



UNIVERSITÉ D'ORLÉANS



ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES ET TECHNOLOGIES

LABORATOIRE CNRS ICARE

THÈSE présentée par :
Kodjo COUDORO

Soutenue le 27 Janvier 2012

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université d'Orléans**

Discipline : Energétique

**Etude expérimentale et modélisation de la
propagation de flamme en milieu confiné ou
semi-confiné**

THÈSE dirigée par :

Nabiha CHAUMEIX Directrice de Recherche au CNRS d'Orléans

RAPPORTEURS :

Mourad BOUKHALFA Professeur de l'Université de Rouen

Mikhail KUZNETSOV Chercheur au Karlsruhe Research Center

JURY :

Ahmed Bentaib Chercheur à l'IRSN

Mourad BOUKHALFA Professeur de l'Université de Rouen

Nabiha CHAUMEIX Directrice de Recherche au CNRS d'Orléans

J. DAUBECH Chercheur à l'INERIS

Mikhail KUZNETSOV Chercheur au Karlsruhe Research Center

C.E. PAILLARD Professeur émérite de l'Université d'Orléans

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, qu'il me soit permis à travers ces lignes d'adresser mes remerciements du plus profond du cœur à Nabih Chaumeix qui m'a accueilli au sein de l'équipe Onde de Choc tout d'abord dans le cadre de mon stage de Master II, puis dans le cadre de ce travail de thèse. Mon souvenir, reconnaissant, de ces années d'apprentissage à tes côtés retiendra cette extrême curiosité scientifique qui nous pousse au bout des choses et surtout ta bienveillance qui facilite les choses. Un merci tout aussi appuyé à Ahmed Bentaib, pour sa confiance, sa direction, sa grande sympathie ainsi que sa disponibilité au cours de ce travail. Je garde de ce travail avec toi un souvenir agréable. Un grand merci à Jérôme Daubech qui a également suivi avec attention ce travail. Enfin, je tiens à remercier M. Caroli et Nicolas Meynet qui également ont suivi ce travail.

Que monsieur Paillard, professeur émérite de l'Université d'Orléans trouve en ces quelques mots l'expression de ma gratitude pour m'avoir fait l'honneur de présider ce jury de thèse.

Mes remerciements s'adressent ensuite aux rapporteurs, M. Kuznetsov, chercheur au Karlsruhe Research Center et M. Boukhalfa, directeur du CORIA pour l'attention portée à ce travail et pour avoir accepté de rapporter ce travail.

L'expérience a montré que derrière une thèse expérimentale se cache une équipe technique solide. Ainsi, je souhaite remercier à travers ces quelques lignes, Laurent, Eric Jacques, Fabrice, Alain, Stéphane et, bien entendu, Mahmoud pour avoir simplifié les choses qui semblaient les plus compliquées.

J'adresse mes sincères remerciements à l'ensemble du personnel du laboratoire et notamment à l'équipe administrative, Murielle, Corinne, Jeanine, Vincent et Maryline. Je n'oublie pas Géraldine de l'IRSN dont la bonne humeur et la sympathie sont inégalables.

Ma profonde gratitude s'adresse aux membres de l'équipe de choc, les anciens thésards qu'étaient, Homan C, Thomas D. et Rémy M. (aille) qui, tels des jeunes sages, ont guidé mes pas à mon arrivée au laboratoire et qui ont su me faire profiter de leur expérience de stagiaires, doctorants puis de jeunes docteurs. Merci à Mohammed, qui m'a encadré au cours de mon stage de Master II pour ces précieux conseils. Un très grand merci à Marie N. ainsi qu'à Joffrey B. pour leur aide si précieuse dans la réalisation des expériences en petite et grande bombe dans la dernière ligne droite et tout ceci dans la bonne humeur. Un grand merci à Jules l'héritier du Matlab qui (je ne l'oublie pas) préfère gimp et pour qui la bombe sphérique et bientôt Enaccef n'auront plus de secrets, à Jérémy le collègue de bureau, le complice, le super bras droit, l'âme charitable du covoiturage (ou du voiturage tout court il n'y a rien de 'co' dans ceci) qui entre deux bouchées de tam-tam aime à partager sa science politique, sportive et scientifique tout court..., à Florian, opérateur Enaccef agréable, toujours disponible pour fermer ouvrir, fermer les vannes et tirer.

A l'ensemble du collège des doctorants, des IR et IE de moins de 40 ans invités à la grande table des doctorants du midi, j'aimerais adresser un merci sincère. La convivialité du repas du midi est un bol d'air frais qui requinque. Un merci tout particulier à Alexism Gold Hand M., shooteur émérite et compagnon irremplaçable au basket, à Yohann Prési E. et Amir qui étaient là au début mais aussi à la fin de cette aventure et à Casimir T.

J'aimerais ici adresser un merci tout particulier à Sessi K., pour son soutien inconditionnel tout au long de cette thèse. Ta présence chaleureuse est un cadeau inestimable. Je n'oublie pas Jean Luc A., Etienne M. compagnon sur les routes de la sagesse, Moussa et Zoé D. pour leurs encouragements incessants.

Enfin, pour finir, je souhaite adresser un merci emprunt d'émotion, à ma famille sans qui rien de tout ceci n'aurait été possible. Je pense à mes parents qui m'ont tant soutenu pendant ces huit dernières années malgré la distance, et à mes frères véritables gardiens et protecteurs contre le renoncement.

A tous et à chacun, merci !

SOMMAIRE

INTRODUCTION.....	15
CHAPITRE I. ETAT DE L'ART : FLAMMES DE PREMELANGE.....	17
1 CONDITIONS D'EXISTENCE D'UNE FLAMME.....	17
1.1 LES LIMITES D'INFLAMMABILITE	17
1.1.1 Energies minimales d'inflammation.....	19
1.1.2 Diamètre et distance de coincement.....	21
2 REGIMES DE PROPAGATION DES FLAMMES	23
2.1 DEFLAGRATION.....	23
2.2 DETONATION	25
2.3 TRANSITION DEFLAGRATION – DETONATION	29
2.3.1 Le mécanisme d'accélération.....	30
2.3.1.1 L'instabilité de Darrieus-Landau.....	30
2.3.1.2 Les instabilités thermo-diffusives.....	31
2.3.1.3 Instabilités liées au confinement	32
2.3.2 Propagation en tube lisse.....	32
2.3.3 Propagation en tube encombrés d'obstacles.....	34
3 ETAT DE L'ART SUR LES VITESSES FONDAMENTALES DE FLAMME	37
3.1 QUELQUES RAPPELS SUR LES VITESSES FONDAMENTALES DE FLAMME	37
3.1.1 La théorie de Mallard et Le Châtelier.....	38
3.1.2 La théorie de Zel'dovich, Franck –Kamenetskii et Semenov.....	39
3.1.3 Energie d'activation et nombre de Zeldovich	39
3.1.4 Epaisseur d'une flamme laminaire.....	40
3.2 CAS DES MELANGES D'INTERET POUR L'ETUDE.....	42
3.2.1 Mélanges méthane/air.....	42
3.2.2 Mélanges hydrogène/air	47
3.2.3 Mélanges Hydrogène /Méthane	51
3.2.4 Mélanges Hydrogène / Monoxyde de Carbone	55
4 ETAT DE L'ART SUR LES FLAMMES FORTEMENT ACCELEREES	60
4.1 LES LIMITES D'ACCELERATION.....	60
4.1.1 . Impact du diamètre du tube sur les limites d'accélération.....	61
4.1.2 Influence du rapport de blocage.....	65
4.1.3 Influences de la pression et de la température	65
4.2 DISTANCE MINIMALE D'ACCELERATION DE FLAMME	67
4.3 ACCELERATIONS DE FLAMME D'HYDROGENE : LE CRITERE SIGMA DE PREDICTION DES ACCELERATIONS	71
5 CONCLUSION	74

CHAPITRE II. DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX..... 77

1	MELANGES GAZEUX ETUDIES.....	77
2	LES FLAMMES LAMINAIRES	77
2.1	LES LIMITES D'INFLAMMABILITE	77
2.1.1	Dispositif expérimental	77
2.1.2	L'inflammation par focalisation laser.....	78
2.1.3	La visualisation du front de flamme.....	80
2.1.4	Mesure de la surpression	81
2.2	LES VITESSES DE FLAMME	81
2.2.1	Dispositif expérimental	82
2.2.2	Le prémélange et l'inflammation	82
2.2.3	Diagnostics associés	83
2.2.4	La détermination de la vitesse de flamme.....	84
2.2.5	L'étirement.....	86
2.2.6	Evaluation de l'erreur sur l'évaluation de la vitesse de flamme en bombe sphérique	87
2.3	LES PARAMETRES D'EXPLOSIVITE.....	89
3	LES FLAMMES ACCELEREES.....	90
3.1	DISPOSITIF EXPERIMENTAL : ENACCEF	90
3.2	CONDITIONS INITIALES.....	92
3.3	DIAGNOSTICS ASSOCIES.....	93
3.4	INCERTITUDES SUR LA MESURE DE LA VITESSE.....	94
3.4.1	Incertitudes sur la distance parcourue par la flamme	94
3.4.2	Incertitudes sur l'instant de passage de la flamme.....	95
3.5	ANALYSE DES GAZ	95
3.5.1	Chromatographe phase gazeuse.....	95
3.5.2	Etalonnage de la CPG	96

CHAPITRE III. LES LIMITES D'INFLAMMABILITE..... 97

1	LES MELANGES G27 (82%CH₄+18%N₂)/AIR.....	97
1.1	LES LIMITES D'INFLAMMABILITE P _{INI} =1 BAR, T _{INI} =300 K.....	97
1.2	EFFET DE LA PRESSION SUR LES LIMITES D'INFLAMMABILITE, P _{INI} =2 BARS, T _{INI} =300 K	99
2	CAS DU G222	100
2.1	LES LIMITES D'INFLAMMABILITE P _{INI} =1 BAR, T _{INI} =300 K.....	100
2.2	INFLUENCE DE LA PRESSION SUR LES LIMITES D'INFLAMMABILITE	104
3	CAS DU MELANGE H₂/CO	106
3.1	LIMITES D'INFLAMMABILITE A P=1 BAR ET T=300 K.....	106
3.2	EFFET DE LA PRESSION SUR LES LIMITES D'INFLAMMABILITE DU H ₂ /CO	109
4	CONCLUSION	110

CHAPITRE IV. : ETUDE DES FLAMMES LAMINAIRES113

1 CAS DU G27	113
1.1 LES VITESSES FONDAMENTALES DE FLAMME.....	113
1.1.1 La vitesse de flamme à pression et à température ambiante.....	113
1.1.2 Effet de la température sur la vitesse de flamme.....	115
1.1.3 Influence de la pression sur les vitesses de flamme des mélanges G27/Air.....	116
1.2 LES LONGUEURS DE MARKSTEIN	117
1.2.1 Les longueurs de Markstein pour une pression et température ambiantes	117
1.2.2 Effet de la température sur les longueurs de Markstein	118
1.2.3 Effet de la pression sur les longueurs de Markstein des mélanges G27/Air.....	119
1.3 EXPLOSIVITE DES MELANGES G27/AIR.....	119
1.3.1 Les pressions maximales de combustion des mélanges G27/Air.....	119
1.3.2 Indice de déflagration et vitesse maximale de montée en pression	121
1.4 MODELISATION DES VITESSES DE FLAMME	122
1.4.1 Choix d'un modèle cinétique détaillé.....	123
1.4.2 Comparaison expérience/modélisation	123
1.4.3 Evaluation des énergies d'activation et du nombre de Zeldovich (β).....	130
2 CAS DU G222	132
2.1 LES VITESSES FONDAMENTALES DE FLAMME.....	132
2.1.1 Vitesse de flamme à température et pression ambiantes.....	132
2.1.2 Effet de la température sur les vitesses de flamme du G222	134
2.1.3 Effet de la pression sur les vitesses de flamme du G222	134
2.2 LES LONGUEURS DE MARKSTEIN	135
2.2.1 Les longueurs de Markstein à 1 bar et 303 K.....	135
2.2.2 Influence de la température sur les longueurs de Markstein.....	136
2.2.3 Influence de la pression sur les longueurs de Markstein.....	137
2.3 PARAMETRES D'EXPLOSIVITE DES MELANGES G222/AIR.....	137
2.3.1 La pression maximale de combustion.....	137
2.3.2 $dpdt_{max}$, et indice de déflagration kG	139
2.4 MODELISATION CINETIQUE DETAILLEE.....	140
2.4.1 Comparaison expérience modélisation.....	140
2.4.2 Evaluation des énergies d'activation et du nombre de Zeldovich	144
3 CAS DU H₂/CO.....	146
3.1 LES VITESSES DE FLAMME	146
3.1.1 Les vitesses de flamme à 300 K et 1 bar.....	146
3.1.2 Influence de la température initiale.....	147
3.1.3 Influence de la pression initiale sur la vitesse de flamme.....	148
3.2 LES LONGUEURS DE MARKSTEIN	149
3.2.1 Les longueurs de Markstein à température et à pression ambiante	149
3.2.2 Influence de la température initiale.....	150
3.3 PARAMETRES D'EXPLOSIVITE DES MELANGES H ₂ /CO DANS L'AIR.....	151
3.3.1 Pressions maximales de combustion	151
3.3.2 Vitesses maximales de montée en pression et indice de déflagration.....	152
3.4 MODELISATION CINETIQUE DETAILLEE.....	153

3.4.1	Comparaison expérience modélisation.....	154
3.4.2	Evaluation des énergies d'activation et du nombre de Zeldovich	158
4	CONCLUSION	160

CHAPITRE V. FLAMMES FORTEMENT ACCELEREES163

1	CAS DU G27	164
1.1	PROPAGATION EN TUBE LISSE	164
1.2	INFLUENCE DU NOMBRE D'OBSTACLES SUR LE PROFIL DE VITESSE.....	166
1.3	INFLUENCE DU RAPPORT DE BLOCAGE SUR LE PROFIL DE VITESSE.....	171
2	CAS DU G222	174
2.1	PROPAGATION EN TUBE LISSE	174
2.2	INFLUENCE DU NOMBRE D'OBSTACLES	176
2.3	EFFET DU RAPPORT DE BLOCAGE SUR L'ACCELERATION DE FLAMME.	181
3	CAS DU MELANGE HYDROGENE- MONOXYDE DE CARBONE	187
3.1	PROPAGATION EN TUBE LISSE	187
3.2	EFFET DU NOMBRE D'OBSTACLES	189
3.3	EFFET DU RAPPORT DE BLOCAGE SUR LES PROFILS DE VITESSE.....	192
4	DISCUSSION GENERALE DE L'ACCELERATION DE FLAMME DES MELANGES ETUDIES	197
4.1	LIMITES D'ACCELERATION DES MELANGES G27/AIR.....	197
4.2	LIMITE D'ACCELERATION DES MELANGES G222/AIR	201
4.3	LIMITES D'ACCELERATION DU H ₂ /CO	203
5	CONCLUSION	206

CONCLUSION GENERALE.....209

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....213

Liste des Tableaux

Chapitre I – Etat de l'art : Flammes de Prémélange

Tableau 1-1 : Limites d'inflammabilités de mélanges d'hydrocarbures à pression atmosphérique et à pression ambiante [1] _____	18
Tableau 1-2 : Distance de coincement de différents mélanges à base d'hydrocarbures initialement à température ambiante à pression atmosphérique selon Kanury [9] _____	23
Tableau 3-1: Vitesses laminaires de flamme en fonction du rapport d'équivalence (cm/s). _____	37
Tableau : 3-2: Valeurs expérimentales corrigées des vitesses fondamentales de flammes méthane/air (correction pour 1 atm et une température des gaz frais de 298 K) d'après Andrews et Bradley [53] _____	44
Tableau 3-3 : Longueurs de Markstein et énergies d'activation en fonction de la richesse selon Gu et al [58] _____	46
Tableau 3-4 : Vitesses fondamentales de flamme mesurées par Milton et Keck [71] dans le cas d'un mélange stœchiométrique (33 %vol CH ₄ + 67 %vol H ₂). _____	52
Tableau 3-5: Vitesse maximales de flammes selon Scholte et Vaags [70] de différents mélanges H ₂ /CO _____	55
Tableau 3-6 : Tableau récapitulatif des conditions expérimentales et des vitesses maximales de flamme selon Sun et al. [77] _____	57
Tableau 4-1: Limite côté riche d'accélération du méthane pour différentes conditions initiales de température et de pression [90] _____	66
Tableau 4-2 : Effet du rapport de blocage sur les longueurs critiques d'accélération, d'après Ciccarelli et al. [89]. _____	69
Tableau 4-3: Rapport de densité et vitesse de flamme en fonction de la température (K) _____	71

Chapitre II - Dispositifs Expérimentaux

Tableau 2-1 : Caractéristiques du laser de la société CILAS utilisé au cours de cette étude. _____	78
Tableau 2-2 : Caractéristiques du capteur de pression _____	89
Tableau 3-1: Position relative par rapport à la position des électrodes des photomultiplicateurs, des capteurs de choc et des du capteur de pression _____	93

Chapitre III - Limites d'inflammabilité

Tableau 1-1 : Influence de la pression sur les limites d'inflammabilité du G27 dans l'air à température ambiante _____	100
Tableau 2-1 : Comparaison des limites d'inflammabilité du G222 avec les mélanges 80%CH ₄ /20%H ₂ à 1 bar _____	103
Tableau 2-2 : Limites d'inflammabilité du G222 à 1 et 2 bar. _____	106
Tableau 3-1 : Comparaison des limites d'inflammabilité du H ₂ /CO avec la littérature à 1 bar 300 K _____	108
Tableau 3-2 : Limites d'inflammabilité du H ₂ /CO à 1 et 2 bar _____	110

Chapitre V - Flammes Fortement accélérées

Tableau 1-1 : Comparaison entre la vitesse théorique avec l'approximation d'une flamme hémisphérique et la vitesse moyenne mesurée dans le tube de l'enceinte _____	166
Tableau 1-2 : Analyse chromatographique post combustion pour 7,9% de G27 dans l'air initialement à 298 K et 1 bar _____	168
Tableau 1-3 : Analyse chromatographique post combustion pour 8,4% de G27 (6,9% CH ₄) dans l'air initialement à 298 K et 1 bar _____	169
Tableau 1-4 : Analyse chromatographique post combustion pour 8,6% de G27 (7,05% CH ₄) dans l'air initialement à 298 K et 1 bar _____	170
Tableau 1-5 : Propagations observées en fonction de la composition et de la configuration pour le G27 _____	171

Tableau 1-6 : Analyse chromatographique post combustion pour un mélange composé de 7,9% de G27 dans l'air initialement à 298 K et 1 bar	173
Tableau 1-7 : Régimes de propagations observés en fonction de la configuration pour le G27/Air (8 obstacles)	174
Tableau 2-1 : Comparaison entre la vitesse théorique avec l'approximation d'une flamme hémisphérique et la vitesse moyenne mesurée dans le tube de l'enceinte	176
Tableau 2-2 : Types de propagation en fonction de la composition et de la configuration	180
Tableau 2-3 : Analyse chromatographique post combustion pour 6,8% de G222 dans l'air initialement à 298 K et 1 bar	184
Tableau 2-4 : Analyse chromatographique des gaz post combustion pour 7,2% G222 dans l'air initialement à 298 K et 1 bar	185
Tableau 2-5 : Influence du rapport de blocage sur le régime de propagation de la flamme	186
Tableau 3-1 Comparaison entre la vitesse théorique avec l'approximation d'une flamme hémisphérique et la vitesse moyenne mesurée sur les premiers mètres de la propagation	188
Tableau 3-2 : Analyse chromatographique des ballons post combustion pour un mélange de 12,3% H ₂ /CO dans l'air initialement à 298 K et 1 bar	190
Tableau 3-3 : Influence de la composition et du nombre d'obstacles sur le régime de propagation des mélanges H ₂ /CO	192
Tableau 3-4 : Analyse chromatographique des prélèvements post combustion pour 12,3% H ₂ /CO dans l'air, initialement le mélange est composé de 6,15% de H ₂	194
Tableau 3-5 : Tableau récapitulatif du type de propagation en fonction de la composition et de la configuration géométrique	196
Tableau 4-1 : Régimes de propagation observés pour chacune des compositions initiales (ϕ : rapport d'équivalence, σ rapport d'expansion des gaz brûlés, $C_{s,GF}$: vitesse du son dans les gaz frais, $C_{s,GB}$: vitesse du son dans les gaz brûlés, Le/CH_4 : nombre de lewis basé sur le méthane, β : nombre de Zeldovich, E_a : énergie d'activation globale, V_{max} : vitesse maximale expérimentale)	197
Tableau 4-2 : Comparaison des énergies d'activations évaluées au cours de cette étude et de celles proposées par Dorofeev et al.	198
Tableau 4-3 : Régimes de propagation observés pour chacune des compositions initiales (ϕ : rapport d'équivalence, σ rapport d'expansion des gaz brûlés, $C_{s,GF}$: vitesse du son dans les gaz frais, $C_{s,GB}$: vitesse du son dans les gaz brûlés, Le/CH_4 : nombre de lewis basé sur le méthane, β : nombre de Zeldovich, E_a : énergie d'activation globale, V_{max} : vitesse maximale expérimentale, L_{cr} : distance critique d'accélération)	201
Tableau 4-4 : Régimes de propagation observés pour chacune des compositions initiales (ϕ : rapport d'équivalence, σ rapport d'expansion des gaz brûlés, $C_{s,GB}$: vitesse du son dans les gaz brûlés, Le/CH_4 : nombre de lewis basé sur le méthane, β : nombre de Zeldovich, E_a : énergie d'activation globale, V_{max} : vitesse maximale expérimentale, L_{cr} : distance critique d'accélération)	203

Liste des Figures

Chapitre I – Etat de l'art : Flammes de Prémélange

Figure 1-1 : Énergie minimale d'inflammation en fonction de la teneur en hydrogène dans l'air pour différentes pressions initiales [4,5]	20
Figure 1-2 : Énergie minimale d'inflammation en fonction de la teneur en méthane dans l'air pour différentes pressions initiales et différents rapports $O_2/(O_2+N_2)$ [6].	20
Figure 1-3 : Diamètre de coincement (a) et distance de coincement (b) de mélanges $CH_4 + O_2 + N_2$ d'après Harris et al. [7].	22
Figure 1-4 : Evolution de la distance de coincement de mélanges $\{H_2+0,5O_2\}$ en fonction de la dilution en azote selon Friedman [8].	22
Figure 2-1 : Représentation schématisée d'une onde de déflagration se déplaçant dans un tube. L'onde de combustion porte les gaz d'un état initial à un état final.	24
Figure 2-2 : Profils instantanés de température (—) et de concentration des différentes espèces (----) à l'intérieur d'une flamme se propageant dans un tube. La flèche sur le front de flamme indique le sens de la diffusion de la chaleur générée par la réaction chimique et des intermédiaires réactionnels. Cette flèche indique donc également le sens de propagation de la déflagration ([11, 12]). L'épaisseur δ_r a été exagérée pour plus de clarté. En réalité, la zone de préchauffage est bien plus grande que la zone réactionnelle ($\delta_c \gg \delta_r$).	25
Figure 2-3 : Schéma d'une détonation selon Chapman – Jouguet.	25
Figure 2-4 : Adiabatique d'Hugoniot et droite de Rayleigh.	26
Figure 2-5 : Schéma d'une détonation selon le modèle ZND [16, 17, 18].	27
Figure 2-6 : Profils de température, pression et masse volumique selon le modèle ZND [16, 17, 18].	27
Figure 2-7: Représentation bidimensionnelle du front de choc.	28
Figure 2-8: Illustration schématisée de l'instabilité de Darrieus-Landau.	31
Figure 2-9: Illustration schématisée de l'instabilité thermo-diffusive	31
Figure 2-10 : Pression et distance parcourue dans un tube par la flamme (10% CH_4 -air) en fonction du temps, d'après Phylaktou et al. [36]	32
Figure 2-11 : Images de la propagation d'une flamme dans un mélange éthane/air stoechiométrique à une pression initiale de 16 kPa dans un tube lisse de 0,15 m de diamètre interne et de 2,95 m de long. a) Prise de vue sur le premier tronçon de 67,5 cm de long, 42 ms après le déclenchement. b) Prise de vue sur le même tronçon qu'en a) 66 ms après le déclenchement. c) Prise de vue entre 60 et 135 cm par rapport au point d'inflammation, 93 ms après le déclenchement. d) Prise de vue sur le même tronçon qu'en c) 240 ms après le déclenchement, d'après Lamoureux [41].	33
Figure 2-12 : Visualisation de l'écoulement dans les gaz frais d'après Johansen et Ciccarelli [45]	35
Figure 2-13 : Vitesses de flamme des mélanges Hydrogène/Air en fonction de la position dans des tubes encombrés d'obstacles (Ciccarelli et Dorofeev [33]) ayant rapport de blocage de 0,6 et pour différents diamètres de tube. x représente la distance par rapport au point d'inflammation et D le diamètre du tube	36
Figure 3-1 : Structure d'une flamme laminaire de prémélange.	41
Figure 3-2 : Définition de l'épaisseur de flamme selon Zeldovich [18]	42
Figure 3-3: Vitesses de flamme des mélanges méthane/air en fonction du rapport d'équivalence selon Aung et al. [57]	44
Figure 3-4 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme en fonction de la température initiale pour différents rapport d'équivalences et pressions initiales d'après Gu et al. [58]	45
Figure 3-5 : Vitesses fondamentales de flamme de méthane/air de différents auteurs de la littérature :Aung et al. [57], Bouvet [60], Elia et al. [61], Gu et al. [58], Hassan et al. [62], Halter et al. [59], Liao et al. [63], Qin et Ju [64], Rozenchan et al. [65], Tanoue et al. [66], Taylor et Smith [56]	46

