

# Modélisation du comportement au feu d'un stratifié par calcul de pyrolyse : approche combinée expérience-simulation

D. MARQUIS<sup>a, b</sup>, L. BUSTAMANTE VALENCIA<sup>a</sup>, E. GUILLAUME<sup>a</sup>, M. PAVAGEAU<sup>b</sup>

- a. *Laboratoire National de métrologie et d'Essais (LNE), Direction des Essais (DE 522), Département comportement au feu et sécurité incendie, 29 Avenue Roger Hennequin 78197 Trappes Cedex, France*
- b. *École des Mines de Nantes (EMN), Département Systèmes Énergétiques et Environnement, UMR CNRS 6144 (GEPEA), 4 Rue Alfred Kastler, BP20722, 44307 NANTES, France.*

## Résumé :

*Après avoir très rapidement replacé la démarche dans son contexte, on présente les résultats d'une étude expérimentale du comportement au feu d'un matériau composite, sur des bancs d'essai à petit échelle, puis la simulation de ces essais à l'aide du code LES FDS5 avec calcul de pyrolyse, pour validation. L'intérêt de ce préalable à une simulation incendie complète est brièvement présenté.*

## Abstract :

*After having quickly put the process into its context, we present the results of an experimental study of fire behaviour of a composite material at small scale, then the simulation of these tests with LES code FDS5 with pyrolysis model, for validation. The interest of this approach is briefly presented.*

**Mots clefs :** **Expérimental, comportement au feu, composite, FDS, modèle de pyrolyse, simulation.**

## 1 INTRODUCTION

Le travail présenté dans ce papier s'inscrit dans le cadre d'un projet multi partenaires intitulé MP08 "Comportement au feu des matériaux composites". Labellisé par le pôle de compétitivité EMC2 (Ensembles Métalliques, Composites et Complexes) de la Région Pays de la Loire, ce projet a pour but de rassembler des chantiers navals civils et militaire voisin géographiquement autour d'une problématique commune, la tenue au feu des composites, afin de développer une démarche innovante quant à l'utilisation de ces matériaux dans des domaines nouveaux ou difficilement accessibles du fait des règles incendie en vigueur [1, 2]. Les matériaux composites utilisés à des fins de construction, lorsqu'ils sont combustibles, constituent un terme source potentiellement important dont il faut pouvoir prévoir le comportement en cas d'incendie et la contribution à la propagation du feu. L'évaluation de l'énergie apportée par la décomposition de ces matériaux, en cas de feu, est essentielle pour la sécurité des constructions concernées.

Ce travail d'analyse préalable, qui relève de l'ingénierie de la sécurité incendie [3], ne peut reposer sur des essais grandeur réelle que de manière très limitée. La démarche s'appuie donc sur l'emploi d'outils de calcul numérique dont on attend qu'ils soient capables de prédire "correctement" l'enchaînement des événements pouvant survenir en cas d'incendie.

Le code de calcul utilisé dans notre travail est capable de simuler le développement d'un feu en simulant le comportement au feu de cloisons composites à partir d'un modèle de pyrolyse. Cette approche permet a priori une reproduction plus fidèle du développement d'un incendie parce qu'elle tient compte dynamiquement de la décomposition des matériaux en présence, de leur contribution à la propagation des flammes, des dégagements de chaleur

qui accompagnent la décomposition thermique des matériaux avec l'évolution des conditions ambiantes. La démarche plus répandue du HRR imposé (HRR = Heat Release Rate) ne permet pas cela.

En contrepartie, une connaissance plus approfondie des propriétés thermophysiques des matériaux dont on simule la combustion est nécessaire. Les cinétiques de combustion (produits, taux de réaction, ordre des modèles de décomposition, etc.) doivent être déterminées et précisées pour le calcul. Il est aussi nécessaire de s'assurer que les calculs reproduisent correctement le comportement de produits (panneau,...) constitués de ces matériaux quelles que soient la géométrie, l'orientation et la taille de ces produits.

