies produites par le Mini-CAST et celles produites par du TBP/TPH

Dans le cas des suies produites par le mini-CAST ou par la combustion du TBP/TPH, on retrouve une zone de masse déposée comprise entre 0 µg et 2,4 µg où le capteur est aveugle et son signal de conductance reste proche de zéro.

Pour des issues du CAST, on retrouve ensuite une large gamme de masse entre 2,4 µg et 20 µg pour laquelle, sous une polarisation de 10 V, la conductance croit linéairement avec la masse. La même tendance est globalement obtenue pour une tension de 0,1 V mais la courbe d'étalonnage est beaucoup plus dispersée.

Pour des suies issues de la combustion du TBP/TPH, il semble y avoir une faible zone entre 2,4 µg et 8 µg pour laquelle le capteur semble sensible à la masse de suies déposée, la sensibilité devenant nulle pour des masses déposées plus importantes.

Nous pouvons donc considérer, dans la zone sensible, la même droite d'étalonnage pour les suies CAST et les suies TBP/TPH. La sensibilité du capteur (S) dans cette zone est donc égale à $203 \pm 9 \mu S \cdot \mu g^{-1}$ et la conductance à l'origine (G_0) est égale à $489 \pm 99 \mu S$. Cette droite d'étalonnage peut donc s'écrire selon l'équation (65) :

$$G = 203 m_s - 489 , \tag{65}$$

avec G la conductance mesurée (μS).

Il est donc possible de prédire la masse déposée de EC m_s à partir de la mesure de conductance G :

$$m_s = \frac{G + 489}{203} , \quad (66)$$

dès lors que la masse déposée de EC est supérieure à $\frac{489}{203} = 2,4 \mu g$.

Cette même équation est utilisable pour les suies de TBP/TPH mais pour des masses entre 2,4 et 8 μg , ce qui limite la plage d'utilisation du capteur.

En appliquant la loi de la propagation des incertitudes, l'incertitude sur la masse prédite est égale à :

$$u(m_s) = \sqrt{\left(\frac{1}{S}\right)^2 u(G)^2 + \left(\frac{1}{S}\right)^2 u(G_0)^2 + \left(\frac{G + G_0}{S^2}\right)^2 u(S)^2} , \quad (67)$$

III.3 METHODE DE MESURE 2 : MESURE D'EMISSION DE CO₂

La première méthode de mesure, une fois étalonnée, permet de suivre l'évolution de la masse de suies déposée au cours du temps par l'intermédiaire du suivi de la conductance. Cependant, la gamme de mesure de masse reste limitée pour l'application visée : quantification des suies de TBP/TPH lors d'un incendie à échelle réelle et pour laquelle des masses significatives de suies ont été reportées à l'issue des essais à grande échelle (cf. chapitre II.1.2.3). En effet, dans ce cas le dépôt peut atteindre 5 $\mu g/min$ sur la surface sensible du capteur d'environ 12,25 mm². Ce dernier devra donc être régénéré fréquemment. Dans cette partie, une autre méthode de mesure susceptible d'offrir une gamme de mesure de masse plus grande a été mise en œuvre. Celle-ci consiste à coupler le capteur résistif à des capteurs de gaz.

Ces capteurs de gaz sont utilisés pour analyser, comme pour la méthode OC/EC, les quantités de gaz produites lors de la régénération de la face sensible du capteur résistif reposant sur l'oxydation des suies à haute température.

Afin de déterminer la nature des gaz émis lors de la régénération et choisir les technologies de capteurs de gaz employées pour cette quantification, des analyses thermogravimétriques couplées à des analyses de spectroscopie de masse ont été réalisées. Une cellule spécifique, incluant le capteur résistif et les capteurs de gaz, a ensuite été développée.

Un étalonnage est nécessaire avant l'utilisation des capteurs de gaz afin d'étudier leurs réponses à des concentrations de référence.

III.3.1 Choix des capteurs de gaz

Le choix du ou des capteurs de gaz est tributaire de la nature des gaz émis lors de la régénération. Afin de caractériser le comportement en température des suies produites par le Mini-CAST et de celles produites par la combustion du TBP/TPH, des analyses thermogravimétriques (ATG) couplées à une analyse des gaz émis par spectroscopie de masse (SM) ont été réalisées.

Ce type d'analyse permet d'identifier les composés gazeux émis au cours de la dégradation des particules de suies produites par le mini-CAST ou la combustion du mélange TBP/TPH. L'appareil utilisé lors notre étude est une thermobalance de type TGA/DSC 1 de chez Mettler couplée à un spectromètre de masse Omnistar GSD301.

III.3.1.1 Résultats de l'analyse couplée ATG/ Spectroscopie de masse des suies du CAST sous air

L'échantillon de suies produites par le CAST est tout d'abord étuvé à 150°C pendant 1h.

Ensuite, 6 mg de cet échantillon sont chauffés sous air synthétique (débit air égal à 5 L.h⁻¹) jusqu'à 1200°C avec une rampe de 10°C.min⁻¹. Afin d'évaluer la répétabilité, 3 essais identiques ont été réalisés.

La figure 107 montre le thermogramme obtenu sous air ainsi que les composés issus de la dégradation des suies du CAST sous air.

On remarque l'existence d'une seule perte de masse qui se produit entre 500 et 700°C, avec une vitesse maximale d'oxydation associée à une température d'environ 620°C et correspondant à une perte de masse cumulée de 97%. Cette température apparaît en accord avec la température du capteur lors de la phase de régénération (650°C), permettant de s'assurer de l'efficacité de ce processus. L'espèce principale produite dans cette plage de température est le CO₂ (m/z=44), associée à l'oxydation du carbone contenue dans les suies. Le rapport m/z de 28 est associé à la présence d'azote, ces analyses thermogravimétriques étant réalisées sous air.

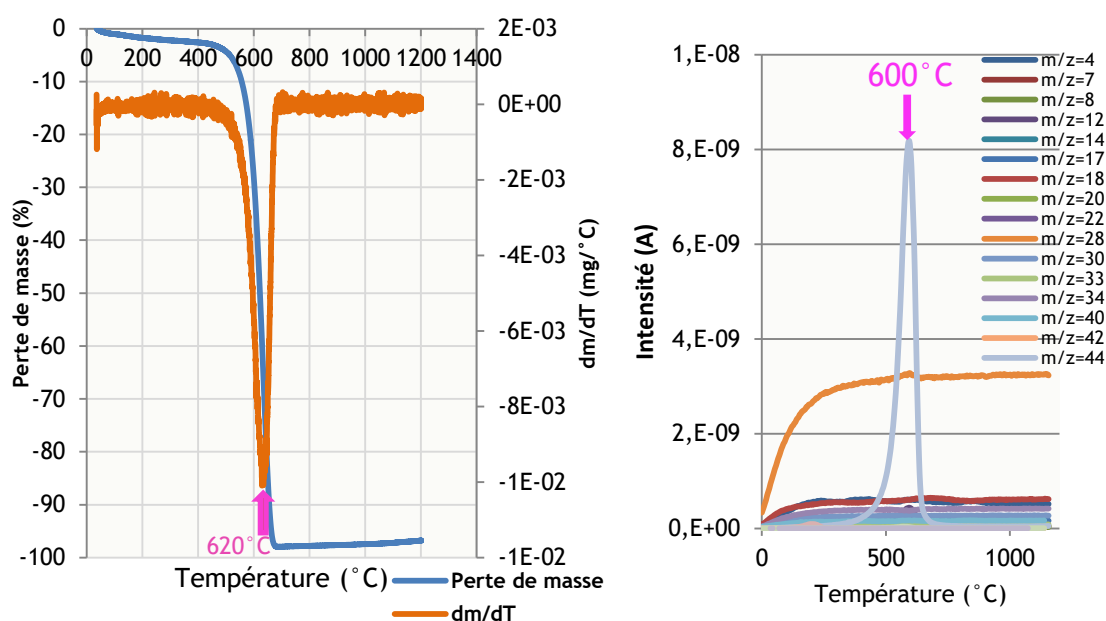


Figure 107 : Évolution de la perte en masse (ATG) (gauche) et spectre de masse (droite) sous air en fonction de la température pour des suies produites par le Mini-CAST en PF 1

III.3.1.2 Résultats de l'analyse couplée ATG/ Spectroscopie de masse des suies TBP/TPH sous air

Nous nous sommes également intéressés au comportement thermique des suies TBP/TPH, avec des analyses réalisées dans les mêmes conditions que les suies CAST. La figure 108 montre le thermogramme obtenu sous air et la figure 109 montre les composés issus de la dégradation des suies de TBP/TPH sous air.

On remarque l'existence de 4 zones de températures de pertes de masse. La première perte de masse se produit entre 30 et 90°C, avec une vitesse maximum de perte de masse à environ 57°C. Correspondant à une perte de masse cumulée de 2%, elle peut être attribuée à la désorption de l'eau physisorbée (m/z = 18) qui s'avère relativement réduite. Cette perte s'explique par une reprise en eau après l'étuvage des suies de TBP/TPH [12]. La deuxième perte de masse se produit, quant à elle, entre 120 et 230°C (maximum à 168°C) correspondant à une perte de masse cumulée de 5% et pouvant être attribuée à la production d'espèces de type « COV » (composés organiques volatiles, m/z =39, 41, 56) difficilement identifiables. Une troisième perte de masse se produit entre 430 et 490°C (vitesse maximale à 460°C), mais elle ne peut pas être dissociée de la suivante (perte de masse principale) qui se produit entre 500 et 800°C avec une vitesse maximale à 670°C (en accord avec la

température de régénération de 650°C du capteur) et correspond à une perte de masse cumulée totale de 93 %. L'espèce produite dans cette plage de température est principalement le CO₂ (m/z=44), associée à la dégradation du carbone contenue dans les suies.

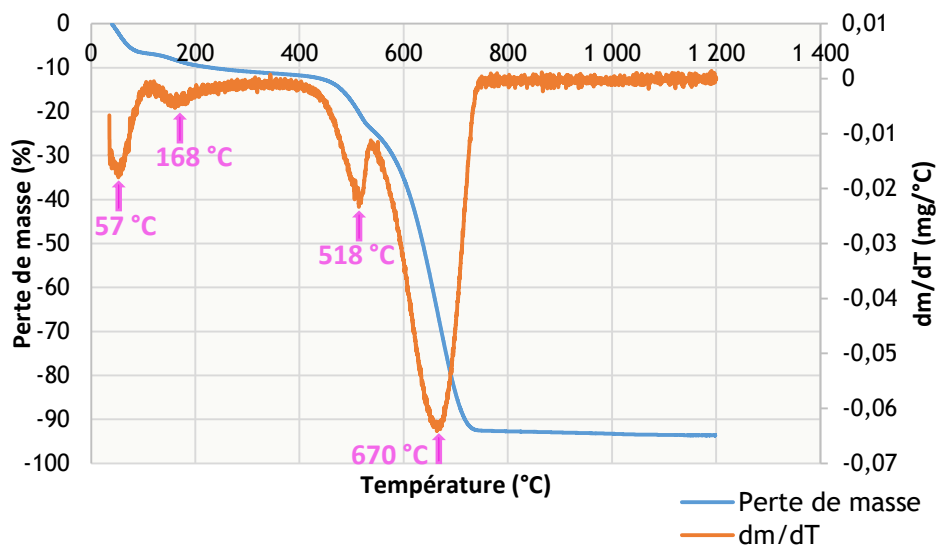


Figure 108 : Évolution de la perte en masse (ATG) sous air en fonction de la température pour des suies produites par la combustion de TBP/TPH à 21 % d'oxygène

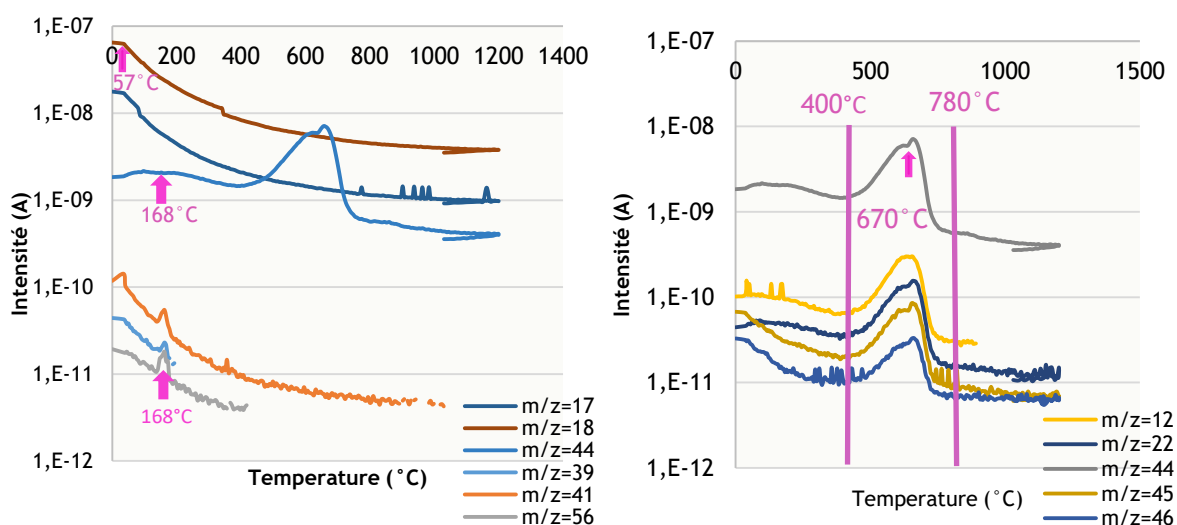


Figure 109 : « Spectre de masse pour 2 jeux de rapports m/z et pour des suies produites par la combustion de TBP/TPH à 21 % d'oxygène »

A partir des analyses ATG et spectroscopie de masse, nous pouvons conclure que la température d'oxydation des suies produites par du TBP/TPH est autour de 650°C et qu'à cette température le gaz principalement produit est le CO₂. Nous avons donc estimé que nous pouvons utiliser un capteur CO₂ et le même protocole pour proposer une corrélation entre la masse de suies pesées et la masse de carbone calculée à partir de la différence de concentration en CO₂ avant et après régénération du capteur de suies. On gardera par ailleurs à l'esprit que le comportement thermique des suies TBP/TPH est beaucoup plus complexe que celui des suies produites par le mini-CAST, soulignant leur plus grande réactivité sur une plage de température comprise entre 120 et 800°C. Cette plus grande réactivité peut en partie expliquer la réponse spécifique du capteur résistif pour une tension de polarisation de 10 V pour le cas des suies TBP/TPH, que nous avons associée à une évolution physico-chimique du dépôt des suies sous effet Joule.

III.3.1.3 Conception de la cellule capteurs

Suite aux analyses thermogravimétriques couplées à des analyses de spectroscopie de masse, le principal gaz émis lors de la combustion des suies CAST et TBP/TPH est le CO_2 . Nous avons donc sélectionné un capteur CO_2 Sensirion SCD30 intégrant également un capteur de température et d'humidité. Toutefois, nous avons aussi envisagé d'intégrer un capteur COV (Composés Organiques Volatiles, Sensirion SGP 30) car sa limite de détection est bien plus faible (quelques ppb contre quelques ppm pour le capteur CO_2) et pourrait éventuellement permettre la détection d'autres gaz (tels qu'entre autre le CO) pourtant émis en bien plus faible quantité lors de la combustion des suies CAST et TBP/TPH.

Le capteur CO_2 est un capteur optique (NDIR pour « Non-Dispersive Infrared Sensor ») qui utilise une source infra-rouge dont le rayonnement traverse une chambre remplie de gaz, et le détecteur infrarouge récupère en sortie les longueurs d'onde correspondant à une bande d'absorption du CO_2 grâce à un filtre interférentiel. Les spécifications du capteur CO_2 sélectionné sont résumées dans le tableau 16.

Tableau 16 : Spécifications du capteur CO_2

Paramètre	Conditions	Valeur
Gamme de mesure de la concentration CO_2		0-40000 ppm
Précision	400 ppm-10000 ppm	± 30 ppm
Répétabilité	400 ppm-10000 ppm	± 10 ppm
Stabilité de la température	$T = 0 \dots 50^\circ \text{C}$	$\pm 2,5 \text{ ppm} \cdot ^\circ \text{C}^{-1}$
Temps de réponse	$\tau_{63\%}$	20 s

L'un des paramètres pouvant impacter la réponse du capteur en concentration est la pression totale qui devrait être prise en compte lors de l'étalonnage du capteur CO_2 , car il mesure en réalité non pas la concentration volumique mais la concentration massique. Nous n'avons toutefois pas intégré de capteur de pression absolue puisque nous travaillons en volume fermé et que la variation de masse est donc proportionnelle à la variation de la concentration massique.

Le capteur COV est un capteur à oxyde métallique (ou MOX, pour « Metal OXide ») qui possède des couches sensibles qui interagissent avec le gaz et voient leur résistance modifiée. Le capteur COV initialement était prévu pour la quantification du CO mais nous n'avons pas eu de résultats satisfaisants. Nous n'allons donc pas présenter les résultats issus de ce capteur.

Par ailleurs, une cellule en verre étanche et disposant d'une entrée et d'une sortie de gaz a été conçue. L'étanchéité entre la cellule et son couvercle est assurée par un joint et une bague de serrage, un schéma de cette cellule est présenté en figure 110.

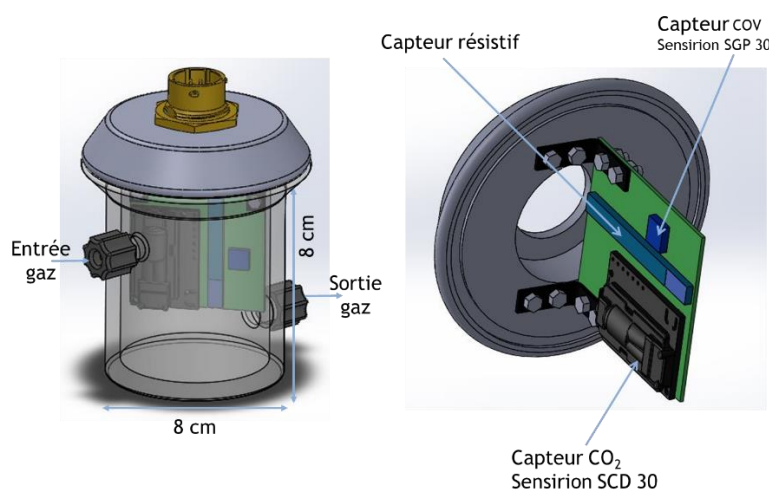


Figure 110 : Cellule capteurs utilisée pour la régénération et le couplage capteurs résistif/gaz

Au niveau du couvercle, nous avons installé une traversée étanche 8 connecteurs (Souriau) à travers lesquels nous avons passé la connectique des différents capteurs vers le microcontrôleur (Arduino Uno). Les capteurs sont numériques et utilisent le protocole I2C. L'acquisition du signal se fait en utilisant Labview qui communique avec la carte Arduino à l'aide d'une liaison série.