Figure 3-6: Vitesse fondamentale de flamme des mélanges hydrogène-air en fonction de la teneur en hydrogène d'après Liu et MacFarlane [67]	47
Figure 3-7: Effet de la température sur les vitesses de flamme hydrogène –air d'après Liu et MacFarlane [67]	48
Figure 3-8: Vitesses normales de combustion en fonction de la composition des mélanges hydrogène air à 25°C et 100kPa, d'après Koroll et al. [68]	49
Figure 3-9: Vitesse normale de combustion en fonction de la composition des mélanges hydrogène - air à 1 bar d'après Aung et al. [69]	50
Figure 3-10: Vitesses de flamme des mélanges hydrogène-air en fonction du rapport d'équivalence d'après Lamoureux et al. [52]	50
Figure 3-11: Evolution de la vitesse de flamme en fonction du rapport d'équivalence selon différents auteurs de la littérature d'après Lamoureux et al. [52]	51
Figure 3-12 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme des mélanges méthane / hydrogène / air en fonction du rapport d'équivalence effective Φ_F pour différents teneurs en hydrogène, R_H , d'après Yu et al. [72].	53
Figure 3-13 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme des mélanges méthane / hydrogène / air en fonction de la teneur en méthane exprimé en %vol de CH ₄ dans le mélange binaire (CH ₄ +H ₂) d'après Law et Kwon [73].	53
Figure 3-14 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme pour les mélanges H ₂ /CH ₄ /air Halter et al. [59]. Les mélanges sont initialement à Température ambiante et à 1 bar.	54
Figure 3-15 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme du mélange stœchiométrique H ₂ /CH ₄ /Air en fonction de la teneur en hydrogène dans le mélange binaire H ₂ +CH ₄ Ilbas et al. [74]. Les mélanges sont initialement à Température ambiante et à 1 bar.	54
Figure 3-16 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme pour les mélanges H ₂ /Air, CH ₄ /air et 0,5H ₂ +0,5CH ₄ /air. Les mélanges sont initialement à Température ambiante et à 1 bar.	55
Figure 3-17: Vitesses de flamme des mélanges H ₂ /CO Hassan et al. [76]	56
Figure 3-18 Influence de la pression sur les vitesses de flammes des mélanges H ₂ /CO 95/5 Hassan et al. [76]	56
Figure 3-19: Comparaison H ₂ /CO 50/50 dans l'air à 1 atm. Les symboles représentent les expériences. Le trait plein correspond au mécanisme de Li et al. [80] et les tirets correspondent au mécanisme de Rumminger et al. [81] avec 200 ppm de Fe(CO) ₅ dans le CO	58
Figure 3-20 : Vitesses de flamme en fonction de la teneur en hydrogène selon Dong et al. [82]	59
Figure 3-21 : Influence de la température sur les vitesses de flammes des mélanges H ₂ /CO 50/50 Natarajan et al. [83]	60
Figure 3-22: Influence de la température sur les vitesses de flammes des mélanges H ₂ /CO 5/95 Natarajan et al. [83]	60
Figure 4-1 Evolution de la vitesse atteinte en fin de tube pour des mélanges hydrocarbures / air initialement à 1 bar et température ambiante d'après Peraldi et al. [84].	61
Figure 4-2 Evolution de la vitesse atteinte en fin de tube pour des mélanges méthane / air initialement à 1 bar et température ambiante d'après Peraldi et al. [84].	62
Figure 4-3 : Limites d'accélération du méthane en fonction du diamètre du tube [84, 87, 88, 89].	63
Figure 4-4 : Limites d'accélération de l'éthylène en fonction du diamètre du tube [84, 87, 88, 89].	64
Figure 4-5 : Limites d'accélération du propane en fonction du diamètre du tube [84, 87, 88, 89].	64
Figure 4-6 : Evolution de la vitesse de flamme en fonction dans la distance dans le cas d'un mélange contenant 8 % de méthane + 92 % d'air initialement à 1 bar et température ambiante pour deux rapports de blocage différents d'après Kuznetsov et al. [86].	65
Figure 4-7: limites d'accélération du méthane dans un tube de 121mm de diamètre T=293K	66
Figure 4-8: Limites d'accélération du méthane dans un tube de 121mm de diamètre T=383K	66

Figure 4-9: Longueur critique d'accélération pour des mélanges méthane / air pour différents diamètres de tube [86].	67
Figure 4-10: Evolution de la L_{cr} en fonction de L/D [86].	68
Figure 4-11 Evolution de la L_{cr} en fonction du rapport de blocage pour le propane [85].	68
Figure 4-12: L_{cr}^*/D en fonction du pourcentage de propane	69
Figure 4-13: Effet de l'espacement sur L_{cr}^*	70
Figure 4-14: Evolution du front de flamme pour un mélange 11% d'hydrogène dans l'air à des températures initiales différentes Ciccarelli et al. [92]	71
Figure 4-15: Dépendance de σ_{cr} pour l'accélération de flamme sur α , le rapport d'ouverture	72
Figure 4-16: Limite d'accélération de flamme pour les mélanges hydrogène air et hydrocarbures air proposée par Dorofeev et al. [94]	73
Figure 4-17: Critère d'accélération de flamme: taux d'expansion thermique en fonction du petit nombre de Lewis. Les compositions rapportées mentionnent la teneur en hydrogène, en diluant et le rapport O ₂ /N ₂ [95]	74

Chapitre II - Dispositifs Expérimentaux

Figure 2-1 : Vue globale de la bombe sphérique de 8L	78
Figure 2-2 : Etalonnage en énergie de la photodiode.	79
Figure 2-3 : Schéma du dispositif expérimental d'inflammation laser dans la bombe sphérique.	80
Figure 2-4 : Schéma de visualisation de la flamme par la méthode Schlieren.	81
Figure 2-5: Vue éclatée de la bombe sphérique de 56 L	82
Figure 2-6 : Schéma du dispositif expérimental avec inflammation via le système d'électrodes.	83
Figure 2-7 : Evolution du front de flamme d'un mélange G222/air pour un rapport d'équivalence de 1,05 à 1 bar et $T=363K$	84
Figure 2-8: Exemple d'évolution de la pression au cours de la combustion	86
Figure 2-9: Zoom sur la fenêtre d'observation	86
Figure 2-10 : Illustration de l'évaluation de la vitesse maximale de montée en pression pour un mélange H ₂ /CO	90
Figure 3-1 : De gauche à droite, Schéma d'ENACCEF, Photo du dôme, Photo du tube d'accélération	91
Figure 3-2: Obstacles annulaires servants à encombrer le tube d'accélération	92
Figure 3-3 : Schéma de montage des photomultiplicateurs.	92
Figure 3-4 : Détermination de la vitesse de propagation du front de flamme sur la base de l'analyse des signaux des photomultiplicateurs	94
Figure 3-5 : Exemple de chromatographe type.	96

Chapitre III - Limites d'inflammabilité

Figure 1-1 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 6,3% de G27 initialement à 1 bar et 300 K	98
Figure 1-2 : Evolution de la pression dans l'enceinte pour 6,3% de G27 dans l'air initialement à 1 bar et 300 K	98
Figure 1-3 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 5,7% de G27 initialement à 1 bar et 300 K	98
Figure 1-4 : Evolution de la pression dans l'enceinte pour 5,7% de G27 dans l'air initialement à 1 bar et 300 K	99
Figure 1-5 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 6,2% de G27 dans l'air, initialement à 2 bar et 303 K	100
Figure 2-1 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une extinction. Le mélange est constitué de 4,5% de G222 dans l'air, initialement à 1 bar et 300 K	101
Figure 2-2 : Mesure de la pression dans l'enceinte pour une concentration initiale de 4,5% de G222 dans l'air, initialement à 1 bar et 300 K	101

Figure 2-3 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 4,6% de G222 dans l'air, initialement à 1 bar et 300 K	101
Figure 2-4 : Mesure de la pression dans l'enceinte pour une concentration initiale de 4,6% de G222 dans l'air, initialement à 1 bar et 300 K	102
Figure 2-5 : Mesure de la pression dans l'enceinte pour une concentration initiale de 5% de G222 dans l'air, initialement à 1 bar et 300 K	102
Figure 2-6 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une extinction. Le mélange est constitué de 4,8% de G222 dans l'air, initialement à 2 bar et 300 K	104
Figure 2-7 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 4,9% de G222 dans l'air, initialement à 2 bar et 300 K	105
Figure 2-8 : Evolution de la pression enregistrée pour un mélange constitué de 5,3% de G222 dans l'air initialement à 2 bar et 300 K	105
Figure 3-1 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une extinction. Le mélange est constitué de 6,1% de H ₂ /CO dans l'air initialement à 1 bar et 300 K	106
Figure 3-2 : Signal de pression plat pour un mélange constitué de 6,1% de {0,5H ₂ /0,5CO} dans l'air	107
Figure 3-3 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 6,4% de H ₂ /CO dans l'air initialement à 1 bar et 300 K	107
Figure 3-4 : Evolution de la pression pour un mélange constitué de 7,3% de {0,5H ₂ /0,5CO} dans l'air	108
Figure 3-5 : Observation dans l'enceinte après inflammation pour 6,2% de H ₂ /CO	109
Figure 3-6 : Evolution de la pression au sein de l'enceinte pour 6,2% de H ₂ /CO	109
Figure 3-7 : Evolution de la flamme pour 6,6% de H ₂ /CO dans l'air.	110

Chapitre IV - Etude des Flammes Laminaires

Figure 1-1 : Vitesse fondamentale de flamme du G27 en fonction du rapport d'équivalence	114
Figure 1-2 : Vitesse fondamentale de flamme du G27 en fonction du rapport d'équivalence et comparaison avec la littérature	114
Figure 1-3: Effet de la température sur les vitesses de flamme des mélanges G27/Air	115
Figure 1-4: Effet de la pression initiale sur la vitesse de flamme	116
Figure 1-5: Longueurs de Markstein en fonction du rapport d'équivalence pour le G27/Air	117
Figure 1-6 : Comparaison des longueurs de Markstein des mélanges G27/Air avec la littérature pour les mélanges méthane/air [58, 96, 103]	118
Figure 1-7: Effet de la température sur les longueurs de Markstein des mélanges G27/Air	118
Figure 1-8: Influence de la pression sur les longueurs de Markstein du mélange G27/Air initialement à 303 K	119
Figure 1-9 : Pression maximales de combustion des mélanges G27/air à température ambiante et 1 bar	120
Figure 1-10 : Evolution de l'écart entre pression maximale et mesure de la P _{AICC}	120
Figure 1-11 : Evolution de la pression maximale mesurée en fonction du rapport d'équivalence pour différentes températures initiales	121
Figure 1-12 : Evolution de l'écart entre pression maximale et mesure de la P _{AICC} pour différentes températures initiales	121
Figure 1-13 : Evolution de la vitesse de montée en pression pour les mélanges G27/Air pour différentes températures	122
Figure 1-14 : Evolution de l'indice de déflagration (Kg) pour les mélanges G27/Air pour différentes températures	122
Figure 1-15 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges G27/Air à différentes conditions pour le modèle de Curran, (a), (c) P=1 bar, T variable, (b), (d) P variable, T=303K,	124
Figure 1-16 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges G27/Air à différentes conditions pour le modèle de GRI, (a), (c) P=1 bar, T variable, (b), (d) P variable, T=303K,	126

Figure 1-17 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges G27/Air à différentes conditions pour le modèle du USC, (a), (c) P=1 bar, T variable, (b), (d) P variable, T=303K, _____	128
Figure 1-18: Erreur commise par les différents modèles sur l'évaluation de la vitesse de flamme à différentes conditions, (a) P=1 bar, T=303K, (b) P=1 bar, T=333K, (c) P=1 bar, T=363K, (d) P=2 bar, T=303K _____	129
Figure 1-19 : Calcul de l'énergie d'activation pour le rapport d'équivalence de 1 pour le G27 _____	131
Figure 1-20 : Energies d'activation du G27 dans l'air pour une température et une pression ambiants _____	131
Figure 2-1 : Vitesse fondamentale de flamme des mélanges G222/Air _____	133
Figure 2-2: Vitesse fondamentale de flamme des mélanges G222/Air et comparaison avec la littérature (Halter et al. [59], Yu et al. [72]) _____	133
Figure 2-3 : Effet de la température de flamme sur les vitesses de flamme _____	134
Figure 2-4 : Effet de la pression sur les vitesses de flamme de mélanges G222/Air initialement à 303 K _____	135
Figure 2-5 : Longueurs de Markstein des mélanges G222/Air, initialement à 1 bar et 303 K _____	136
Figure 2-6 : Influence de la température initiale sur les longueurs de Markstein des mélanges G222/Air pour une pression initiale de 1 bar _____	136
Figure 2-7 : Influence de la pression initiale sur la longueur de Markstein _____	137
Figure 2-8 : Evolution de la pression maximale dans l'enceinte pour les mélanges G222/Air à 1 bar et 303 K _____	138
Figure 2-9 : Comparaison entre la pression mesurée et la P_{AICC} pour les mélanges G222/Air à 1 bar et 303 K _____	138
Figure 2-10 : Effet de la température initiale sur les pressions maximales de combustion _____	138
Figure 2-11 : Comparaison entre la pression mesurée et la P_{AICC} pour différentes pressions initiales _____	138
Figure 2-12 : Evolution du $dpdt_{max}$ en fonction du rapport d'équivalence pour différentes températures initiales _____	139
Figure 2-13 : Indice de déflagration en fonction du rapport d'équivalence pour différentes températures initiales _____	139
Figure 2-14 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges G222/Air à différentes conditions pour le modèle de Galway, (a), (c) P=1 bar, T variable, (b), (d) P variable, T=303K _____	141
Figure 2-15 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges G222/Air à différentes conditions pour le modèle du USC, (a), (c) P=1 bar, T variable, (b), (d) P variable, T=303K _____	142
Figure 2-16 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges G222/Air à différentes conditions pour le modèle du GRI, (a), (c) P=1 bar, T variable, (b), (d) P variable, T=303K _____	143
Figure 2-17 : Evolution de l'erreur sur la prédiction en fonction du rapport d'équivalence pour différentes conditions initiales _____	144
Figure 2-18 : Energies d'activation des mélanges G222/Air à pression et température ambiants _____	145
Figure 3-1 : Vitesses de flamme des mélanges H ₂ /CO 50/50 à 1 bar et 300 K _____	146
Figure 3-2 : Vitesses de flamme des mélanges H ₂ /CO 50/50 à 1 bar et 300 K, comparaison avec la littérature et les données de Sun et al. [77], McLean et al. [75], Hassan et al. [76], Natarajan et al. [83], Burke et al. [78] _____	147
Figure 3-3 : Influence de la température initiale sur les vitesses de flamme des mélanges H ₂ /CO 50/50 /Air _____	148
Figure 3-4 : Vitesses de flamme de H ₂ /CO/O ₂ /Hé à 2 bar et 300 K _____	149
Figure 3-5 : Les longueurs de Markstein pour les mélanges H ₂ /CO à T=300 K et P=1 bar _____	150
Figure 3-6 : Effet de la température initiale sur les longueurs de Markstein des mélanges H ₂ /CO/Air _____	150
Figure 3-7 : Pressions maximales de combustion et P_{AICC} pour le mélange H ₂ /CO à 303 K et 1 bar _____	151
Figure 3-8 : Comparaison entre la pression mesurée et la P_{AICC} en fonction du rapport d'équivalence _____	151
Figure 3-9 : Influence de la température initiale sur les pressions maximales mesurées _____	152
Figure 3-10 : Comparaison entre les pressions maximales de combustion et les P_{AICC} pour différentes températures initiales _____	152
Figure 3-11 : Vitesse maximale de montée en pression pour différentes températures initiales _____	153
Figure 3-12 : Indice de déflagration pour différentes températures initiales _____	153

Figure 3-13 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges $[0,5H_2+0,5CO]/Air$ à différentes températures initiales pour le modèle du GRI	154
Figure 3-14 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges $[0,5H_2+0,5CO]/Air$ à différentes températures initiales pour le modèle de Li	155
Figure 3-15 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges $[0,5H_2+0,5CO]/Air$ à différentes températures initiales pour le modèle du Creck	156
Figure 3-16 : Comparaison de la vitesse de flamme mesurée avec la modélisation pour les différentes températures	157
Figure 3-17 : Evolution de l'erreur commise pour différentes conditions initiales	158
Figure 3-18 : Energies d'activation des mélanges H_2/CO air	159
Figure 4-1 : (a) Récapitulatif des vitesses fondamentales de flamme G27, G222, H_2/CO (b) Energies d'activation du G27, G222, H_2/CO , (c) Longueurs de Markstein du G27, G222, H_2/CO	161

Chapitre V - Flammes Fortement accélérées

Figure 1-1 : Evolution de la vitesse de flamme en fonction de la position dans l'enceinte pour différentes compositions et en configuration de tube lisse	164
Figure 1-2 : Influence des obstacles sur l'accélération d'un mélange 7,9% G27/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar	167
Figure 1-3 : Evolution de la surpression pour un mélange 7,9% de G27 dans l'air, initialement à 298 K et 1 bar	168
Figure 1-4 : Influence des obstacles sur l'accélération d'un mélange 8,4% G27/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar	169
Figure 1-5 : Influence des obstacles sur l'accélération d'un mélange 8,6% G27/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar	170
Figure 1-6 : Influence du rapport de blocage sur l'accélération d'un mélange 7,9% G27/Air, 8 obstacles, initialement à 298 K et 1 bar	172
Figure 1-7 : Evolution des profils de pression pour 7,9% de G27 dans l'air, initialement à 298 K et 1 bar pour différents rapport de blocage	172
Figure 1-8 : Influence du rapport de blocage sur l'accélération d'un mélange 8,2% G27/Air, 8 obstacles, initialement à 298 K et 1 bar	173
Figure 2-1 : Evolution de la vitesse de flamme de G222/air en fonction de la position dans l'enceinte pour différentes compositions et en configuration de tube lisse	175
Figure 2-2 : Influence du nombre d'obstacles sur l'accélération d'un mélange 6,5% G222/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar	177
Figure 2-3 : Influence du nombre d'obstacles sur l'accélération d'un mélange 6,8% G222/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar	178
Figure 2-4 : Evolution de la pression dans l'enceinte pour différents nombres d'obstacles pour 6,8% de G222 dans l'air initialement à 1 bar et 298 K	178
Figure 2-5 : Influence du nombre d'obstacles sur l'accélération d'un mélange 7,2% G222/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar	179
Figure 2-6 : Influence du nombre d'obstacles sur l'accélération d'un mélange 7,2% G222/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar	180
Figure 2-7 : Influence du rapport de blocage sur l'accélération d'un mélange 6,5% G222/Air, 8 obstacles initialement à 298 K et 1 bar	182
Figure 2-8 : Evolution de la surpression dans l'enceinte pour différents rapports de blocage pour 6,5% de G222 dans l'air initialement à 1 bar et 298 K	182

Figure 2-9 : Influence du rapport de blocage sur l'accélération d'un mélange 6,8% G222/Air, 8 obstacles initialement à 298 K et 1 bar	183
Figure 2-10 : Maximums de pression mesurés pour différents rapports de blocage	184
Figure 2-11 : Influence du rapport de blocage sur l'accélération d'un mélange 7,2% G222/Air, 8 obstacles initialement à 298 K et 1 bar	185
Figure 3-1 : Propagation de flamme des mélanges H ₂ /CO dans l'air en tube lisse initialement à 298 K et 1 bar	188
Figure 3-2 : Effet du nombre d'obstacles sur l'accélération des flammes d'un mélange 12,3% H ₂ -CO/Air, initialement à 298 K et 1 bar	189
Figure 3-3 : Evolution de la surpression dans l'enceinte pour 12,3% de H ₂ /CO dans l'air initialement à 298 K, et 1 bar	190
Figure 3-4 : Effet du nombre d'obstacles sur l'accélération des flammes d'un mélange 13,1% H ₂ -CO/Air, initialement à 298 K et 1 bar	191
Figure 3-5 : Effet du rapport de blocage sur la propagation d'un mélange de 12,3% H ₂ -CO/Air, initialement à 298 K et 1 bar	193
Figure 3-6 : Evolution de la surpression dans l'enceinte pour différents rapports de blocage pour un mélange 12,3% H ₂ /CO dans l'air, initialement à 298 K et 1 bar	193
Figure 3-7 : Effet du rapport de blocage sur la propagation d'un mélange de 12,6% H ₂ -CO/Air, initialement à 298 K et 1 bar	194
Figure 3-8 : Effet du rapport de blocage sur la propagation d'un mélange de 13,7% H ₂ -CO/Air, initialement à 298 K et 1 bar	195
Figure 4-1 : Comparaison des distances critiques d'accélération du méthane (Kuznetsov et al.) avec celles du G27 mesurées au cours de cette étude.	198
Figure 4-2 : Comparaison des données expérimentales du G27 avec la limite proposée par Dorofeev et al. [94].	199
Figure 4-3 : Comparaison de la limite d'accélération du G27 avec les données de Peraldi et al. [84]	200
Figure 4-4 : Evolution du rapport d'expansion des gaz brûlés en fonction de $\beta(Le - 1)$ dans le cas des mélanges CH ₄ /Air et G27/Air	200
Figure 4-5 : Comparaison des données expérimentales du G222 et du G27 avec celles sur le méthane (Peraldi et al. [84])	202
Figure 4-6 : Comparaison du régime de propagation de flamme du G222 avec le critère sigma.	202
Figure 4-7 : Limite d'accélération des mélanges G27/air, G222/air, et méthane/air [84].	203
Figure 4-8 : Comparaison des données expérimentales du H ₂ /CO avec les données des différents mélanges étudiés et les données de Peraldi et al. [84], $\sigma = fEaRTu$	204
Figure 4-9 : Comparaison des données expérimentales du H ₂ /CO avec les données des différents mélanges étudiés et les données de Peraldi et al. [84], $\sigma = f\beta(Le - 1)$	204
Figure 4-10 : Comparaison des données expérimentales du H ₂ /CO avec les données sur l'hydrogène issues de la littérature Malet [95], Dorofeev [93]	205

Introduction

L'explosion de gaz constitue une source d'accidents majeurs aussi bien dans les installations industrielles classiques que nucléaires. Dans les installations nucléaires, cette explosion peut entraîner la perte de confinement des matières radioactives et leur rejet dans l'environnement.

Généralement, les scénarios d'explosion de gaz débutent par un relâchement du gaz combustible par une brèche située dans un local^(*) donné. Le gaz combustible ainsi relâché, se répartit dans l'atmosphère de manière hétérogène avec des concentrations locales importantes qui peuvent dépasser le seuil d'inflammabilité du mélange gazeux. Une source d'énergie suffisante peut alors initier la combustion. Sous l'effet des instabilités hydrodynamiques et de la turbulence, la déflagration initialement laminaire (vitesse de l'ordre du mètre par seconde) est susceptible de s'accélérer. Des régimes de combustion rapide peuvent ainsi être atteints : déflagration rapide (quelques centaines de mètres par seconde), Transition Déflagration Détonation (TDD) et détonation (plus de mille mètres par seconde). Ces phénomènes explosifs sont les plus menaçants et peuvent occasionner des chargements dynamiques locaux très importants sur la structure du confinement menant à la destruction de matériels, voire de vies humaines. Dans le cas des installations nucléaires, se rajoute la possibilité de relâchement de matières radioactives dans l'environnement.

