Etude de la réponse d'un capteur résistif aux suies produites par un solvant industriel

Amel Kort, F-X. Ouf, T. Gelain, J. Malet, Riadh Lakhmi, Philippe Breuil, Jean-Paul Viricelle

▶ **To cite this version:**

Amel Kort, F-X. Ouf, T. Gelain, J. Malet, Riadh Lakhmi, et al.. Etude de la réponse d'un capteur résistif aux suies produites par un solvant industriel. CFA2021 - 34ème Congrès Français sur les Aérosols, ASFERA - Association Française d'Etudes et de Recherches sur les Aérosols, Jan 2021, Paris, France. 10.25576/ASFERA-CFA2021-24818 . emse-03145251

HAL Id: emse-03145251

https://hal-emse.ccsd.cnrs.fr/emse-03145251

Submitted on 18 Feb 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.

ETUDE DE LA REPONSE D'UN CAPTEUR RESISTIF AUX SUIES PRODUITES PAR UN SOLVANT INDUSTRIEL

A. Kort*[1,2], F-X. Ouf[1], T. Gelain[1], J. Malet[1], R. Lakhmi[2], P. Breuil[2], J-P. Viricelle[2]

[1]Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PSN-RES, SCA, Gif-sur-Yvette, 91192, France
[2]Ecole Nationale Supérieure des Mines, SPIN-EMSE, CNRS : UMR5307, LGF, 42023 Saint Etienne, France

*amel.kort@irsn.fr

TITLE

Study of the response of a resistive sensor to soot produced by an industrial solvent

RESUME

Au cours d'un incendie dans une Installation Nucléaire de Base (INB), les principales conséquences en termes d'émission d'aérosols sont la mise en suspension de particules radioactives et la production de suies. Ce travail s'inscrit dans le cadre d'une thèse portant sur l'étude du dépôt des suies dans les locaux, afin de prédire les quantités d'aérosols participant au colmatage des filtres à Très Haute Efficacité (THE). L'objectif final est de développer un dispositif multi-capteurs pour la quantification, en continu, des suies déposées sur les parois d'un local en situation d'incendie. Cette communication présente la qualification du capteur résistif qui sera utilisé pour la collecte et la détection des suies issues de la dégradation d'un mélange de Tributylphosphate (TBP) / Tetrapropylène Hydrogéné (TPH).

ABSTRACT

During a fire in a basic nuclear facility, the main consequences concerning aerosols release are the production of suspended radioactive particles and of a large amount of soot. This work is part of a PhD dealing with the study of soot deposition in rooms during a fire, which is essential for the prediction of aerosol quantities that can clog high efficiency particulate air filters. For this purpose, a multi-sensor device will be developed for real time measurement of aerosol deposition in a room during a fire. The aim of this paper is to present the qualification of the resistive sensor that will be used for the collection and detection of soot particles produced by a mixture of Tributylphosphate (TBP) / Hydrogenated Tetrapropylene (TPH).

MOTS-CLÉS: suies, dépôt, capteur résistif, incendie / **KEYWORDS:** soot, deposition, resistive sensor, fire