III.3.1.4 Etalonnage du capteur CO_2 à l'aide de concentrations connues de CO_2

Avant d'utiliser les capteurs commerciaux pour la quantification des suies produites par le Mini-CAST ou le TBP/TPH, nous les avons étalonnés afin de vérifier leurs spécifications pour le capteur CO_2 , et de voir la possibilité de mesurer efficacement le CO avec le capteur COV Mox.

Pour ce faire, nous avons utilisé un banc de génération de mélanges synthétiques existant à l'EMSE. Ce banc automatisé (figure 111) permet de mesurer les réponses simultanées des deux capteurs :

- le capteur CO_2 dans lequel est intégré un capteur de température et un capteur d'humidité,
- le capteur COV.

Les deux capteurs sont étalonnés avec des concentrations références, CO_2 pour le capteur CO_2 et CO pour le capteur COV, ce qui permet de quantifier l'erreur sur la réponse des capteurs et de trouver une relation entre la réponse fournie par le capteur et la concentration réelle en gaz.

Pour obtenir ces concentrations de référence, les débits de gaz (CO_2 , CO et air) sont contrôlés par des régulateurs de débit massique et sont injectés d'abord dans une chambre de mélange avant d'être envoyés vers la cellule qui contient les capteurs de gaz (0, 4 L de volume).

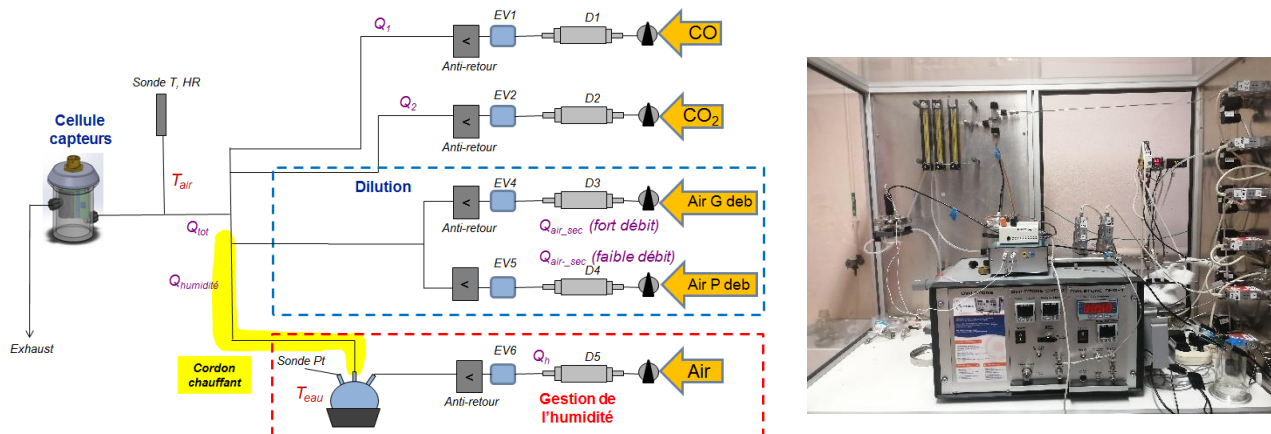


Figure 111 : Banc d'étalonnage des capteurs

Les capteurs sont testés sous un mélange contenant de l'air synthétique (21 % d'oxygène et 79 % d'azote) et le gaz de référence, à température ambiante.

Le débit total dans la cellule capteurs est fixé à $20 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$. La concentration du CO_2 varie entre 100 et 1000 ppm tandis que celle du CO varie entre 2 et 100 ppm.

Pour rappel, seul l'étalonnage du capteur CO_2 sera présenté car les réponses délivrées par le capteur COV à des concentrations références de CO sont apparues très dispersées et inexploitable.

Le signal brut du capteur CO_2 a quant à lui dû être traité afin de supprimer quelques points aberrants.

La figure 112 ci-dessous représente la réponse temporelle du capteur de CO_2 « Sensirion SCD 30 » pour différentes concentrations de CO_2 . À partir de cette réponse temporelle, une courbe d'étalonnage a été établie afin de vérifier le comportement du capteur.

La figure 112 présente la réponse temporelle du capteur à des concentrations du mélange de référence (CO_2 + air zéro) variant de 0 à 1000 ppm à température ambiante et à une humidité relative entre 3 et 5 %.

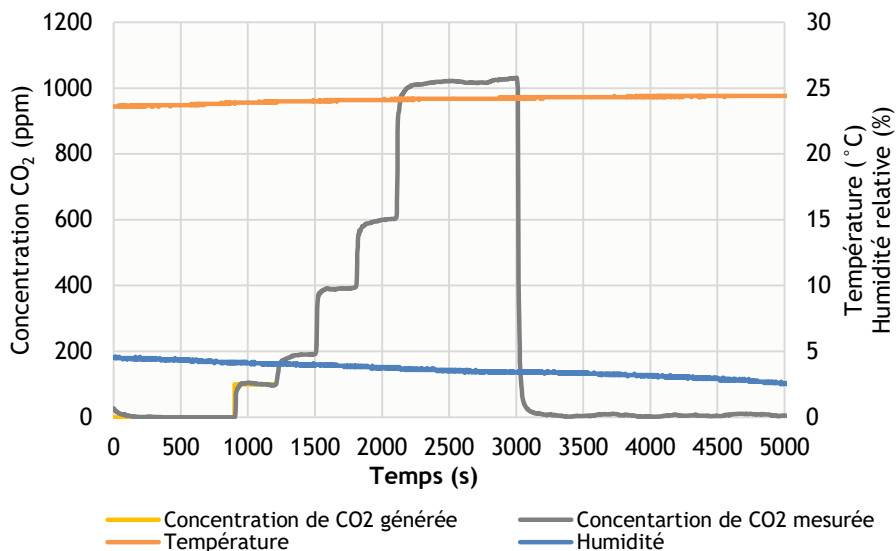


Figure 112 : Variations de la réponse du capteur CO₂ Sensirion SCD 30 en fonction de la concentration CO₂ de référence : 100, 200, 400, 600 et 1000 ppm, Débit : 20 L.h⁻¹ ; T: 24 °C ; HR : 3-5 %

La figure 113 représente la droite d'étalonnage du capteur pour des concentrations de CO₂ variant entre 0 et 1000 ppm à une humidité relative entre 3 et 5 % et à température ambiante (24 °C).

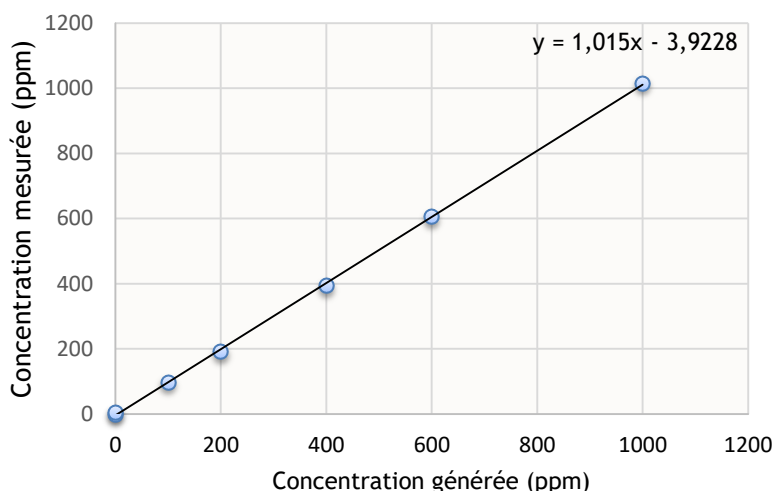


Figure 113 : Courbe d'étalonnage du capteur SCD30

L'équation de la droite de régression est obtenue par régression linéaire :

$$y = 1,015 x - 3,92 \tag{68}$$

L'écart-type sur la pente est égal à 0,01 ce qui montre une erreur de gain faible. L'offset (dérive systématique) est égal à 3,92 ppm dans un intervalle d'étalonnage de 0 à 1000 ppm.

III.3.2 Interprétation de la variation de concentration de CO₂ lors de la régénération

III.3.2.1 Protocole expérimental

Pour réaliser la preuve de faisabilité, le protocole expérimental utilisé est scindé en trois étapes :

1°) Pesée du capteur vierge en utilisant une microbalance de précision Sartorius MC210P (résolution : 10 µg).

2°) Pour le chargement du capteur résistif, 2 modes de dépôt ont été identifiés :

- dépôt sur le capteur résistif grâce au banc de Génération, de Dépôt et de Caractérisation des suies CAST ou TBP/TPH. Dans ce cas, les variations de concentrations en CO₂ mesurées sont généralement très faibles (limite de détection des capteurs de gaz) et ce mode de chargement n'a pas été privilégié dans cette étude (mis à part pour des durées d'exposition de plusieurs heures).
- Collecte des suies CAST ou TBP/TPH produites dans les mêmes conditions, dépôt manuel sur la zone sensible du capteur puis pesées de celles-ci à l'aide de la microbalance de précision Sartorius MC210P.

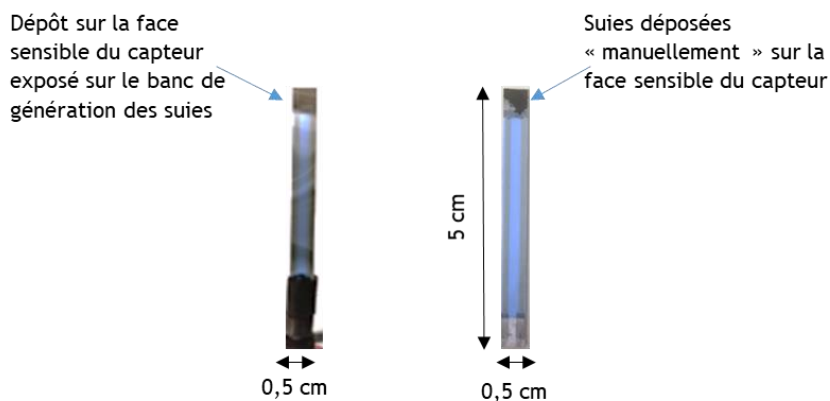


Figure 114 : Vue de la face sensible du capteur résistif avec dépôt de suies :(gauche) exposé sur le banc de génération des suies, (droite) effectué manuellement

3°) Quantification des suies déposées : le capteur résistif est ensuite introduit dans la cellule capteurs. Les suies préalablement déposées sont portées à 650°C grâce à la résistance présente sur la face arrière du capteur résistif et sont ainsi oxydées. La cellule étant isolée hermétiquement, la concentration des gaz émis atteint un état stationnaire et qui est fonction de la quantité de suies et du volume de la cellule. Cette concentration est mesurée en continu par le capteur de CO₂. Pour ce faire, on utilise le banc expérimental (figure 115) et le protocole suivant, le t₀ étant considéré au début de l'acquisition des signaux des capteurs :

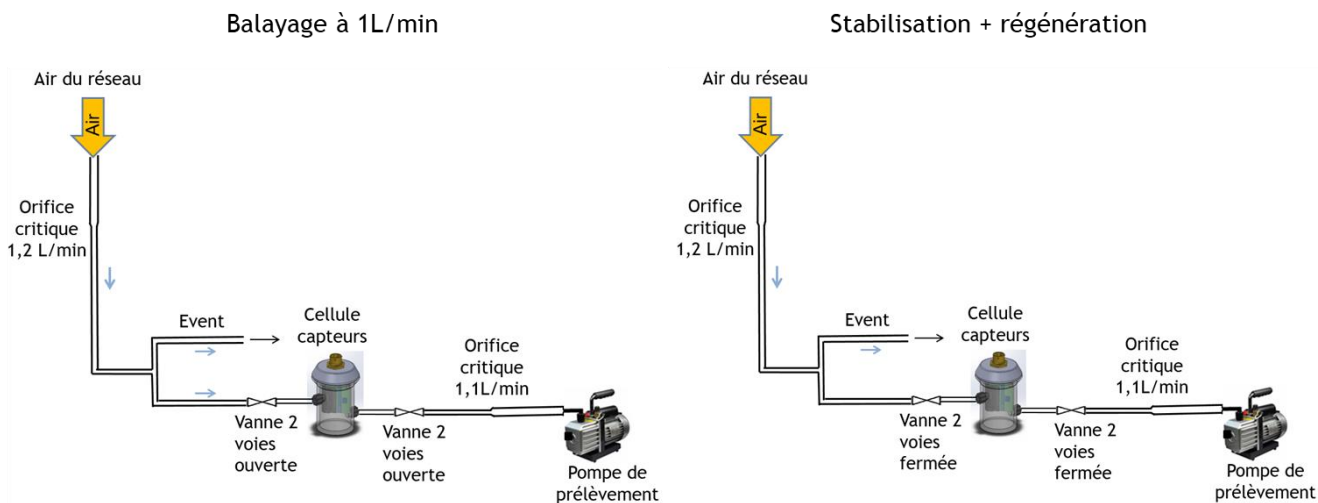


Figure 115 : Banc expérimental utilisé pour la quantification du dépôt de suies

- a) Un balayage continu par de l'air comprimé du réseau, dans la cellule capteurs à $1 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, est réalisé grâce à deux orifices critiques et une pompe à l'aval de la cellule. Deux vannes sont placées en amont et à l'aval de la cellule capteurs permettant d'isoler celle-ci.

La pompe est déclenchée 120 s après le début de l'acquisition (t_0). Cette séquence dure suffisamment longtemps pour renouveler l'air de la cellule : compte tenu du volume de cette dernière (0,4 L) et du débit, le temps de renouvellement est de l'ordre de 40 s, une durée de balayage d'air du réseau de 240 s est largement suffisante pour le renouvellement d'air dans la cellule capteurs.

Nous remarquons sur la figure 116 que le signal du capteur d'humidité intégré avec le capteur de CO_2 permet de vérifier ce renouvellement puisque à la fin de la phase de balayage de l'air du réseau sec, l'humidité relative est quasiment nulle.

La pompe est arrêtée à $t_0 + 360 \text{ s}$ et le système est isolée avec les vannes 2 voies amont et aval puis nous attendons encore 360 s pour la stabilisation.

- b) La régénération est déclenchée à $t_0 + 720 \text{ s}$. Elle est donc réalisée sous air dans des conditions statiques.
 c) La régénération est arrêtée à $t_0 + 860 \text{ s}$.
 d) L'acquisition des données est arrêtée au-delà de 1800 s.

L'analyse de ces données permet d'estimer la différence de concentration CO_2 marquée par deux phases lors de la mesure :

- nous considérons la moyenne de la concentration pendant une première phase avant la régénération entre 500 et 600 s (trait rouge horizontal),
- nous considérons la moyenne de la concentration pendant une deuxième phase après la régénération entre 1400 et 1500 s (trait bleu horizontal),
- nous calculons l'écart de concentration (ΔC) à partir des moyennes obtenues lors de ces deux phases ainsi que l'incertitude sur cet écart $u(\Delta C)$.

$$u(\Delta C) = \sqrt{(u_{\text{répétabilité}})^2 + (u_{\text{gain}} \Delta C)^2} \quad (69)$$

avec $u_{\text{répétabilité}} = 10 \text{ ppm}$ et $u_{\text{gain}} = 0,01$.

4°) La dernière étape de ce protocole consiste à peser le capteur résistif après la régénération afin d'évaluer la masse de suies après la régénération du capteur résistif en utilisant la microbalance de précision Sartorius MC210P.

III.3.2.2 Variation du signal du capteur CO_2 après combustion des suies CAST et TBP/TPH

Au préalable à l'application de ce protocole, et afin de déterminer s'il existe un biais dans la concentration mesurée par le capteur CO_2 , une régénération du capteur exempt de suies est réalisée. La figure 116 présente les signaux fournis par le capteur de CO_2 . A la fin de la régénération, nous constatons une diminution, puis une augmentation de la concentration CO_2 et enfin un signal qui retrouve l'état qui était le sien avant la régénération.

En l'absence de suies, nous ne constatons pas de différence entre le signal de concentration CO_2 avant et celui stabilisé après la régénération $\Delta C = 0 \text{ ppm}$ (traits horizontaux rouge et bleu à la même valeur de 1005 ppm avec une incertitude de 10 ppm).

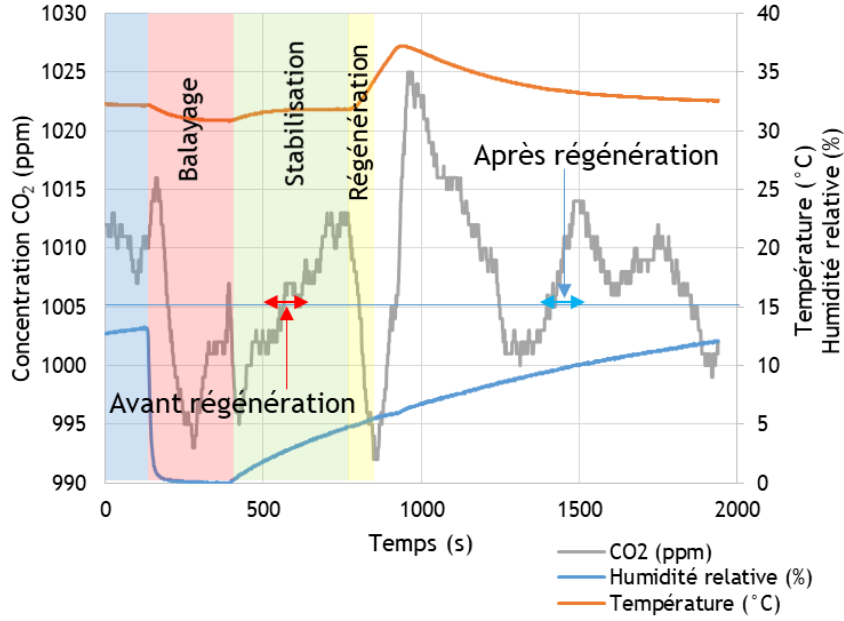


Figure 116 : Réponse du capteur CO₂ lors de la régénération du capteur résistif exempt de suies

Dans le but d'évaluer les quantités déposées sur le capteur résistif, nous l'avons tout d'abord exposé pendant 30 min dans le banc de génération, de dépôt et de caractérisation des suies. La masse déposée est de l'ordre de 11 µg. En appliquant le protocole décrit précédemment, nous retrouvons les mêmes tendances d'évolution des signaux d'humidité, de température et de concentration CO₂ que ceux observés pour un capteur résistif exempt de suies. (figure 117). Cependant, une différence de concentration en CO₂ est mesurée avant et après régénération, $\Delta C = 15 \pm 10$ ppm. Un phénomène remarquable, qui pourrait être expliqué par les variations brutales de température, est la rediminition de la concentration en CO₂ mesurée par le capteur après la forte augmentation liée à la régénération.