Il est donc primordial de caractériser les phénomènes favorisant l'avènement des régimes de combustion rapide dont les conséquences sur les structures peuvent être redoutées. Dans cette optique, les précédents travaux réalisés au laboratoire ICARE du CNRS d'Orléans en partenariat avec l'IRSN sur le risque hydrogène dans l'ENceinte d'ACCElération de Flamme ont grandement contribué à améliorer les connaissances sur la propagation des mélanges hydrogène/air. Ainsi, un critère permettant de déterminer la propension à l'accélération des flammes de prémélange d'hydrogène a été proposé. Ce critère appelé critère sigma, exprime le facteur d'expansion des gaz comme une fonction des propriétés réactives du mélange (nombre de Zeldovich) et du nombre de Lewis qui caractérise les propriétés de transport. Une première extension de ce critère au traitement des hydrocarbures a été partiellement réalisée par Kuznetzov (*Kuznetzov et al 2002*) qui propose des critères d'accélération de flamme et pour les transitions vers la détonation selon le même principe que les critères utilisés pour le risque hydrogène.

Or, la méthodologie développée dans le cadre des études de sûreté nucléaires pourrait être étendue à l'analyse des risques d'explosion pour d'autres mélanges gazeux qui sont produits en grande quantité. Ainsi, le gaz naturel qui est réputé comme étant peu sensible à la détonation, de par sa large utilisation et la grande diversité de sa composition est une cible de

^(*) Par la suite, le mot local désignera indifféremment l'enceinte de confinement du réacteur ou un local fermé de type laboratoire

choix. De même, en vue de réduire l'émission de dioxyde de carbone, la production de gaz de synthèse, à partir de combustibles renouvelables ou de la gazéification du charbon, nécessite de mener des études concernant les risques d'explosion si ce gaz était utilisé à grande échelle. Ainsi, trois types de mélanges combustibles ont été choisis :

- Deux mélanges à base de méthane : le premier est constitué de 82 %_{mol} de méthane et de 18 %_{mol} d'azote il est appelé G27 ; le second est constitué de 77 %_{mol} de méthane et de 23 %_{mol} d'hydrogène, appelé G222. Ces deux mélanges constituent des gaz de référence du gaz naturel
- Un mélange constitué de 50 %_{mol} de monoxyde de carbone et de 50 %_{mol} d'hydrogène qui sera représentatif du gaz de synthèse

Le but de ce travail de thèse est triple, il s'agit :

1. d'acquérir des données fondamentales permettant d'évaluer d'une part le risque d'inflammation et d'autre part de caractériser la combustion en régime laminaire ;
2. de caractériser expérimentalement les différents régimes de combustion qui peuvent être obtenus lorsque de la turbulence est générée dans un environnement clos ;
3. Enfin d'établir des critères d'accélération de flamme pour des mélanges présentant des réactivités très différentes.

Pour ce faire, différentes installations expérimentales développées au laboratoire, seront utilisées. A ce volet expérimental se rajoutera un travail de simulation numérique permettant d'extraire les paramètres indispensables à l'analyse des résultats expérimentaux.

Pour présenter les travaux effectués au cours de cette thèse, le plan suivant sera adopté.

A la suite du premier chapitre consacré à un rappel des propriétés des flammes de prémélange, le deuxième chapitre consistera en la description du matériel expérimental : les enceintes sphériques pour la partie laminaire et l'enceinte d'accélération de flamme pour la partie turbulente.

Dans le troisième chapitre, sera présentée l'étude des limites d'inflammabilité des mélanges relatifs à notre étude. Le quatrième chapitre sera consacré à l'étude laminaire des différents mélanges. Plusieurs paramètres fondamentaux (vitesses de flammes, longueurs de Markstein, maximums de pression, vitesse maximale de montée en pression) y seront présentés. Une modélisation cinétique détaillée sera réalisée pour chacun des mélanges et permettra l'évaluation des énergies globales d'activation.

Enfin, le dernier chapitre, consacré à l'étude des mélanges dans l'enceinte d'accélération d'abord sans obstruction puis obstrué en faisant varier le rapport de blocage et le nombre d'obstacles afin d'évaluer l'aptitude du système considéré à la production d'une flamme fortement accélérée sans qu'il puisse aboutir à la transition déflagration détonation et à la détonation auto-entretenue.

Chapitre I. Etat de l'art : Flammes de Prémélange

La première partie sera consacrée aux rappels concernant les conditions d'existence d'une flamme de prémélange. Puis, dans une deuxième partie, les différents régimes de propagation de flamme seront présentés. La troisième partie de ce chapitre portera sur les propriétés fondamentales des flammes laminaires ainsi que les données de la littérature concernant les mélanges à base d'hydrogène, de méthane et de monoxyde de carbone. Dans la quatrième partie, les conditions d'obtention d'une flamme accélérée seront développées ainsi que les travaux de la littérature concernant les mélanges combustibles précédemment cités.

Une flamme est un milieu réactionnel gazeux, hautement énergétique et de volume limité qui est le siège de réactions chimiques, de phénomènes de diffusion d'espèces et de chaleur ainsi que des émissions de lumière. On distingue deux types de flammes :

- Les flammes dites de diffusion qui tiennent leur nom du fait que le carburant et l'oxydant sont séparés et doivent venir au contact l'un de l'autre par le phénomène de diffusion
- Celles dites de prémélange et qui tiennent leur nom du fait que le carburant et l'oxydant sont mélangés avant l'inflammation.

1 Conditions d'existence d'une flamme

1.1 Les limites d'inflammabilité

Lorsque l'on fournit une énergie à un système carburant/oxydant susceptible de dégager de la chaleur, l'inflammation suivie de la propagation de la flamme à l'ensemble du système est possible. Les limites d'inflammabilité se définissent comme étant des pourcentages extrêmes en combustible pour lesquels un mélange carburant/oxydant s'enflamme à une pression et une température données. On distingue donc, du fait de la définition, une limite supérieure et une limite inférieure d'inflammabilité. Ces limites sont déterminées expérimentalement.

Le Tableau 1-1, illustre les valeurs expérimentales des limites inférieures et supérieures d'inflammabilité dans l'air et dans l'oxygène proposées par Coward et Jones [1] = pour le méthane, l'éthane et le propane. Leurs études ont été réalisées dans un tube vertical de 5 cm de diamètre et de 1,2 m à 1,8 m de longueur. Une étincelle électrique est utilisée pour enflammer le mélange

Gaz	Dans l'air		Dans l'oxygène	
	Limite inférieure (% molaire)	Limite supérieure (% molaire)	Limite inférieure (% molaire)	Limite supérieure (% molaire)
Méthane	5.3	14	5.1	61
Ethane	3	12.5	3	66
Propane	2.2	9.5	2.3	55

Tableau 1-1 : Limites d'inflammabilités de mélanges d'hydrocarbures à pression atmosphérique et à pression ambiante [1]

Dans le cas d'un mélange, Le Châtelier [2] a proposé l'expression de la limite d'inflammabilité en fonction de la composition du mélange et des limites d'inflammabilité de chaque combustible. Ainsi, si on exprime par x_i , les pourcentages volumiques des gaz composant le mélange et par L_i , les limites (supérieures ou inférieures) qui y correspondent, la limite d'inflammabilité L est donnée par :

$$L = \frac{100}{\sum_{i=1}^N \frac{x_i}{L_i}} \quad \text{Eq. 1}$$

Ainsi, que l'ont soulignés Coward et Jones [1] au cours de leurs expériences, cette expression se révèle correcte lorsque le mélange est composé de gaz de nature voisines (hydrocarbures saturés par exemple) ou encore d'hydrogène, de méthane ou de monoxyde de carbone. Néanmoins, dans le cas où les gaz sont de nature chimique très différente les uns des autres, de grands écarts ont été notés avec l'expérience.

Différents facteurs peuvent influencer les limites d'inflammabilité. On peut noter parmi ceux-ci, la pression. Son influence est très variable et dépend de la nature du mélange combustible/oxydant. Ainsi, selon le mélange, et pour des pressions supérieures à la pression atmosphérique, en cas d'augmentation de la pression, la limite inférieure d'inflammabilité est peu affectée tandis que la limite supérieure croît ou décroît selon les gaz. Pour des pressions inférieures à la pression atmosphérique, la baisse de la pression entraîne un rétrécissement des limites d'inflammabilité jusqu'à ce que l'inflammation ne soit plus possible. Cette limite basse pression est appelée limite de propagabilité de la flamme. On peut aussi mentionner l'effet de la température initiale qui, quand elle augmente, étend le domaine d'inflammabilité en élevant la limite supérieure et en abaissant la limite inférieure. Cette variation reste peu prononcée comme l'a souligné Van Tiggelen [3]. Par ailleurs, si la température du milieu devient supérieure à la température d'auto-inflammation, on ne peut plus définir de limite supérieure ou inférieure d'inflammabilité.

Des facteurs externes à la flamme peuvent aussi influencer les limites d'inflammabilité. En effet, la direction de propagation de la flamme peut aussi jouer un rôle. Ainsi, du fait que la masse volumique des gaz frais soit plus élevée que la masse volumique des gaz brûlés, et suivant que la flamme se propage de façon ascendante ou descendante ou encore dans un plan horizontal, les limites d'inflammabilité s'en trouveront modifiées. Cela est illustré par le cas de l'hydrogène qui présente une limite d'inflammabilité inférieure de 4% en propagation verticale ascendante de 6% en propagation horizontale et de 9% en propagation verticale descendante.

Il faut toutefois noter que l'inflammation ou non d'un mélange ne dépend pas uniquement des limites d'inflammabilité : il est nécessaire qu'une source d'inflammation provoque une forte augmentation locale de la température. Il faut donc porter localement le gaz dans un état analogue à celui existant dans l'épaisseur de la flamme. Il existe différentes façons d'atteindre cette condition : par une étincelle électrique, compression adiabatique, par contact avec un corps chaud ou encore par injection d'un gaz chaud. Cet aspect sera développé dans le paragraphe suivant.

1.1.1 Energies minimales d'inflammation

Lorsque le mélange combustible se trouve à l'intérieur des limites d'inflammabilité, il est nécessaire d'apporter une énergie extérieure au milieu afin d'initier la combustion. Cette énergie doit être supérieure à une énergie minimale d'inflammation qui dépend non seulement de la nature du combustible, mais aussi de la composition du mélange, de la pression initiale et de la température initiale. Pour une énergie initiale donnée, le temps de libération de cette énergie, ainsi que la taille du volume dans lequel est déposée cette énergie, constituent aussi des paramètres très importants. Si ces deux derniers sont trop grands, on comprend aisément que l'inflammation ne puisse avoir lieu en raison de la dissipation rapide de cette énergie initiale.

Ainsi, pour un mélange stœchiométrique hydrogène – air, une augmentation de la pression initiale a pour effet de réduire considérablement l'énergie minimale d'inflammation. En effet, elle passe de 0,6 mJ pour une pression initiale de 20,2 kPa à 0,02 mJ lorsque la pression est augmentée à 101 kPa (Figure 1-1). Pour une pression initiale donnée à 101 kPa, par exemple, l'énergie est minimale pour une teneur en hydrogène de 30 % dans l'air. Elle passe à 0,6 mJ lorsque la teneur est abaissée à 10 % d'hydrogène dans l'air.

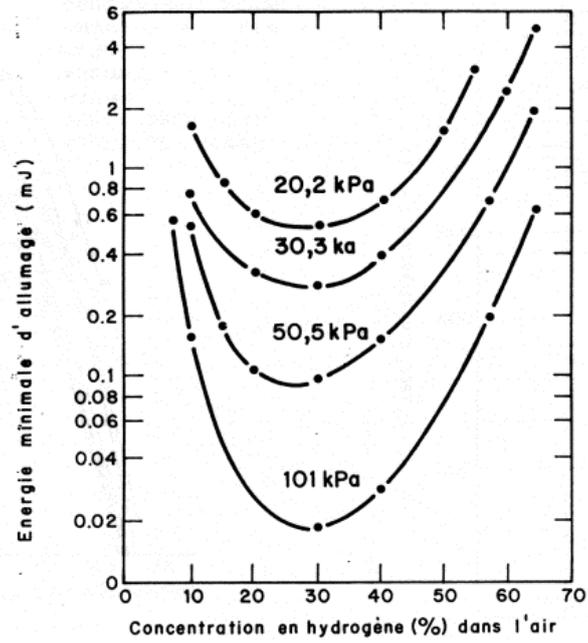


Figure 1-1 : Énergie minimale d'inflammation en fonction de la teneur en hydrogène dans l'air pour différentes pressions initiales [4,5]

Dans le cas des mélanges méthane / air, la valeur la plus faible de l'énergie minimale d'inflammation est obtenue pour un rapport d'équivalence proche de 1 (Figure 1-2). Elle est de 0,33 mJ à pression atmosphérique. Pour la même pression initiale, elle est de 0,8 mJ si de l'hélium est substitué à l'azote et de 0,13 mJ si c'est de l'argon. Par contre si le diluant est du dioxyde de carbone, l'énergie minimale n'est pas modifiée mais elle est obtenue pour une teneur en méthane plus élevée (13,5 % au lieu de 9,5 %).

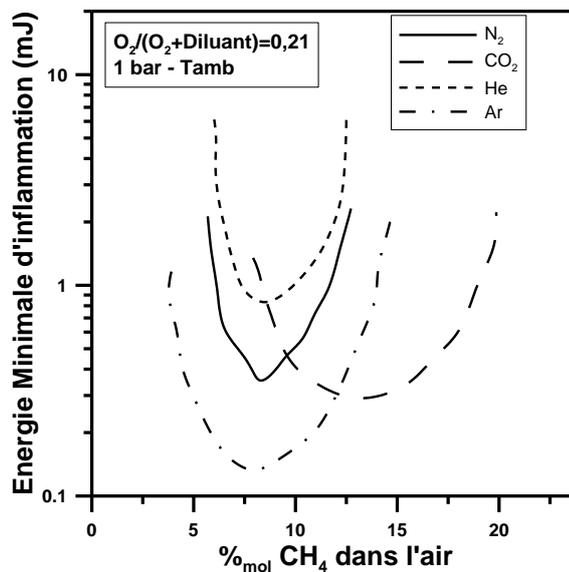


Figure 1-2 : Énergie minimale d'inflammation en fonction de la teneur en méthane dans l'air pour différentes pressions initiales et différents rapports $O_2/(O_2+N_2)$ [6].

Une fois les conditions d'inflammation et d'énergie d'inflammation réunies, la flamme ainsi initiée peut se propager dans le milieu. Néanmoins, certains facteurs, comme le diamètre et la distance de coincement, peuvent limiter cette propagation.

1.1.2 Diamètre et distance de coincement

La présence d'une surface solide au voisinage d'une zone de combustion aura un effet important sur cette dernière. En effet, la température de la paroi est en général bien inférieure à celle qui règne au sein de la zone réactionnelle, ce qui a pour effet de créer un flux de chaleur vers la paroi responsable d'un abaissement de la température au voisinage de celle-ci. Ainsi, la nature de la paroi, sa température et sa conductivité thermique vont jouer un rôle important dans l'extinction éventuelle de la réaction d'oxydation. De plus, la destruction des espèces actives, les radicaux, sera plus efficace par collision sur une surface solide que par collisions en phase gazeuse (recombinaisons tri-moléculaires). Ainsi, la compétition entre les réactions en phase gazeuse responsable de l'oxydation et les réactions hétérogènes responsables de l'extinction de la réaction, en plus de l'effet thermique, sera responsable du succès ou non de la propagation d'une flamme.

La première distance critique qui peut donc être définie est le diamètre de coincement, d_q , qui représente le diamètre minimum d'un tube, en dessous duquel aucune flamme ne peut se propager dans ce dernier. La Figure 1-3-(a) illustre la variation de ce paramètre, pour un mélange méthane/air, en fonction d'une part de la teneur en méthane et d'autre part en fonction de la dilution en azote [7]. Le diamètre de coincement est minimale pour le mélange stœchiométrique (0,33 cm environ, Figure 1-3 (a)) et il diminue lorsque la teneur en oxygène augmente. Ainsi, il n'est plus que de 0,05 cm pour un rapport $O_2/(O_2+N_2)$ de 1.

La seconde distance critique est la distance de coincement, d_c , qui représente, dans ce cas, la distance minimale qui existe entre deux surfaces planes en dessous de laquelle aucune propagation de flamme ne peut être observée. Comme le montre la Figure 1-3 (b), la distance de coincement présente aussi un minimum pour des mélanges proches de la stœchiométrie, où elle est de 0,25 cm pour CH_4/Air . L'enrichissement en oxygène a aussi pour effet de diminuer la distance de coincement, ainsi elle n'est plus que de 0,03 cm pour un rapport $O_2/(O_2+N_2)$ de 1.

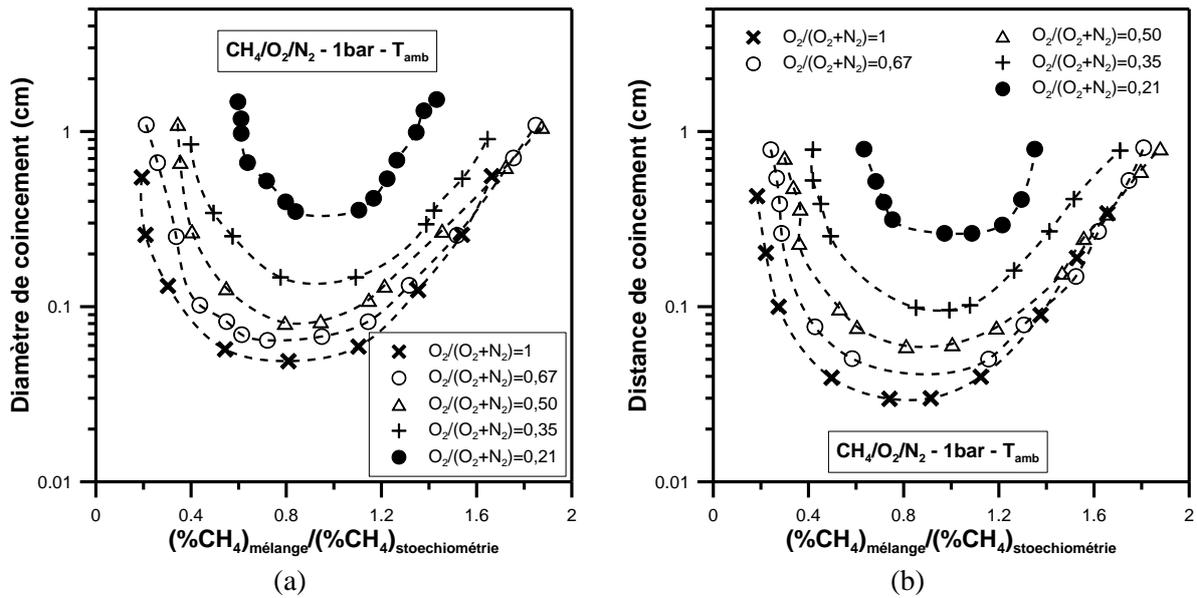


Figure 1-3 : Diamètre de coïncement (a) et distance de coïncement (b) en fonction de la richesse de mélanges $\text{CH}_4 + \text{O}_2 + \text{N}_2$ d'après Harris et al. [7].

La Figure 1-4 illustre l'évolution de la distance de coïncement pour des mélanges hydrogène / oxygène stœchiométriques en fonction de la teneur en azote dans le mélange [8]. De même que pour les mélanges à base de méthane, on observe une décroissance de la distance de coïncement avec l'enrichissement en oxygène.

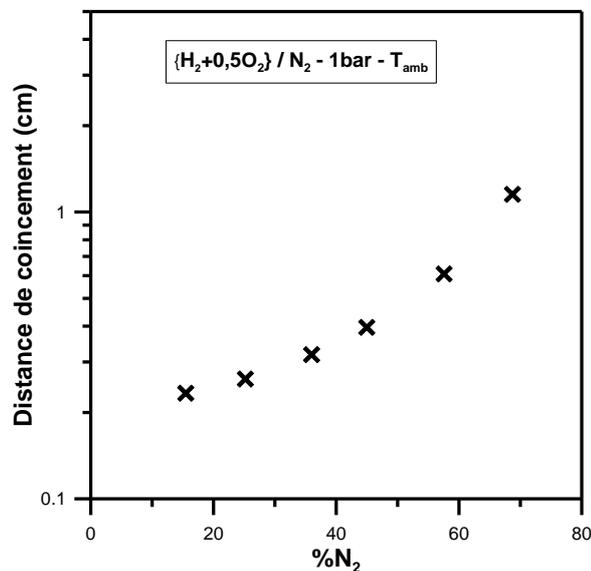


Figure 1-4 : Evolution de la distance de coïncement de mélanges $\{\text{H}_2+0.5\text{O}_2\}$ en fonction de la dilution en azote selon Friedman [8].

Dans le cas où la source d'inflammation est une étincelle produite entre deux électrodes, la distance minimale entre les deux électrodes est un paramètre important. En effet, pour des conditions initiales données de température de pression et de mélanges (nature et rapport d'équivalence), l'inflammation ne se produit que si la distance séparant les deux électrodes est supérieure à une distance critique appelée aussi distance de coïncement. Le

tableau suivant regroupe les valeurs des distances de coincement pour différents hydrocarbures.

Combustible / Comburant	d_q (mm)
Hydrogène / Air	0.64
Hydrogène / oxygène	0.25
Propane / Air	2.03
Propane / oxygène	0.24
n-heptane / Air	3.81

Tableau 1-2 : Distance de coincement de différents mélanges à base d'hydrocarbures initialement à température ambiante à pression atmosphérique selon Kanury [9]

2 Régimes de propagation des flammes

Lorsqu'on apporte de l'énergie à un mélange gazeux susceptible de s'enflammer, on obtient une zone réactionnelle très étroite et généralement lumineuse au sein du mélange. Cette zone qui constitue le front de flamme est le siège de réactions de combustion. Selon les conditions initiales (pression, composition, température initiale du mélange ou encore énergie minimale d'inflammation), et des conditions de propagation, cette zone réactionnelle peut se propager suivant deux modes différents, la déflagration ou la détonation. Nous allons à présent définir chaque type de propagation.

2.1 Déflagration

La déflagration est un mode de propagation subsonique. Dans le cas des flammes laminaires aussi bien que dans certains cas des flammes turbulentes, la propagation de la flamme résulte à la fois de la diffusion de la chaleur depuis les gaz frais vers les gaz brûlés ainsi que de la diffusion des espèces actives. Ainsi la propagation de la flamme repose sur un mécanisme de diffusion à la fois thermique et massique. La vitesse de la réaction détermine "l'épaisseur de la zone réactionnelle" et le gradient de température entre les gaz frais et les gaz brûlés. La température de flamme conditionne la vitesse de réaction chimique, mais c'est la diffusion qui joue un rôle essentiel dans la propagation de la flamme. La déflagration est donc constituée d'une zone de combustion d'épaisseur non négligeable et d'une onde de pression qui se propage en amont de celle-ci dans tout le domaine. Cette onde de pression, qui induit de faibles augmentations de la pression du mélange combustible, possède une vitesse sonique tandis que le front de combustion se propage à une vitesse nettement subsonique. A titre

d'exemple, la vitesse de propagation d'une flamme d'hydrogène en déflagration varie entre 0,5 et 3 m/s.

Lorsque l'on observe la propagation dans un tube cylindrique et en régime laminaire, la zone réactionnelle sépare à un instant donné les gaz frais des gaz brûlés comme le montre la Figure 2-1.

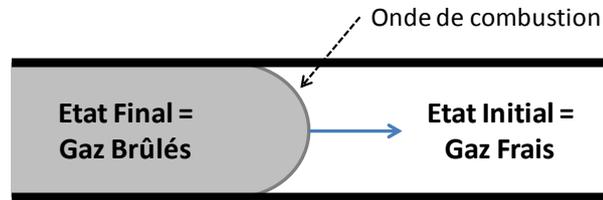


Figure 2-1 : Représentation schématique d'une onde de déflagration se déplaçant dans un tube. L'onde de combustion porte les gaz d'un état initial à un état final.

Le front de flamme est fortement incurvé en raison de l'expansion des gaz brûlés qui met en mouvement les gaz frais. En raison des forces de viscosité, la vitesse d'écoulement des gaz, nulle à la paroi, est maximale au centre du tube et le front de flamme tend à devenir hémisphérique. Les instabilités générées par la flamme perturbent généralement l'écoulement, le front se plisse et devient cellulaire si bien qu'au fur et à mesure de la propagation, l'écoulement en aval du front de flamme devient turbulente [10]. La turbulence, en accroissant la surface de flamme augmente la vitesse de combustion et génère des ondes de pression. Cependant, tant que la flamme reste laminaire, on peut dire que le gradient de pression à travers le front flamme est négligeable et considérer qu'à un instant donné la pression est quasiment constante dans le réacteur.

Sur la base d'un mécanisme réactionnel établi, la résolution des équations de continuité permet de tracer les profils instantanés de température et des concentrations des différentes espèces à travers une flamme laminaire (Figure 2-2). La teneur en radicaux porteurs de chaînes dans les gaz brûlés est d'autant plus importante que la température est élevée.