1. INTRODUCTION

Les incendies donnent lieu à la production de quantités considérables de suies et à la dispersion atmosphérique de polluants sous forme particulaire. Le transport et le dépôt de particules, potentiellement toxiques, ont donné lieu à une prise de conscience des pouvoirs publics quant à la nécessité de disposer de modèles de prédiction de la production et du transport des aérosols émis lors d'un incendie. A l'échelle d'une installation industrielle (industrie chimique, biologique, nucléaire), de tels incendies ont renforcé la nécessité d'assurer le confinement des polluants particulaires. Dans l'industrie nucléaire, ce confinement est généralement réalisé grâce à un réseau de ventilation associé à des filtres à Très Haute Efficacité (THE). Afin de prédire le colmatage de tels dispositifs de confinement en cas d'incendie, plusieurs études ont été menées (Bourrous *et al.*, 2016; Lintis *et al*., 2021) et les résultats seront implémentées dans des codes de calcul visant à reproduire les conséquences d'un incendie sur la dispersion de polluants dans les installations nucléaires de base (INB). Pour ce faire, et malgré de récentes tentatives (Mensch & Cleary, 2019), un travail conséquent reste à réaliser afin de proposer des modèles validés de dépôt des suies sur les parois et les réseaux de ventilation des INB. En amont de ces développements théoriques, et afin de répondre à des problématiques de quantification de dépôt de suies dans diverses conditions, il s'avère nécessaire de développer des moyens métrologiques capables de quantifier, en temps réel, la masse de suies déposée lors d'un incendie.
Les capteurs accumulatifs (Fragkiadoulakis et al., 2018) présentent plusieurs avantages pour la quantification des suies 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'essais incendie. Parmi les capteurs de suie accumulatifs, les capteurs résistifs pourraient être une solution prometteuse puisque ces capteurs, développés pour le domaine automobile (Grondin et al., 2016), ont récemment été utilisés pour quantifier les dépôts de suie sur les surfaces en cas d'incendie (Mensch & Cleary, 2018). Cependant, la conversion précise de la réponse du capteur en termes de masse de suie accumulée est difficile. Précédemment (Kort et al., 2020), nous avons présenté la méthodologie de qualification du capteur résistif et ce pour des suies produites par une flamme de diffusion (mini-CAST). Afin de juger de la pertinence de cette méthodologie, celle-ci a été appliquée au cas de suies produites lors d'un incendie mettant en jeu un solvant utilisé dans l'industrie nucléaire et les résultats de cette étude sont discutés dans la présente communication.

2. MATERIEL ET METHODES

2.1. Principe de fonctionnement et fabrication du capteur résistif

Le capteur résistif (Kort et al., 2020) est basé sur les propriétés électriques des suies. Son élément sensible est composé d'électrodes interdigitées gravées par laser sur du platine déposé par sérigraphie sur un substrat en alumine. Cet élément sensible est connecté électriquement par des pistes en or sur lesquelles un film diélectrique est sérigraphié. Ce film sert à protéger les pistes en or mécaniquement et électriquement.
Le principe de fonctionnement du capteur repose sur l'évolution de la conductance du capteur, induite par le dépôt de suies entre les électrodes conductrices séparées de quelques dizaines de micromètres et entre lesquelles est appliquée une tension de polarisation. En l'absence de suie, la conductance mesurée entre les électrodes correspond à celle de l'alumine (conductance proche de zéro). Lors de la formation du dépôt entre les électrodes, la conductance du capteur augmente et permet un suivi qualitatif de la quantité de suies déposées (Feulner et al., 2015). Au-delà d'une certaine masse déposée, le signal de conductance tend vers une valeur asymptotique dite de « saturation » et dont l'origine physique n'est pas encore totalement expliquée. Afin de revenir à une sensibilité satisfaisante de ce capteur « saturé », la face sensible du capteur est alors régénérée en brûlant les suies à l'aide d'une résistance chauffante sérigraphiée sur la face arrière du capteur (à une température proche de 650°C).

2.2. Banc expérimental

La méthodologie de qualification des capteurs ayant été préalablement introduite (Kort et al., 2020), nous ne reviendrons pas sur celle-ci. Nous nous attarderons dans la présente communication sur le dispositif employé pour exposer le capteur résistif à des suies « réalistes » d'incendie de solvants. Pour ce faire, le dispositif PARIS (Lintis et al., 2021) a été employé afin de produire des suies issues de la dégradation du TBP/TPH (Tributylphosphate / Tetrapropylène Hydrogéné). Le banc expérimental (cf. figure 1) 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.