C'est dans ce contexte que, pour certifier in fine la qualité de simulations de scenarios incendie une méthode de validation progressive basée sur une approche combinée expérience-simulation à échelle croissante [4] a été mise en œuvre. La démarche est schématisée figure 1.

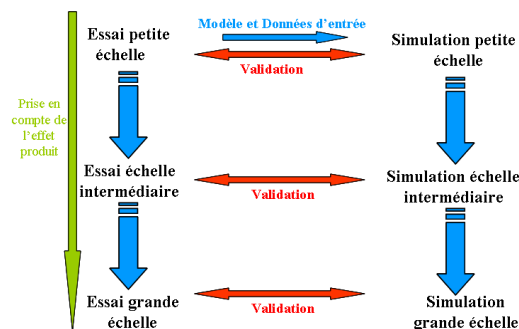


Fig. 1 - Validation pas à pas par comparaison expérience-simulation à échelle croissante

La méthodologie utilisée comporte trois étapes:

- Une phase expérimentale à échelle croissante afin de caractériser le comportement des matériaux étudiés dans différentes situations,
- Une phase numérique consistant en la simulation de ces expériences,
- Une phase de comparaison et de validation du modèle.

A chaque échelle d'observation, les résultats de la simulation numérique sont comparés à ceux de l'expérience au moyen de l'analyse fonctionnelle d'Hilbert décrite dans la norme ISO 16730 « Fire safety engineering - Assessment, verification and validation of calculation methods ». Cette comparaison doit porter sur des variables globales (débit calorifique par exemple), comme sur des variables locales (températures, vitesses d'écoulement par exemple).

Les écarts éventuels entre les résultats expérimentaux et numériques sont analysés. Les paramètres du modèle sont ajustés si nécessaire. L'idée de cette méthodologie est de converger progressivement vers un modèle adapté à la simulation de feux à échelle réelle. Le présent document est centré sur le comportement au feu d'un matériau composite, à petite échelle uniquement.

## 2 MODELE DE PYROLYSE

### 2.1 LE MATERIAU ETUDIÉ

Le matériau étudié est un matériau composite stratifié constitué d'une résine polyester et de fibres de verre. Une caractérisation physicochimique complète de ce matériau, éléments constitutifs séparés puis ensemble, a été réalisée. Les informations correspondantes étant pour l'instant confidentielles, ne sont pas révélées ici.

### 2.2 LES BASES D'UN MODELE DE PYROLYSE

La décomposition thermique d'un matériau composite apparemment aussi "simple" que celui que nous avons étudié est un processus complexe qui met en jeu de nombreux constituants chimiques et différents mécanismes. Ce processus peut toutefois être décrit à partir de la connaissance des processus de décomposition thermique des éléments constitutifs du composite considéré pris séparément.

La démarche requiert donc la définition préalable d'un schéma réactionnel et d'un modèle cinétique pour chaque élément constituant le composite. Ces schémas sont généralement déduits d'observations effectuées au cône calorimètre ainsi que d'études thermogravimétriques (ATG) [5,6]. Dans le cas présent, l'atg n'a porté que sur la décomposition de la résine. Il convient en effet de préciser qu'il n'y pas lieu d'introduire de modèle de décomposition pour les fibres de verre qui sont incombustibles. L'influence de ces dernières sur le comportement au feu du stratifié a néanmoins été étudiée au cône calorimètre.

Ainsi, pour la résine dont est fait notre composite, les cinétiques de décomposition dépendent fortement de conditions d'essais [7]. De ce fait, des essais ATG ont été réalisés à différentes vitesse d'échauffement et sous différents gaz vecteurs.

Les résultats ATG ont permis de définir pour la résine, le schéma réactionnel en quatre étapes du tableau 1.