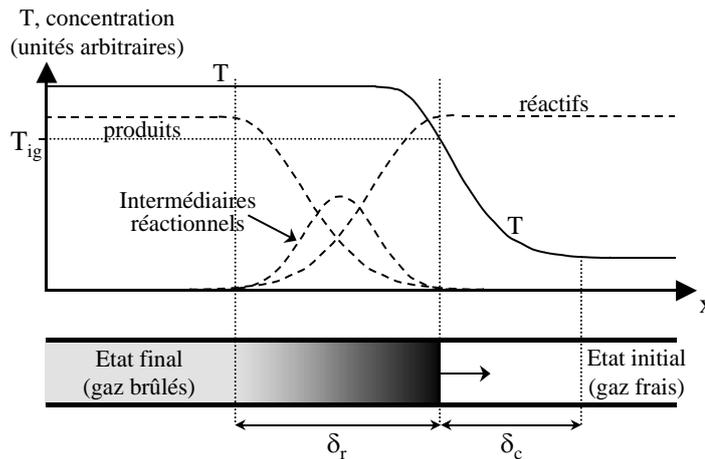


Figure 2-2 : Profils instantanés de température (—) et de concentration des différentes espèces (----) à l'intérieur d'une flamme se propageant dans un tube. La flèche sur le front de flamme indique le sens de la diffusion de la chaleur générée par la réaction chimique et des intermédiaires réactionnels. Cette flèche indique donc également le sens de propagation de la déflagration ([11, 12]). L'épaisseur δ_r a été exagérée pour plus de clarté. En réalité, la zone de préchauffage est bien plus grande que la zone réactionnelle ($\delta_c \gg \delta_r$).

2.2 Détonation

Contrairement à la déflagration, la détonation se caractérise par une vitesse de propagation du front de flamme supersonique responsable d'une surpression très importante [13,12,10]. La théorie de Chapman-Jouguet considère la détonation comme une discontinuité monodimensionnelle stationnaire séparant les gaz frais des gaz brûlés (zone réactionnelle infiniment mince) avec une célérité constante. La vitesse de propagation de l'onde de détonation est constante et supersonique (de l'ordre de 2000 m/s), elle peut être calculée avec une très bonne précision sur les bases de la théorie thermodynamique de Chapman Jouguet. Elle dépend de la nature et de la composition du mélange gazeux ainsi que des conditions initiales de température et de pression.



Figure 2-3 : Schéma d'une détonation selon Chapman – Jouguet.

En effet, si l'on considère que les gaz obéissent à la loi des gaz parfaits, les équations de conservation de masse, de quantité de mouvement et d'énergie au travers du front de détonation permettent d'écrire, dans le cas de confinements cylindriques :

$$h_2 - h_1 = \frac{1}{2} \cdot \frac{P_1}{\rho_1} \cdot \left(\frac{P_2}{P_1} - 1 \right) \cdot \left(1 + \frac{\rho_1}{\rho_2} \right) \quad \text{Eq. 2}$$

Avec h_i : enthalpie par unité de masse,

P_i, ρ_i : respectivement la pression, la masse volumique de l'état i ,

(i) : 1 représente l'état des gaz frais et 2 celui des gaz brûlés

On peut tracer, dans le plan $(P, 1/\rho)$ deux courbes correspondant d'une part à l'adiabatique dynamique des produits et d'autre part à la droite de Rayleigh.

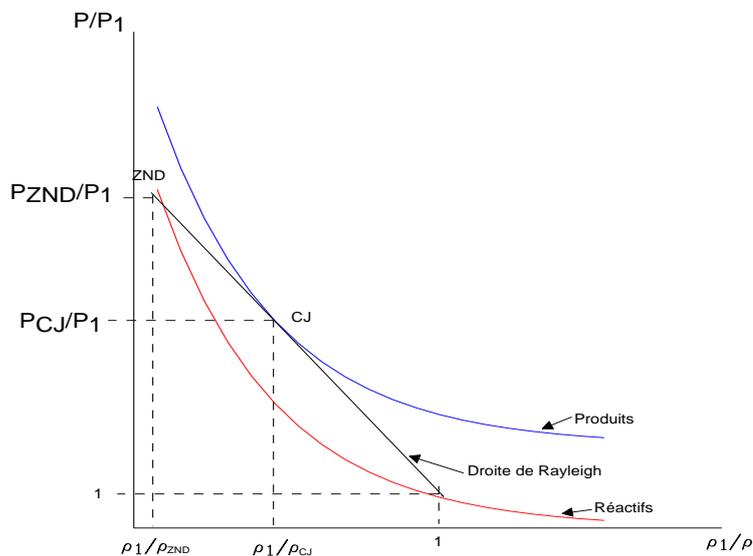


Figure 2-4 : Adiabatique d'Hugoniot et droite de Rayleigh.

Sur la courbe d'Hugoniot qui correspond à l'adiabatique dynamique de combustion, parmi tous les états possibles représentant une détonation ou une déflagration, les points correspondant aux valeurs extrêmes minimum des célérités de propagation (points de contact de la droite de Rayleigh tangente à l'adiabatique) conduisent à la condition CJ : $U_{o,2} = D - U_2 = a_2$. La vitesse relative $U_{o,2}$ des produits de combustion par rapport au front d'onde de célérité D est égale à la célérité locale du son dans les gaz brûlés. Cette condition peut être considérée comme une conséquence de la permanence du processus de discontinuité (onde réactive) que constitue la détonation ou la déflagration plane. Dans le cas d'une détonation, la condition CJ correspond à la production maximale d'entropie induisant une solution stable en fin de combustion (vitesse sonique) [14].

Selon la théorie de Zel'dovich [15], Von Neumann [16] et Doering [17] notée ZND, ce mode de propagation résulte du couplage entre une onde de choc et une zone réactionnelle très exothermique. L'onde de choc provoque une brusque compression adiabatique des gaz et donc une élévation de température. Si cette dernière est suffisamment importante pour porter les gaz à une température d'auto-inflammation correspondant à un délai d'auto-inflammation très court (de l'ordre de la microseconde), alors la réaction chimique se produit (Figure 2-5). L'énergie dégagée par cette réaction permet à son tour l'entretien de l'onde de choc lui permettant ainsi de poursuivre sa propagation : nous avons là un phénomène auto-entretenu.

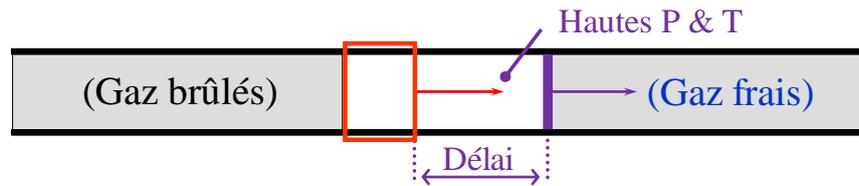


Figure 2-5 : Schéma d'une détonation selon le modèle ZND [16, 17, 18].

Nous avons tracé sur la Figure 2-6 l'évolution des différents paramètres, pression, température et masse volumique au passage de l'onde de détonation selon le modèle ZND. On remarque que l'on doit observer un pic de pression appelé aussi pointe de Von Neumann : les réactifs sont dits choqués et portés à la température T_{ZND} , à la pression P_{ZND} et à la masse volumique ρ_{ZND} . Le point CJ (Chapman – Jouguet), correspond aux gaz ayant atteint l'équilibre chimique.

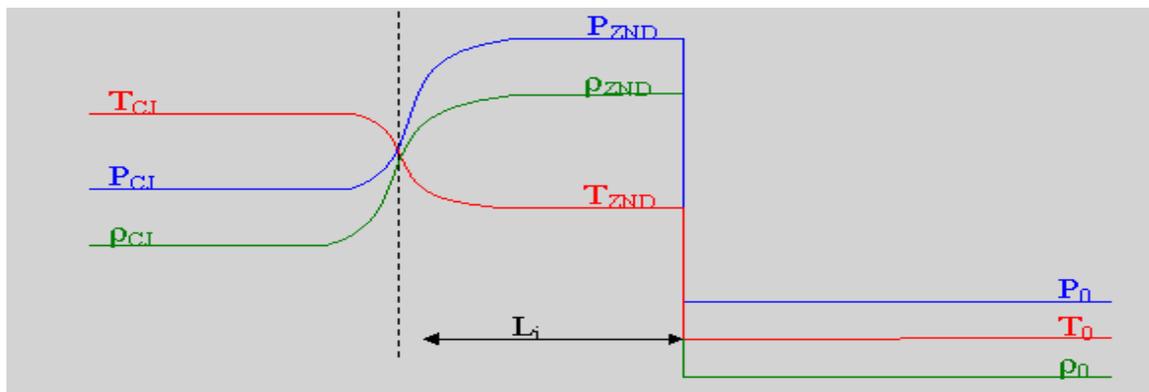


Figure 2-6 : Profils de température, pression et masse volumique selon le modèle ZND [16, 17, 18].

En 1962 Denisov et al. [19] ont montré, par la méthode des traces du passage de l'onde laissées sur la paroi du tube enduite de suie, que la structure du front de détonation est tridimensionnelle. Le front de la détonation est composé d'un ensemble d'ondes de choc à propagations longitudinales (onde incidente et onde de Mach) et transversales (ondes réfléchies) formant des points triples dans la configuration classique de Mach ([20]).

L'ensemble des trajectoires des points triples forme un maillage tridimensionnel périodique (Figure 2-7). Chaque motif élémentaire est appelé cellule et est caractérisé par sa largeur λ . La collision des points triples est génératrice d'une explosion locale sous la forme d'une détonation forte qui s'amortit au cours de sa propagation dans la cellule jusqu'au découplage progressif de la flamme et de l'onde de choc de tête.

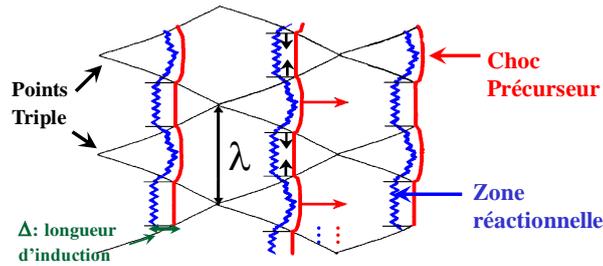


Figure 2-7: Représentation bidimensionnelle du front de choc.

La largeur λ qui dépend de la composition chimique du mélange (nature, rapport d'équivalence, dilution) ainsi que des paramètres de son état initial (pression, température) rend compte de la sensibilité du mélange carburant/comburant à la détonation : plus λ est petite plus le mélange détone facilement. Ceci peut être relié aux relations empiriques liant λ à certaines caractéristiques de la détonation [21, 22, 23]. L'une d'entre elles établit une corrélation linéaire entre la taille de cellule λ et la distance d'induction Δ :

$$\lambda = k \cdot \Delta \quad \text{Eq. 3}$$

Où k est une constante adimensionnelle. A titre d'exemple, k est proche de 29 pour les hydrocarbures légers dans l'air.

Δ peut être relié au délai d'auto-inflammation τ derrière l'onde de choc par la relation :

$$\Delta = \tau \cdot (D_{CJ} - u) \quad \text{Eq. 4}$$

Où D_{CJ} est la vitesse de l'onde de détonation et u est la vitesse des particules derrière l'onde de choc.

En combinant les équations 3 et 4, on obtient une relation entre λ et τ :

$$\lambda = k \cdot \tau \cdot (D_{CJ} - u) \quad \text{Eq. 5}$$

A partir de cette relation, on peut dire qu'il y a un couplage facile entre la zone réactionnelle et l'onde de choc. Quand les cellules de détonation ont des petites dimensions le délai d'auto-inflammation est court derrière l'onde de choc.

Lee et al. [24, 25] ont mis en évidence l'importance de la structure cellulaire de la détonation et notamment de la taille des cellules, λ , comme critère de formation, de propagation et d'extinction d'une détonation. Par exemple, elle peut aussi être reliée à l'énergie critique d'amorçage E_C d'une détonation sphérique [26, 27] selon l'expression :

$$E_C \propto \rho_1 \cdot D_{CJ}^2 \cdot \lambda^3 \quad \text{Eq. 6}$$

Où ρ_1 représente la masse volumique du mélange dans l'état initial et D_{CJ} la célérité Chapman-Jouguet. La largeur de la cellule λ représente aussi la sensibilité du mélange vis-à-vis de la détonation. Plus cette dernière sera faible et plus il sera facile d'initier, dans le mélange correspondant, une détonation stable.

La connaissance de la taille de la cellule de détonation permet aussi de déterminer le diamètre minimal d'un tube en-dessous duquel il ne peut y avoir de propagation d'une détonation auto-entretenu [28]:

$$d_1 = \frac{\lambda}{\pi} \quad \text{Eq. 7}$$

Elle est aussi importante dans l'évaluation du diamètre critique permettant la transmission d'une onde de détonation vers un plus grand volume [29] :

$$d_{crit} = 13 \cdot \lambda \quad \text{Eq. 8}$$

2.3 Transition Déflagration – Détonation

La propagation d'une flamme de prémélange peut être provoquée accidentellement. Dans le cadre d'études de risques et de prévention d'accidents, il est important de connaître le développement de cette propagation. Dans le cas d'une inflammation provoquée par une faible source d'énergie, la flamme se propage en régime subsonique, mais la vitesse n'est pas constante. Pour certains gaz en fonction de l'encombrement et de la géométrie de l'enceinte dans laquelle la flamme se propage, sa vitesse peut augmenter et devenir supersonique on assiste alors à une transition de la déflagration vers la détonation.

Les études portant sur l'origine de la détonation en phase gazeuse ont débuté à la suite des explosions dans les mines de charbon qui ont eu lieu en France et en Belgique au cours des années 1880. Les surpressions générées au cours de la détonation pouvant provoquer d'importants dégâts matériels, les recherches en vue de la compréhension de ce phénomène se sont intensifiées notamment concernant le passage de la déflagration à la détonation ou TDD. S'il est acquis que l'initiation de la détonation directe fait suite au dépôt d'une grande quantité d'énergie localement dans un mélange inflammable, il ne faut cependant pas négliger la possibilité d'obtenir une détonation à la suite d'une déflagration lente. Cette transition de la déflagration vers la détonation a été observée presque au même moment par Berthelot et Vielle [30] et Mallard et Le Châtelier [31] qui avaient été chargés d'élucider par des recherches expérimentales les conditions de production des explosions de grisou et les divers phénomènes qui les accompagnent.

2.3.1 Le mécanisme d'accélération

Plusieurs phénomènes peuvent être à l'origine de l'accélération d'une flamme de prémélange jusqu'à sa transition vers la détonation. Parmi ceux-ci, on peut évoquer le mouvement initié dans les gaz frais par le déplacement du front de flamme. Cet effet, dit piston, du front de flamme sur les gaz frais crée au sein de ceux-ci un mouvement orienté dans le sens du déplacement du front de flamme et a été mis en évidence par Chapman et Wheeler [32] au cours de leurs travaux sur l'accélération des flammes en tube lisse en 1926. Une flamme placée verticalement en bout d'un tube d'accélération de flamme leur a permis d'observer à l'aide d'une caméra rapide que la flamme verticale était soufflée dans le sens de propagation de celle initiée dans le tube. Le mouvement induit dans les gaz frais par le front de flamme était ainsi mis en évidence. Ce mouvement résulte de l'accélération de la flamme dans la mesure où les gaz frais initialement au repos se mettent en mouvement dans le sens de propagation du front de flamme avant le passage de celui-ci. Ainsi, si la flamme se propage dans un tube lisse ayant un fond fermé, il est possible d'exprimer la vitesse de chasse des gaz frais : $U_f = (\sigma - 1)S_L^0$, σ étant le facteur d'expansion et S_L^0 la vitesse fondamentale de flamme. Dans le cas d'un mélange H₂/Air composé de 20% d'hydrogène, aux conditions normales de pression et de température, $U_f \sim 4$ m/s. Le nombre de Reynolds associé à un tel mélange gazeux dans un tube de 154 mm de diamètre, est d'environ 28750. Cette valeur du nombre de Reynolds est dix fois supérieure à la valeur critique de transition entre les régimes laminaires et turbulents dans les tubes ($Re_c \sim 2300$). L'apparition de la turbulence plissera la flamme dont la surface augmentera. La surface augmentant, la flamme se retrouve accélérée et son Reynolds s'en retrouve augmenté à son tour créant par ce mécanisme une boucle de rétro-action.

Par ailleurs, l'accélération de flamme peut aussi être liée aux différentes instabilités auxquelles est soumise la flamme. On peut notamment citer :

- L'instabilité de Darrieus-Landau
- Les instabilités thermo-diffusives,
- Les instabilités liées au confinement.

2.3.1.1 L'instabilité de Darrieus-Landau

Le front de flamme est de part sa nature instable à cause des effets de la dynamique des gaz associés à celui de l'expansion des produits de combustion (Ciccarelli et Dorofeev [33]). Comme on peut le constater sur la Figure 2-8, quand une flamme est légèrement courbée, les lignes de champs dans les gaz brûlés convergent derrière les parties convexes du front et divergent derrière les parties concaves. Ceci a tendance à accentuer la courbure (définie du côté des réactifs) du front de flamme en créant une poussée additionnelle pour la partie convexe de celui-ci.

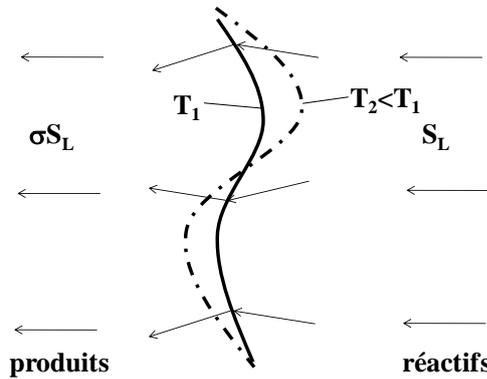


Figure 2-8: Illustration schématique de l'instabilité de Darrieus-Landau.

2.3.1.2 Les instabilités thermo-diffusives

Pour une flamme légèrement plissée, en plus de l'instabilité de Darrieus-Landau, les flux de diffusion peuvent aussi ne pas être à l'équilibre. Ceci est illustré sur la Figure 2-9 où on peut voir le flux de diffusion de l'espèce minoritaire en pointillés et le flux de diffusion thermique en trait plein. Dans le cas où le nombre de Lewis (Le), défini comme étant le rapport entre la diffusivité thermique et la diffusion massique est inférieur à 1, la température (T) locale de combustion est augmentée derrière la partie convexe du front de flamme à cause de l'augmentation de la diffusion massique de l'espèce minoritaire et de la diminution de la perte de chaleur (partie supérieure gauche de la Figure 2-9). Ceci conduit à une augmentation locale de la vitesse de combustion. Dans les parties concaves de la flamme, c'est le phénomène inverse qui est observé : la température locale de combustion baisse et entraîne la diminution localement de la vitesse de combustion. Ces deux effets, comme on peut le voir sur la figure, ont tendance à amplifier le plissement de la flamme.

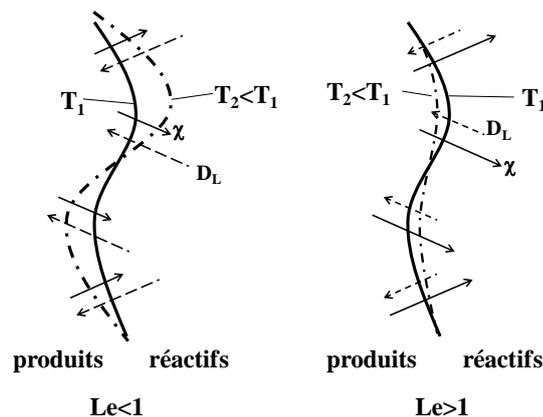


Figure 2-9: Illustration schématique de l'instabilité thermo-diffusive

Dans le cas où le nombre de Lewis au contraire est supérieur à 1, on observe à l'opposé une tendance générale à lisser les flammes plissées, ce qui conduit à des flammes stables.

2.3.1.3 Instabilités liées au confinement

La propagation d'une flamme dans un espace confiné génère des ondes acoustiques qui vont interagir avec le front de flamme après s'être réfléchis sur les obstacles ou les parois et développer des perturbations dans le front de flamme. Ces instabilités acoustiques semblent avoir une plus grande influence dans le cas des flammes relativement lentes se propageant dans les milieux confinés sans obstacles. En effet, les travaux de Tamanini et Chaffee [34] ont montré que la turbulence et les instabilités réduisent la contribution des instabilités acoustiques sur l'accélération de flamme. Les travaux réalisés par Teodorczyk et Lee [35] sur l'accélération de flamme dans un tube encombré d'obstacles ont été menés avec des matériaux capables d'absorber les ondes acoustiques aux parois. Leurs expériences, avec un mélange hydrogène/oxygène, ont montré que la présence du matériau absorbant permettait de réduire la vitesse finale lors de la propagation de 1000 m/s à 100 m/s.

2.3.2 Propagation en tube lisse

La combustion qui se développe dans un tube lisse fermé a été décrite par Phylaktou et al. [36] dans le cas de la combustion de différents hydrocarbures (méthane, propane, propylène) et hydrogène avec de l'air dans un tube vertical (1,64 m de long et 76 mm de diamètre). La Figure 2-10 illustre un exemple de résultat où l'on a l'évolution du signal de pression ainsi que de la position de la flamme en fonction du temps.

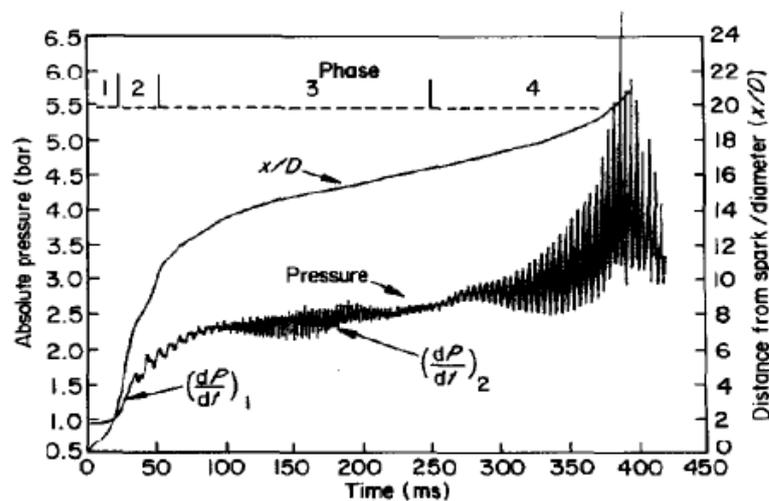


Figure 2-10 : Pression et distance parcourue dans un tube par la flamme (10% CH₄-air) en fonction du temps, d'après Phylaktou et al. [36]

Ils ont ainsi distingué quatre phases :

- Au cours de la première phase, la flamme s'étend pour former une hémisphère. Cette étape peut être comparée à celle de l'explosion à pression constante dans les bombes

sphériques. Cette étape s'achève quand le rayon de la sphère est moitié moindre à celui du tube.

- La deuxième phase est caractérisée par une montée en pression rapide couplée à une vitesse de propagation de la flamme élevée. La vitesse maximale est relevée à une distance du point d'inflammation égale à environ quatre diamètres.
- La pression et la vitesse se stabilisent en raison des pertes de chaleur à la paroi. On observe alors la forme en "tulipe" pendant la troisième phase. Les phénomènes complexes qui engendrent la formation de la "tulipe" ont suscité un grand intérêt de la part de nombreux auteurs [37, 38, 39, 40]. Pour les déflagrations très rapides, cette phase n'existe pas, et il y a une transition de la phase 2 à la phase 4.
- La quatrième phase est marquée par des oscillations périodiques importantes de la pression comme le montre la Figure 2-10. Pour les mélanges à vitesse de combustion lente, cette phase n'existe pas. Le phénomène vibratoire est généré par la perturbation qui naît dès le contact de la flamme avec la paroi et il est amplifié. Dans les dernières étapes de la propagation, d'autres effets (chimiques, propriétés de la surface, ou phénomènes d'inflammation secondaire) peuvent modifier le développement du mouvement vibratoire dans l'enceinte.

Dans un tube lisse, la propagation d'une flamme de prémélange initialement en régime laminaire devient rapidement perturbée par son propre déplacement. Les observations de propagation de flamme dans un mélange éthane/air stœchiométrique (Lamoureux [41]) montrent différents stades qui sont illustrés en Figure 2-11. L'inflammation est générée par étincelle entre deux électrodes situées en position axiale à 8 cm de l'extrémité du tube.