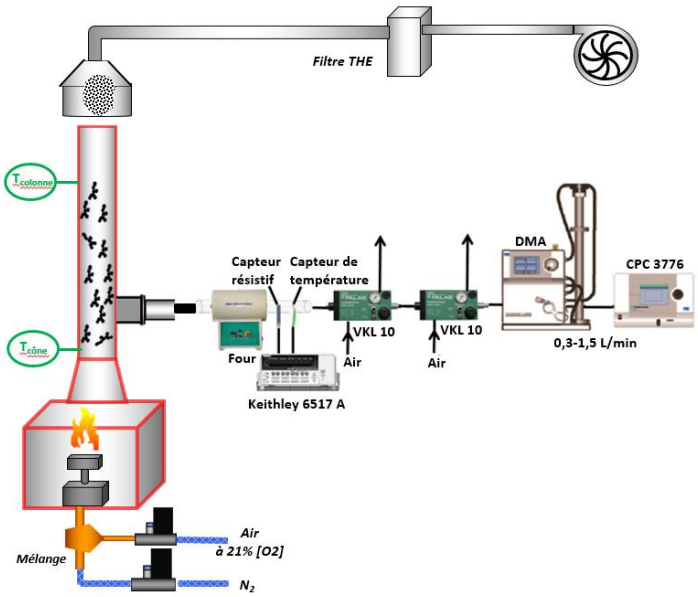

Figure 1: banc de génération et de dépôt de suies

L'atmosphère environnant le combustible est alors maîtrisée en termes de teneur en dioxygène (21 %). La chambre de combustion est surmontée d'une colonne dans laquelle sont transportés les aérosols : 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 pour effectuer l'analyse des aérosols. Un de ces piquages est connecté à un tube en verre de 5 cm de diamètre.
Les suies produites sont ensuite conditionnées à une température de 150°C dans un four tubulaire. Cette température a été choisie car elle nous permet d'évaluer le comportement du capteur à une température proche de celle des parois observée lors d'un incendie à grande échelle. Le capteur est placé au sein du tube en verre en sortie de ce four et une mesure SMPS (*Scanning Mobility Particle Sizer*) est réalisée en aval de deux systèmes de dilution Palas VKL10. La mesure de la conductance est réalisée à l'aide d'un multimètre Keithley 6517 A, contrôlé par un ordinateur via un programme LabVIEW. Afin d'étudier l'effet de la tension de polarisation sur la réponse du capteur, deux valeurs différentes, 0,1 V et 10 V, ont été appliquées.

3. RESULTATS EXPERIMENTAUX

3.1. Granulométrie des suies produites par la combustion du solvant TBP/TPH

La réponse du capteur a été étudiée pour des suies produites par un mélange de TBP / TPH. A la différence des suies produites par un brûleur de laboratoire (Mini-CAST), la figure 2 montre que la granulométrie des suies auxquelles le capteur est exposé évolue au cours du temps, et ce lors de la combustion de la nappe de solvant. La distribution est tout d'abord bimodale (induite par l'utilisation d'un chalumeau) 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 4.10^7 ± 10 % (#/cm^3) (celle-ci a été corrigée d'un facteur de dilution de 100), un diamètre médian de mobilité électrique de 216 ± 15 nm et un écart-type géométrique de 1,5 ± 0,1. 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, ce qui apparaît très visible dans ces conditions (t0 + 27 min) avec une granulométrie centrée à 35 nm et associée à la phase de combustion du dépôt de suies sur la face sensible du capteur.

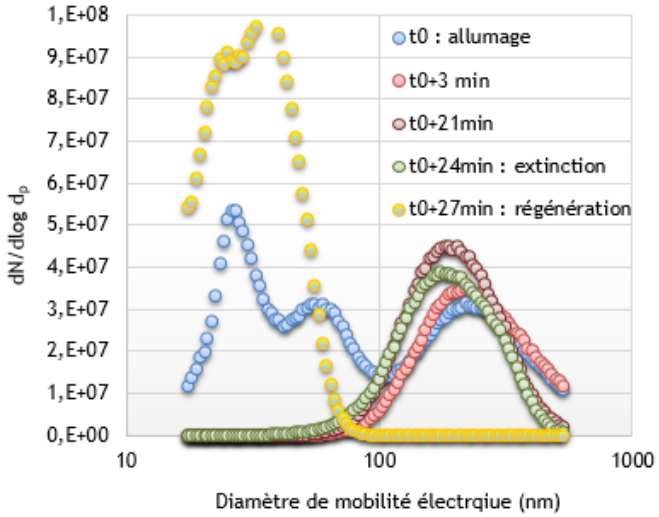

Figure 2 : évolution de la granulométrie des suies produites par un mélange de TBP/TPH depuis l'allumage de la flamme jusqu'à la phase de régénération du capteur de suies