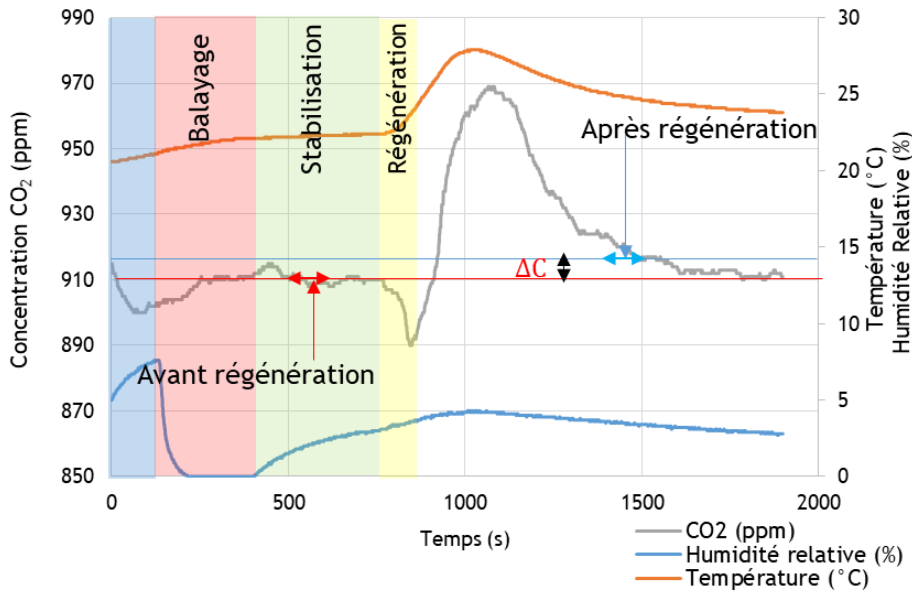


Figure 117 : Réponse du capteur CO₂ après exposition du capteur dans le banc de génération des suies pendant 30 min avec une masse de 11 µg

A l'issue de plusieurs expérimentations pour des durées d'exposition comprises entre 30 min et 1 heure, la variation minimale mesurable de la concentration de CO₂ est apparue être de l'ordre de 20 ppm (exposition du capteur pendant une heure dans le banc de génération de suies). Pour des durées inférieures à une heure et de faibles différences de concentration en CO₂, nous rencontrons donc un problème de « disparition » des faibles concentrations de CO₂, limitant d'autant plus cette méthodologie à de faibles masses déposées. Nous avons donc travaillé avec de plus grandes quantités de suies.

Nous représentons sur la figure 118 la réponse du capteur CO₂ pour 350 µg. La différence entre la concentration CO₂ calculée avant et après la régénération est égale à 1071 ± 15 ppm.

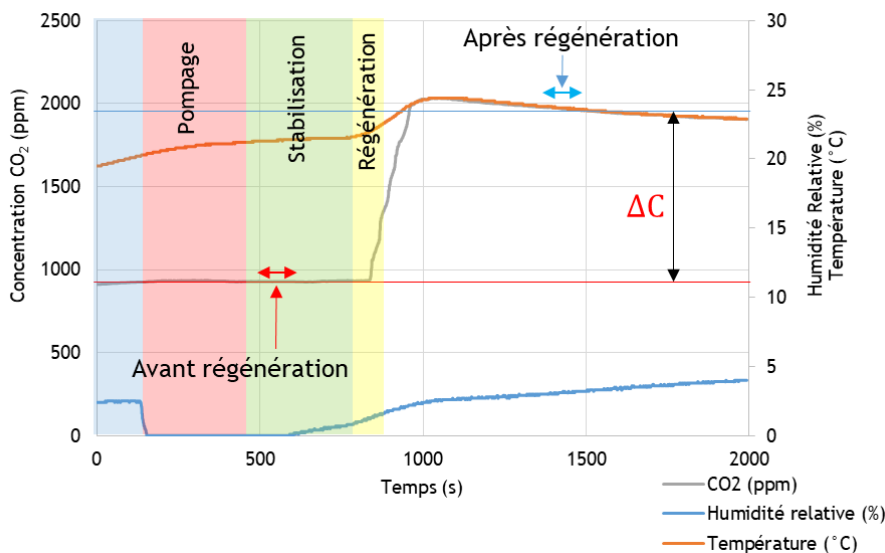


Figure 118 : Réponse du capteur CO₂ à la régénération d'un capteur chargé « manuellement » avec une masse de 350 µg

Nous constatons ainsi que cette méthode de quantification, s'avère complémentaire car permettant d'étendre la plage de mesure à de fortes masses déposées pouvant provoquer la saturation du capteur résistif. Nous avons répété ces expériences avec des suies déposées manuellement pour des masses intermédiaires. Pour 48 µg et 120 µg (figure 119), nous trouvons respectivement 56 ± 10 ppm et 406 ± 11 ppm

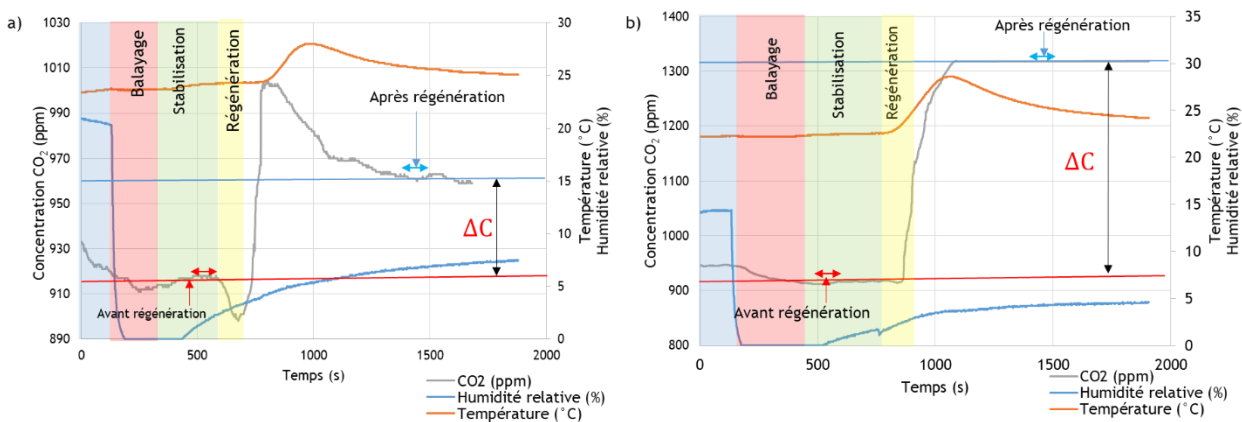


Figure 119 : Réponse du capteur CO₂ à la régénération d'un capteur chargé « manuellement » par a) 48 µg et b) par 120 µg de suies du CAST

Plusieurs points à des masses intermédiaires ont été réalisés et sont synthétisés dans la figure 121. Nous avons donc appliqué le même protocole pour étudier la réponse du capteur CO₂ en fonction cette fois de la masse de suies TBP/TPH présentes sur le capteur.

La figure 120 a montre le signal délivré par le capteur CO₂ dans la cellule capteurs pour des faibles quantités de suies produites par du TBP/TPH soit environ 15 µg, déposées et régénérées sur la face sensible du capteur résistif. Nous retrouvons la même forme pour le signal de concentration en CO₂ à savoir un signal stable, suivi d'une diminution lorsque la régénération débute puis une augmentation et une stabilisation de la concentration à la fin de la régénération. La différence de concentration CO₂ (ΔC) est évaluée à 19 ± 10 ppm.

Afin de connaître plus précisément la masse de suies et de tester des quantités plus importantes, nous avons aussi déposé « manuellement » des suies produites par la combustion du TBP/TPH (figure 120 b). Nous remarquons, en analysant le signal de concentration en CO₂, qu'avant la régénération le signal est stable et est autour de 1000 ppm. Juste après la régénération, nous retrouvons toujours la diminution du signal de concentration CO₂ mais celle-ci est désormais très faible comparativement au saut de concentration positif observé juste après. Nous pouvons clairement distinguer sur la figure 120 b la différence de concentration de 1856 ± 21 ppm pour une masse pesée d'environ 300 µg.

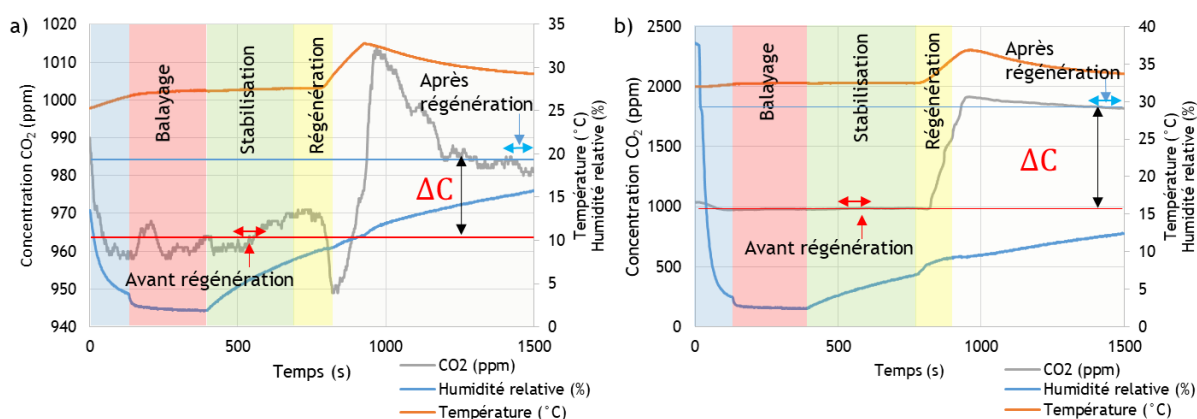


Figure 120 : Réponse du capteur CO₂ chargé à : a) 15 µg et b) 300 µg de dépôt de suies déposées « manuellement » et produites par combustion du TBP/TPH

Pour les suies du TBP/TPH plusieurs masses intermédiaires ont été également quantifiées et sont synthétisées dans la figure 121.

III.3.2.3 Calcul de masse déposée à partir de la différence des concentrations mesurées pour les suies du CAST et TBP TPH

Comme discuté auparavant, nous considérons que les suies produites par le Mini-CAST ou par la combustion du TBP/TPH sont majoritairement constituées de carbone.

Nous considérerons également en se basant sur les analyses couplées ATG/Spectroscopie de masse, que le gaz produit lors de la régénération est très majoritairement du CO₂.

Connaissant le volume de la cellule capteurs (V=0,4 ± 0,004L), nous calculons le nombre de moles de CO₂ (mol) Δn_{CO₂} générées par la combustion de la suie :

$$\Delta n_{CO_2} = \Delta C \cdot 10^{-6} \frac{V}{V_M} , \quad (70)$$

où V_M est le volume molaire d'un gaz parfait (24,5 L.mol⁻¹ à 20°C et 1,013 bar) et ΔC la différence des concentrations mesurées (en ppm) à partir des réponses du capteur CO₂.

Au cours de l'oxydation des suies, 1 mole de carbone réagit avec 1 mole de O_2 pour donner 1 mole de CO_2 . Dès lors, la masse de carbone « m_c » ayant servi, après combustion, à faire varier la concentration en CO_2 d'une valeur ΔC dans la cellule capteurs peut s'exprimer de la façon suivante :

$$m_c = \Delta C \cdot 10^{-6} \frac{V}{V_M} M \quad , \quad (71)$$

avec M masse molaire du carbone égale à $12 \text{ g}\cdot\text{mol}^{-1}$.

Les variations de pression et de température étant négligées, nous pouvons alors relier linéairement la masse de carbone m_c et la variation de concentration de CO_2 dans la cellule :

$$m_c = \Delta C a \quad (72)$$

avec $a = \frac{V}{V_M} 10^{-6} M = 0,196 \pm 0,004 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{ppm}^{-1}$.

La figure 121 montre l'évolution de la masse de carbone calculée à partir de la différence des concentrations de CO_2 et la différence des masses de suies pesées pour les suies du CAST et du TBP/TPH.

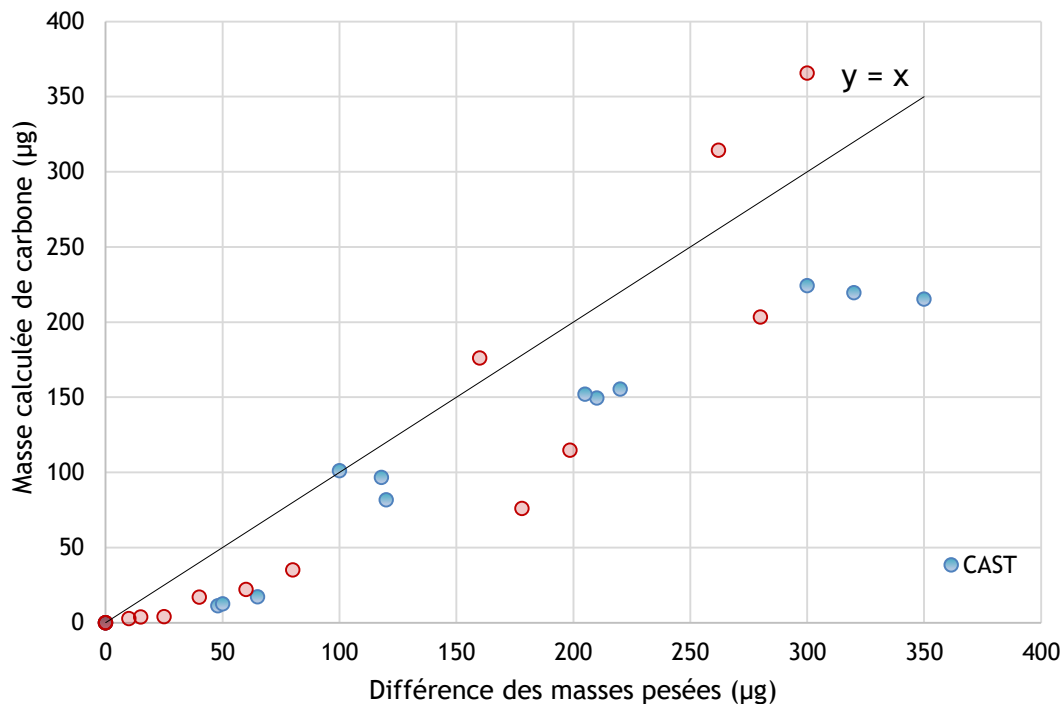


Figure 121 : Evolution de la masse calculée de carbone en fonction des différences des masses pesées pour suies du CAST et du TBP/TPH

Théoriquement cette courbe d'étalonnage devrait être la droite d'équation $y=x$, mais nous remarquons clairement que les masses calculées de carbone sont sous-estimées pour les suies du CAST comme pour les suies de TBP/TPH.

L'écart entre la courbe expérimentale et la courbe théorique pourrait être expliqué par deux hypothèses :

- la première hypothèse est que les suies du CAST et de TBP/TPH ne génèrent pas exclusivement du CO_2 lors de l'oxydation des suies. En effet, sur l'axe des abscisses sont représentées des

différences de suies pesées alors que sur les axes des ordonnées, nous calculons exclusivement la masse de carbone,

- la deuxième est une perte de CO₂ dans la cellule. Nous supposons que nous sous-estimons la quantification du CO₂ dans la cellule capteurs. Cette hypothèse est d'autant plus confirmée pour les faibles masses où nous observons une diminution de la concentration de CO₂ lorsque nous commençons la régénération.

Les suies produites par du TBP/TPH, produisent des résultats plus dispersés que dans le cas des suies du CAST. Cette dispersion pourrait être expliquée par une plus grande variabilité du processus de génération des suies dans le banc PARIS. De plus, les courbes de perte de masse en ATG (figure 108) sont plus complexes, en particulier pour les basses températures pouvant expliquer la génération de quantités différentes de CO₂ lors de la régénération. Les suies TBP/TPH présentent une composition chimique complexe. Elles contiennent en moyenne 5 % de phosphore et adsorbent plus d'eau que les suies CAST [12], ce qui pourrait aussi expliquer l'écart entre la masse calculée et celle attendue. Les échantillons produits sont de ce fait moins reproductibles.

III.3.2.4 Courbe de prédiction pour les suies du CAST et TBP TPH

Vu que les masses calculées de carbone sont sous-estimées par rapport à la courbe théorique d'étalonnage (cf. figure 121), nous proposons ci-dessous une courbe de prédiction pour les suies produites par le mini-CAST et par la combustion du TBP/TPH. Une corrélation empirique de type puissance est ainsi introduite afin de prédire les masses déposées en fonction des variations de concentrations mesurées. Au sein du jeu de données, et en considérant la dispersion pour chaque type de suies, la corrélation proposée semble être pertinente pour les deux types de suies et nous ne pouvons pas discerner les résultats issus du CAST et du TBP/TPH.

La courbe de prédiction ainsi obtenue est représentée dans la figure 122.