- a. Evolution quasi sphérique de la flamme
- b. La flamme atteint la paroi et devient hémisphérique
- c. Inversion du front de flamme dû à la condensation des gaz brûlés
- d. Déformation du front de flamme

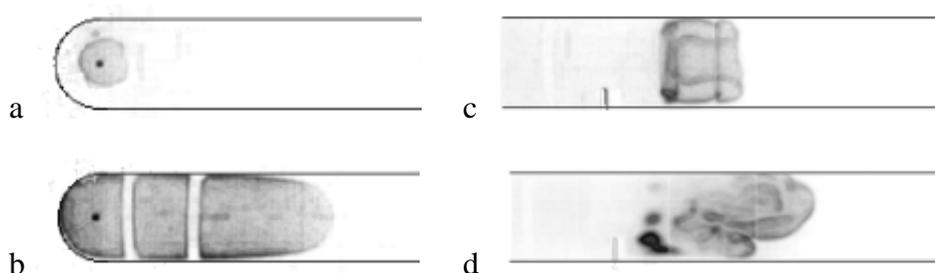


Figure 2-11 : Images de la propagation d'une flamme dans un mélange éthane/air stœchiométrique à une pression initiale de 16 kPa dans un tube lisse de 0,15 m de diamètre interne et de 2,95 m de long. a) Prise de vue sur le premier tronçon de 67,5 cm de long, 42 ms après le déclenchement. b) Prise de vue sur le même tronçon qu'en a) 66 ms après le déclenchement. c) Prise de vue entre 60 et 135 cm par rapport au point d'inflammation, 93 ms après le déclenchement. d) Prise de vue sur le même tronçon qu'en c) 240 ms après le déclenchement, d'après Lamoureux [41].

2.3.3 Propagation en tube encombrés d'obstacles

Dans le cas de la propagation de flamme dans un tube encombré d'obstacles, on définit le rapport de blocage de l'enceinte $BR=1-(d/D)^2$, d étant le diamètre intérieur de l'obstacle et D le diamètre du tube.

La propagation de la flamme peut être accélérée fortement en présence d'obstacles. Certaines configurations peuvent donc favoriser la transition à la détonation si la vitesse élevée en sortie du champ d'obstacles est stable. La vitesse finale dépend fortement du combustible, de la composition du mélange et de la configuration des obstacles. Les facteurs clefs conduisant à l'accélération de la propagation d'une flamme sont :

- l'écoulement des gaz frais produit par l'expansion des gaz brûlés,
- les distorsions et la turbulence du champ d'écoulement en raison des limites et-ou des obstacles qui peuvent varier avec la géométrie,
- l'interaction de la flamme avec les distorsions et la turbulence dans le champ d'écoulement.

Ces facteurs sont décrits dans le mécanisme du feed-back. En présence d'obstacles répétés ce mécanisme est amplifié et explique l'accélération de la flamme. La vitesse de propagation de la flamme peut être de l'ordre de 24 fois supérieure (et même beaucoup plus s'il y a une TDD) à celle observée en absence d'obstacles (Moen et al. [42]). Ce mécanisme du feed-back est responsable de la rapide accélération de la flamme en présence d'obstacles répétés. Les changements dans le champ d'écoulement des gaz frais en amont de la flamme peuvent provoquer son accélération. La flamme s'étire au voisinage de l'obstacle. La vitesse de combustion augmente en raison de l'accroissement de la surface de la flamme et de l'augmentation de la vitesse des gaz frais. La vitesse de propagation du front de flamme augmente et les perturbations engendrées dans le champ d'écoulement sont amplifiées. Un vortex est généré derrière l'obstacle et, tout le long de l'obstacle il y a un gradient de vitesse dans l'écoulement. Des tourbillons dont la taille dépend de la géométrie des obstacles sont générés. Les tourbillons de petite échelle accroissent les phénomènes de transport à travers la zone de combustion.

La vitesse de la propagation de la flamme en présence d'obstacles dépend non seulement de la géométrie des obstacles et de l'enceinte mais aussi de la composition du mélange. De nombreuses études mettent en évidence l'effet de ces paramètres sur l'accélération de la flamme, [43, 44]. Les enceintes sont caractérisées par le rapport de leur longueur sur leur diamètre (L/D). Les obstacles sont caractérisés par leur rapport de blocage, BR (rapport entre la surface de la section obstruée par l'obstacle et celle de l'enceinte), l'espacement.

Une récente étude menée par Johansen et Ciccarelli [45], grâce à une technique originale a permis de visualiser le développement de l'écoulement en amont du front de flamme et ainsi mieux comprendre son influence sur l'accélération de flamme. Cette

technique consistait à injecter une petite quantité d'hélium entre deux obstacles adjacents avant l'inflammation et à suivre le trajet de l'hélium dans les gaz frais en même temps que le front de flamme. Ils ont, par cette méthode, pu observer l'apparition de petits tourbillons résultant des interactions entre l'écoulement amont et les obstacles. Ces tourbillons vont ensuite se transformer en de larges zones de recirculation comme on le voit sur la figure I-16, générant ainsi des perturbations qui vont développer une intense turbulence dans les gaz frais qui aura pour effet d'augmenter la surface de la flamme et sa vitesse.

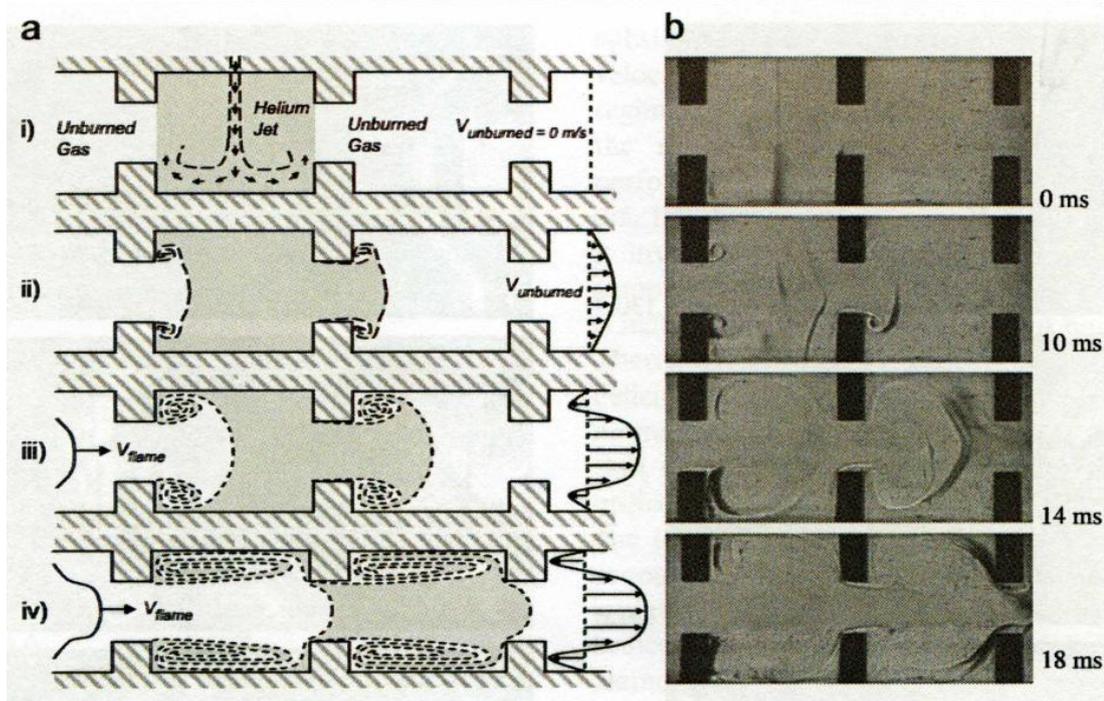


Figure 2-12 : Visualisation de l'écoulement dans les gaz frais d'après Johansen et Cicarelli [45]

De nombreuses études ont porté sur les critères d'accélération de flamme et de transition de la déflagration vers la détonation (TDD). Ces travaux ont notamment permis de définir trois régimes de propagation d'une flamme qui subit un processus d'accélération : la déflagration lente, la déflagration rapide et la quasi-détonation. La limite entre la déflagration lente et la déflagration rapide est communément posée à la moitié du nombre de Mach dans les gaz brûlés. Au-delà de cette vitesse de propagation du front de flamme, on considère que les ondes de pression générées peuvent avoir un impact sur les structures de confinement. La Figure 2-13 illustre les différents régimes de propagation que l'on peut obtenir dans le cas de l'hydrogène et les ordres de grandeurs de vitesse associés.

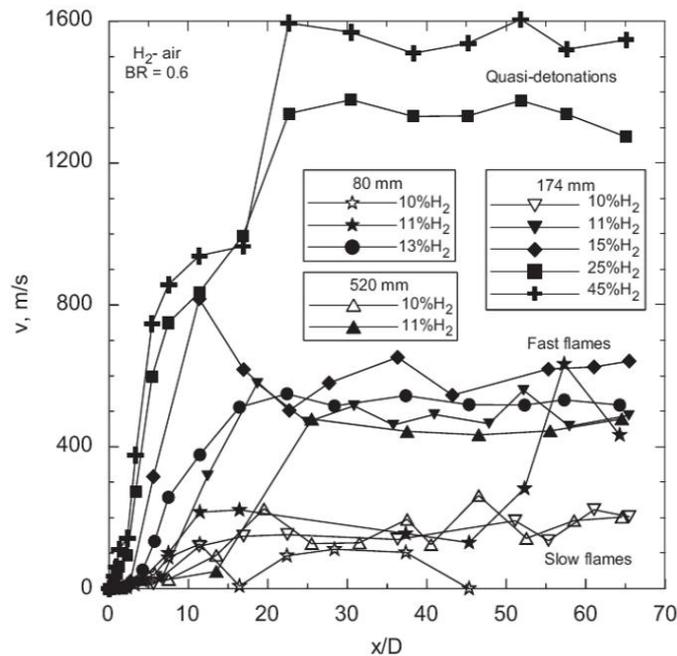


Figure 2-13 : Vitesses de flamme des mélanges Hydrogène/Air en fonction de la position dans des tubes encombrés d'obstacles (Cicarelli et Dorofeev [33]) ayant rapport de blocage de 0,6 et pour différents diamètres de tube. x représente la distance par rapport au point d'inflammation et D le diamètre du tube

Dans le cas des déflagrations lentes d'hydrogène, on peut ainsi voir que les vitesses atteintes sont inférieures à 200 m/s et que globalement il existe des cas d'extinction de la flamme au cours de sa propagation. Dans le cas des déflagrations rapides, les vitesses se stabilisent aux environs de 500 m/s et enfin dans le cas des quasi-détonations, les vitesses peuvent atteindre jusqu'à 1600m/s.

En conclusion différents régimes de propagation peuvent être identifiés, Lee et al. [29] en décrivent quatre :

- *régime quenching (d'extinction)*, le passage de la flamme au-dessus des obstacles conduit à des extinctions locales de la flamme.
- *régime choking (de blocage)*, la flamme se propage à une vitesse comprise entre 600 et 1000 m.s⁻¹.
- *régime de quasi-détonation* ; la vitesse est supérieure à 1000 m.s⁻¹. La transition à la détonation se produit uniquement dans le champ d'obstacles. Les détonations résultantes se propagent à des vitesses inférieures aux vitesses de Chapman-Jouguet correspondant au mélange. La différence de vitesse peut être attribuée aux pertes sévères de la quantité de mouvement par l'effet de blocage des obstacles.
- *régime de détonation* ; il se produit avec les mélanges les plus sensibles quand l'orifice de l'obstacle (plaques perforées) est environ 13 fois plus grand que la taille de la cellule de détonation. Dans ce cas, le mouvement de l'onde de détonation est insensible à l'effet de blocage des obstacles. La vitesse est très voisine de la vitesse caractéristique CJ.

Nous présenterons dans la suite l'état de l'art sur les travaux déjà effectués d'une part sur les mélanges hydrogène/air et d'autre part sur les systèmes hydrocarbure/air.

3 Etat de l'art sur les vitesses fondamentales de flamme

3.1 Quelques Rappels sur les vitesses fondamentales de flamme

Dans le cas d'une déflagration laminaire, la vitesse de déplacement des gaz frais par rapport à l'onde de combustion laminaire perpendiculairement à celui-ci est appelée vitesse de flamme laminaire ou vitesse fondamentale de flamme. C'est une grandeur qui ne dépend que du mélange et des conditions thermodynamiques. Expérimentalement, on distingue plusieurs méthodes de mesure de cette vitesse normale de combustion.

La méthode que nous allons utiliser au cours de ce travail est la méthode de la bombe sphérique. Elle consiste à enflammer un mélange gazeux dans une enceinte sphérique fermée. Cette méthode connaît un regain d'intérêt ces dernières années. Dans les premières phases de la déflagration, on considère la flamme comme sphérique et on relie de façon simple la vitesse normale de combustion, S_L , à la vitesse spatiale de combustion, V_s , et au coefficient d'expansion σ :

$$S_L \approx \frac{V_s}{\sigma}. \quad \text{Eq. 9}$$

Une autre méthode est celle de la propagation en tube vertical (ouvert à l'extrémité de l'inflammation). La mesure est fonction de la surface du tube et de la surface du front de flamme. On relie dans ce cas la vitesse normale à la vitesse de propagation du front de flamme par la relation $S_L = \frac{V_s}{A'}$, A' étant la surface de flamme rapportée à la section du tube.

Le Tableau 3-1 résume l'évolution de la vitesse de flamme en fonction du rapport d'équivalence pour quelques hydrocarbures.

Rapport d'équivalence	0,8	0,9	1	1,1	1,2
Méthane	30	38	43	45	40
Ethane	36	41	44	47	47
Propane	-	42	46	46	42

Tableau 3-1: Vitesses laminaires de flamme de mélanges hydrocarbures/air en fonction du rapport d'équivalence (cm/s).

On distingue deux approches théoriques pour le calcul de la vitesse de flamme laminaire :

- Les théories thermiques liées aux phénomènes de transport
- Les théories diffusionnelles fondées sur la diffusion d'atomes et de radicaux libres.

Deux théories issues de l'approche thermique seront ici développées.

3.1.1 La théorie de Mallard et Le Châtelier

Il s'agit de la théorie la plus ancienne. Elle a été développée par Mallard et Le Châtelier en 1885. Cette théorie suppose que la propagation de flamme est contrôlée par la propagation de la chaleur à travers le gaz comme le rappelle Glassman [46]. Elle est de ce fait basée sur l'équation de conservation de l'énergie. Mallard et Le Châtelier ont émis l'hypothèse qu'une flamme est composée de deux zones : une zone de préchauffage et une zone de réaction séparées par le point où se produit l'inflammation. Dans la zone de préchauffage, les gaz sont chauffés de la température initiale T_u à la température T_{infl} et dans la zone de réaction, la température augmente pour se stabiliser à la température de flamme T_b . En considérant une évolution linéaire de la température dans la zone de réaction, en se limitant à un problème unidimensionnel et en considérant que les gaz frais se déplacent perpendiculairement à l'onde de combustion, on a une expression de la vitesse de flamme laminaire qui s'écrit comme suit :

$$S_l = \frac{\lambda_b}{\rho_u \cdot C_p} \times \frac{T_b - T_{infl}}{T_{infl} - T_u} \times \frac{1}{\delta_r} \quad \text{Eq. 10}$$

avec λ , la conductivité thermique, C_p la capacité calorifique à pression constante, ρ_u la masse volumique des gaz frais et δ_r l'épaisseur de réaction qu'on peut exprimer en fonction de la vitesse de réaction et de la vitesse de propagation : $\delta_r = S_L \frac{dt}{d\zeta}$

avec ζ la variable d'avancement de la réaction.

En remplaçant δ_r , on obtient enfin,

$$S_l = \sqrt{\frac{\lambda_b}{\rho_u \cdot C_p} \times \frac{T_b - T_{infl}}{T_{infl} - T_u} \times \frac{d\zeta}{dt}} \quad \text{Eq. 11}$$

Cette expression de la vitesse de flamme traduit sa dépendance vis-à-vis de la vitesse de réaction et de la diffusivité thermique.

Dans la définition du front de flamme apparaît la notion de température d'inflammation. Bien que cette dernière soit fictive, son introduction est nécessaire à l'établissement de lois relativement simples permettant de relier la vitesse de combustion aux propriétés physico-chimiques d'un système combustible donné : la diffusivité thermique et le taux de réaction.

3.1.2 La théorie de Zel'dovich, Franck –Kamenetskii et Semenov

Cette théorie est basée sur la théorie thermique de Mallard et le Châtelier que nous avons évoquée plus haut. Comme précédemment, la flamme est divisée en une zone de préchauffage et une zone de réaction. Elle se différencie de son aînée en considérant à la fois la conservation de l'énergie et la conservation des espèces. De plus, la notion de température d'inflammation disparaît puisque l'inflammation est considérée comme produite à une température très proche de la température de flamme. La pression, le nombre de mole durant la réaction, la capacité calorifique à pression constante et la conductivité thermique sont constants. Le nombre de Lewis est considéré égal à 1 et pour simplifier, la flamme est considérée comme étant unidimensionnelle et stationnaire.

Dans le cas où les nombre adimensionnels de Schmidt $Sc = \frac{\mu}{\rho D}$ et de Prandtl $Pr = \frac{\mu C_p}{\lambda}$ sont égaux à 1, la résolution des équations de conservation mène à l'égalité suivante :

$$S_L^0 = \sqrt{\frac{2 \cdot \lambda \cdot C_{p,f}^n \cdot Z' \cdot n_r^{n-1} \left(\frac{n_r}{n_p}\right)^n \left(\frac{A}{B}\right)^n \left(\frac{R \cdot T^2}{E_a}\right)^{n+1} \left(\frac{e^{-\frac{E_a}{R \cdot T_{ad}}}}{(T_f - T_0)^{n+1}}\right)}{\rho_0 \cdot \bar{C}_p^{n+1}}} \quad \text{Eq. 12}$$

Avec n_r et n_p les quantités de réactifs et de produits,

$$Le = \frac{\alpha}{D} = \frac{A}{B},$$

λ : la conductivité thermique,

α : la diffusivité thermique

T_b : la température de flamme et T_u la température initiale

\bar{C}_p , T et ρ respectivement la capacité calorifique moyenne entre T_u et T_b , la température et la masse volumique

$C_{p,f}^n$ la capacité calorifique calculée à T_b

n l'ordre de la réaction bilan

Z' un facteur pré-exponentiel et E_a l'énergie d'activation globale.

3.1.3 Energie d'activation et nombre de Zeldovich

La vitesse globale de réaction s'exprimant selon une loi d'Arrhenius, nous avons donc une variation de S_L avec la température de flamme.

$$\dot{\omega} = A \cdot \exp\left(-\frac{E_a}{R \cdot T_b}\right) \quad \text{Eq. 13}$$

où T_b est la température adiabatique de flamme, E_a l'énergie d'activation globale de la réaction. L'expression de la vitesse de flamme est donc proportionnelle : $S_L^0 \sim \sqrt{\alpha \dot{\omega}}$ si on admet que . Le tracé de l'évolution de la quantité $2 \ln(S_L^0) - \ln(\alpha)$ en fonction de l'inverse de la température, donne une droite dont la pente est l'énergie d'activation E_a .

Zeldovich et Franck Kamenetskii ont considéré le comportement non linéaire du taux de réaction et en utilisant le formalisme de Mallard et Le Châtelier, ont introduit un nombre sans dimension, β , appelé nombre de Zeldovich représentant l'énergie d'activation normalisée et est définie par la relation suivante :

$$\beta = \frac{E_a}{R \cdot T_b^2} \times (T_b - T_u) \quad \text{Eq. 14}$$

Le nombre de Zeldovich représente ainsi la réactivité du mélange et constitue donc un paramètre important dans l'analyse de la capacité d'un mélange à s'accélérer fortement.

3.1.4 Epaisseur d'une flamme laminaire

Dans le cas de la propagation en régime laminaire, Mallard et Le Châtelier furent les premiers à décrire la structure de la flamme. Dans cette zone appelée épaisseur de flamme, d'épaisseur finie, les gaz frais sont portés à haute température avant de réagir et fournir ainsi la quantité de chaleur nécessaire à la propagation de la flamme. On distingue ainsi deux zones de dimensions très inégales (Figure 3-1) :

- Une zone de préchauffage, d'épaisseur δ_p , dans laquelle diffusion de masse (négligée par Mallard et Le Châtelier) et la conduction de chaleur permettent l'augmentation de la température des gaz frais jusqu'à la température d'inflammation ;
- Une zone de réaction, d'épaisseur δ_r , beaucoup plus mince que la précédente où se fait la réaction de combustion et donc le dégagement de chaleur. Ainsi cette dernière zone est délimitée par la température d'inflammation et dans sa partie supérieure par la température d'équilibre atteinte après la réaction de combustion.

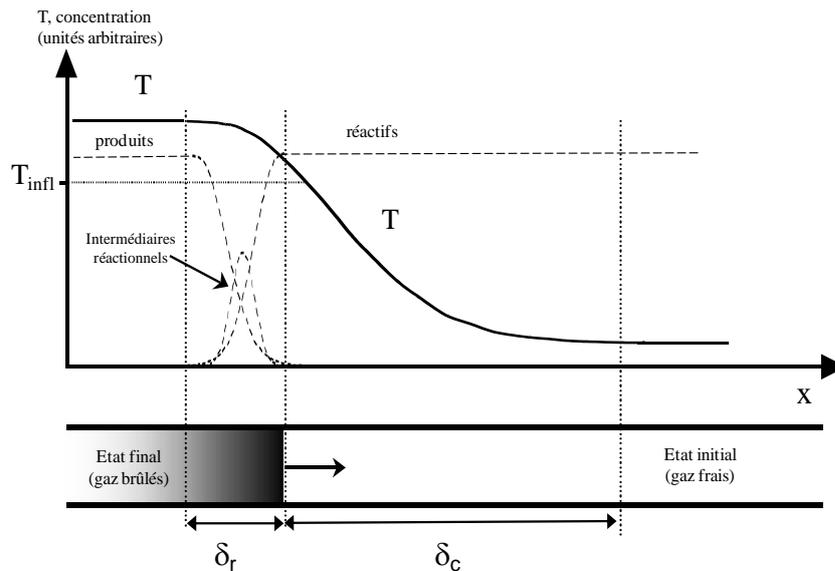


Figure 3-1 : Structure d'une flamme laminaire de prémélange.

L'évaluation de la zone de préchauffage se fait généralement en utilisant la diffusivité thermique normalisée par la vitesse de combustion laminaire :

$$\delta_p = \frac{\lambda}{\rho \cdot c_p \cdot S_L^0} \quad \text{Eq. 15}$$

où λ est la conductivité thermique, C_p , la capacité calorifique, ρ , la masse volumique et S_L^0 , la vitesse normale de combustion. Cette définition est celle que l'on rencontre souvent mais d'autres définitions sont adoptées selon les auteurs [47,48,49,50,51,52]

L'épaisseur de la zone réactionnelle est liée à celle de la zone de préchauffage et au nombre de Zeldovich, β . Elle est donnée par la relation suivante :

$$\delta_r = \frac{\delta_p}{\beta} \quad \text{Eq. 16}$$

Le nombre de Zeldovich étant généralement très grand devant 1, δ_r est très petit devant δ_p .

Un troisième paramètre peut ainsi être déduit qui correspond au temps de transit des gaz à travers la flamme, τ_c . Il est défini par la relation suivante :

$$\tau_c = \frac{\delta_p}{S_L^0} \quad \text{Eq. 17}$$

Zeldovich et al. [18] ont défini, dans leur analyse, l'épaisseur de la flamme à partir du profil de la température comme cela est indiqué dans la Figure 3-2. Cependant d'autres définitions peuvent être adoptées selon le paramètre qui est pris en considération, il peut s'agir

de la consommation d'un des réactifs ou la production d'une espèce choisie. La détermination de l'épaisseur de flamme nécessite dans ce cas l'évaluation de la structure de la flamme au travers de la modélisation numérique sur la base d'un schéma cinétique détaillé. Selon le système chimique considéré, cette simulation numérique n'est pas toujours possible ne serait-ce qu'en raison de l'absence d'un modèle cinétique détaillé fiable.