Type de réaction	Reactif	Produit
1	Pyrolyse Resine	$\rightarrow v_1 \cdot \text{charbon} + (1-v_1) \cdot \text{gaz}$
2	Oxydation Resine+O <sub>2</sub>	$\rightarrow v_2 \cdot \beta\text{resine} + (1-v_2) \cdot \text{gaz}$
3	Oxydation $\beta\text{resine} + \text{O}_2$	$\rightarrow v_3 \cdot \text{charbon} + (1-v_3) \cdot \text{gaz}$
4	Oxydation charbon+O <sub>2</sub>	$\rightarrow v_4 \cdot \text{residu} + (1-v_4) \cdot \text{gaz}$

Tableau 1: Schéma réactionnel d'une résine polyester déduit d'une analyse ATG

Les vitesses de réaction  $\dot{\omega}_i$  sont décrites par une loi de type Arrhenius où  $i$  renvoie au numéro de la réaction :

$$\dot{\omega}_i(t) = A_i e^{\frac{-E_i}{RT}} \left( \frac{m_i(t)}{m_o} \right)^{n_i} Y_{O_2}^\delta \quad (1)$$

Où  $A_i$  est ce que l'on appelle le facteur pré-exponentiel,  $E_i$  est l'énergie d'activation,  $n_i$  l'ordre de la réaction,  $m_i$  la masse initiale du réactif de la réaction  $i$ ,  $m_o$  est la masse initiale du matériau. et  $Y_{O_2} = 0.23$  est la fraction massique d'oxygène. Pour une réaction de pyrolyse  $\delta = 0$  et pour une réaction oxydative  $\delta = 1$ .

La vitesse de perte de masse totale normalisée par la masse initiale de la résine  $\dot{m}^*(t)$  (ou NMLR pour Normalized Mass Loss Rate) s'écrit alors

$$\dot{m}^*(t) = \sum_{i=1}^N \dot{m}_i^*(t) = \sum_{i=1}^N (v_i - 1) \dot{\omega}_i(t) \quad (2)$$

$N$  est le nombre de réaction.

Avec pour conditions initiales :

$$\begin{cases} m_{resin}(t=0) = 1; m_{\beta resin}(t=0) = 0; m_{char}(t=0) = 0; m_{residu}(t=0) = 0 \\ T(t=0) = 393K \end{cases} \quad (3)$$

L'équation (2) permet de calculer la vitesse de perte de masse normalisée  $\dot{m}^*(t)$  en fonction de la température. Les paramètres cinétiques de l'équation (1) sont estimés à partir d'une méthode d'optimisation itérative conduite par un algorithme génétique (AG) [8,9,10], outil qui

s'est révélé adapté à la résolution de ce genre de problème fortement non linéaire [11]. La méthode cherche notamment à optimiser le paramètre  $\phi$  défini par l'équation (4).

$$\phi = \left[ \int (\dot{m}^*_{calc} - \dot{m}^*_{exp})^2 dT \right]^{-1} \quad (4)$$

La figure 2 présente les NMLR expérimental et calculé obtenues pour notre résine, en milieu oxydant.

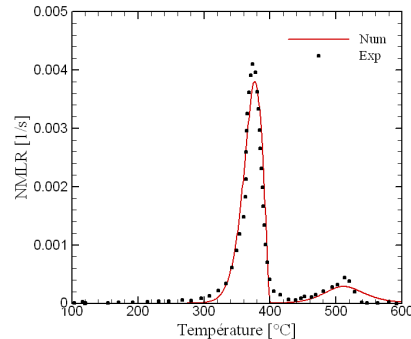


Fig. 2 - Comparaison entre la solution calculée par l'AG et les valeurs expérimentales pour une vitesse de chauffe de  $10 \text{ K min}^{-1}$  en milieu oxydant.