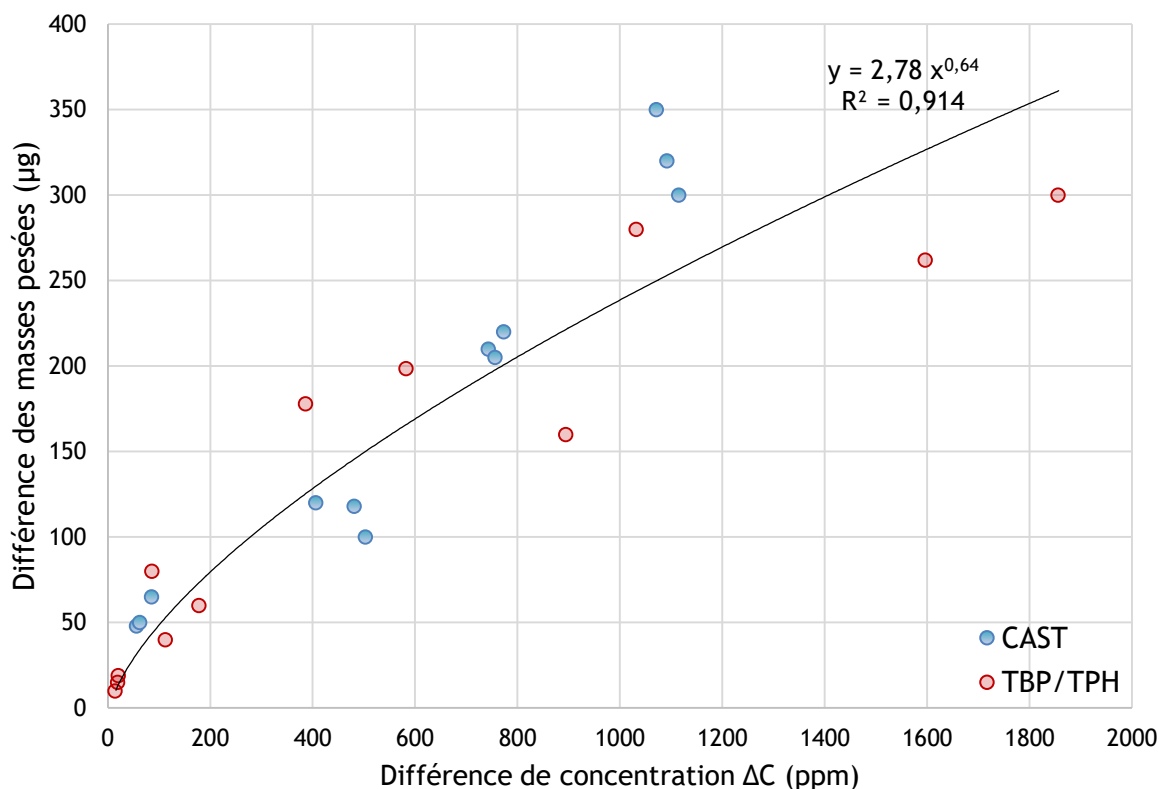


Figure 122 : Courbe de prédiction pour suies du CAST et du TBP/TPH

Les paramètres de cette courbe ont été déterminés en utilisant une fonction puissance et en appliquant une régression non-linéaire pondérée par les incertitudes à l'aide de OriginPRO 8.0.

$$m = cte \Delta C^b \quad (73)$$

avec m la différence des masses pesées de suies (masse de référence), $cte = 2,78 \pm 1,02 \mu\text{g} \cdot \text{ppm}^{-1}$ et $b = 0,64 \pm 0,05$.

L'erreur relative (μg) est égale à la différence entre la masse prédite par la corrélation empirique et la différence des masses pesées. Celle-ci est de l'ordre de 36 % constante sur toute la gamme de mesure.

III.4 COMPARAISON DES DEUX METHODES DE MESURE, CONDUCTANCE ELECTRIQUE ET EMISSION DE CO₂

Dans cette partie, nous comparons les deux méthodes de mesures décrites précédemment d'un point de vue métrologique.

Afin de confronter les deux méthodes de mesure à savoir celle basée sur la conductance électrique et celle basée sur la mesure d'émission de CO₂, nous avons appliqué la méthode reposant sur l'émission de CO₂ à un capteur non pas contaminé « manuellement » mais exposé aux suies à l'aide du banc de génération, dépôt employé pour la méthode de mesure 1 « conductance électrique ».

Ce capteur ainsi exposé pendant une durée d'une heure sur les bancs de génération de suies Mini-CAST et TBP/TPH (en appliquant une tension de polarisation de 10 V), a été ensuite régénéré dans la cellule capteurs et les différences de concentrations de CO₂ avant et après régénération ont été déterminées.

En appliquant le protocole explicité précédemment, la différence de concentration en CO₂ est calculée à partir de la réponse du capteur CO₂ pour les suies du Mini-CAST (cf. Annexe B.1). Pour cette configuration, nous obtenons une différence de concentration de 21 ± 10 ppm. En utilisant la courbe de prédiction de la masse déposée en fonction de cette différence de concentration (équation (73)), la masse déposée déterminée par la méthode « émission de CO₂ » est alors de $19,8 \pm 7,0 \mu\text{g}$.

Nous avons appliqué le même protocole explicité précédemment, pour déterminer, à l'aide du capteur CO₂, la différence de concentration en CO₂ induite par la régénération des suies produites par la combustion du TBP/TPH et déposées sur le capteur exposé sur le banc PARIS pendant 1 h (cf. Annexe B.2). Pour cette configuration, nous obtenons une différence de concentration de 17 ± 10 ppm. En utilisant la courbe de prédiction (équation 73), nous retrouvons une masse déposée déterminée par la méthode « émission de CO₂ » de $17,1 \pm 6,1 \mu\text{g}$.

Par ailleurs, les conductances obtenues à l'issue d'une exposition d'une heure du capteur aux suies mini-CAST et TBP/TPH sur leur banc respectif ont été utilisées pour déterminer les masses déposées associées à la méthode « conductance électrique ». Les masses quantifiées dans le cas de la conductance électrique sont calculées à partir de l'équation (66) en considérant une conductance atteinte après une heure d'exposition de $2440 \pm 50 \mu\text{S}$ pour les suies du CAST. Pour les suies issues de la dégradation du TBP/TPH, la première méthode de mesure est à utiliser avec précaution. En effet, après une heure d'exposition du capteur résistif aux suies en appliquant une tension de polarisation de 10 V, nous nous situons après le maximum de conductance qui influencera donc la masse déposée (masse déposée sous-estimée). Nous considérerons pour la prédiction de la masse déposée une conductance de $870 \pm 30 \mu\text{S}$.

Les masses quantifiées par les deux méthodes pour les mêmes conditions expérimentales sont résumées dans le tableau 17. Les valeurs obtenues pour le Mini-CAST apparaissent relativement proche (écart de 27 % entre la méthode « conductance électrique » et la méthode « émission de

CO₂ », à comparer à l'incertitude de 36 % associée à la valeur déterminée par la méthode CO₂). A l'opposé, les valeurs obtenues par les deux méthodes pour les suies TBP/TPH se sont pas comparables (facteur 2,5). Ce résultat est cohérent avec le fait que le signal de conductance diminue à l'issue de l'exposition du capteur aux suies.

Par contre, la comparaison entre les deux types de suies avec la méthode par émission de CO₂ donne des résultats similaires, aux incertitudes près.

Tableau 17 : Masse déposées, sur le capteur résistif exposé 1 heure aux suies du CAST et du TBP/TPH, quantifiées avec les deux méthodes de mesure

Masse quantifiée après 1h d'exposition du capteur à 10 V	Conductance électrique	Emission de CO ₂
Suies CAST	14,4 ± 1,6 µg	19,8 ± 7,0 µg
Suies TBP/TPH	6,7 ± 1,2 µg	17,1 ± 6,1 µg

Finalement, nous pouvons conclure que les deux méthodes de mesure sont complémentaires. En effet, la première méthode de mesure « conductance électrique » est utilisable pour des masses allant jusqu'à 20 µg pour les suies du CAST alors que la deuxième méthode « Mesure d'émission de CO₂ » est utilisable dans une gamme supérieure à 16 µg (correspondant à des différences de concentration en CO₂ supérieures à la limite mesurable de l'ordre de 15 ppm. De plus, cette deuxième méthode est utilisable aussi bien pour les suies du CAST que pour les suies de TBP/TPH.

CONCLUSIONS SUR L'APPLICABILITE DES DEUX METHODES DE MESURE A UNE SITUATION REELLE D'INCENDIE

Deux méthodes de mesure ont été conçues durant ce travail pour la quantification du dépôt de suies. L'objectif de ce paragraphe est de conclure par rapport à l'applicabilité de chacune des méthodes à une situation réelle d'incendie.

Les quantités de suies déposées lors d'un incendie sont généralement exprimées dans la littérature en masse déposée par unité de surface (g.m⁻² ou mg.m⁻²). Dans ce chapitre, nous avons exprimé les masses de suies déposées en µg pour des raisons de simplification (la surface sensible du capteur est d'environ 12,25 mm²) mais surtout d'étalonnage. Pour convertir, en mg.m⁻², les quantités de suies déposées en µg sur la surface sensible du capteur (12,25 mm²), il suffit alors de multiplier la quantité exprimée en µg par 81,5.

Pour juger de l'applicabilité de chacune des méthodes de mesure, il est nécessaire de respecter les spécifications identifiées lors des essais à échelle réelle. Les taux de dépôt déterminés durant ces essais varient de 0,2 à 5 µg.min⁻¹ sur la face sensible du capteur (environ 12,25 mm²). La fréquence de régénération du capteur résistif dépendra donc de sa position dans le local.

Pour la première méthode, se basant sur la mesure de conductance électrique du capteur résistif et sur la quantification de la masse déposée par analyse OC/EC, la position du capteur et donc la masse déposée conditionne le temps de régénération du capteur. Le temps entre deux régénérations (min), est calculé en utilisant l'équation (74) :

$$\text{Temps entre deux régénérations} = \frac{\text{Masse déposée}}{\text{Taux de dépôt}} \quad (74)$$

La masse déposée est une masse « cible » connue qui correspond à un seuil de conductance maximale. Ce seuil, lorsqu'il est atteint, dans la stratégie de pilotage, correspondra à un état de chargement maximal du capteur.

Si l'on considère que la gamme de mesure des suies, estimée à partir des suies CAST, s'étend uniquement jusqu'à 20 µg, soit 1630 mg.m⁻² sur la face sensible du capteur résistif, il faudra prévoir

une régénération du capteur toutes les 4 à 100 min. Dans le cas du TBP/TPH, cette gamme est restreinte à 652 mg.m⁻² d'où une régénération toutes les 1min et 36 s à 40 min au maximum. Grâce à cette méthode, nous suivons l'évolution du signal électrique du capteur et donc nous pouvons considérer que la mesure est quasi-temps réel en considérant le temps de régénération de l'ordre de 140 s (III.3.2.1).

La deuxième méthode, quant à elle, repose sur la mesure d'émission de CO₂ (concentration de CO₂ lors de la régénération) ; la mesure est possible au-delà de 16 µg soit 1304 mg.m⁻² sur la face sensible du capteur résistif. En considérant le taux de dépôt à grande échelle, le capteur devrait être régénéré après 3 min et 12 s au minimum en considérant le taux de dépôt le plus élevé 5 µg.min⁻¹. Cette deuxième méthode est adaptée au cas d'incendie mais ne délivre pas d'information temps réel.

Cette méthode peut également être utilisée pour les suies de TBP/TPH. Elle est utilisable pour des masses déposées plus importantes que celles identifiées avec la première méthode. Celle-ci est donc sensible aux masses déposées supérieures à 1304 mg.m⁻².

Nous pouvons ainsi conclure que pour la quantification à grande échelle, comme les masses déposées varient entre 1 et 25 g.m⁻² (1000 - 25 000 mg.m⁻²) la première méthode pourrait être utilisée pour les zones à faibles masses déposées (196 à 1630 mg.m⁻²), à savoir les parois en partie basse et à condition que les suies aient plutôt un comportement de type CAST. La deuxième est plutôt à privilégier dans les zones d'impact pour des quantités déposées pouvant atteindre 28 525 mg.m⁻². Les deux méthodes se recouvrant à 1304 mg.m⁻².

La figure 123 résume les gammes des masses déposées couvertes au cours de ce travail.

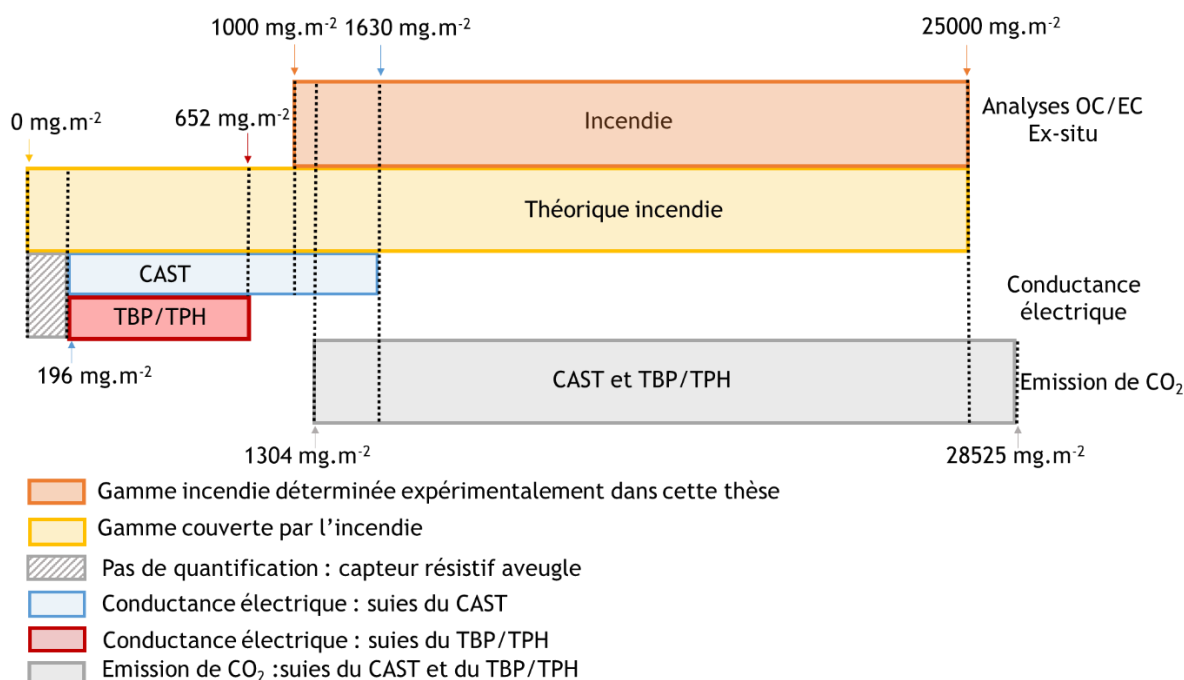


Figure 123 : Gammes des masses mesurables pour les différentes méthodes de mesure utilisées

Dans la partie II.1.2.3, nous avons vu que les épaisseurs de dépôt peuvent atteindre jusqu'à 8 mm. Or, le capteur atteint un comportement asymptotique géométrique dès lors que le dépôt dépasse 6 à 7 fois l'espace inter-électrodes (partie III.2.1.1.2) donc 120 µm. Le capteur donc doit être régénéré dès que l'épaisseur de dépôt atteint cet ordre de grandeur.

Cette situation n'a pas été observée pour le CAST (donc pour des masses déposées allant jusqu'à 1630 mg.m⁻²) mais cela peut imposer dans certaines configurations une régénération plus précoce que celle associée à la quantification.

La durée de la quantification du CO₂, dans le protocole expérimental présenté dans la partie III.3.2.1, est figée à 140 s (2 min et 20 s) mais le cycle de mesure complet dure en moyenne 1500 s (25 min). Ceci limite la période de quantification du CO₂, d'où l'intérêt d'avoir au moins deux capteurs résistifs en redondance passive.

D'autre part en condition d'incendie, les températures sur les parois sont de l'ordre de 150°C. Le capteur résistif est conçu pour tenir dans des conditions à de telles températures. En effet, lors des expériences réalisées dans le laboratoire, nous maintenons les bancs d'essai à des températures autour de 150°C proches de celles des parois et la réponse du capteur est fiable.

Finalement, les vapeurs corrosives et la présence de CO₂ sont des paramètres à prendre en compte lors de la régénération du capteur résistif. La cellule étanche préalablement balayée par de l'air propre pourrait donc être une solution pour remédier à ce problème.

Un dispositif pour extraire le capteur de suies et le régénérer dans la cellule capteurs est donc indispensable et doit être développé et installé sur les parois du local. Ce dispositif permet d'éviter toute modification du bruit de fond par le CO₂ inévitablement émis par le foyer incendie.

L'utilisation de la méthode 2 reste donc tout à fait envisageable dans les conditions incendie aux suies de TBP/TPH. Rappelons que lors de ces travaux, une première preuve de faisabilité a été faite pour cette méthode et une courbe de prédiction des masses entre 1304 mg.m⁻² et 28 525 mg.m⁻² a été établie.

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

L'objectif de ce travail de thèse étant le développement d'un dispositif de mesure pour la quantification du dépôt de suies lors d'un incendie à grande échelle dans un local, il était primordial, avant d'identifier la technologie de capteur de particules la plus pertinente, de réaliser un état de l'art complet des solutions proposées à ce jour tout en proposant des spécifications reposant sur la réalisation d'expérimentations incendie à grande échelle.

L'état de l'art mené dans le premier chapitre de cette thèse a démontré que la technologie résistive répondait partiellement à l'objectif final de la thèse. En effet, le capteur résistif présente une faible épaisseur du substrat pour ne pas perturber « l'écoulement sur la paroi ». Sa réponse, quasi temps réel ne dérive pas à haute température et est régénérable à la température d'oxydation des suies entre 600 et 700 °C.

Néanmoins, le principe physique de ce capteur repose sur les propriétés électriques des suies et il n'existe pas de consensus dans la littérature sur celles-ci. De plus, le capteur résistif est sensible à divers paramètres (tension de polarisation, nature des suies, position dans l'écoulement...), d'où la nécessité du travail mené pour mieux étudier la réponse de ce capteur et de le coupler à d'autres moyens de mesure pour la réalisation de l'objectif final de la thèse.

Avant de procéder à la fabrication des capteurs, des essais incendie à échelle réelle présentés dans le chapitre II nous ont permis de préciser les ordres de grandeurs de dépôt afin d'affiner les spécifications du capteur pour la situation industrielle précise considérée dans cette thèse.

De plus, ces essais à grande échelle et des simulations de types CFD, nous ont permis de déterminer les zones privilégiées de dépôt afin de fixer le nombre optimal et les emplacements des capteurs.

Nous avons donc spécifié les ordres de grandeur du dépôt à échelle réelle en comparant les quantités déposées à différents emplacements du local pour les deux essais réalisés dans le dispositif expérimental DIVA à Cadarache. La gamme attendue de dépôt pour l'incendie pour l'incendie est comprise entre 0 et 25 000 mg.m⁻².

Les taux de dépôt attendus (à partir des essais incendies) sur la surface sensible du capteur varient de 0,2 à 5 µg.min⁻¹.

Les épaisseurs de dépôt peuvent atteindre jusqu'à 8 mm. Ces spécifications nous invitent donc à envisager la régénération du capteur résistif au cours de l'essai incendie.

Dans la seconde partie du chapitre II, des simulations numériques ont été réalisées et ont confirmé l'existence de « singularités » de dépôt sur les parois suite à un incendie. Une méthodologie tenant compte de ces disparités a été proposée. Elle permet ainsi de mettre en œuvre un nombre raisonnable de capteurs qui pourront être déployés lors de futurs essais incendie. En utilisant une telle approche numérique et en déployant 24 capteurs dans le local, les écarts relatifs à la valeur moyenne de dépôt sur les différentes parois sont attendus inférieurs à 5 %, confirmant la pertinence d'une telle solution métrologique.