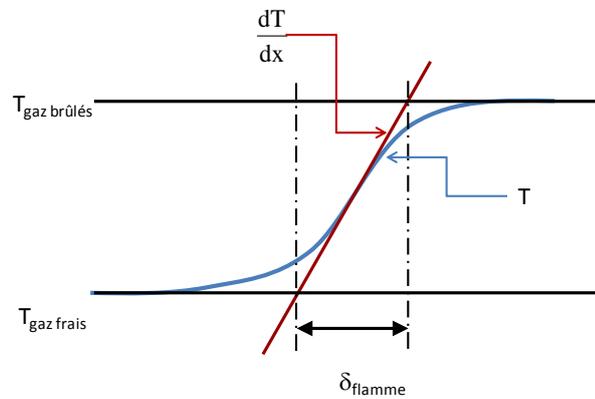


Figure 3-2 : Définition de l'épaisseur de flamme selon Zeldovich [18]

Généralement, l'épaisseur de flamme est définie à partir de paramètres globaux permettant de mettre en avant l'importance de :

- la longueur de diffusion selon la relation $\delta_D = \frac{D_{ij}}{S_L}$, avec D_{ij} le coefficient de diffusion massique de l'espèce minoritaire i dans le mélange $\{i,j\}$
- l'épaisseur thermique définie par $\delta_p = \frac{\lambda}{\rho \cdot c_p S_L}$
- l'épaisseur hydrodynamique selon la relation $\delta_v = \frac{\nu}{S_L}$ où ν est la viscosité cinématique

Les trois paramètres que l'on vient de définir permettent d'évaluer les caractéristiques d'une flamme laminaire pour un système combustible donné. Ils sont très utiles notamment en combustion turbulente où leur comparaison avec les paramètres caractéristiques de cette dernière fournira une classification des flammes en différentes catégories. A chaque catégorie on appliquera un modèle théorique adapté et qui peut être sensiblement différent d'une catégorie à l'autre.

3.2 Cas des mélanges d'intérêt pour l'étude

3.2.1 Mélanges méthane/air

De nombreuses études ont porté sur la détermination des vitesses fondamentales de flammes de mélange méthane/air dès les années 50. Andrews et Bradley [53], en 1972 ont

réalisé un état de l'art de toutes les données disponibles dans la littérature jusqu'au début des années 70 et qui sont reportées dans le tableau Tableau : 3-2 On y remarque que la vitesse fondamentale de flamme des mélanges méthane/air est évaluée entre 39,1 et 47,2 cm/s.

En 1993, Tseng et al. [54] ont mené une étude sur les vitesses de flamme des mélanges hydrocarbure/air et ont proposé des valeurs de vitesse de flamme pour les mélanges méthane/air qu'ils ont comparé avec les travaux issus de la littérature entre 1971 et 1991. On note une certaine dispersion entre les différents auteurs sur les valeurs de la vitesse de flamme. Cela se traduit par l'évaluation du maximum de vitesse à 50 cm/s pour un rapport d'équivalence de 1,1 par Taylor et al [56], et, à 40 cm/s pour un rapport d'équivalence de 1,1 par Yamaoka et Tsuji [55]. Il est à noter, cependant, que cette dispersion est due à une mauvaise évaluation des coefficients d'expansion des gaz brûlés comme cela a été mentionné par Taylor et Smith [56] en 1995 puis corrigé par Aung et al. [57] au cours de la même année. Cette correction a permis de mettre en lumière le bon accord obtenu entre les études plus récentes : celle de Taylor et Smith [56] qui évalue le maximum de la vitesse de flamme à 37 cm/s pour un rapport d'équivalence de 1,1 et celle de Aung et al. [57] qui évalue le maximum 35 cm/s pour le même rapport d'équivalence.

<i>Auteur</i>	<i>Méthode</i>	<i>Facteur de correction</i>	<i>Vitesse S_u corrigée à 298 K (cm/s)</i>
Gerstein et coll. (1951)	Tube ouvert aux 2 extrémités	1,16	39,2
Egerton et Lefebvre (1954)	Tube ouvert en aval	1,17	43,9
Henderson et Hill (1956)	Tube ouvert aux 2 extrémités	1,16	43,9
Manton et coll. (1953)	Bombe	1,22	45,2
Manton & Milliken (1956)	Bombe	1,22	44,9
Smith & Agnew (1957)	Bombe	1,22	45,8
Agnew & Graiff (1961)	Bombe	1,22	42,1
Karpov & Sokolik (1961)	Bombe	1,22	43,9
Babkin (1966)	Bombe	1,22	39,1
Strauss & Edse (1959)	Bulle de savon	1,22	41,5
Bolz & Burlage (1960)	Noyau de flamme	1,22	44,6
Gerstein et coll. (1950)	Brûleur, aire totale, cône lumineux	1,21	40,3
Dixon-Lewis & Wilson (1951)	Brûleur, aire totale, cône lumineux	1,21	44,8
Diederichsen & Wolfhard (1956)	Brûleur, aire totale, cône lumineux	1,21	47,2
Rosser et coll. (1959)	Brûleur, aire totale, cône lumineux	1,21	46,7
Barassin et coll. (1967)	Brûleur, aire totale, cône lumineux	1,21	45,6

Dugger (1952)	Brûleur, air totale, ombre	1,14	43,1
Clingman et coll. (1953)	Brûleur, air totale, ombre	1,14	46,1
Gilbert (1957)	Brûleur, air totale, striescopie	1,14	43,3
Morgan & Kane (1953)	Brûleur à extrémité convergente, aire totale, schlieren	1,11	44,4
Natl. Bur. Standards (1955)	Brûleur à extrémité convergente, aire totale, schlieren	1,11	42,3
Halpern (1963)	Brûleur à extrémité convergente, aire totale, schlieren	1,11	41,5
Fells & Rutherford (1969)	Brûleur à extrémité convergente, aire totale, schlieren	1,11	44,0
Lindow (1968)	Brûleur à extrémité convergente, traces de particules, schlieren	–	44,8
Reed et coll. (1971)	Brûleur à extrémité convergente, traces de particules, schlieren	–	44,7
Andrews & Bradley (1971)	Bombe, anémométrie à fil chaud	–	46,0

Tableau : 3-2: Valeurs expérimentales corrigées des vitesses fondamentales de flammes méthane/air (correction pour 1 atm et une température des gaz frais de 298 K) d'après Andrews et Bradley [53]

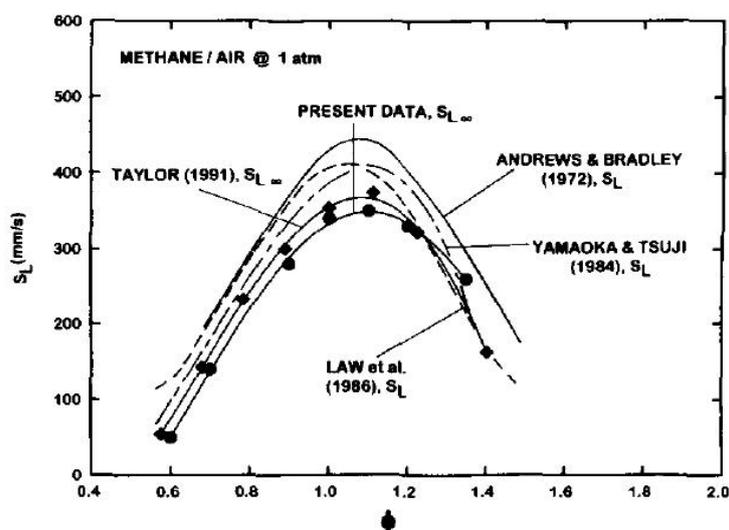


Figure 3-3: Vitesses de flamme des mélanges méthane/air en fonction du rapport d'équivalence selon Aung et al. [57]

En 2000, Gu et al. [58] ont déterminé les vitesses fondamentales de flamme des mélanges méthane/air pour des températures comprises entre 300 et 400 K, pour des pressions allant de 1 à 10 bars et pour trois rapports d'équivalence : 0,8, 1 et 1,2 (Figure 3-4).

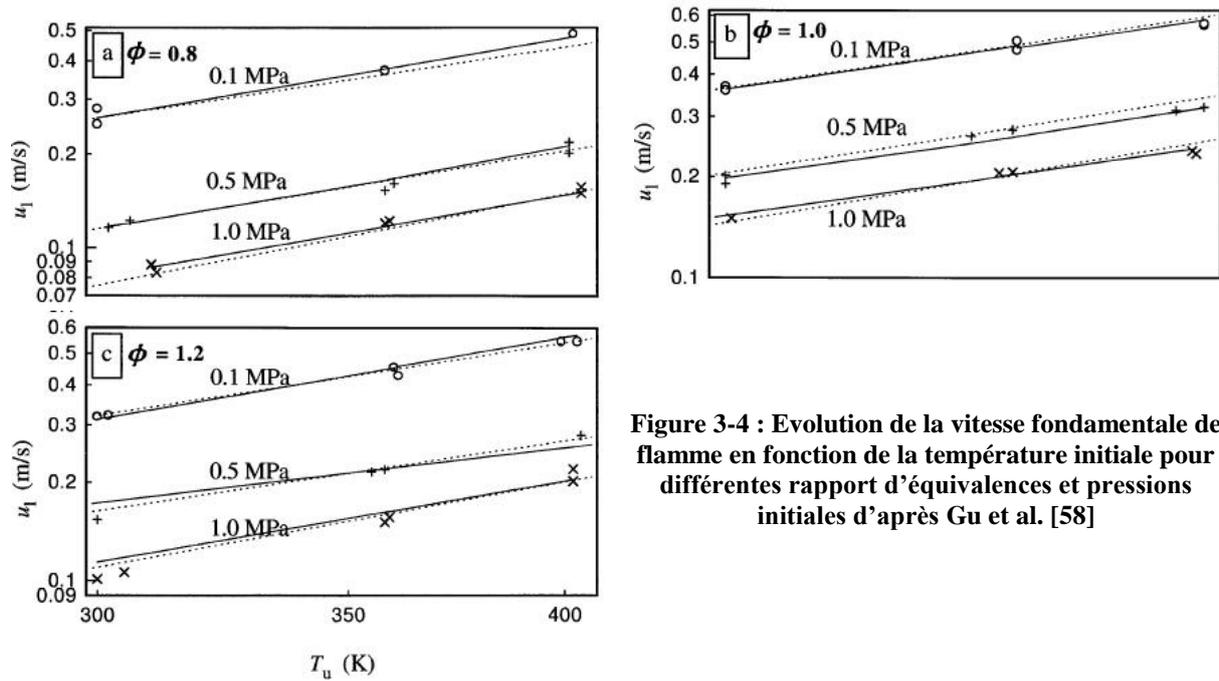


Figure 3-4 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme en fonction de la température initiale pour différents rapport d'équivalences et pressions initiales d'après Gu et al. [58]

Des corrélations ont été proposées par les auteurs pour la prédiction de la vitesse fondamentale de flamme en fonction de la pression initiale et de la température initiale. Trois corrélations sont établies pour chacune des rapports d'équivalence étudiées.

- Pour le rapport d'équivalence de 0,8

$$S_L(\text{m. s}^{-1}) = 0,259 \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_0}\right)^{2,105} \cdot \left(\frac{P_{ini}}{P_0}\right)^{-0,504} \quad \text{Eq. 18}$$

- Pour le rapport d'équivalence de 1

$$S_L(\text{m. s}^{-1}) = 0,360 \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_0}\right)^{1,612} \cdot \left(\frac{P_{ini}}{P_0}\right)^{-0,374} \quad \text{Eq. 19}$$

- Pour le rapport d'équivalence de 1,2

$$S_L(\text{m. s}^{-1}) = 0,314 \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_0}\right)^{2,000} \cdot \left(\frac{P_{ini}}{P_0}\right)^{-0,438} \quad \text{Eq. 20}$$

Leurs expériences ont été menées dans une enceinte sphérique couplée à un système d'imagerie rapide. Les auteurs ont ainsi pu extraire d'une part les longueurs de Markstein et d'autre part le nombre de Zeldovich qui sont résumés dans le tableau suivant.

ϕ	T_u K	L_b (mm)	β
0.6	302	0.21	6.2
0.7	301	0.74	5.7
0.8	300	0.64	5.3
0.8	300	0.78	5.3
0.9	300	1.14	5.1

1	301	1	4.9
1	301	0.9	4.9
1.1	300	1.69	4.9
1.2	300	2.65	5.1
1.2	302	1.82	5.1

Tableau 3-3 : Longueurs de Markstein et énergies d'activation en fonction de la richesse selon Gu et al [58]

Enfin, deux études plus récentes ont été menées au laboratoire ICARE sur la détermination de la vitesse fondamentale de mélanges méthane/air par Halter et al. [59] en 2005 et par Bouvet [60] en 2009 (Figure 3-5). La première a été réalisé dans une bombe sphérique pour des pressions initiales comprises en 1 et 5 bars et à température initiale ambiante. Les rapports d'équivalence étudiés variaient entre 0,7 et 1,2. L'étude de Bouvet quant à elle à été réalisée à l'aide d'un brûleur à contre courant à pression et à température ambiante. Leurs résultats sont comparés avec les résultats de différents auteurs dans la littérature sur la Figure 3-5. Globalement, on note un bon accord entre ces différents auteurs en ce qui concerne les vitesses de flamme des mélanges méthane/ air à l'exception de Liao et al. [63] et de Tanoue et al. [66].

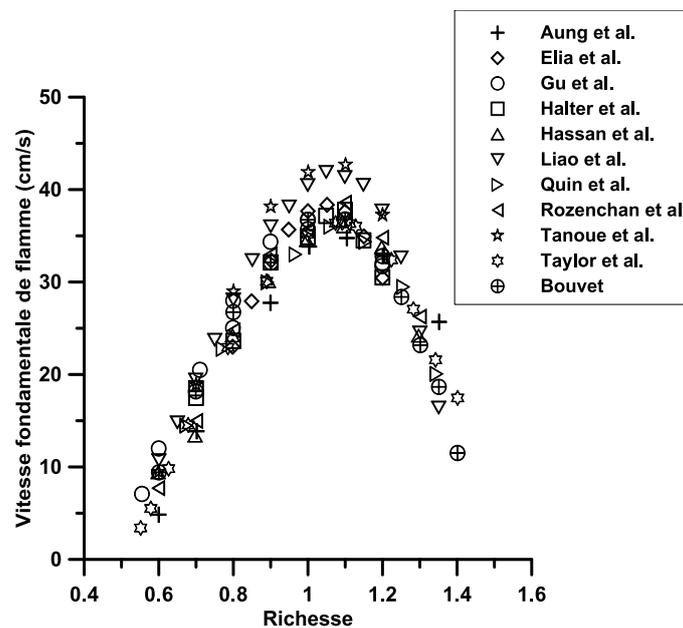


Figure 3-5 : Vitesses fondamentales de flamme de méthane/air de différents auteurs de la littérature : Aung et al. [57], Bouvet [60], Elia et al. [61], Gu et al. [58], Hassan et al. [62], Halter et al. [59], Liao et al. [63], Qin et Ju [64], Rozenchan et al. [65], Tanoue et al. [66], Taylor et Smith [56]

3.2.2 Mélanges hydrogène/air

Les vitesses normales de combustion ont été mesurées par Liu et MacFarlane [67] en 1983 à l'aide d'un brûleur équipé d'un convergent afin d'obtenir une flamme conique lisse. La vitesse locale des gaz frais et l'angle de la flamme sont mesurés par vélocimétrie laser à effet Doppler et par photographie Schlieren. Les mélanges réactifs contenaient entre 18 et 65% d'hydrogène (fraction volumique dans l'air et comprenant entre 0 et 15% de vapeur d'eau. Sur la figure I-23, on observe une évolution caractéristique en forme de cloche de la vitesse fondamentale de combustion avec maximum de vitesse obtenu pour les mélanges contenant 42% d'hydrogène dans l'air. La Figure 3-6 représente un ensemble de mesures de vitesses normales de combustion de mélanges hydrogène-air selon différents auteurs de la littérature. Ces données montrent une grande dispersion. La vitesse normale de combustion est comprise entre 2,65 et 3,5 m.s⁻¹. On note aussi que les mesures ont été réalisées pour des pourcentages d'hydrogène compris entre 20% à 65% H₂.

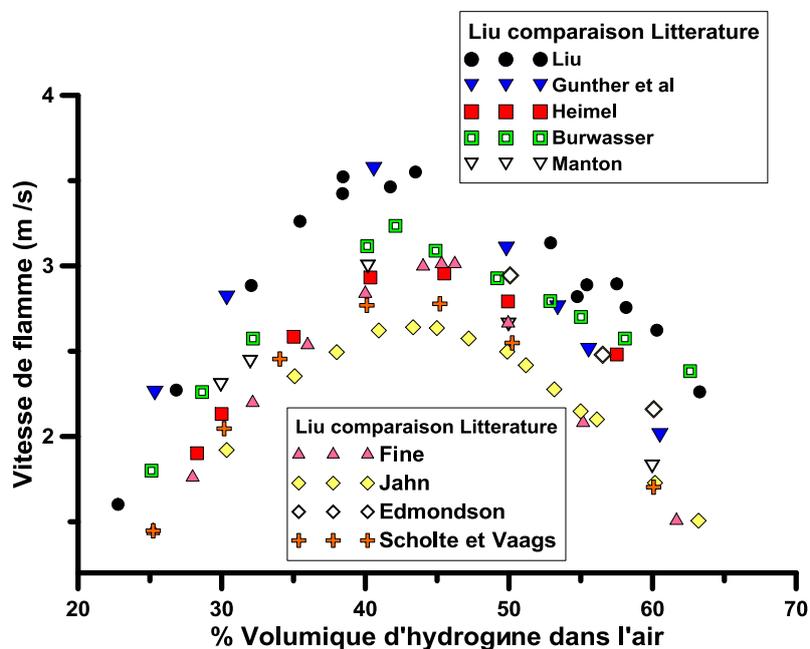


Figure 3-6: Vitesse fondamentale de flamme des mélanges hydrogène-air en fonction de la teneur en hydrogène d'après Liu et MacFarlane [67]

Dans le même temps, les auteurs ont étudié l'effet de la température sur la vitesse de flamme (Figure 3-6). La vitesse de flamme augmente avec la température initiale du mélange combustible. Ainsi, sa valeur maximale augmente de 3,5 m/s à 8,5 m/s lorsque la température croît de 25°C à 250°C. Cette étude a permis à Liu et MacFarlane [67] de proposer une corrélation traduisant l'évolution de la vitesse fondamentale de flamme d'hydrogène en fonction de la composition d'hydrogène et de la température initiale (comprise entre 25°C et 250°C) :

$$S_L(\text{m} \cdot \text{s}^{-1}) = B(T(\text{K}))^c \exp(Dx_{H_2O}) \quad \text{Eq. 21}$$

Avec une fraction molaire en hydrogène comprise entre 0,18 et 0,42

$$\begin{cases} B = 4,644 \cdot 10^{-4} - 2,119 \cdot 10^{-3}(0,42 - x_{H_2}) + 2,344 \cdot 10^{-3}(0,42 - x_{H_2})^2 \\ C = 1,571 + 3,839 \cdot 10^{-1}(0,42 - x_{H_2}) \\ D = -2,21 \end{cases} \quad \text{Eq. 22}$$

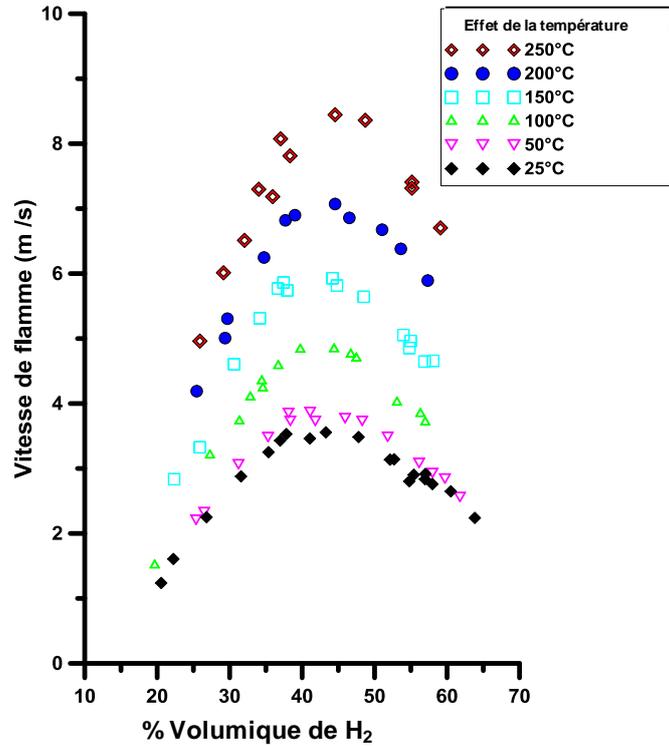


Figure 3-7: Effet de la température sur les vitesse de flamme hydrogène –air d’après Liu et MacFarlane [67]

Koroll et al. [68], en 1993, ont mesuré les vitesses normales de combustion de mélanges hydrogène-air avec une fraction volumique d’hydrogène dans l’air comprise entre 9 et 70%. Les auteurs ont réalisé les mesures par la méthode des doubles noyaux. Cette méthode consiste en deux systèmes d’électrodes en série et distants de 4 cm qui enflamment de façon simultanée le mélange dans une enceinte sphérique de 17L de volume. La visualisation des fronts de flamme se fait à par imagerie schlieren rapide. Les vitesses spatiales sont mesurées à partir de la mesure de la distance séparant les deux fronts de flamme en fonction du temps. La vitesse de flamme mesurée tend vers la vitesse de propagation d’une flamme unidimensionnelle lorsque les deux fronts de flamme sont proches l’un de l’autre. Leurs résultats sont en bon accord avec les mesures de Liu et MacFarlane [67] (Figure 3-8). Pour les mélanges contenant moins de 20% d’hydrogène dans l’air, l’apparition de structures cellulaires perturbant la précision de la mesure de la vitesse de flamme a été noté par les

auteurs. L'erreur sur la mesure était d'environ $\pm 30\%$ pour le mélange contenant 10% d'hydrogène.

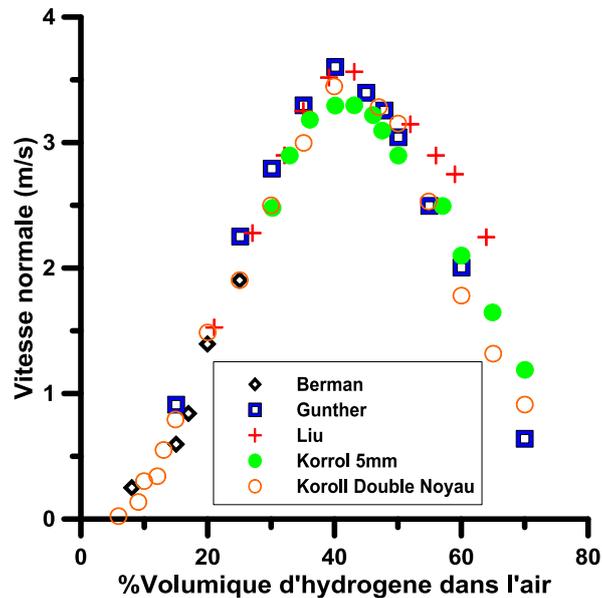


Figure 3-8: Vitesses normales de combustion en fonction de la composition des mélanges hydrogène air à 25°C et 100kPa, d'après Koroll et al. [68]

En 1997, Aung et al. [69] ont déterminé les vitesses fondamentales de flamme des mélanges H_2 /Air par la méthode de la bombe sphérique. D'un volume de 24 L pour un diamètre interne de 360 mm, cette enceinte sphérique est équipée de deux hublots en quartz diamétralement opposés de 10 cm de diamètre permettant la visualisation de la flamme pendant sa propagation. Les expériences ont été réalisées pour des rapports d'équivalence comprises entre 0,3 et 5. La pression était fixée à 1 bar et la température fixée à 293 ± 3 K. Par la suite, les auteurs, ont comparé leurs résultats expérimentaux à ceux de la littérature ainsi qu'à des résultats de modélisation sur la base de différents modèles cinétiques détaillés comme on peut le voir sur la Figure 3-9

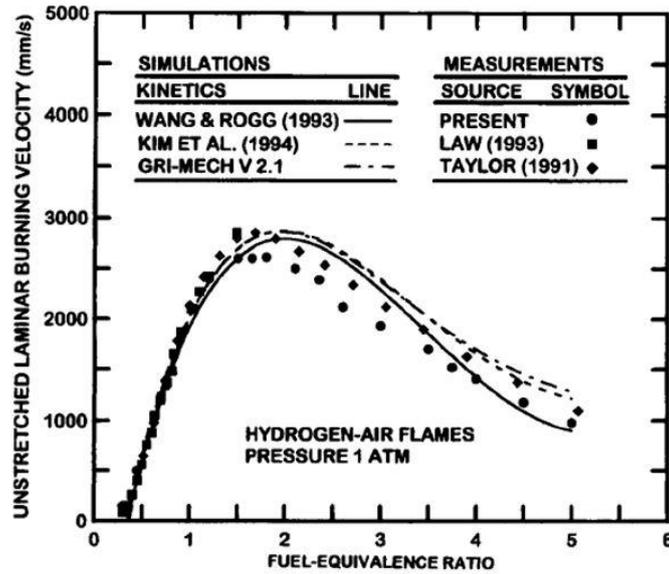


Figure 3-9: Vitesse normale de combustion en fonction de la composition des mélanges hydrogène - air à 1 bar d'après Aung et al. [69]

En 2003, une étude publiée par Lamoureux et al. [52], et menée dans le cadre de leurs travaux sur la détermination des vitesses fondamentales de flamme de mélanges H₂/Air dilués ou non par un mélange mimique de la vapeur d'eau : Hélium/Dioxyde carbone, a permis de déterminer les vitesses fondamentales des flammes hydrogène-air dans un large domaine de rapport d'équivalence .