Le modèle reproduit de manière satisfaisante les principales tendances observées expérimentalement pour une vitesse d'échauffement de la résine de  $10 \text{ K min}^{-1}$ . Ce modèle (schéma + jeu de paramètres) a été validé pour d'autres vitesses d'échauffement. Les résultats correspondants feront l'objet d'une publication plus détaillée. Les modélisations ont démontré que les résultats dépendent fortement de la fonction d'optimisation  $\phi$  [10].

Ce modèle de décomposition (schéma réactionnel et paramètres cinétiques) de la résine a été utilisé pour la simulation numérique du comportement au feu de notre composite.

### 3 EXPERIENCES ET SIMULATIONS AU CONE CALORIMETRE

#### 3.1 L'EXPERIENCE : LE CÔNE CALORIMETRE

Le cône calorimètre est un dispositif de mesure permettant l'évaluation du taux de dégagement de chaleur (HRR) d'un matériau qui brûle. Le principe de mesure repose sur la calorimétrie par déplétion d'oxygène, la quantité d'énergie libérée par la combustion du matériau étant donc déterminée par la mesure de la consommation d'oxygène durant la combustion. L'éprouvette de taille 100mm x 100mm est placée dans un porte-éprouvette normalisé (face arrière de l'échantillon testée isolée). Elle est exposée au flux d'un radiateur électrique conformément aux exigences de la norme ISO 5660 – 1 (voir figure 3).

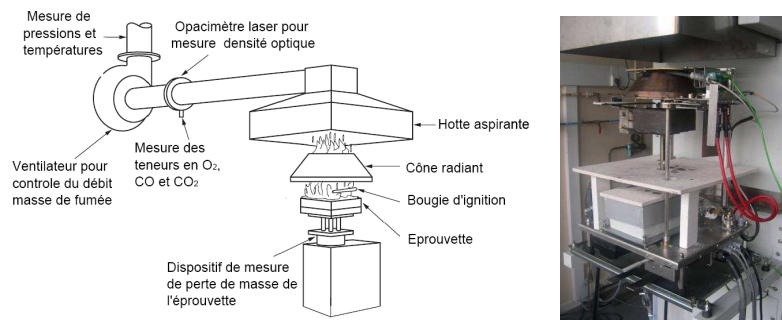


Fig. 3: un cône calorimètre

#### 3.2 LA SIMULATION NUMÉRIQUE : LE CODE FDS 5

Fire Dynamics Simulator (FDS) version 5.2 est un code CFD couplé à des modèles de combustion et de pyrolyse. FDS utilise comme modèle hydrodynamique une approximation des équations de Navier-Stokes appropriée à la simulation des écoulements à bas nombre de Mach. La turbulence est traitée par une approche LES à constante de Smagorinsky fixe. Pour le matériau, l'équation de l'énergie est écrite à l'aide d'un modèle de transfert conductif monodimensionnel :

$$\bar{\rho}c \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \sum_{i=1}^N \Delta H_{r,i} \frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \dot{q}_{rad}''' \quad (5)$$

où  $\Delta H_{r,i}$  est l'enthalpie de réaction,  $c$  la capacité calorifique,  $k_i$  la conductivité thermique,  $\rho_i$  la masse volumique, et  $\dot{q}_{rad}'''$  est le flux radiatif par unité de volume. L'indice  $i$  renvoie à chaque constituant du matériau.

### 3.3 L'EXPÉRIENCE ET LA SIMULATION NUMÉRIQUE COMPAREES

Une simulation du cône calorimètre a été réalisée en respectant les dimensions réelles du banc d'essai expérimental. Le modèle de décomposition de la résine défini précédemment a été intégré au code de calcul. Il s'agit maintenant de vérifier que notre expérience virtuelle du cône calorimètre nous permet bien de reproduire le comportement au feu du composite étudié. La figure 4 permet de comparer les comportements numérique et expérimental du matériau composite via le MLR et le HRR obtenus pour un flux incident de  $50 \text{ kW.m}^{-2}$ .