Le capteur résistif est donc compatible avec ces spécifications incendie et est suffisamment « bon marché » pour permettre d'en installer un nombre significatif sur les parois du local lors d'un incendie. Afin de permettre une pleine exploitation d'un tel réseau de capteurs de dépôt, il est nécessaire que les capteurs déployés présentent des caractéristiques similaires. Pour ce faire, une méthode de « contrôle » se basant sur la mesure de la constante de cellule a été proposée. Elle a permis de qualifier le processus de fabrication des capteurs et nous a permis de conclure que ce dernier est maîtrisé et que les réponses des capteurs résistifs sont comparables.

La réponse de ces capteurs étant conditionnée par les propriétés des suies, un banc de génération de dépôt et de qualification des suies a été alors développé pour deux types de suies (des suies de référence générées par un Mini-CAST et des suies générées suite à la combustion d'un solvant industriel TBP/TPH). La génération étant maîtrisée pour les deux types de suies, les réponses du capteur résistif ont été étudiées à différentes tensions de polarisation. Pour une polarisation de 10 V,

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

la réponse du capteur résistif aux suies du CAST et du TBP/TPH s'est avérée répétable. Néanmoins, un comportement encore non expliqué à ce jour a été observé pour la réponse du capteur aux suies issues de la dégradation du TBP/TPH (décroissance de la conductance en fin d'essai). Ce comportement peut ainsi limiter l'utilisation du capteur lors de la mesure de la conductance.

Ensuite, une première méthode de quantification de la masse de suies déposée, reposant sur la mesure de cette conductance, a été développée. Un protocole spécifique a été mis en place et qualifié pour mesurer la masse de suies déposée (estimée par analyse thermo-optique) en fonction de la conductance finale suite à l'exposition du capteur aux suies. Cette méthode peut quantifier des masses déposées jusqu'à 20 µg. A notre connaissance, les développements actuels sont les premiers qui proposent une quantification aussi aboutie des particules carbonées déposées sur la surface du capteur.

Le protocole développé a été également utilisé pour démontrer que la tension de polarisation entre 0,1 et 20 V n'a pas d'effet mesurable sur la masse déposée sur la surface sensible du capteur pendant 600 s. Le capteur résistif est donc non intrusif mais la tension de polarisation a cependant une influence significative sur la structure du dépôt formé à la surface du capteur.

Cette différence de structure du dépôt a été confirmée par l'évolution différente de la conductance en fonction du temps pour différentes tensions de polarisation appliquées. Trois régimes ont été observés selon la tension de polarisation : « percolation pure » (tension de polarisation inférieure à 0,1 V), « intermédiaire » pour une tension comprise entre 0,1 et 6 V et « dendritique » pour une tension supérieure à 6 V. En régime de « percolation pure » la structure du dépôt de suies n'est pas contrôlée par le champ électrique et s'organise aléatoirement sur la surface sensible du capteur. Pour les tensions élevées (régime « dendritique »), l'influence du champ électrique sur la structure du dépôt est prépondérante et le dépôt de suies se présente sous forme de dendrites parallèles au champ électrique.

Le « régime intermédiaire » est caractérisé par des augmentations progressives de conductance associées à un dépôt homogène de particules de suies sur toute la surface du capteur. Dans ce régime, le champ électrique n'est pas suffisant pour former des ponts de suies parfaitement alignés à l'intérieur des électrodes mais influe cependant notablement sur la structure du dépôt.

Les deux régimes extrêmes, avec des tensions de polarisation de 10 V et 0,1 V, ont in-fine été sélectionnés pour les essais d'étalonnage aux deux types de suies décrits ci-dessus.

Une courbe d'étalonnage a été obtenue pour les suies du CAST et pour une tension de polarisation de 10 V, alors que la dispersion des résultats obtenus à 0,1 V ne nous a pas permis de proposer une telle courbe d'étalonnage. Nous avons également identifié deux zones lors de l'étalonnage à 10 V. Une zone aveugle pour laquelle le dépôt de suies ne s'accompagne pas d'une évolution significative de la conductance variant de 0 à 2,4 µg puis une deuxième zone où le capteur a une sensibilité constante à des masses de suies déposées variant de 2,4 à 20 µg sur la surface sensible du capteur de 12,25 mm². Pour les suies issues de la dégradation du TBP/TPH, les résultats se sont avérés plus dispersés. Néanmoins, nous avons pu identifier la aussi une « zone aveugle », une zone sensible du capteur mais sur une gamme de masses plus restreinte entre 2,4 et 8 µg du fait de l'évolution non expliquée de la conductance, impliquant une troisième zone appelée « zone proche saturation ». Les épaisseurs du dépôt formé pour les suies du CAST varient entre 2,4 et 19,8 µm. Elles sont donc très inférieures aux épaisseurs nécessaires pour l'atteinte d'une limite asymptotique géométrique (6 fois la largeur inter-électrode, soit 120 µm). Grâce à cette première méthode, une courbe de prédiction de la masse déposée et de son incertitude a été proposée en fonction de la conductance mesurée par le capteur résistif.

Il s'agit d'une première étape avant la quantification quasi-temps réel des dépôts de suies sur les parois lors d'incendies.

La deuxième méthode de quantification repose sur la mesure de l'émission du CO₂ lors de la régénération des suies. Des analyses thermogravimétriques couplées à l'analyse des gaz émis par spectrométrie de masse, ont permis de révéler deux informations principales. D'une part la

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

combustion des suies CAST et TBP/TPH s'achève à une température comprise entre 650 et 700 °C et d'autre part, le principal gaz émis lors de la combustion est le CO₂. Dès lors, l'utilisation d'un capteur de CO₂ pour la mesure de la concentration en espèces gazeuse émises suite à la combustion des suies déposées sur la face sensible du capteur résistif est apparue une solution pertinente.

Cette deuxième méthode consiste à déposer « manuellement » des suies du CAST et du TBP/TPH sur la face sensible du capteur. Celles-ci sont oxydées à l'aide de la résistance chauffante sérigraphiée sur la face arrière du capteur. Le protocole expérimental dure 1500 s en moyenne et la durée de régénération est fixée à 140 s. La différence de concentration de CO₂ est alors mesurée avant et après la régénération, avec un capteur CO₂ préalablement étalonné. Nous avons démontré une preuve de faisabilité de cette méthode. Elle est utilisée pour une gamme de masses déposées plus étendue que celles identifiées avec la première méthode. Pour cette deuxième méthode, nous avons également proposé une courbe de prédiction pour des masses déposées qui varient entre 16 et 350 µg en fonction de la concentration en CO₂ mesurée.

Finalement, nous avons validé la complémentarité des deux méthodes sur les suies du CAST, en exposant cette fois le capteur résistif dans le banc de génération de suies pendant une heure en appliquant une tension de polarisation de 10 V. Les deux méthodes se recouvrent en considérant les incertitudes associées à chacune d'elles.

Nous avons également discuté de l'applicabilité de ces deux méthodes de mesure à une situation réelle d'incendie et la gamme recouverte en masse est très large et adaptée à l'incendie. Afin de tester les capteurs résistifs à grande échelle, il est crédible d'installer 24 capteurs en prenant en compte des écarts relatifs à la valeur moyenne de dépôt sur les différentes parois inférieurs à 5 %, car l'erreur relative de la deuxième méthode de mesure est évaluée à 36 %. L'objectif de quantification « quasi temps réel » est donc presque atteint et plusieurs perspectives découlent de ce travail.

Perspectives de l'étude

Les perspectives de ce travail peuvent être structurées en 5 grandes orientations.

1. Il serait intéressant d'adopter une approche plus théorique pour modéliser la formation des dépôts sur le capteur et ainsi essayer de prédire la réponse du capteur à partir des caractéristiques des suies et du processus de dépôt en intégrant la conductivité électrique (composition de suies), l'effet de la géométrie du capteur sur sa sensibilité, la modélisation de l'effet asymptotique et de la formation du dépôt en fonction de la tension de polarisation, l'effet du nombre de points de contact entre les particules primaires, de la température et de l'humidité.
2. Pour cette orientation, les perspectives sont liées à la première méthode de mesure « Conductance électrique ». Vu que nous observons une diminution de la conductance en fin de l'exposition du capteur résistif aux suies de TBP/TPH en appliquant une tension de polarisation de 10 V, il serait intéressant de tester la réponse du capteur résistif aux suies du TPH et celles du TBP séparément afin de mieux comprendre le comportement du capteur résistif vis-à-vis de ces suies.
Il est également possible d'augmenter l'espace inter-électrodes afin de diminuer la sensibilité du capteur résistif et ainsi quantifier avec la première méthode de mesure des masses plus importantes. Le but est de couvrir une plus large gamme de masses déposées avec la première méthode de mesure.
3. Pour cette orientation, les perspectives sont liées à la deuxième méthode de mesure « Emission de CO₂ ». A ce jour, elle n'est pas absolue car les masses déposées mesurées expérimentalement sont sous-estimées par rapport à celles pesées avec la balance. Afin d'améliorer ces mesures, des simulations CFD pourront être faites pour optimiser la distance entre le capteur résistif et le capteur de gaz (positionnement dans la cellule capteurs) et ainsi corriger ce point. Afin de mesurer de plus faibles concentrations de CO₂, nous pourrions

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

miniaturiser la cellule capteurs développée. En effet, la diminution du volume de la cellule permet d'augmenter la concentration en CO_2 donc la sensibilité du capteur CO_2 et éventuellement la limite de détection en dessous de $16 \mu\text{g}$.

4. Pour cette orientation, les perspectives sont en lien avec l'applicabilité du capteur à l'incendie. Afin d'augmenter en échelle de TRL (Technology Readiness Level) et appliquer le dispositif développé à un cas réel d'incendie, il est préconisé de se baser sur les calculs numériques pour placer les capteurs résistifs. En effet, ces calculs nous ont permis de fixer le nombre et les emplacements des capteurs résistifs. Pour éviter la perte d'informations lors de l'utilisation de la première méthode de mesure, deux capteurs résistifs au minimum doivent être en redondance passive (l'un est exposé aux suies, l'autre est régénéré).

Finalement, un système d'échantillonnage adapté devra permettre d'avoir une mesure absolue en ligne. Une solution consisterait à positionner le capteur de suies en surface de paroi sans modifier l'« écoulement » des suies à son voisinage pendant la collecte, puis de l'isoler dans une chambre de mesure pour l'analyse des gaz issus de la régénération du capteur (cf. figure 124).

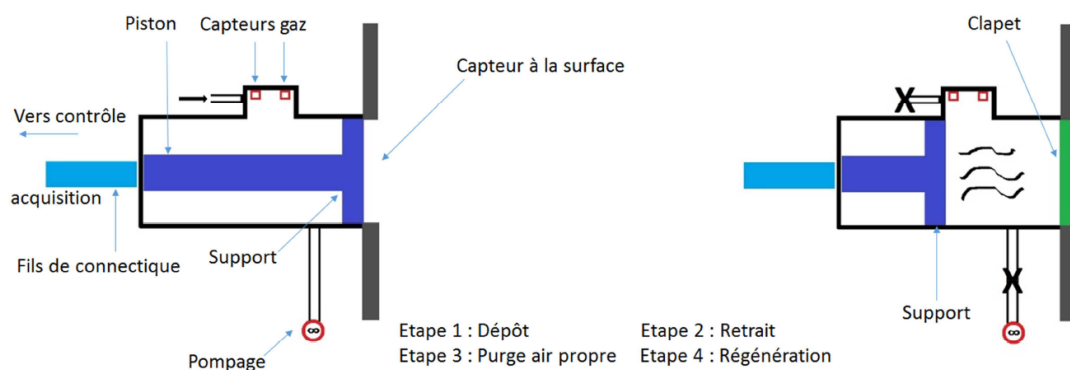


Figure 124: Prototypage du principe du dispositif d'échantillonnage

Le protocole de mesure serait composé de 4 étapes :

- i) exposition du capteur aux suies sur la paroi. Pour la quantification, nous pouvons fixer un critère de temps d'exposition ou de seuil de conductance,
 - ii) une fois ce critère atteint, il convient d'isoler le capteur dans la cellule étanche et la balayer avec de l'air propre afin de renouveler l'air,
 - iii) par la suite, le capteur est régénéré pendant 140 s,
 - iv) pour terminer, la différence de concentration en CO_2 est mesurée avant et après la régénération.
5. Il serait judicieux de coupler avec le capteur résistif (quantification du dépôt), un thermocouple et un capteur permettant de précipiter les particules à l'aide d'un champ de température maîtrisé afin d'accéder à la concentration en phase aérosol. La comparaison de ces informations nous permettra alors de déterminer la vitesse de dépôt des particules sur les surfaces considérées.

Le dispositif développé pourrait finalement être appliqué à d'autres domaines identifiés dans l'introduction générale de ce mémoire.

Il pourrait également être utilisé pour des mesures environnementales mais le capteur résistif, dans ce cas, devrait avoir une sensibilité plus élevée. En effet, la méthode « conductance électrique » pourrait être envisageable pour réaliser des études sur la mise en suspension (suivre la baisse de conductance induite par la mise en suspension du dépôt des particules sur le capteur résistif).

REFERENCES

REFERENCES

- [1] O. Brunel, F. Duault, J. Lavy, Y. Creff, and B. Youssef, "Smart Soot Sensor for Particulate Filter OBD," *SAE Int. J. Passeng. Cars - Electron. Electr. Syst.*, 2013, doi: 10.4271/2013-01-1334.
- [2] L. Ferrero *et al.*, "On the synergy between elemental carbon and inorganic ions in the determination of the electrical conductance properties of deposited aerosols: Implications for energy applications," *Appl. Sci.*, vol. 10, no. 16, Aug. 2020, doi: 10.3390/app10165559.
- [3] T. Gelain, J. Richard, and F. Khanchali, "Evaluation des modèles de transport et de dépôt implémentés dans les codes OD et CFD pour des conduits à échelle industrielle," in *Congrès Français sur les aérosols*, 2018.
- [4] S. Bourrous *et al.*, "Measurement and modeling of pressure drop of HEPA filters clogged with ultrafine particles," *Powder Technol.*, vol. 289, no. 109, p. 117, 2016, doi: 10.1016/j.powtec.2015.11.020.
- [5] D. Grondin, S. Geara, P. Breuil, J. P. Viricelle, and P. Vernoux, "Influence of Electrodes Polarization on the Response of Resistive Soot Sensor," in *Procedia Engineering*, 2016, doi: 10.1016/j.proeng.2016.11.124.
- [6] R. Campbell, "Fires in Industrial and Manufacturing Properties," 2018.
- [7] V.-M. Mocho and F.-X. Ouf, "Clogging of industrial pleated high efficiency particulate air (HEPA) filters in the event of fire," *Nucl. Eng. Des.*, vol. 241, pp. 1785-94, 2011.
- [8] D. Thomas, F. X. Ouf, F. Gensdarmes, S. Bourrous, and L. Bouilloux, "Pressure drop model for nanostructured deposits," *Sep. Purif. Technol.*, 2014, doi: 10.1016/j.seppur.2014.09.032.
- [9] P. Fragkiadoulakis, S. Geivanidis, and Z. Samaras, "Modeling a resistive soot sensor by particle deposition mechanisms," *J. Aerosol Sci.*, 2018, doi: 10.1016/j.jaerosci.2018.06.005.
- [10] A. Reynaud, M. Leblanc, S. Zinola, P. Breuil, and J.-P. Viricelle, "Responses of a Resistive Soot Sensor to Different Mono-Disperse Soot Aerosols," *Sensors*. 2019, doi: 10.3390/s19030705.
- [11] A. Mensch and T. Cleary, "A Soot Deposition Gauge for Fire Measurements," *NIST Tech. Note 1985*, 2018, doi: 10.6028/NIST.TN.1985.
- [12] L. Lintis, "Etude des mécanismes de sorption de l'eau sur des aérosols émis lors d'incendies: identification des paramètres physico-chimiques d'influence," Université de Lorraine, 2018.
- [13] F. Ouf, "Impact des aérosols émis lors d'un incendie sur le confinement des installations nucléaires," 2016.
- [14] A. Tewarson, *Generation of heat and chemical compounds in fire*, 3rd Editio. Massachusetts: National Fire Protection Association, Quincy, 2002.
- [15] G. W. Mulholland, *Smoke Production and Properties*, SFPE Handb. National Fire Protection Association, Quincy, 2002.
- [16] J. M. Such, C. Casselman, L. Rigollet, H. Pretrel, and L. Audouin, "Recent results from experimental research on fire," 2002.
- [17] J. M. Such, C. Casselman, and J. C. Laborde, "Synthèse du PIC Feux 1996-2002," IRSN Cadarache, 2003.

REFERENCES

- [18] F. Babik, C. Lapuerta, J. Latché, S. Suard, and D. Vola, "Modélisation et études numériques des incendies en milieu confiné et ventilé : le logiciel ISIS," pp. 173-180, 2007.
- [19] F.-X. Ouf, V.-M. Mocho, S. Pontreau, Z. Wang, D. Ferry, and J. Yon, "Physicochemical properties of aerosol released in the case of a fire involving materials used in the nuclear industry," *J. Hazard. Mater.*, vol. 283, pp. 340-349, 2015, doi: 10.1016/j.jhazmat.2014.09.043.
- [20] LNE, "Rapport d'essai : Dossier B120143 - Document CEMAT/104," 2005.
- [21] M. McNamee, G. Marlair, B. Truchot, and B. Meacham, "Research Roadmap: Environmental Impact of Fires in the Built Environment," 2020.
- [22] P. Nerisson, O. Simonin, L. Ricciardi, A. Douce, and J. Fazileabasse, "Improved CFD transport and boundary conditions models for low-inertia particles," *Comput. Fluids*, 2011, doi: 10.1016/j.compfluid.2010.08.013.
- [23] P. Nerisson, O. Simonin, L. Ricciardi, A. Douce, and J. Fazileabasse, "Improved CFD transport and boundary conditions models for low-inertia particles," *Comput. Fluids*, vol. 40, no. 1, pp. 79-91, Jan. 2011, doi: 10.1016/j.compfluid.2010.08.013.
- [24] W. C. Hinds, *Aerosol technology: Properties, Behavior, and measurement of Airborne Particles*, Second. New York: Wiley Interscience, 1999.
- [25] E. Brugière, "Le spectromètre thermophorétique circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suies de morphologie fractale," 2012.
- [26] L. Ait Ali Yahia, E. Gehin, and B. Sagot, "Application of the Thermophoretic Annular Precipitator (TRAP) for the study of soot aggregates morphological influence on their thermophoretic behaviour," *J. Aerosol Sci.*, vol. 133, no. 40-51, 2017, doi: 10.1016/j.jaerosci.2017.07.018.
- [27] J. Fontan, "Les particules polluantes de l'air : de quoi s'agit-il?," *Encyclopédie de l'Environnement*. 2020.
- [28] B. D. Cohan, P. B. Sunderland, J. A. Milke, and P. E. J. Floyd, "Verification and validation of the soot deposition model in fire dynamics simulator," 2010.
- [29] D. Gottuk, C. Mealy, and J. Floyd, "Smoke transport and FDS validation," in *Fire Safety Science*, 2008, doi: 10.3801/IAFSS.FSS.9-129.
- [30] A. Hamins *et al.*, "Report of Experimental Results for the International Fire Model Benchmarking and Validation Exercise #3," 2003.
- [31] S. Riahi, "Development of Tools for Smoke Residue and Deposition Analysis," the Faculty of The School of Engineering and Applied Science of The George Washington University in partial satisfaction of the requirements for the The George Washington University, 2012.
- [32] L. Decoster, "Contribution à l'étude et à la modélisation du dépôt des suies lors d'un incendie," Université d'Aix-Marseille, 2017.
- [33] L. Talbot, R. K. Cheng, R. W. Schefer, and D. R. Willis, "Thermophoresis of Particles in a Heated Boundary Layer," *J. Fluid Mech*, vol. 101, pp. 737-758, 1980.
- [34] P. Nerisson, "Modélisation du transfert des aérosols dans un local ventilé," Thèse de l'université de Toulouse, 2009.