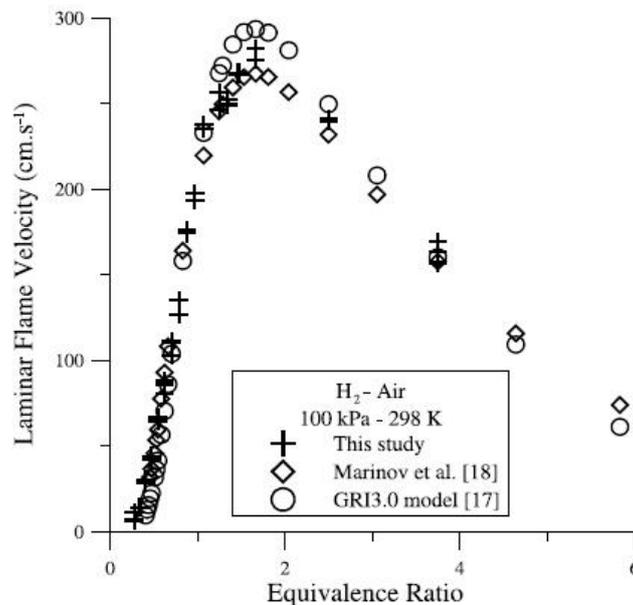


Figure 3-10: Vitesses de flamme des mélanges hydrogène-air en fonction du rapport d'équivalence d'après Lamoureux et al. [52]

En comparant avec les données proposées par Lamoureux et al. [52] avec celles présentes dans la littérature concernant les vitesses fondamentales des flammes de mélange hydrogène-air, un bon accord est obtenu avec les différents auteurs à l'exception de Liu et MacFarlane [67] ainsi que de Koroll et al. [68]. En effet ces deux études n'ayant pas pris en compte l'effet de l'étirement de la flamme sur la vitesse fondamentale, elles produisent des valeurs supérieures à celles du reste de la littérature plus récente.

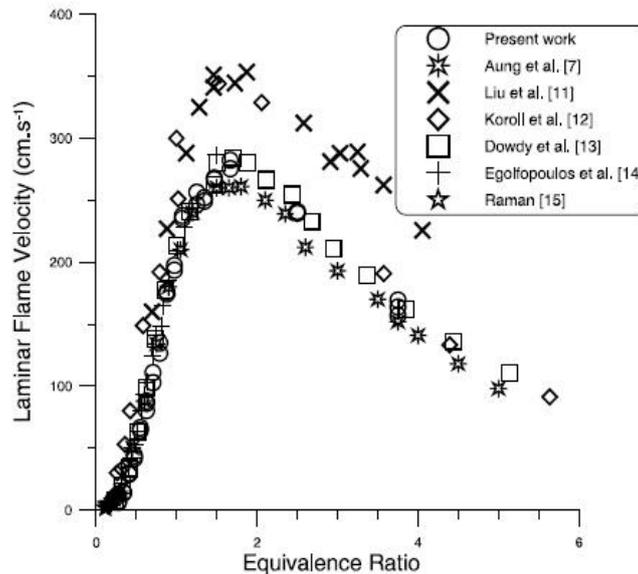


Figure 3-11: Evolution de la vitesse de flamme en fonction du rapport d'équivalence selon différents auteurs de la littérature d'après Lamoureux et al. [52]

3.2.3 Mélanges Hydrogène /Méthane

Contrairement aux mélanges méthane / air ou hydrogène / air, très peu de publications ont porté sur la détermination des vitesses fondamentales de flamme de mélanges méthane / hydrogène / air.

L'une des toutes premières publications sur ce sujet est celle de Scholte et Vaags [70] en 1959 qui ont déterminé la vitesse fondamentale de flamme de mélanges CH₄ /H₂ /air par la méthode du brûleur. Cependant, les valeurs déduites de ces anciennes études ne sont pas utilisables car les problèmes liés aussi bien à la configuration de la flamme qu'aux propriétés thermo-diffusives de cette dernière n'étaient pas pris en compte, rendant les valeurs inutilisables.

Dans les années 80, Milton et Keck [71] ont déterminé les vitesses fondamentales de flamme du mélange stœchiométrique (33 %vol CH₄ + 67 %vol H₂) par la méthode de la bombe sphérique en fonction de la pression le long d'une isentrope «réversible» de gaz frais. Le Tableau 3-4 regroupe les valeurs issues de ces travaux.

P (atm)	T (K)	Vitesse Fondamentale (cm/s)
1	300	110
1,5	335	105
2	362	96
2,5	385	93
3	405	97
3,5	423	103
4	439	108
4,5	453	110
5	467	111
5,5	479	109
6	489	108
6,5	499	104

Tableau 3-4 : Vitesses fondamentales de flamme mesurées par Milton et Keck [71] dans le cas d'un mélange stœchiométrique (33 %vol CH₄ + 67 %vol H₂).

Ces mesures expérimentales montrent l'évolution de la vitesse fondamentale de flamme en fonction de la pression et de la température initiales.

Yu et al. [72] ont mesuré les vitesses fondamentales de flamme de mélanges hydrogène / méthane / air par la méthode du brûleur à jets opposés en appliquant une extrapolation linéaire pour remonter à des valeurs de vitesses de flamme à étirement nul. La composition du mélange est caractérisée par deux paramètres :

- Φ_F caractérisant le rapport d'équivalence effectif par rapport au méthane
- R_H caractérisant la teneur en hydrogène du mélange

Ainsi si les fractions molaires de méthane, d'hydrogène et d'air sont respectivement, x_M , x_H et x_A , alors on a :

$$\Phi_F = \frac{x_M / [x_A - x_H / (x_H / x_A)_{st}]}{(x_M / x_A)_{st}} \quad \text{Eq. 23}$$

$$R_H = \frac{x_H + x_H / (x_H / x_A)_{st}}{x_M + [x_A - x_H / (x_H / x_A)_{st}]} \quad \text{Eq. 24}$$

Les résultats, rassemblés sur la Figure 3-12, ont été utilisés pour établir une corrélation de la vitesse fondamentale de flamme en fonction du rapport d'équivalence et de la teneur en hydrogène :

$$S_L^0(\Phi, R_H) = S_L^0(\Phi_F, R_H = 0) + 83 \cdot R_H \quad \text{Eq. 25}$$

Φ étant le rapport d'équivalence globale du mélange, Φ_F le rapport d'équivalence vis à vis du méthane. La vitesse est exprimée en cm/s.

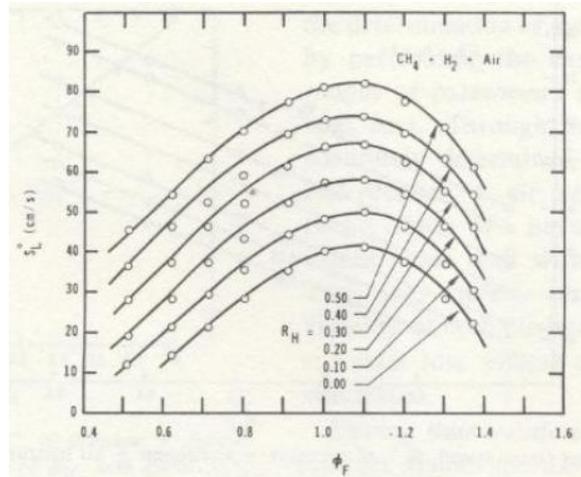


Figure 3-12 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme des mélanges méthane / hydrogène / air en fonction du rapport d'équivalence effective Φ_F pour différentes teneurs en hydrogène, R_H , d'après Yu et al. [72].

Law et Kwon [73] ont déterminé les vitesses fondamentales de flamme de mélanges méthane / hydrogène / air pour 3 rapport d'équivalences différentes : 0,6, 1 et 1,67 à température ambiante et pour une pression initiale de 1 bar. Ils ont montré que la vitesse fondamentale de flamme diminuait considérablement avec l'ajout de méthane à rapport d'équivalence élevée et plus modérément dans le cas stœchiométrique ou pauvre.

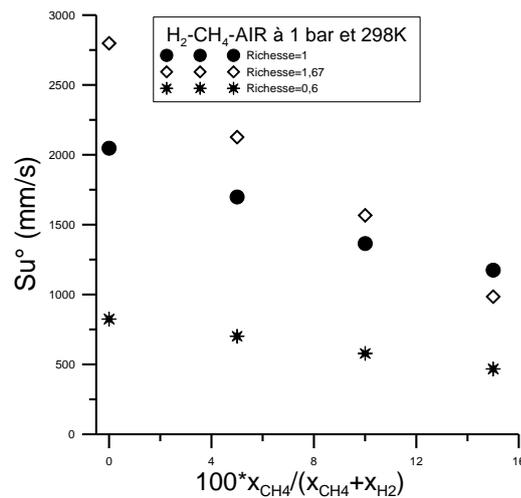


Figure 3-13 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme des mélanges méthane / hydrogène / air en fonction de la teneur en méthane exprimé en %vol de CH4 dans le mélange binaire (CH_4+H_2) d'après Law et Kwon [73].

Halter et al. [59] ont déterminé l'impact de l'ajout d'hydrogène sur les vitesses fondamentales de flamme de mélanges constitués initialement de méthane et d'air. La fraction molaire d'hydrogène ajouté au mélange binaire méthane / hydrogène était relativement faible puisqu'elle n'excédait pas les 20 % en volume. Comme on peut le voir sur la Figure 3-14, l'ajout d'hydrogène a pour effet d'augmenter la vitesse fondamentale de flamme sur tout le domaine de rapport d'équivalence.

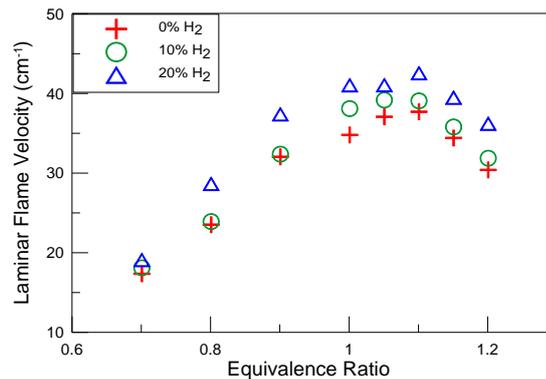


Figure 3-14 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme en fonction de la richesse pour les mélanges H₂/CH₄/air Halter et al. [59]. Les mélanges sont initialement à Température ambiante et à 1 bar.

Ilbas et al. [74] ont mesuré les vitesses fondamentales de flamme des mélanges méthane / hydrogène / air dans un large domaine de rapport d'équivalence (0,8 à 3,2) à température ambiante et pour une pression initiale de 1 bar. Ainsi, à la stœchiométrie, l'ajout d'hydrogène au méthane a pour effet d'augmenter la vitesse fondamentale de flamme (Figure 3-15). Comme on peut le voir sur la Figure 3-16, les vitesses fondamentales de flamme du mélange contenant 50% H₂+50% CH₄ sont plus élevées que dans le cas du mélange CH₄/Air et avec un domaine d'inflammation, dans les conditions d'allumage de ce travail, plus large.

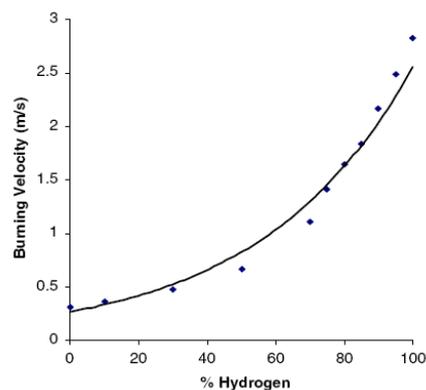


Figure 3-15 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme du mélange stœchiométrique H₂/CH₄/Air en fonction de la teneur en hydrogène dans le mélange binaire H₂+CH₄ Ilbas et al. [74]. Les mélanges sont initialement à Température ambiante et à 1 bar.

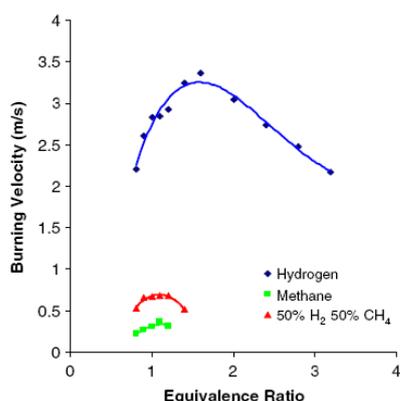


Figure 3-16 : Evolution de la vitesse fondamentale de flamme pour les mélanges H₂/Air, CH₄/air et 0,5H₂+0,5CH₄/air. Les mélanges sont initialement à Température ambiante et à 1 bar.

3.2.4 Mélanges Hydrogène / Monoxyde de Carbone

En 1959, Scholte et Vaags [70] ont publié une étude sur les vitesses de flamme de différents mélanges H₂/CO pour les concentrations répertoriées dans le Tableau 3-5. Les expériences ont été menées sur un brûleur stabilisé à flamme conique à pression atmosphérique et à température ambiante. Le domaine de rapport d'équivalence étudié allait de 1 à 4,4. L'évolution de la vitesse normale de combustion en fonction de la composition présente une allure caractéristique en forme de cloche et les vitesses de flamme maximales observées sont reportées dans le tableau

% _{mol} H ₂	% _{mol} CO	$S_{L\ max}^0$ (cm/s)
3	97	52
10,5	89,5	82,5
24,1	75,9	115,5
43,3	56,7	157
69,7	30,3	224,5

Tableau 3-5: Vitesse maximales de flammes selon Scholte et Vaags [70] de différents mélanges H₂/CO

En 1994, McLean et al. [75] ont mesuré les vitesses fondamentales de flamme des mélanges H₂/CO dans une enceinte sphérique. La propagation de la flamme est observée grâce à un montage schlieren couplé à un système de caméra rapide. Deux compositions de mélanges ont été étudiées : (95%CO-5%H₂, 50%CO-50%H₂) à température et à pression ambiante. Le maximum de cette courbe est observé dans le cas du mélange 50%CO-50%H₂ pour un rapport d'équivalence de 2 et dans le cas du mélange 95%CO-5%H₂ pour un rapport d'équivalence de 2,6. L'auteur a comparé ses données (95%CO-5%H₂, 50%CO-50%H₂) avec celles de Scholte et Vaags (97%CO-3%H₂, 56,7%CO-43,3%H₂ respectivement). La vitesse maximale atteinte était de 0,6 m/s pour le mélange 5H₂/95CO et de 1,8 m/s pour le mélange 50H₂/50CO.

En 1997, Hassan et al. [76] ont mesuré les vitesses de flamme des mélanges H_2/CO dans une enceinte sphérique. La réalisation des mélanges était effectuée grâce à la méthode des pressions partielles et vérifiée par chromatographie avant l'inflammation. L'évolution du front de flamme est observée par ombroscopie. Différentes compositions du mélange H_2/CO (3/97, 5/95, 10/90, 25/75, 50/50) ont été étudiées dans les conditions normales de pression et de température et pour des rapports d'équivalence allant de 0,6 à 5. L'impact de la pression initiale a été étudiée dans le cas du mélange 5% $H_2/95\% CO$. Lorsque la pression augmente, on note une diminution de la vitesse de flamme laminaire comme on peut le voir sur la Figure 3-18. La vitesse maximale atteinte par la flamme est de 65 cm/s et elle est obtenue à une pression de 0,5 atm. Quand la pression est de 1 atm, cette vitesse baisse à 63 cm/s. Pour une pression de 2 atm, la vitesse maximale de la flamme est de 61 cm/s et n'est plus que de 54 cm/s à 4 atm. La figure présente les données de l'étude et compare les résultats avec ceux obtenus précédemment par McLean et al. [75] et Scholte et Vaags [70]. On note qu'il existe globalement un bon accord entre les données de ses différents auteurs.

D'après la Figure 3-17, deux observations peuvent être faites : (i) la vitesse de flamme suit une courbe en cloche en fonction du rapport d'équivalence, (ii) la vitesse fondamentale de flamme augmente avec la teneur de H_2 dans le mélange.

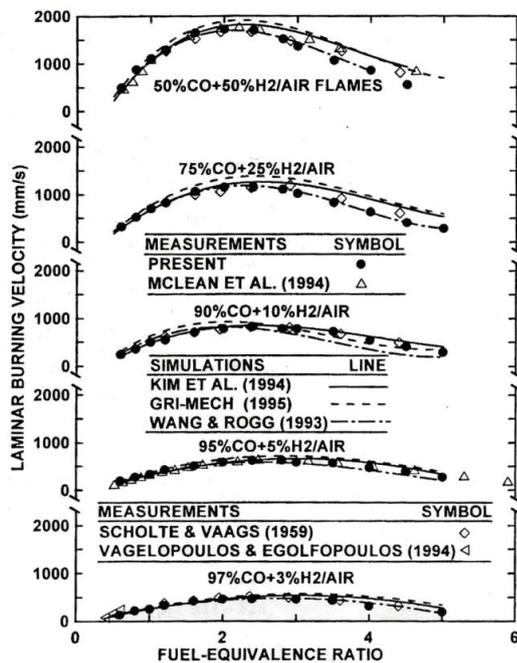


Figure 3-17: Vitesses de flamme des mélanges H_2/CO en fonction de la richesse Hassan et al. [76]

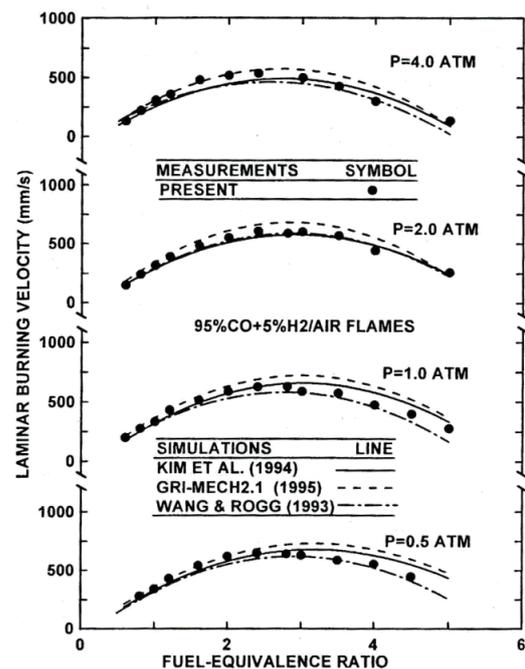


Figure 3-18 Vitesses de flamme en fonction de la richesse des mélanges H_2/CO 95/5 pour différentes pressions initiales Hassan et al. [76]

En 2007, Sun et al. [77] ont étudié l'influence de la pression sur les vitesses de flamme des mélanges H_2/CO 50/50, 25/75, et 5/95 à température ambiante. Les expériences ont été menées dans une enceinte sphérique à pression constante et les résultats ont été comparés à ceux de la littérature. Outre le fait que les vitesses mesurées augmentaient avec la concentration d'hydrogène dans le mélange, la comparaison des données avec celles de la

littérature a montré un bon accord avec les données publiées par Hassan et al. [76]. A l'inverse, on notait une différence de l'ordre de 5 cm/s avec les données proposées par McLean et al. [75]. Les conditions expérimentales sont reportées dans le tableau qui suit.

%CO	%H ₂	Pression (atm)	$S_{L\ max}^0$ (cm/s)	Φ
50	50	1	173	2
50	50	2	171	2
75	25	1	121	2.5
75	25	2	117	2.5
95	5	1	63	2.5
95	5	2	58	2.5

Tableau 3-6 : Tableau récapitulatif des conditions expérimentales et des vitesses maximales de flamme selon Sun et al. [77]

En 2007, Burke et al. [78] ont mesuré les vitesses de flammes des mélanges H₂/CO 50/50 dans les conditions normales de température et de pression. La méthode utilisée était celle de l'expansion sphérique à pression constante de la flamme dans une enceinte cylindrique. La propagation de la flamme est observée à l'aide d'un montage schlieren couplé à une caméra rapide. Une analyse a été réalisée par les auteurs qui ont montré l'influence des effets de l'écoulement amont sur la propagation de la flamme. Cet effet avait déjà été évoqué dans la littérature, dans le cas des mesures de vitesse de flamme dans des enceintes cylindriques comme étant une interférence pariétale. Les auteurs ont ensuite suggéré l'introduction d'un facteur de correction pour les mesures utilisant la méthode de la bombe cylindrique. Les vitesses mesurées par les auteurs ont donc été comparées aux mesures présentes dans la littérature pour les mélanges H₂/CO 50/50 et sont représentées sur la Figure 3-19. On note un bon accord entre les valeurs des différents auteurs côté pauvre et à l'inverse des différences de l'ordre de 40% pour les valeurs obtenues pour les mélanges riches. Les auteurs ont estimé que ces différences provenaient d'une mauvaise évaluation de l'erreur commise sur la mesure de la vitesse de flamme mais en 2008, une étude menée par Chaos et Dryer [79] a permis d'expliquer les différences relevées entre les résultats de la littérature sur les vitesses de flamme de mélanges H₂/CO. En effet, les différences peuvent s'expliquer par la formation de pentacarbonyl de fer Fe(CO)₅ issu du stockage du CO à haute pression dans des bouteilles de gaz en acier inoxydable. De nombreuses études ayant montré un effet inhibiteur du Fe(CO)₅ sur la vitesse de flamme, les résultats de la littérature ont été comparés aux mécanismes cinétiques de Li et al. [80] pour le H₂/CO et à celui de Rumminger et al. [81] pour un mélange de H₂/CO avec 200 ppm de Fe(CO)₅ dans le CO. Les résultats sont présentés dans la Figure 3-19 et montrent que la plupart des résultats publiés avant ceux de Burke et al. [78] sous-estimaient les vitesses fondamentales de flamme des mélanges H₂/CO côté riche à cause de la contamination du CO par le pentacarbonyl de fer.

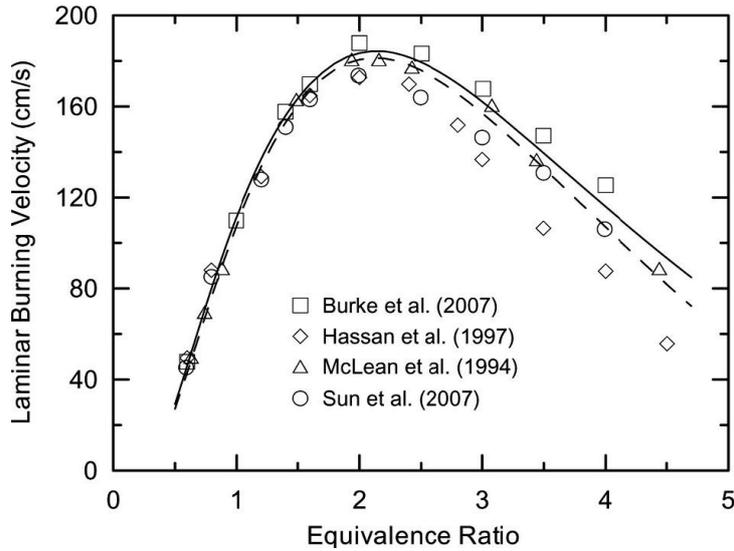


Figure 3-19: Comparaison H₂/CO 50/50 dans l'air à 1 atm. Les symboles représentent les expériences. Le trait plein correspond au mécanisme de Li et al. [80] et les tirets correspondent au mécanisme de Rumminger et al. [81] avec 200 ppm de Fe(CO)₅ dans le CO

En 2009, Dong et al. [82] ont réalisé une étude complète sur les mélanges H₂/CO en faisant varier la fraction d'hydrogène dans le mélange de 0 à 100%. Les mesures des vitesses de flamme ont été réalisées à l'aide d'un bec bunsen. Les résultats sont indiqués sur la Figure 3-20 et ont permis aux auteurs de proposer une corrélation expérimentale permettant d'estimer la vitesse de flamme des mélanges H₂/CO en fonction de la teneur en hydrogène et en CO. Deux corrélations permettent d'exprimer la vitesse de flamme des mélanges H₂/Air et CO/Air et une dernière permet d'écrire la vitesse de flamme du H₂/CO/Air en fonction des deux vitesses précédentes pour des rapports d'équivalence comprises entre 0,7 et 2,1. Ainsi, la vitesse de flamme en m/s s'exprime :

$$S_{H_2} = 0,08925 + 1,59163\Phi - 0,91917\Phi^2 + 0,52964\Phi^3 \quad (\Phi = [0,7; 2,1]) \quad \text{Eq. 26}$$

$$S_{CO} = 0,03276 + 0,18198\Phi - 0,04156\Phi^2 - 0,0791\Phi^3 \quad (\Phi = [0,7; 2,1]) \quad \text{Eq. 27}$$

Et enfin,

$$\frac{S_x - S_{CO}}{S_{H_2} - S_{CO}} = -0,05914 + 0,00875x \quad (\Phi = [0,7; 2,1]) \quad \text{Eq. 28}$$

Avec S_x la vitesse de flamme à $x\%$ molaire d'hydrogène dans le mélange combustible H₂/CO.