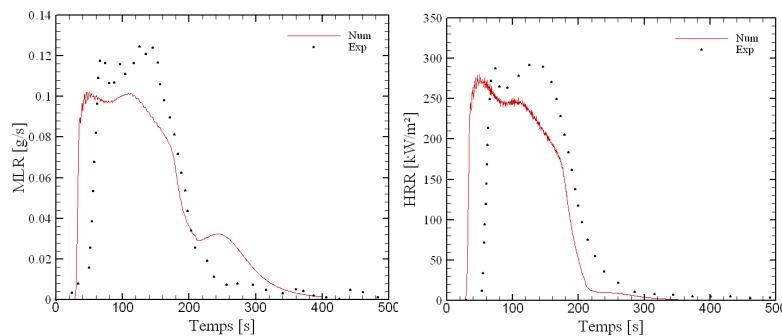


Fig. 4 - Comparaison entre résultats numériques et expérimentaux pour un niveau d'irradiance de  $50 \text{ kW.m}^{-2}$

Pour ce qui est du HRR, les courbes expérimentale et numérique ont même allure bien que la simulation numérique prédise une inflammation plus rapide de l'éprouvette. Après le premier pic, le taux de dégagement de chaleur (HRR) diminue rapidement. Cette décroissance est due au ralentissement de la décomposition du composite en raison d'un épaissement de la couche de charbon présente à la surface du matériau. Les fibres de verre réduisent également le HRR et agissent comme barrière thermique. Le second pic, beaucoup plus large que le premier, est observé uniquement lorsque la face arrière de l'éprouvette est isolée (les conditions limites en face arrière ont un effet important sur la pyrolyse d'un matériau thermiquement fin). Il est attribué à une augmentation du taux de gazéification au sein de la partie imbrulée du substrat et à l'augmentation de la température au sein du stratifié [12].

Quantitativement, le taux de perte de masse numérique est légèrement inférieure aux résultats expérimentaux. Cet écart peut être dû à une sous-estimation du taux d'oxydation du charbon, ou à une réaction absente de l'actuel schéma réactionnel.

Une étude de sensibilité a mis en évidence les paramètres qui affectent les résultats numériques. Elle montre que les écarts entre les résultats expérimentaux et numériques

proviennent des paramètres qui gouvernent le taux de réaction chimique dans le modèle (loi d'Arrhenius) ainsi que les équations utilisées dans le code FDS.

### **3.4 REMARQUES CONCERNANT FDS.**

Il est à noter que FDS utilise une équation de la chaleur mono-dimensionnelle. Cette simplification est justifiée dans FDS qui a été conçu pour simuler des incendies (de grandes dimensions) au cours desquels les parois en présence sont supposées être exposées de manière uniforme à un flux radiatif donné. Elle a pour effet un échauffement plus rapide du matériau qu'en réalité, car la chaleur ne peut pas diffuser latéralement. En outre, dans FDS, une molécule de gaz brûle instantanément pour peu que la concentration d'oxygène nécessaire soit présente (pas besoin d'énergie d'activation). Les flammes numériques ont donc tendance à se propager plus rapidement que les flammes réelles.

A l'échelle du cône calorimètre, les effets de bords sont également très importants. Les pertes de chaleur au travers des cotés non exposés de l'échantillon ne peuvent pas être simulées correctement. Les délais d'ignition numériques sont donc plus courts que les délais d'ignition réels.

## **4 CONCLUSION**

Ce papier présente d'une part, les résultats expérimentaux du comportement au feu d'un composite stratifié (résine polyester avec fibres de verre), sur un banc d'essai à petite échelle (cône calorimètre) et d'autre part, les simulations numériques de ces essais à l'aide du code LES FDS 5. Un modèle de pyrolyse du matériau considéré a en outre été utilisé.

Les simulations numériques ont permis de démontrer que le modèle de décomposition issu de l'analyse thermo-gravimétrique et le jeu de données expérimental permettaient une reproduction correcte du comportement au feu d'un stratifié polyester-verre.