REFERENCES

- [35] M. R. Sippola and W. W. Nazaroff, "Particle deposition from turbulent Flow : Review of Published research and Its Applicability to Ventilation Ducts in Commercial Buildings," 2002.
- [36] Ulrich Schneider, "Introduction to fire safety in nuclear power plants," *Nucl. Eng. Des.* , vol. 125, pp. 289-295, 1991.
- [37] J. A. Milloy, "Nuclear Power Plant Fire Protection - Ventilation (Subsystems Study Task 1)," Washington, USA, 1979.
- [38] A. Bellivier, M. Vigreux, and F.-X. Ouf, "Analysis of Soot deposit for post fire investigation : comparison between full scale experiment and theoretical approach," *Eur. Aerosol Conf.* , 2012.
- [39] A. M. Dillner, C. Stein, S. M. Larson, and R. Hitztenberger, "Measuring the mass extinction efficiency of elemental carbon in rural aerosol," *Aerosol Sci. Technol.* , vol. 35, no. 6, pp. 1009-1021, 2001, doi: 10.1080/027868201753306778.
- [40] V. Gheorghiu, Ueberschär, and G. Zikoridse, "Soot sensor for diesel emission onboard control systems," 2006.
- [41] D. Bilby, D. J. Kubinski, and M. M. Maricq, "Current amplification in an electrostatic trap by soot dendrite growth and fragmentation: Application to soot sensors," *J. Aerosol Sci.* , 2016, doi: 10.1016/j.jaerosci.2016.03.003.
- [42] M. M. Maricq and D. Bilby, "The impact of voltage and flow on the electrostatic soot sensor and the implications for its use as a diesel particulate filter monitor," *J. Aerosol Sci.* , vol. 124, pp. 41-53, Oct. 2018, doi: 10.1016/j.jaerosci.2018.07.002.
- [43] L. Ntziachristos, S. Amanatidis, and Z. Samaras, "Applicabilion of the Pegasor Particle Sensor to Measure Particle Number, Mass and PM Emissions," *SAE Tech. Pap.* . , 2013, doi: 10.4271/2013-01-1561.
- [44] S. Amanatidis, M. M. Maricq, L. Ntziachristos, and Z. Samaras, "Measuring number, mass, and size of exhaust particles with diffusion chargers: The dual Pegasor Particle Sensor," *J. Aerosol Sci.* , vol. 92, no. 1-15, 2016.
- [45] I. Paprotny, F. Doering, P. A. Solomon, R. M. White, and L. A. Gundel, "Microfabricated air-microfluidic sensor for personal monitoring of airborne particulate matter: Design, fabrication, and experimental results," *Sensors Actuators A Phys.* , vol. 201, pp. 506-516, 2013.
- [46] E. Zampetti *et al.* , "Exploitation of an integrated microheater on QCM sensor in particulate matter measurements," *Sens. Actuators A Phys* , no. 264, pp. 205-211, 2017.
- [47] A. . Zielinski, P. . Gallimore, P. . Griffiths, R. Jones, A. . Seshia, and M. Kalberer, "Measuring Aerosol Phase Changes and Hygroscopicity with a Microresonator Mass Sensor," *Anal. Chem.* , vol. 90, pp. 9716-9724, 2018.
- [48] U. Soysal, E. Géhin, E. Algré, B. Berthelot, G. Da, and E. Robine, "Aerosol mass concentration measurements: Recent advancements of real-time nano/micro systems," *Journal of Aerosol Science* . 2017, doi: 10.1016/j.jaerosci.2017.09.008.
- [49] W. Hao, J. l. Liu, M. h. Liu, and S. T. HE, "Development of a new surface acoustic wave based PM2.5 monitor," *Symp. Piezoelectricity, Acoust. Waves, Device Appl.* , pp. 52-55, 2014.
- [50] S. Thomas, M. Cole, F. . Villa-López, and J. Gardner, "High frequency surface acoustic wave resonator-based sensor for particulate matter detection," *Sens. Actuators A Phys* , vol. 244,

REFERENCES

- pp. 138-145, 2016.
- [51] L. Bo *et al.*, "Surface acoustic wave devices for sensor applications.," *J. Semicond.*, vol. 37, no. 2, 2016.
- [52] J. Liu, W. Hao, M. Liu, Y. Liang, and S. He, "applied sciences A Novel Particulate Matter 2 . 5 Sensor Based on Surface Acoustic Wave Technology," 2018, doi: 10.3390/app8010082.
- [53] I. Paprotny, F. Doering, P. A. Solomon, R. M. White, and L. A. Gundel, "Microfabricated air-microfluidic sensor for personal monitoring of airborne particulate matter: Design, fabrication, and experimental results," *Sensors Actuators, A Phys.*, vol. 201, pp. 506-516, Oct. 2013, doi: 10.1016/j.sna.2012.12.026.
- [54] S. Mahon, R. Aigner, T. Semiconductor, B. St, and B. C. Bend, "Bulk Acoustic Wave Devices - Why , How , and Where They are Going (Film Bulk Acoustic Resonator)," pp. 15-18, 2007.
- [55] J. Zhao, M. Liu, W. Wang, and J. Xie, "Airborne particulate matter classification and concentration detection based on 3D printed virtual impactor and quartz crystal microbalance sensor," in *Proceedings of the IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS)*, 2016, doi: 10.1109/MEMSYS.2016.7421756.
- [56] D. Liang, W.-P. Shih, C.-S. Chen, and C.-A. Dai, "A miniature system for separating aerosol particles and measuring mass concentrations," *Sensors*, vol. 10, no. 4, pp. 3641-3654, 2010.
- [57] L. Rodriguez-Pardo, J. Farina, C. Gabrielli, R. Brendel, and H. Perrot, "Sensitivity, noise, and Resolution in QCM sensors in liquid media," *IEEE Sens. J.*, vol. 5, no. 6, pp. 1251-1257, 2006.
- [58] L. P. V. Wright, "A review of SAW resonator filter technology," *IEEE Ultrason*, pp. 29-38, 1992.
- [59] W. T. Hsu, "Recent Progress In Silicon Memos Oscillators," *Disq. Inc.*, 2008.
- [60] A. Hajjam, J. C. Wilson, A. Rahafrooz, and S. Pourkamali, "Fabrication and characterization of resonant aerosol particle mass sensors," in *Proceedings of the IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS)*, 2010, doi: 10.1109/MEMSYS.2010.5442343.
- [61] A. . Zielinski, A. Prasad, A. . Seshia, M. Kalberer, and R. Jones, "Effects of spatial sensitivity on mass sensing with bulk acoustic mode resonators," *Sens. Actuators A Phys*, vol. 236, pp. 369-379, 2015.
- [62] S. Thomas, M. Cole, F. H. Villa-López, and J. W. Gradner, "High frequency surface acoustic wave resonator-based sensor for particulate matter detection," *Sensors Actuators A Phys.*, 2016.
- [63] A. Hajjam, A. Rahafrooz, J. C. Wilson, and S. Pourkamali, "Thermally actuated MEMS resonant sensors for mass measurement of micro/nanoscale aerosol particles," in *Proceedings of IEEE Sensors*, 2009, doi: 10.1109/ICSENS.2009.5398557.
- [64] M. Chellasivalingam, H. Imran, M. Pandit, A. M. Boies, and A. A. Seshia, "Weakly Coupled Piezoelectric MEMS Resonators for Aerosol Sensing," *Sensors (BaSwitzerland)*, vol. 20, no. 11, Jun. 2020, doi: 10.3390/s20113162.
- [65] Y. Wang, J. Li, H. Jing, Q. Zhang, J. Jiang, and P. Biswas, "Laboratory Evaluation and Calibration of Three Low-Cost Particle Sensors for Particulate Matter Measurement," *Aerosol Sci. Technol.*, vol. 49, no. 11, pp. 1063-1077, Nov. 2015, doi: 10.1080/02786826.2015.1100710.
- [66] D. A. Lundgren and D. W. Cooper, "Effect of humidify on light-scattering methods of measuring

REFERENCES

- particle concentration,” *J. Air Pollut. Control Assoc.*, vol. 19, no. 4, pp. 243-247, 1969, doi: 10.1080/00022470.1969.10466482.
- [67] J. Yon *et al.*, “Effects of multiple scattering on radiative properties of soot fractal aggregates,” *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 2014, doi: 10.1016/j.jqsrt.2013.08.022.
- [68] C. Caumont-Prim, J. Ô. Yon, A. Coppalle, F. X. Ouf, and K. Fang Ren, “Measurement of aggregates’ size distribution by angular light scattering,” *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, 2013, doi: 10.1016/j.jqsrt.2012.07.029.
- [69] R. Di Sante, “Laser extinction technique for measurements of carbon particles concentration during combustion,” *Opt. Lasers Eng.*, 2013, doi: 10.1016/j.optlaseng.2013.01.019.
- [70] M. R. Kholghy *et al.*, “Comparison of multiple diagnostic techniques to study soot formation and morphology in a diffusion flame,” *Combust. Flame*, 2017, doi: 10.1016/j.combustflame.2016.11.012.
- [71] G. Hagen *et al.*, “Capacitive soot sensor for diesel exhausts,” *Sensors Actuators, B Chem.*, 2016, doi: 10.1016/j.snb.2016.05.006.
- [72] A. Kondo *et al.*, “New Particulate Matter Sensor for On-Board Diagnosis,” in *15th ETH-Conference on Combustion Generated Nanoparticles*, 2011.
- [73] D. Grondin, “Développement d’un capteur de suies pour application automobile - Etude des paramètres clés affectant sa réponse,” Université de Lyon, 2017.
- [74] E. Baars, H. Schittenhelm, A. Genssle, B. Kamp, and T. Ochs, “Particulate matter sensor for on board diagnosis (OBD) of diesel particulate filters (DPF),” Stuttgart, Germany, 2010.
- [75] P. Bartscherer and R. Moos, “Improvement of the sensitivity of a conductometric soot sensor by adding a conductive cover layer,” *J. sensors Sens. Syst.*, vol. 2, pp. 95-102, 2013, doi: 10.5194/jsss-2-95-2013.
- [76] M. Feulner *et al.*, “Conductometric sensor for soot mass flow detection in exhausts of internal combustion engines,” *Sensors (Switzerland)*, 2015, doi: 10.3390/s151128796.
- [77] P. Fragkiadoulakis, D. Mertzis, S. Geivanidis, and Z. Samaras, “Prediction of resistive soot sensor behaviour in diesel exhaust via 3D simulation of soot deposition,” in *6th BETA CAE International Conference*, 2015.
- [78] G. Hagen *et al.*, “Determination of the soot mass by conductometric soot sensors,” in *Procedia Engineering*, 2014, doi: 10.1016/j.proeng.2014.11.646.
- [79] Stoneridge, “Soot Sensor.” [Online]. Available: <https://www.stoneridge.com/products/soot/>.
- [80] E. Ivers-Tiffée, K. H. Härdtl, W. Menesklou, and J. Riegel, “Principles of solid state oxygen sensors for lean combustion gas control,” 2001.
- [81] A. Malik *et al.*, “A potential soot mass determination method from resistivity measurement of thermophoretically deposited soot,” *Aerosol Sci. Technol.*, 2011, doi: 10.1080/02786826.2010.533214.
- [82] D. Lutic *et al.*, “Detection of soot using a resistivity sensor device employing thermophoretic particle deposition,” *J. Sensors*, 2010, doi: 10.1155/2010/421072.
- [83] R. Achhammer *et al.*, “Soot sensor,” 2014.
- [84] L. Dorfmueller *et al.*, “Resistive particle sensors having measuring electrodes,” 2011.

REFERENCES

- [85] R. Strohmaier *et al.*, “Sensor for detecting particles,” 2009.
- [86] A. Reynaud, “Compréhension et modélisation des mécanismes de captation des aérosols par couplage des phénomènes aérodynamiques et électriques,” Université de Lyon, 2019.
- [87] J. S. Park, H. C. Cho, and S. H. Yi, “NDIR CO₂ gas sensor with improved temperature compensation,” in *Procedia Engineering*, 2010, doi: 10.1016/j.proeng.2010.09.108.
- [88] Sensirion, “SCD30 is More Than Just the NDIR CO₂ Sensor,” 2018. [Online]. Available: <http://www.soselectronic.com/articles/sensirion/scd30-is-more-than-just-the-ndir-co2-sensor-2152>.
- [89] Asch Georges and B. Pousse, *Les capteurs en instrumentation industrielle*, 5ème édit. Malakoff, 1998.
- [90] D. Rüffer, F. Hoehne, and J. Bühler, “New digital metal-oxide (MOx) sensor platform,” *Sensors (Switzerland)*, vol. 18, no. 4, 2018, doi: 10.3390/s18041052.
- [91] R. Lalauze, *Capteurs chimiques, biocapteurs et biopuces*. 2012.
- [92] A. Seiyama, T. Kato, K. Fujiishi, and M. Nagatani, “A New Detector for Gaseous Components Using Semiconductive Thin Films,” *Anal. Chem.*, vol. 34, no. 11, pp. 1502-1503, 1962.
- [93] G. F. Fine, L. M. Cavanagh, A. Afonja, and R. Binions, “Metal Oxide Semi-Conductor Gas Sensors in Environmental Monitoring,” *Sensors*, vol. 10, no. 6, pp. 5469-5502, 2010.
- [94] M. Hurley, *SFPE Handbook of fire protection engineerin*, 5th ed. springer, 2002.
- [95] A. Petzold *et al.*, “Recommendations for reporting black carbon measurements,” *Atmos. Chem. Phys.*, vol. 13, no. 16, pp. 8365-8379, 2013, doi: 10.5194/acp-13-8365-2013.
- [96] H. Bockhorn, “Soot Formation in Combustion : Mecahanisms and Models,” p. 596, 1994.
- [97] H. Richter and J.-B. Howard, “Formation of polycyclic aromatic hydrocarbons and their growth to soot - a review of chemical reaction pathways,” *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 26, pp. 565-608, 2000.
- [98] I. M. Kennedy, “Models of Soot Formation and Oxydation ». Progress in Energy and Combustion Science,” *Natl. Fire Prot. Assoc.*, 1997.
- [99] G. A. Kelesidis, E. Goudeli, and S. E. Pratsinis, “Morphology and mobility diameter of carbonaceous aerosols during agglomeration and surface growth,” *Carbon N. Y.*, vol. 121, pp. 527-535, 2017, doi: 10.1016/j.carbon.2017.06.004.
- [100] O. I. Smith, “Fundamentals of soot formation in flames with application to diesel engine particulate emissions,” *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 7, pp. 275-291, 1981.
- [101] W. Bartok and A. Sarofim, *Fossile Fuel Combustion*. USA: John Wiley & Sons, 1991.
- [102] Ü. Ö. Köylü, “Fractal and projected structure properties of soot aggregates,” *Combust. Flame*, vol. 100, pp. 621-633, 1995.
- [103] C. M. Megaridis and R. A. Dobbins, “Morphological description of flame-generated materials,” *Combust. Sci. Technol.*, vol. 71, pp. 95-109, 1990.
- [104] T. A. Witten and C. M. Sander, “Diffusion limited aggregation, a kinetic critical phenomenon,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 47, pp. 1400-1403, 1981.
- [105] k. Willeke, “Temperature dependance of particule slip in a gaseous medium,” *J. Aerosol Sci.*, vol. 7, no. 5, pp. 381-387, 1976.