3.2. Effet de la tension de polarisation sur la réponse du capteur

Afin d'étudier l'effet de la tension de polarisation sur la réponse du capteur (figure 3), un même capteur a été exposé aux suies dans les mêmes conditions mais pour deux tensions de polarisation (0,1 V et 10 V). La conductance a alors été enregistrée jusqu'à l'extinction de la flamme. Trois cycles d'exposition successifs ont été réalisés avec une régénération intermédiaire du capteur.

Les valeurs initiales de conductance de la figure 3 correspondent à celle mesurées à la fin de la phase de régénération du capteur, soit un capteur propre de toute suie entre les électrodes de mesure.

On observe une réponse répétable du capteur pour les deux tensions étudiées.

On peut distinguer 2 régimes : un régime « intermédiaire » lorsque la tension de polarisation est égale à 0,1 V et un régime purement « dendritique » lorsque la tension est égale à 10 V, déjà identifiés lors d'études précédentes (Kort et al., 2020).

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. Dans cette condition, les forces électrostatiques ne sont pas prédominantes et ne permettent pas d'aligner les particules de suies et ainsi de former des dendrites parallèles les unes aux autres (ponts entre les électrodes). Le dépôt est alors peu structuré et la création de jonctions entre les électrodes ne se fait pas de façon continue mais seulement dès lors qu'un amas de particules permet la jonction entre les électrodes. Ce palier est ensuite suivi d'une augmentation progressive de la conductance.

Pour une tension de polarisation de 10 V, la conductance progresse de façon continue et sans saut brutal. La force électrostatique étant dans ce cas plus influente sur la structuration du dépôt, elle conduit à la croissance de plusieurs dendrites en parallèle. L'augmentation continue de la conductance correspond alors aux dendrites qui forment successivement des ponts entre les électrodes. Pour cette tension, et à l'inverse des suies produites par le Mini-CAST (Kort et al., 2020), nous observons une saturation puis une diminution notable et continue de la conductance. Dans l'état actuel de nos connaissances, nous ne pouvons pas encore expliquer cette diminution et l'associons, à ce stade de nos réflexions, à une modification physico-chimique des suies induite par effet Joule à la surface du capteur pour une tension de polarisation de 10 V.

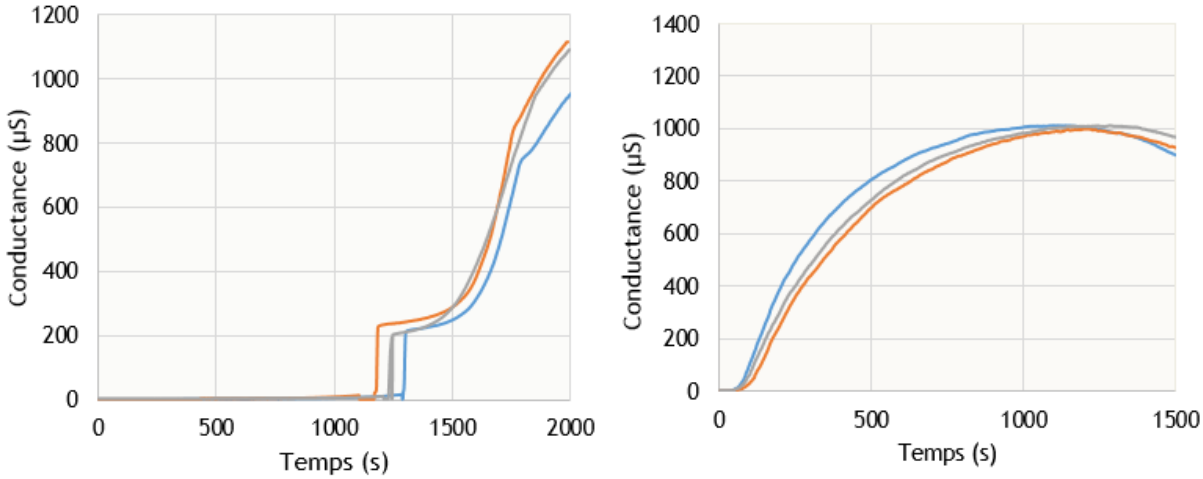

Figure 3 : évolution de la conductance en fonction du temps d'exposition (origine prise à la fin de la phase de régénération) pour différentes tensions de polarisation à 0,1 V (à gauche) et à 10 V (à droite) pour 3 essais successifs