La comparaison effectuée est la première étape d'une approche multi-échelle qui doit permettre d'étudier pas à pas la capacité du modèle de pyrolyse à reproduire le comportement au feu du matériau étudié dans un grand nombre de scénarios incendie pour lesquels des essais à échelle réelle ne sont pas envisageables.

Les premiers résultats montrent que, à l'échelle du cône calorimètre, le modèle de pyrolyse utilisé reproduit de manière satisfaisante les principales tendances observées expérimentalement en ce qui concerne la décomposition du matériau testé et ce quel que soit le niveau d'irradiance. Les simulations ont montré l'influence de la taille des mailles du domaine de calcul sur le calcul de la dégradation thermique du composite.

La prochaine étape de notre travail consistera à étudier expérimentalement et numériquement, selon la procédure décrite ici, le comportement au feu de ce matériau composite à plus grande échelle.

## **REMERCIEMENTS**

Les auteurs remercient le pôle de compétitivité EMC2, la région Pays de la Loire ainsi que la Direction Générale des Entreprises et la Délégation Générale de l'Armement pour leur soutien financier à la réalisation du projet MP08 cadre de ce travail.

## REFERENCES

---

- [1] Gutierrez J., Breuillard A., Pavageau M., Aubert A., Sollicec C., Craveur J.C., *Use of fire safety engineering for the design of composites for shipbuilding*, Fire & Materials 2009, San Francisco, 26 – 28 January 2009, pp 547-560.
- [2] Gutierrez, J, Breuillard, A, Corrigan, P, Marquis, D, Chivas, C, Guillaume, E, Pavageau, M, *Use of fire safety engineering for the design of composites for shipbuilding* CIF 5, Newcastle, 10 – 11 July 2008.
- [3] IMO MSC/Circ.1002 (2001) *Guidelines on Alternative Design and Arrangements for Fire Safety*.
- [4] Marquis D., Pavageau M., Guillaume E. & Chivas C. *Multiscale validation of pyrolysis model based CFD Simulation of Fire growth on composite*, 11th international conference Fire & Materials 2009, San Francisco, 26 – 28 January 2009, 413-424
- [5] Beyler, C. & Hirschler, M., *Thermal decomposition of polymers*. SFPE Handbook of Fire Protection Engineering. Second Ed. Section 1, Chapter 7, 99-199, 1995.
- [6] Conesa, J., Marcilla, A., Caballero, J., Font, R., *Comments on the validity and utility of the different methods for kinetic analysis of thermogravimetric data*. Journal of Analytical and Applied Pyrolysis. 58-59 (2001) P. 617-633.
- [7] Vyazovkin, S., Thermal analysis. Anal. Chem., 80, 4301-4316, 2008.
- [8] Rein, G., Lautenberger C., Fernandez Pello C., Torero J.L. & Urban D.L., *Application of genetic algorithms and thermogravimetry to determine the kinetics of polyurethane foam in smoldering combustion*, Combustion and flame, 146, 95-108, 2006.
- [9] Lautenberger, C., Rein, G. & Fernandez-Pello, C., *The application of a genetic algorithm to estimate material properties for fire modeling from bench-scale fire test data*. Fire Safety Journal, 41, 204-214, 2006.
- [10] Bustamante Valencia L., Rogaume T. & Guillaume E., *New method for simulating the kinetics of toxic gases productions of upholstered furniture fire*, 11th international conference Fire & Materials 2009, San Francisco, 26 – 28 January 2009, 685-695
- [11] Houck, C. & Joines, J., *A genetic algorithm for function optimization: a Matlab implementation*. Report NCSU-IE TR 95-09. <http://www.ise.ncsu.edu/>
- [12] Brown J.E., Braun E., & Twilley W.H., *Cone calorimeter evaluation of the flammability of composite materials*. Technical report NBSIR 88-3733, National bureau of standards, Center for fire research , 1988.