REFERENCES

- [106] S. Bau, "Etude des moyens de mesure de la surface des aérosols ultrafins pour l'évaluation de l'exposition professionnelle," 2008.
- [107] M. Wentzel, H. Gorzawski, K. H. Naumann, H. Saathoff, and S. Weinbruch, "Transmission electron microscopical and aerosol dynamical characterization of soot aerosols," *J. Aerosol Sci.*, vol. 34, no. 10, pp. 1347-1370, 2003, doi: 10.1016/S0021-8502(03)00360-4.
- [108] F. X. Ouf, J. Vendel, A. Coppalle, M. Weill, and J. Yon, "Characterization of soot particles in the plumes of over-ventilated diffusion flames," *Combust. Sci. Technol.*, vol. 180, no. 4, pp. 674-698, 2008, doi: 10.1080/00102200701839154.
- [109] Y. Kondo *et al.*, "Consistency and traceability of black carbon measurements made by laser-induced incandescence, thermal-optical transmittance, and filter-based photo-absorption techniques," *Aerosol Sci. Technol.*, 2011, doi: 10.1080/02786826.2010.533215.
- [110] D. R. Snelling *et al.*, "Spectrally Resolved Measurement of Flame Radiation to Determine Soot Temperature and Concentration," *AIAA J.*, 2002, doi: 10.2514/2.1855.
- [111] J. Yon, A. Bescond, and F. X. Ouf, "A simple semi-empirical model for effective density measurements of fractal aggregates," *J. Aerosol Sci.*, vol. 87, pp. 28-37, 2015, doi: 10.1016/j.jaerosci.2015.05.003.
- [112] A. Bescond *et al.*, "Automated determination of aggregate primary particle size distribution by tem image analysis: Application to soot," *Aerosol Sci. Technol.*, vol. 48, no. 8, pp. 831-841, 2014, doi: 10.1080/02786826.2014.932896.
- [113] D. Lottin, D. Ferry, J. M. Gay, D. Delhaye, and F. X. Ouf, "On methods determining the fractal dimension of combustion aerosols and particleclusters," *J. Aerosol Sci.*, vol. 58, pp. 41-49, 2013, doi: 10.1016/j.jaerosci.2012.12.009.
- [114] A. M. Brasil, T. L. Farias, and M. G. Carvalho, "A Recipe for Image Characterization of Fractal-Like Aggregates," *J. Aerosol Sci.*, vol. 30, pp. 1379- 1389, 1999.
- [115] J. Cai, N. Lu, and C. M. Sorensen, "Comparison of Size and Morphology of Soot Aggregates as Determined by Light Scattering and Electron Microscope Analysis," *Langmuir*, vol. 9, pp. 2861-2867, 1993.
- [116] M. Wozniak, F. R. A. Onofri, S. Barbosa, J. Yon, and J. Mroczka, "Comparison of Methods to Derive Morphological Parameters of Multi- Fractal Samples of Particle Aggregates from TEM Images," *J. Aerosol Sci.*, vol. 47, pp. 12-26, 2012.
- [117] J. Mroczka, M. Woźniak, and F. R. A. Onofri, "Algorithms and Methods for the Analysis of the Optical Structure Factor of Fractal Aggregates," *Metrol. Meas. Syst.*, vol. 19, no. 3, pp. 459-470, 2012.
- [118] F. R. A. Onofri, S. Barbosa, O. Toure, M. Woźniak, and C. Grisolia, "Sizing buckyballs-like aggregates of colloidal nanoparticles by light extinction spectroscopy," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, pp. 160-168, 2013.
- [119] R. Xu, *Particle Characterization: Light Scattering Methods*. New York: Kluwert Academic Publisher, 2002.
- [120] P. A. Baron and K. Willeke, *Aerosol measurement-Principles, techniques and applications*, Second. New York: Wiley Interscience, 2001.

REFERENCES

- [121] I. Grishin, K. Thomson, F. Migliorini, and J. J. Sloan, "Application of Aggregate, the Hough Transform for the Automatic Determination of Soot Morphology," *Appl. Opt.*, vol. 51, pp. 610-620, 2012.
- [122] Ü. Ö. Köylü and G. M. Faeth, "Structure of overfire soot in buoyant turbulent diffusion flames at long residence times," *Combust. Flame*, vol. 89, no. 2, pp. 140-156, 1992, doi: 10.1016/0010-2180(92)90024-J.
- [123] F.-X. Ouf, "Caractérisation des aérosols émis lors d'un incendie," Thèse de la faculté des sciences et techniques de l'université de Rouen, 2006.
- [124] J. Bricard, "Physique des Aérosols ; 1ère Partie : Propriété Générale, Théorie Cinétique, Mécanique, Diffusion, Coagulation.," 1977.
- [125] J. Yon and F.-X. Ouf, "Caractérisation physique et chimique des nanoparticules," in *Ecole thématique CNRS sur les poussières*, 2014.
- [126] N. Probst, *Conducting carbon black*, 2nd ed. New York: Carbon black : Science and technology, 1993.
- [127] D. Grondin, P. Breuil, J. P. Viricelle, and P. Vernoux, "Development of a particulate matter sensor for diesel engine," in *Procedia Engineering*, 2015, doi: 10.1016/j.proeng.2015.08.838.
- [128] E. Grivei and N. Probst, "Electrical Conductivity and Carbon Network in Polymer Composites," *KGK-Kautschuk und Gummi Kunststoffe*, 2003, doi: 10.1016/j.ijfoodmicro.2008.06.030.
- [129] J. Sánchez-González, A. Macías-García, M. F. Alexandre-Franco, and V. Gómez-Serrano, "Electrical conductivity of carbon blacks under compression," *Carbon N. Y.*, vol. 43, no. 4, pp. 741-747, 2005, doi: 10.1016/j.carbon.2004.10.045.
- [130] B. Marinho, M. Ghislandi, E. Tkalya, C. E. Koning, and G. de With, "Electrical conductivity of compacts of graphene, multi-wall carbon nanotubes, carbon black, and graphite powder," *Powder Technol.*, vol. 221, pp. 351-358, 2012, doi: 10.1016/j.powtec.2012.01.024.
- [131] A. Espinola, P. Mourente Miguel, and M. Roedel Salles, "Electrical properties of carbons-resistance of powder materials," *Pergamon Journals Ltd*, vol. Carbon Vol, no. 3, pp. 337-341, 1986.
- [132] G. De Falco, M. Commodo, C. Bonavolontà, G. P. Pepe, P. Minutolo, and A. D'Anna, "Optical and electrical characterization of carbon nanoparticles produced in laminar premixed flames," *Combust. Flame*, vol. 161, no. 12, pp. 3201-3210, Dec. 2014, doi: 10.1016/j.combustflame.2014.05.021.
- [133] Y. Liu, C. Song, G. Lv, C. Fan, X. Zhang, and Y. Qiao, "Relationships between the electrical properties and nanostructure of soot particles in a laminar inverse diffusion flame," *Proc. Combust. Inst.*, vol. 37, no. 1, pp. 1185-1192, 2019, doi: 10.1016/j.proci.2018.06.090.
- [134] R. Niessner, "The many faces of soot: Characterization of soot nanoparticles produced by engines," *Angew. Chemie - Int. Ed.*, vol. 53, no. 46, pp. 12366-12379, Nov. 2014, doi: 10.1002/anie.201402812.
- [135] L. . Van der Pauw, "A method of measuring specific resistivity and hall effect of discs of arbitrary shape," 1958.
- [136] R. Niessner, *Nanoparticles in the Water Cycle*. Heidelberg: Springer, 2010.

REFERENCES

- [137] L. Gmachowski, "Calculation of the fractal dimension of aggregates," *Colloids Surfaces A Physicochem. Eng. Asp.*, 2002, doi: 10.1016/S0927-7757(02)00278-9.
- [138] I. Glassman, *Combustion*, 3rd editio. San Diego: Academic Press, Inc, 1996.
- [139] J. B. Heywood, *Internal combustion Engine Fundamentals*. McGraw-Hill Higher Education, 1988.
- [140] A. Hamins, "Soot Environmental implications of combustion processes," I. Puri and K. Eds, Eds. CRC Press, Boca Raton, FL, 1993, pp. 71-95.
- [141] M. Matti Maricq, "Chemical characterization of particulate emissions from diesel engines: A review," *Journal of Aerosol Science*, vol. 38, no. 11. Elsevier Ltd, pp. 1079-1118, 2007, doi: 10.1016/j.jaerosci.2007.08.001.
- [142] T. Ferge *et al.*, "Fast Determination of the Relative Elemental and Organic Carbon Content of Aerosol Samples by On-Line Single-Particle Aerosol Time-of-Flight Mass Spectrometry," *Environ. Sci. Technol*, vol. 40, no. 10, pp. 3327-3335, 2006, doi: <https://doi.org/10.1021/es050799k>.
- [143] J. C. Chow *et al.*, "Refining temperature measures in thermal/optical carbon analysis," 2005.
- [144] P. Masclet and N. Marchand, "Méthodes de prélèvement et d'analyse des aérosols.," *Tech. l'ingénieur*, 2004.
- [145] F. X. Ouf *et al.*, "True density of combustion emitted particles: A comparison of results highlighting the influence of the organic contents," *J. Aerosol Sci.*, vol. 134, pp. 1-13, Aug. 2019, doi: 10.1016/j.jaerosci.2019.04.007.
- [146] G. Ferraro, E. Fratini, R. Rausa, P. Fiaschi, and P. Baglioni, "Multiscale Characterization of Some Commercial Carbon Blacks and Diesel Engine Soot," *Energy and Fuels*, vol. 30, no. 11, pp. 9859-9866, 2016, doi: doi.org/10.1021/acs.energyfuels.6b01740.
- [147] A. D. Sediako, C. Soong, J. Y. Howe, M. R. Kholghy, and M. J. Thomson, "Real-time observation of soot aggregate oxidation in an Environmental Transmission Electron Microscope," *Proc. Combust. Inst.*, vol. 36, no. 1, pp. 841-851, 2017, doi: 10.1016/j.proci.2016.07.048.
- [148] I. C. Jaramillo, C. K. Gaddam, R. L. Vander Wal, C. H. Huang, J. D. Levinthal, and J. A. S. Lighty, "Soot oxidation kinetics under pressurized conditions," *Combust. Flame*, vol. 161, no. 11, pp. 2951-2965, Jan. 2014, doi: 10.1016/j.combustflame.2014.04.016.
- [149] F.-X. Ouf, "Impact des aérosols émis lors d'un incendie sur le confinement des installations nucléaires," 2016.
- [150] J. R. Hartman, A. P. Beyler, S. Riahi, and C. L. Beyler, "Smoke oxidation kinetics for application to prediction of clean burn patterns," *FIRE Mater.*, vol. 36, pp. 77-184, 2012, doi: 10.1002/fam.1099.
- [151] J. O. Müller, D. S. Su, R. E. Jentoft, J. Kröhnert, F. C. Jentoft, and R. Schlögl, "Morphology-controlled reactivity of carbonaceous materials towards oxidation," in *Catalysis Today*, 2005, vol. 102-103, pp. 259-265, doi: 10.1016/j.cattod.2005.02.025.
- [152] K. J. Overholt, J. E. Floyd, and O. A. Ezekoye, "Computational Modeling and Validation of Aerosol Deposition in Ventilation Ducts," *Fire Technol.*, vol. 52, no. 149-166, 2016, doi: 10.1007/s10694-014-0414-5.

REFERENCES

- [153] L. Audouin, L. Rigollet, H. Prétrel, W. Le Saux, and M. Röwekamp, "OECD PRISME project: Fires in confined and ventilated nuclear-type multi-compartments - Overview and main experimental results," *Fire Safety Journal*. 2013, doi: 10.1016/j.firesaf.2013.07.008.
- [154] A. Karanasiou *et al.*, "Thermal-optical analysis for the measurement of elemental carbon (EC) and organic carbon (OC) in ambient air a literature review," *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, 2015, doi: 10.5194/amtd-8-9649-2015.
- [155] A. Mensch and T. Cleary, "Measurements and predictions of thermophoretic soot deposition," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 143, 2019.
- [156] S. Bourrous, "Etude du colmatage des filtres THE plans et à petits plis par des agrégats de nanoparticules simulant un aérosol de combustion," Université de Lorraine, 2014.
- [157] H. Pretrel, "PRISME SOURCE Program -Analysis report," Cadarache/France, 2006.
- [158] S. Melis, L. Audouin, and H. Prétrel, "Effet du confinement sur un effet de nappe dans un local ventilé mécaniquement," IRSN Cadarache, 2008.
- [159] T. Gélain, J. Richard, and F. Khanchali, "Rapport extension de la validation des modèles de dépôt d'aérosols en conduit et première analyse de sensibilité aux effets de rugosité et de charge électrique.," 2016.
- [160] E. Géhin, G. Da, M. Ben-Othmane, M. Havet, C. Sollicec, and C. Motzkus, "An experimental approach to measure particle deposition in large circular ventilation ducts," *Environ. Sci. Pollut. Res.*, vol. 22, no. 7, pp. 4873-4880, 2015.
- [161] LNE, "Rapport d'essai : Dossier B120143 - Document CEMAT/9," 2001.
- [162] LNE, "Rapport d'essai : Dossier B120143 - Document CMI/5," 2001.
- [163] LNE, "Rapport d'essai : Dossier B120143 - Document CEMAT/69," 2001.
- [164] M. Plagge, U. Krause, E. Da Riva, C. Schäfer, and D. Forkel-Wirth, "An alternative method for thermal plume-induced aerosol release and deposition calculations in large geometries using fireFoam," *Nucl. Technol.*, vol. 198, no. 1, pp. 43-52, 2017, doi: 10.1080/00295450.2017.1291227.
- [165] G. Heskestad, *Sfpe handbook of fire protection engineering*, Third. 2002.
- [166] B. McCaffrey, "Purely buoyant diffusion flames: some experimental results," *Natl. Bur. Stand.*, p. NBSIR 79-1910, 1979.
- [167] "ANSYS CFX," 2020. [Online]. Available: <https://www.ansys.com/fr-FR/products/fluids/ansys-cfx>.
- [168] J. . Bardina, P. . Huang, and T. . Coakley, "Turbulence Modeling Validation, Testing, and Development," *NASA Tech. Memo.*, p. 110446, 1997.
- [169] D. C. Wilcox, "Formulation of the k-omega Turbulence Model Revisited," *AIAA J.*, vol. 46, no. 11, pp. 2823-2838, 2008.
- [170] F. R. Menter, "Two-Equation Eddy-Viscosity Turbulence Models for Engineering Applications," *AIAA J.*, vol. 32, no. 8, pp. 1598-1605, 1994.
- [171] E. Brugière, "Le spectromètre thermophorétique circulaire, un nouvel instrument pour mesurer la thermophorèse : application aux agrégats de suies de morphologie fractale.," Université de Rouen, 2012.

REFERENCES

- [172] B. Sagot, G. Antonini, and F. Buron, "Annular flow configuration with high deposition efficiency for the experimental determination of thermophoretic diffusion coefficients," *J. Aerosol Sci.*, vol. 40, no. 12, pp. 1030-1049, Dec. 2009, doi: 10.1016/j.jaerosci.2009.09.009.
- [173] S. Beresnev and V. Chernyak, "Thermophoresis of a spherical particle in a rarefied gas: Numerical analysis based on the model kinetic equations," *Phys. Fluids*, vol. 7, no. 7, p. 1743, Jul. 1995, doi: 10.1063/1.868489.
- [174] E. Brugière, F. Gensdarmes, F. X. Ouf, J. Yon, and A. Coppalle, "Increase in thermophoretic velocity of carbon aggregates as a function of particle size," *J. Aerosol Sci.*, vol. 76, pp. 87-97, Oct. 2014, doi: 10.1016/j.jaerosci.2014.06.007.
- [175] R. Lakhmi, "Etude de micropoutres sérigraphiées pour des applications capteurs," Thèse de l'Université Bordeaux I, Bordeaux, 2011.
- [176] W. Olthuis, W. Streekstra, and P. Bergveld, "Theoretical and experimental determination of cell constants of planar-interdigitated electrolyte conductivity sensors," *Sensors Actuators B*, vol. B 24-25, pp. 252-256, 1995.
- [177] L. Durдина *et al.*, "Response of real-time black carbon mass instruments to mini-CAST soot," *Aerosol Sci. Technol.*, 2016, doi: 10.1080/02786826.2016.1204423.
- [178] L. Lintis, F.-X. Ouf, P. Parent, D. Ferry, C. Laffon, and C. Vallières, "Quantification and prediction of water uptake by soot deposited on ventilation filters during fire events," *J. Hazard. Mater.*, vol. 403, p. 123916, 2021, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2020.123916>.
- [179] V. Babrauskas, "Development of the cone calorimeter -- A Bench-Scaled Heat Release Rate Apparatus Based on Oxygen Consumption.," *Fire Mater.*, vol. 8, no. 2, p. 95, 1984, doi: <https://doi.org/10.1002/fam.810080206>.
- [180] S. R. Broadbent and J. M. Hammersley, "Percolation processes," *Proc. Camb. Philol. Soc.*, vol. 53, pp. 629-645, 1957.
- [181] V. O. Rao, K. C. Rapp, C. Johannesson, D. W. Geldart, and T. G. Richards, "Electrical resistance at the antiferro-paramagnetic transition in dysprosium," *J. Phys. C Solid State Physics*, vol. 8, no. 13, pp. 2135-2147, 1975.
- [182] Alain Celzard, "CONTRIBUTION À L'ÉTUDE DU PHÉNOMÈNE DE PERCOLATION DANS DES MATÉRIAUX COMPOSITES À PROPRIÉTÉS ANISOTROPES," Université de Lorraine, 1995.
- [183] V. Bedel, A. Lonjon, and E. Dantras, "Étude du phénomène de percolation électrique dans les composites à matrice polymère pour une application de protection foudre sur structures aéronautique," 2017.
- [184] F. Lux, "Models proposed to explain the electrical conductivity of mixtures made of conductive and insulating materials," *J. Mater. Sci.*, vol. 28, no. 2, pp. 285-301, 1993.
- [185] N. Metropolis, "The beginning of the Monte Carlo Method," *Los Alamos Sci.*, no. Spec Iss, pp. 125-130, 1987.
- [186] H. Meyer, P. Van Der Schoot, and T. Schilling, "Percolation in suspensions of polydisperse hard rods: Quasi universality and finite-size effects," *J. Chem. Phys.*, vol. 143, no. 4, Jul. 2015, doi: 10.1063/1.4926946.