4. CONCLUSION

La réponse électrique du capteur résistif a été évaluée à deux tensions de polarisation à une température proche de celle des parois lors d'un incendie. On distingue deux régimes précédemment observés pour la réponse du capteur aux suies produites par le Mini-CAST : un régime « intermédiaire» lorsque la tension de polarisation est égale à 0,1 V et un régime purement « dendritique » lorsque la tension de polarisation est égale à 10 V. A cette dernière valeur, une saturation puis une diminution de la conductance a été observée qui pourrait être due à une transformation chimique des suies sous l'action du champ électrique. Les perspectives de ce travail portent sur l'application d'une méthode d'étalonnage en masse déposée avec l'établissement d'une corrélation entre la conductance du capteur et la masse déposée.

REFERENCES

Bartscherer, P., & Moos, R. (2013). Improvement of the sensitivity of a conductometric soot sensor by adding a conductive cover layer. *J. Sens. Sens. Syst*, *2*, 95–102. https://doi.org/10.5194/jsss-2-95-2013

Bourrous, S., Bouilloux, L., Ouf, F. X., Lemaitre, P., Nerisson, P., Thomas, D., & Appert-Collin, J. C. (2016). Measurement and modeling of pressure drop of HEPA filters clogged with ultrafine particles. *Powder Technology*, *289*(109), 117. https://doi.org/10.1016/j.powtec.2015.11.020

Feulner, M., Hagen, G., Muller, A., Schott, A., Zollner, C., Bruggemann, D., & Moos, R. (2015). Conductometric sensor for soot mass flow detection in exhausts of internal combustion engines. *Sensors (Switzerland)*. https://doi.org/10.3390/s151128796

Fragkiadoulakis, P., Geivanidis, S., & Samaras, Z. (2018). Modeling a resistive soot sensor by particle deposition mechanisms. *Journal of Aerosol Science*. https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2018.06.005

Fragkiadoulakis, P., Mertzis, D., Geivanidis, S., & Samaras, Z. (2015). Prediction of resistive soot sensor behaviour in diesel exhaust via 3D simulation of soot deposition. *6th BETA CAE International Conference*.

Grondin, D., Geara, S., Breuil, P., Viricelle, J. P., & Vernoux, P. (2016). Influence of Electrodes Polarization on the Response of Resistive Soot Sensor. *Procedia Engineering*. https://doi.org/10.1016/j.proeng.2016.11.124

Hagen, G., Müller, A., Feulner, M., Schott, A., Zöllner, C., Brüggemann, D., & Moos, R. (2014). Determination of the soot mass by conductometric soot sensors. *Procedia Engineering*. https://doi.org/10.1016/j.proeng.2014.11.646

Kort, A., Ouf, F.-X., Gelain, T., Malet, J., Lakhmi, R., Breuil, P., & Viricelle, J.-P. (2020). *Etude de l'effet de la tension de polarisation sur la réponse d'un capteur résistif de suies*. https://doi.org/10.25576/ASFERA-CFA2020-19777

Lintis, L., Ouf, F.-X., Parent, P., Ferry, D., Laffon, C., & Vallières, C. (2021). Quantification and prediction of water uptake by soot deposited on ventilation filters during fire events. *Journal of Hazardous Materials*, *403*, 123916. https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2020.123916

Mensch, A., & Cleary, T. (2018). A Soot Deposition Gauge for Fire Measurements. *NIST Technical Note 1985*. https://doi.org/10.6028/NIST.TN.1985

Mensch, A., & Cleary, T. (2019). Measurements and predictions of thermophoretic soot deposition. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *143*.