REFERENCES

- [187] R. Strümpfer and J. Glatz-Reichenbach, "Conducting polymers composites," *J. Electroceramics*, vol. 3, no. 4, pp. 329-346, 1999.
- [188] N. I. Lebovka, S. S. Manna, S. Tarafdar, and N. Teslenko, "Percolation in models of thin film depositions," *Phys. Rev. E - Stat. Physics, Plasmas, Fluids, Relat. Interdiscip. Top.*, vol. 66, no. 6, p. 4, Dec. 2002, doi: 10.1103/PhysRevE.66.066134.
- [189] P. H. Da Silva Leite Coelho, V. A. De Deus Armellini, and A. R. Morales, "Assessment of percolation threshold simulation for individual and hybrid nanocomposites of carbon nanotubes and carbon black," *Mater. Res.*, vol. 20, no. 6, pp. 1638-1649, Nov. 2017, doi: 10.1590/1980-5373-MR-2016-1084.
- [190] G. Hagen *et al.*, "Capacitive soot sensor for diesel exhausts," *Sensors Actuators, B Chem.*, vol. 236, pp. 1020-1027, Nov. 2016, doi: 10.1016/j.snb.2016.05.006.
- [191] M. Li, G. W. Mulholland, and M. R. Zachariah, "The effect of alignment on the electric mobility of soot," *Aerosol Sci. Technol.*, vol. 50, no. 10, pp. 1003-1016, Oct. 2016, doi: 10.1080/02786826.2016.1213789.
- [192] J. C. Chow, D. Watson, J. G. Crow, D. H. Lowenthal, and T. Merri, "Comparison of IMPROVE and NIOSH Carbon Measurements," *Aerosol Sci. Technol.*, vol. 34, pp. 23-34, 2001.
- [193] M. E. Birch and R. A. Cary, "Elemental carbon-based method for monitoring occupational exposures to particulate diesel exhaust," *Aerosol Sci. Technol.*, vol. 25, pp. 221-241, 1996.
- [194] B. J. Turpin, R. A. Cary, and J. J. Huntzicker, "An un-situ time resolved analyzer for aerosol organic and elemental carbon," *Aerosol Sci. Technol.*, vol. 12, no. 161-171, 1990.
- [195] J. C. Chow *et al.*, "The IMPROVE_A temperature protocol for thermal/optical carbon analysis: Maintaining consistency with a long-term database," *J. Air Waste Manag. Assoc.*, vol. 57, no. 9, pp. 1014-1023, 2007, doi: 10.3155/1047-3289.57.9.1014.
- [196] D. Grondin, P. Breuil, J. P. Viricelle, and P. Vernoux, "Modeling of the signal of a resistive soot sensor, influence of the soot nature and of the polarization voltage," *Sensors Actuators, B Chem.*, vol. 298, 2019, doi: <https://doi.org/10.1016/j.snb.2019.126820>.
- [197] F. X. Ouf *et al.*, "True density of combustion emitted particles: A comparison of results highlighting the influence of the organic contents," *J. Aerosol Sci.*, vol. 134, pp. 1-13, 2019, doi: 10.1016/j.jaerosci.2019.04.007.
- [198] P. : S. vkl / khg / dc10000 Product lines, "Particle Technology Palas," 2020. [Online]. Available: <https://www.palas.de/en/product/vkl10>.
- [199] K. E. Hornsby and S. C. Pryor, "A laboratory comparison of real-time measurement methods for 10-100-nm particle size distributions," *Aerosol Sci. Technol.*, vol. 48, no. 5, pp. 571-582, 2014, doi: 10.1080/02786826.2014.901488.
- [200] TSI, "SCANNING MOBILITY PARTICLE SIZER™ SPECTROMETER (SMPS™) MODEL 3938," 2019.
- [201] TSI, "Model 3772/3771 Condensation Particle Counter," 2007.

ANNEXE A : PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DES DILUTEURS ET DU SMPS

A.1 : Les diluteurs VKL PALAS

Les instruments permettant de mesurer la granulométrie sont destinés essentiellement à des mesures atmosphériques différentes de notre application. Les concentrations d'aérosols produites par le Mini-CAST et par le banc PARIS sont largement supérieures à la concentration maximale admissible par le Differential Mobility Analyser (DMA). De plus, la teneur en vapeur d'eau des gaz issus du Mini-CAST et du banc PARIS ainsi que leur température relativement élevée peuvent engendrer de la condensation au sein de la colonne. Il est donc nécessaire d'effectuer une opération de dilution. Deux diluteurs VKL 10 (Palas GmbH, Karlsruhe, Allemagne) ont été utilisés. Les diluteurs VKL sont des systèmes basés sur le principe de l'éjecteur. L'aérosol est prélevé par la buse d'entrée grâce à la dépression engendrée par l'écoulement d'air comprimé (cf. figure A.1), à la sortie du four tubulaire dans notre cas. Puis, l'aérosol est mélangé à l'air comprimé, préalablement filtré et séché, dans la chambre de mélange. En fonction du flux demandé en aval du diluteur (buse de sortie), l'excès est évacué à l'évent. Ceci permet de choisir le débit que l'on souhaite transmettre au SMPS. Les diluteurs ont été étalonnés avant leur utilisation.

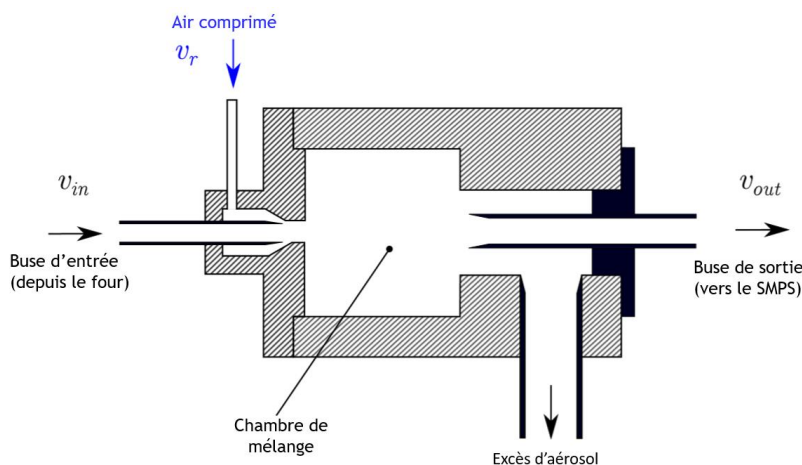


Figure A.1 : Schéma de principe du diluteur VKL Palas [198]

A.2 : Principe de fonctionnement du SMPS

Le SMPS [199] est l'association d'un DMA et d'un CPC. Le champ électrique du DMA varie graduellement et un comptage temps réel permet d'obtenir les distributions de taille exprimées en diamètre de mobilité. La mesure dure 3 minutes pendant lesquelles l'aérosol doit être stable.

A.2.1 : Principe de fonctionnement du DMA

L'aérosol polydispersé passe d'abord dans un chargeur bipolaire à rayon X, pour le neutraliser (établir un niveau de charges d'équilibre bipolaire). Il passe ensuite dans la colonne DMA. Celle-ci se compose essentiellement de deux électrodes métalliques concentriques. La première électrode est maintenue à une tension négative contrôlée, allant de 1 V à 10 kV, tandis que la seconde est reliée à la terre. Un champ électrique \vec{E} est donc créé entre ces deux électrodes. Ainsi, les particules chargées sont déviées et seules celles ayant un couple force aérodynamique/ force électrique donné parviennent à atteindre la sortie de la colonne.

En sortie du DMA, l'aérosol est donc monodispersé dont la taille est associée à un diamètre de mobilité D_m . Ces particules sont ensuite acheminées dans le compteur à noyaux de condensation, afin de mesurer leur concentration en nombre.

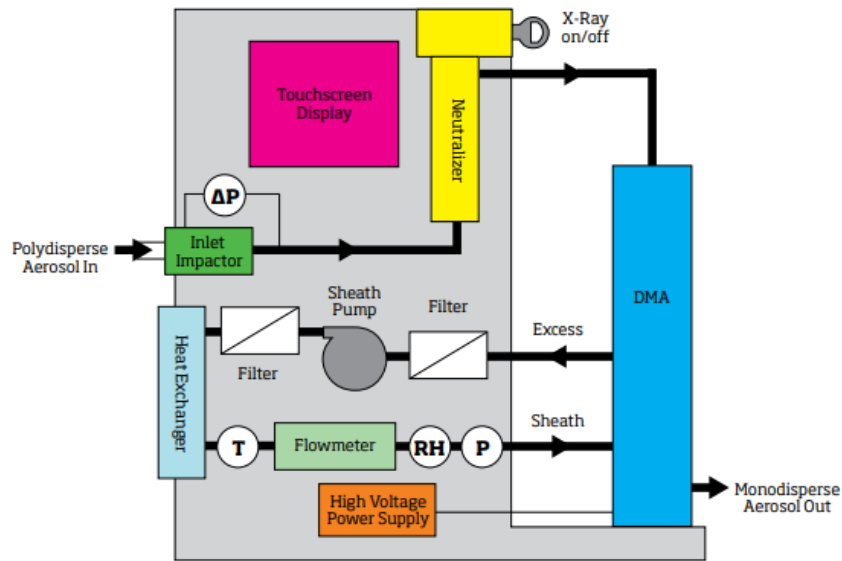


Figure A.2 : Schéma de principe d'un DMA [200]

A.2.1 : Principe de fonctionnement du CPC

L'avantage du CPC par rapport aux compteurs optiques classiques est son aptitude à compter les particules nanométriques. Le compteur à noyaux de condensation utilisé dans nos expériences est le CPC 3776, schématisé dans la figure A.3. Le comptage est basé sur la mesure de la lumière diffusée par les particules dans l'appareil.

L'aérosol est prélevé en continu à travers une cuve chauffée dans laquelle le butanol est vaporisé.

L'aérosol et la vapeur de butanol passent ensuite dans un condenseur où la vapeur de butanol devient sursaturée et se condense autour de celui-ci. Le diamètre des particules augmente alors jusqu'à atteindre un diamètre seuil. Ces particules passent ensuite à travers un détecteur optique où elles sont comptées grâce aux signaux diffusés.

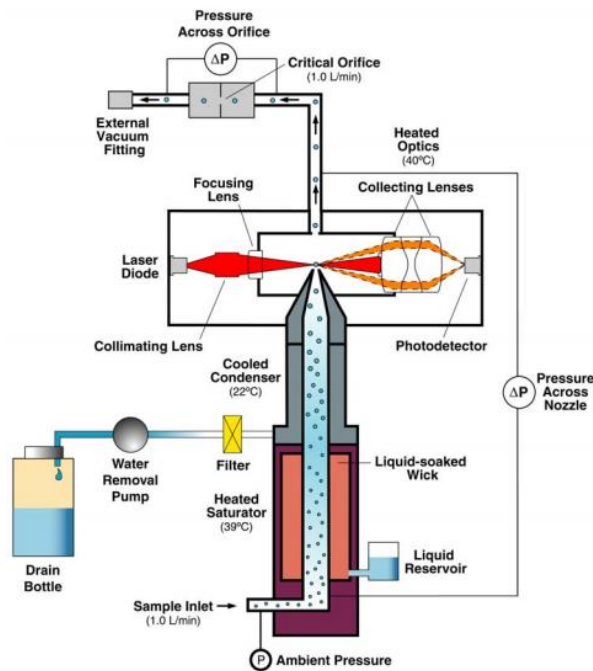


Figure A.3 : Schéma de principe d'un CPC [201]

ANNEXE B : REPONSE DU CAPTEUR CO₂ APRES EXPOSITION DU CAPTEUR DANS LE BANC DE GENERATION DES SUIES

Dans cette annexe, nous représentons la réponse du capteur CO₂ après l'exposition du capteur résistif dans le banc de génération, de dépôt et de caractérisation des suies du CAST (figure B.1) et celui des suies issues de la dégradation du TBP/TPH (figure B.2), pendant 1 h en appliquant une tension de polarisation de 10 V, dans le but d'évaluer les quantités déposées sur sa face sensible et ainsi comparer les deux méthodes de mesure. En appliquant le protocole décrit dans la partie III.3.2.1, nous retrouvons les mêmes tendances d'évolution des signaux d'humidité, de température et de concentration CO₂ que ceux observés pour un capteur résistif chargé « manuellement » avec de faibles quantités de suies.

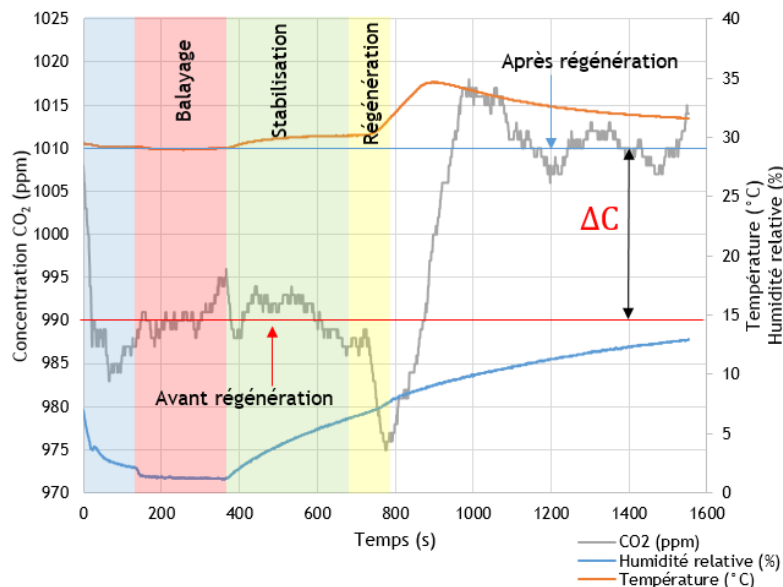


Figure B.1 : Réponse du capteur CO₂ après exposition du capteur dans le banc de génération des suies du CAST pendant 1h

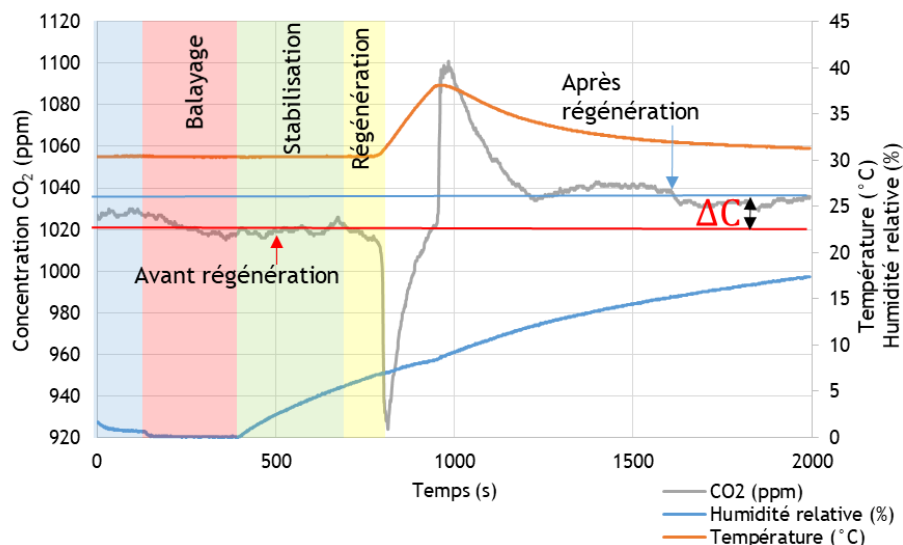


Figure B.2 : Réponse du capteur CO₂ après exposition du capteur dans le banc de génération des suies de TBP/TPH pendant 1

NNT : *Communiqué le jour de la soutenance*

Amel KORT

Development of a multi-sensor metrological device for measuring aerosol deposition on the walls of a room during a fire

Speciality : Process Engineering

Keywords : Soot, Deposit, Resistive sensor, Fire, Quantification, Calibration

Abstract :

This PhD has been carried within a joint research project Orano/IRSN which main objective is to estimate the consequences of a fire on the containment of radioactive substances in a basic nuclear installation (BNI). This work aims to develop a multi-sensor device for soot deposited mass quantification on the walls of a room during a fire.

In a first step, the deposited soot masses were quantified on the various walls of a test room (BNI) during real scale fires, using an ex situ method. Then, we identified the zones and the predominant mechanisms of soot deposits, using deposit models implemented in the ANSYS © CFX computer code. These conclusions are in agreement with those experimentally reported. This allowed us to identify the sensor's specifications for the in-situ measurements on the walls.

Two methods were evaluated for the quantification of the deposited mass using sensors. For each method, resistive sensors composed of interdigitated electrodes were used as a support for the soot deposit. The first "Electrical conductance" measurement method allows an indirect monitoring of the deposited soot's mass thanks to the calibration of its conductance as a function of the mass (evaluated using a thermo-optical method). The calibration revealed 2 regions, a first one where the sensor is "blind", for low deposited masses between 0 and 2.4 μg and a sensitive region for deposited masses between 2.4 and 20 μg (for an area of 12.25 mm^2). This calibration was carried out for two types of soot (reference soot from a propane / air diffusion flame and soot generated by the combustion of an industrial solvent). The linear zone was found to be more restricted for soot from industrial solvent. Finally, for the second method, the resistive sensor regeneration phase (soot combustion on the sensor) is used to quantify the mass of particles deposited on its surface by measuring the concentration of CO_2 emitted during this phase. This second method, called "CO₂ emission measurement" is complementary to the "Electrical conductance" method and is applicable for deposited masses between 16 μg and 350 μg (for an area of 12.25 mm^2). These methods have been discussed in relation to the fire application and prospects for future developments were presented.

École Nationale Supérieure des Mines
de Saint-Étienne

NNT : *Communiqué le jour de la soutenance*

Amel KORT

Développement d'un dispositif métrologique multi-capteurs pour la mesure du dépôt d'aérosols dans un local lors d'un incendie.

Spécialité : Génie des procédés

Mots clefs : Suies, Dépôt, Capteur résistif, Incendie, Quantification, Etalonnage

Résumé :

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre d'un programme de recherche commun Orano/IRSN visant à estimer les conséquences d'un incendie sur le confinement des substances radioactives dans une installation nucléaire de base. L'objectif de la thèse est de développer un dispositif multi-capteurs permettant la quantification des masses de suies déposées sur les parois d'un local lors d'un incendie.

Pour ce faire, les masses de suies déposées ont été quantifiées en fonction des emplacements de prélèvement avec une méthode ex-situ lors d'essais incendie à grande échelle. Puis, nous avons identifié les zones et les mécanismes prépondérants de dépôts de suies à l'aide de modèles implémentés dans le code de calcul ANSYS® CFX. Les conclusions issues de ces calculs sont en accord avec celles issues des mesures expérimentales de dépôt. Ces modèles ont ensuite été utilisés pour définir les spécifications d'un capteur de suie dédié à la mesure in-situ sur les parois.

Deux méthodes ont ensuite été mises en œuvre pour la quantification de la masse déposée à partir de capteurs. Pour chacune d'elles, des capteurs résistifs composés d'électrodes interdigitées servent de support au dépôt des suies. La première méthode de mesure « Conductance électrique » permet un suivi indirect de la masse de suies déposée à travers l'étalonnage de sa conductance en fonction de la masse de suies déposée (estimée à l'aide d'une méthode thermo-optique). L'étalonnage a révélé 2 régimes pour le capteur : un régime où le capteur est "aveugle", pour des faibles masses déposées (entre 0 et 2,4 µg) et un autre régime linéaire présentant une bonne sensibilité du capteur (entre 2,4 et 20 µg) (pour une surface de 12,25 mm²). Cet étalonnage a été réalisé pour deux types de suies (suies de référence issues d'une flamme de diffusion propane/air et suies produites par la combustion d'un solvant industriel). La zone linéaire s'est avérée plus restreinte pour les suies produites par le solvant industriel.

Enfin, pour la deuxième méthode, la phase de régénération du capteur résistif (combustion des suies présentes sur le capteur) est employée afin de mener à bien la quantification de la masse de particules déposées à sa surface en mesurant la concentration de CO₂ émis lors de cette phase. Cette seconde méthode, intitulée « Mesure d'émission de CO₂ » s'avère complémentaire à la méthode « Conductance électrique » et est applicable pour des masses déposées comprises entre 16 µg et 350 µg (pour une surface de 12,25 mm²). Ces méthodes ont été discutées par rapport à l'application incendie et les perspectives de futurs développements sont conséquentes.