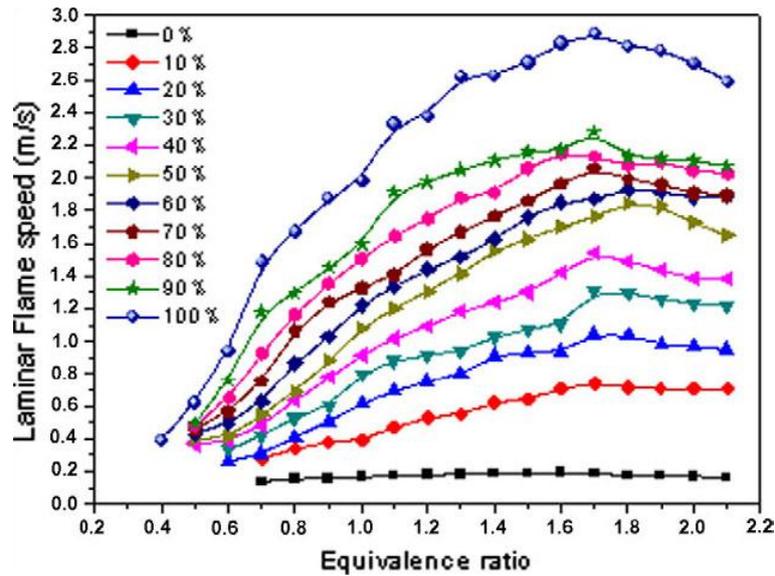


Figure 3-20 : Vitesses de flamme en fonction de la teneur en hydrogène selon Dong et al. [82]

En 2009, Natarajan et al. [83] ont étudié l'effet de la température sur les mélanges de H₂/CO 50/50 et 5/95. Les expériences ont été menées sur un bec bunsen. Le domaine de rapport d'équivalences étudié allait de 0,6 à 1,05. Les expériences ont été comparées à deux modèles cinétiques de la littérature ainsi qu'aux données de la littérature. On note ainsi un bon accord avec les données publiées par McLean et al. [75], et Sun et al. [77].

On observe sur la Figure 3-21 et la Figure 3-22 une importante augmentation de la vitesse de flamme quand la température initiale augmente, ainsi qu'un bon accord entre l'expérience et la modélisation pour des températures comprises entre 300K et 500K pour le mélange H₂/CO 50/50. Dans le cas des mélanges H₂/CO 5/95, la plage de température pour laquelle la modélisation est en bon accord avec l'expérience se réduit à des températures de 300K et 400K.

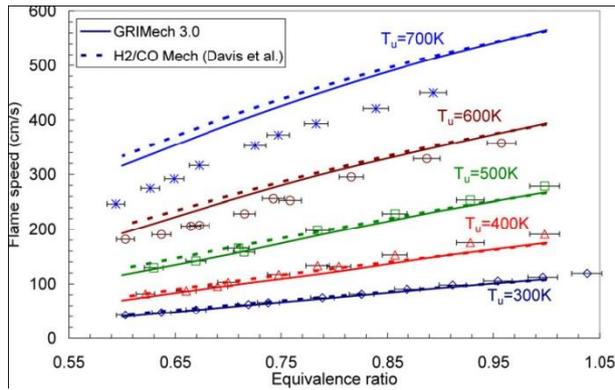


Figure 3-21 : Vitesses de flammes en fonction de la richesse des mélanges H₂/CO 50/50 à différentes températures initiales Natarajan et al. [83]

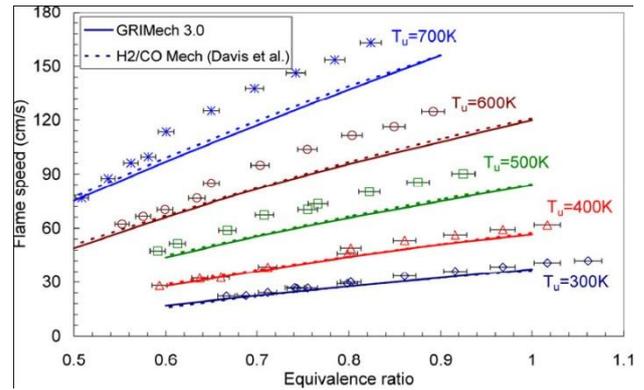


Figure 3-22 : Vitesses de flammes en fonction de la richesse des mélanges H₂/CO 5/95 à différentes températures initiales Natarajan et al. [83]

4 Etat de l'art sur les Flammes Fortement Accélérées

Contrairement au système hydrogène-air, on note un manque de données expérimentales ayant rapport au système hydrocarbure - air. De plus, la plupart des études ayant porté sur ce système se sont intéressés au critère de prédiction de la transition vers la détonation. Nous allons, dans la suite, présenter les résultats expérimentaux les plus significatifs existants dans la littérature.

4.1 Les limites d'accélération

La propagation de flamme à base de différents combustibles (hydrogène, méthane, éthane, propane, éthylène et acétylène) a été étudiée par Peraldi et al. [84] dans 3 différents tubes ayant chacun une longueur totale de 18 m avec des diamètres internes de 5, 15 et 30 cm respectivement. Les tubes étaient équipés d'obstacles annulaires ayant un rapport de blocage autour de 0,4 et espacés d'un diamètre. Les mélanges, initialement à 1 bar et à température ambiante, étaient constitués d'un combustible et d'air dans un large domaine de rapport d'équivalence couvrant l'ensemble du domaine d'inflammabilité. Les auteurs ont décrit les différents régimes de propagation de la flamme observés selon la configuration géométrique adoptée et selon la composition des mélanges étudiés. Ainsi, dans le cas du méthane, pour un tube ayant un diamètre interne de 5 cm, les régimes suivants ont été décrits :

- Inflammation du mélange suivi d'une propagation de la flamme qui voit sa vitesse augmenter dans un premier temps, atteindre une vitesse asymptotique et parfois s'éteindre. Ce régime n'a été observé que pour des teneurs en méthane inférieures ou égales à 6 mol% dans l'air.
- La flamme se propage le long du tube avec une vitesse maximale généralement comprise entre 50 et 150 m/s puis, une accélération brutale se produit qui aboutit à une vitesse de propagation comprise entre 600 et 1000 m/s. Cette

transition se fait dans un intervalle très étroit de composition : entre 6 et 6,5 mol% côté pauvre et 9,5 - 10 mol% côté riche.

- Enfin, dans certains cas, on note un domaine de concentration pour lequel la flamme se déplace à des vitesses supersoniques proches de la vitesse théorique de Chapman-Jouguet, la transition vers le régime de détonation est obtenu dans le cas de l'éthylène pour un domaine de pourcentage molaire très restreint compris entre 6 et 9%_{mol}.

Dans la Figure 4-1, nous avons reproduit l'évolution de la vitesse de propagation de la flamme mesurée en fond de tube pour différents hydrocarbures dans le cas où le tube avait un diamètre de 5 cm

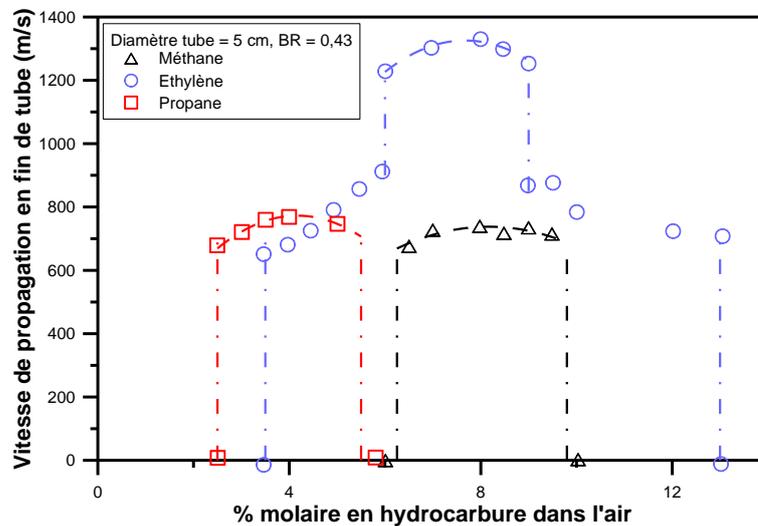


Figure 4-1 Evolution de la vitesse atteinte en fin de tube pour des mélanges hydrocarbures / air initialement à 1 bar et température ambiante d'après Peraldi et al. [84].

L'observation de ces différents régimes dépend de nombreux paramètres que nous allons détailler dans les sous-paragraphes suivants.

4.1.1 . Impact du diamètre du tube sur les limites d'accélération

Les travaux menés par Peraldi et al. [84] sur les hydrocarbures cités précédemment ont permis de déterminer l'impact du diamètre du tube sur les différents régimes de propagation que peut atteindre une flamme dans le cas d'une enceinte fermée encombrée d'obstacles. Comme on peut le voir sur la Figure 4-2, la limite inférieure d'accélération de la flamme, dans le cas du méthane est comprise entre 6 et 6,5 %_{mol} de méthane dans l'air. Cette valeur limite n'est pas modifiée par l'augmentation du diamètre du tube. Par contre, l'extinction de la flamme pour des pourcentages molaires en méthane inférieurs à 6 % n'a été observée que pour le plus petit des trois tubes.

Pour les mélanges riches, la limite de transition entre flammes rapides et flammes lentes se produit pour une teneur en méthane qui dépend du diamètre du tube : elle augmente avec le diamètre de l'orifice, en effet, elle est comprise entre 9,5 - 10 mol% côté riche dans le cas du plus petit tube, elle est de 12 mol% pour un diamètre de 15 cm et de 13,5 mol % pour un diamètre de 30 cm.

Ainsi, les auteurs ont montré que le diamètre de passage libre de la flamme n'a pas d'effet sur la transition flamme lente / flamme rapide côté pauvre, par contre induit un déplacement des limites vers des teneurs plus importantes en méthane lorsque le diamètre augmente. Il est important aussi de noter qu'aucune extinction n'a été observée dans les cas des 2 plus grands tubes.

Les résultats permettant d'illustrer les différents régimes observés sont reportés sur la Figure 4-2.

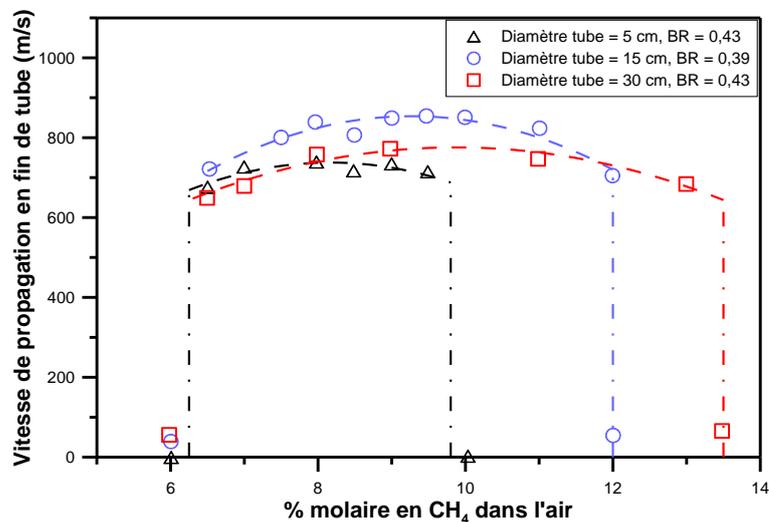


Figure 4-2 Evolution de la vitesse atteinte en fin de tube pour des mélanges méthane / air initialement à 1 bar et température ambiante d'après Peraldi et al. [84].

Des travaux plus récents menés par Kuznetsov et al. [85, 86] ont aussi montré que la limite inférieure d'accélération de flamme était de 6,5 % molaire de CH₄ dans l'air confirmant les travaux de Peraldi et al. [84]. Ces études ont été menées dans deux tubes différents, le premier est caractérisé par un diamètre interne de 0,174 m pour une longueur totale de 12 m et le second par un diamètre interne de 0,520 m pour une longueur de 34,5 m. Les deux tubes étaient équipés d'obstacles annulaires caractérisés par des rapports de blocage de 0,33 et 0,6. Les limites riches ont aussi été investiguées et les auteurs ont montré que celles-ci étaient fortement conditionnées par le diamètre du tube : pour un diamètre de 0,174 m, la transition « Flamme lente/Flamme rapide » a été obtenue pour un pourcentage molaire de méthane dans l'air de 13,5 % comme Peraldi et al. [84], cette limite passe à 15 % dans le cas du tube de 0,520 m de diamètre.

Des observations similaires ont été faites pour d'autres hydrocarbures, ainsi dans le cas de l'éthylène la limite pauvre entre flamme lente et flamme rapide a été trouvée comme étant

égale à 3,5 %_{mol} aussi bien par Peraldi et al. [84] que par Kuznetsov et al. [87] confirmant ainsi l'absence d'effet d'échelle pour les mélanges pauvres. Par contre, côté riche, Peraldi et al. [84] observent le changement de régime pour un pourcentage molaire d'éthylène de 17 % tandis que Kuznetsov et al. [87] donnent aussi une limite comprise entre 16 et 17 % dans le cas du tube de 0,174 m mais ils observent aussi une limite plus élevée, 22 %_{mol} lorsque le diamètre du tube est de 0,52 m.

Les limites de transition entre les flammes lentes et les flammes rapides ont aussi été étudiée par Knystautas et al. [88], Peraldi et al. [84], Kuznetsov et al. [87] et Ciccarelli et al. [89]. Les quatre études montrent que la limite inférieure d'accélération de flamme est d'environ 2,5 %_{mol} de C₃H₈ dans l'air, tandis que la limite riche, selon le diamètre du tube varie de 6 à 8 %_{mol}.

Les Figure 4-3 à I-44 résument l'ensemble des données de la littérature qui permettent de définir le domaine des flammes accélérées pour le mélange méthane / air, éthylène / air et propane / air.

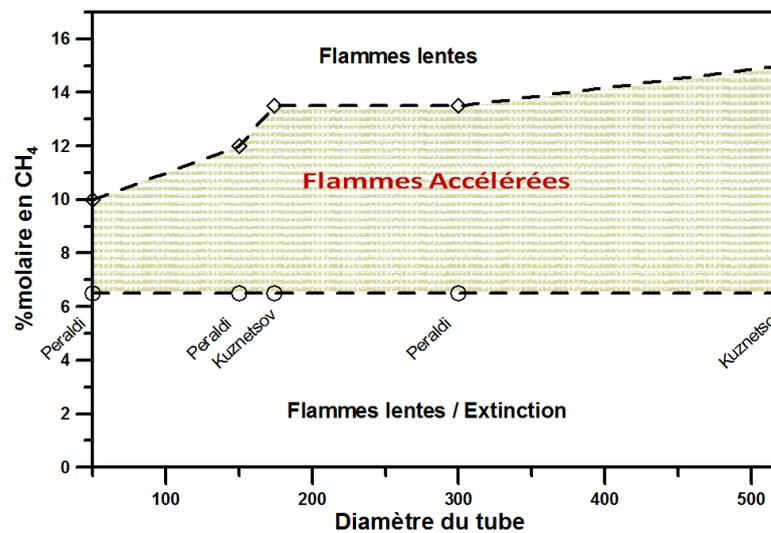


Figure 4-3 : Limites d'accélération du méthane en fonction du diamètre du tube [84, 87, 88, 89].

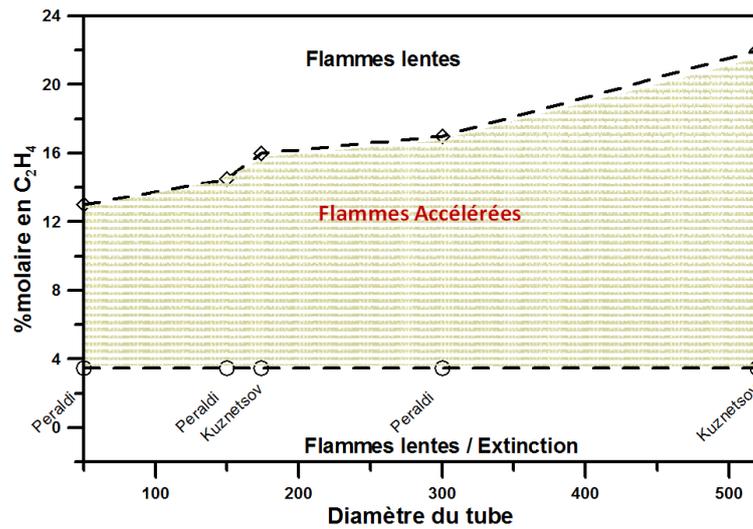


Figure 4-4 : Limites d'accélération de l'éthylène en fonction du diamètre du tube [84, 87, 88, 89].

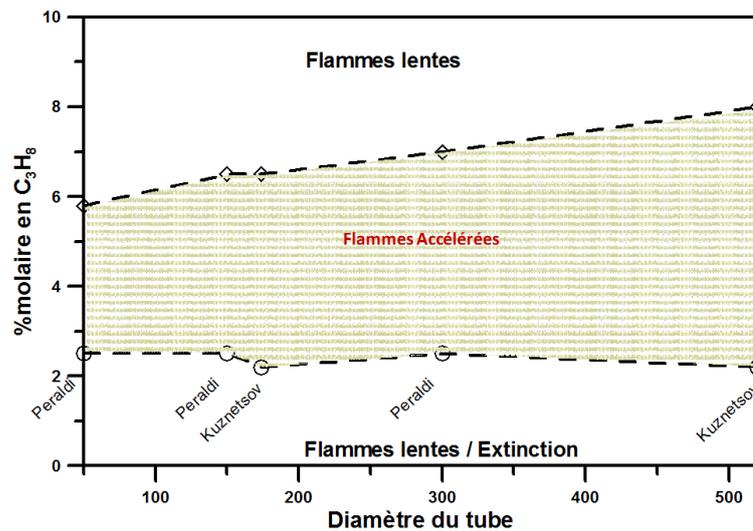


Figure 4-5 : Limites d'accélération du propane en fonction du diamètre du tube [84, 87, 88, 89].

L'origine de l'impact du diamètre du tube sur le domaine d'accélération des flammes peut être reliée à différents paramètres :

- Effet des instabilités thermo-diffusives
- Effet d'échelle de turbulence associée à une dimension caractéristique du confinement

Les mélanges méthane / air sont caractérisés par des nombres de Markstein négatifs côté pauvre, mais positifs pour les mélanges riches, à l'inverse des mélanges à base d'éthylène ou de propane qui sont caractérisés par des nombres de Markstein positifs côté pauvre et négatif côté riche. Ainsi, si les instabilités thermo-diffusives sont importantes dans le

mécanisme d'accélération, elles ne semblent pas importantes pour déterminer la limite entre les différents régimes de propagation de flamme.

Le niveau de turbulence généré par l'interaction entre l'écoulement généré par l'accélération de la flamme et les obstacles insérés dans le tube, ainsi que le diamètre effectif de passage de la flamme, pour un rapport de blocage donné, conditionnent fortement la limite supérieure. Ainsi, le changement de régime est brutal côté pauvre alors qu'il est progressif côté riche, ce qui serait similaire aux variations de diamètres de coincement selon Peraldi et al. [84].

4.1.2 Influence du rapport de blocage

Les travaux de Kuznetsov et al. [86] rendent aussi compte de l'effet du rapport de blocage sur les limites d'accélération. La Figure 4-6 donne l'évolution de la vitesse de flamme en fonction de la distance pour un mélange contenant 8 %_{mol} de méthane dans l'air. On peut voir que lorsque l'on augmente le rapport de blocage, on note une élévation significative de la vitesse de la flamme en début de propagation mais atteint une valeur asymptotique plus faible. Elle est de voisine de 650 m/s pour un BR de 0,6, alors qu'elle atteignait une vitesse asymptotique de 950 m/s. De même, la distance nécessaire pour atteindre cette vitesse asymptotique diminue lorsque le rapport de blocage augmente.

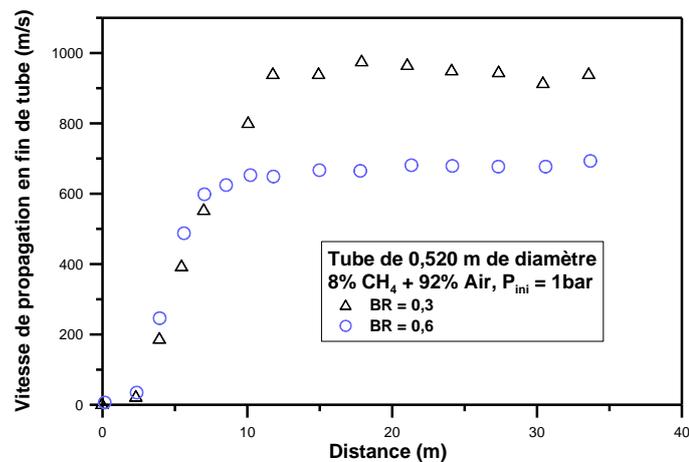


Figure 4-6 : Evolution de la vitesse de flamme en fonction dans la distance dans le cas d'un mélange contenant 8 % de méthane + 92 % d'air initialement à 1 bar et température ambiante pour deux rapports de blocage différents d'après Kuznetsov et al. [86].

Cette étude a montré que le rapport de blocage pour un combustible aussi peu réactif que le méthane influence les limites de transition vers la détonation tandis que dans leur précédente étude, Kuznetsov et al. [87], ont montré que dans le cas des 3 hydrocarbures étudiés, le rapport de blocage ne modifiait pas le domaine d'accélération des flammes.

4.1.3 Influences de la pression et de la température

L'effet de la température initiale et de la pression initiale sur l'accélération des flammes de mélange méthane- air a été étudié par Kuznetsov et al. [90] dans deux tubes de

121 mm et 520 mm de diamètre. La Figure 4-7 rend compte de l'effet de la pression dans le tube de 121 mm, à 293K, sur les limites d'accélération du méthane. On remarque que l'augmentation de la pression étend le domaine d'accélération de la flamme. Cette augmentation se traduit côté pauvre par un abaissement quasi-linéaire de la limite qui passe de 7% de méthane dans l'air pour une pression de 0,1 bar à 6% de méthane pour une pression initiale de 3 bars. On note cependant que cette augmentation est plus prononcée côté riche où la limite évolue de façon plus significative passant de 10% de méthane dans l'air pour une pression de 0,1 bar à 13,5% pour une pression de 3 bars, comme le montre la Figure 4-7. La Figure 4-8 quant à elle, rend compte de l'influence de la pression initiale sur les limites lorsque la température initiale est portée à 383K. Contrairement aux observations faites à 293K côté pauvre, on ne note pas de variation avec la pression de la limite d'accélération qui reste fixée à 6,5% de méthane quelle que soit la pression. Côté riche, on observe néanmoins toujours une variation de la limite avec la pression initiale qui passe de 11% de méthane dans l'air à 0,1 bar à 14% de méthane dans l'air à 3 bars.

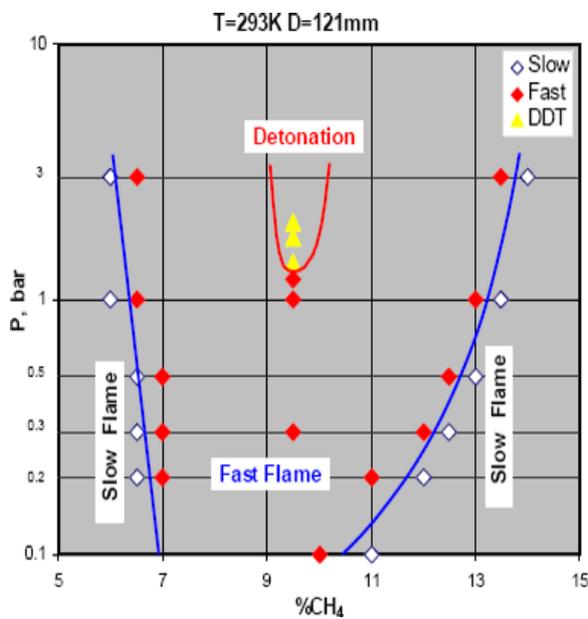


Figure 4-7: limites d'accélérations du méthane dans un tube de 121mm de diamètre T=293K

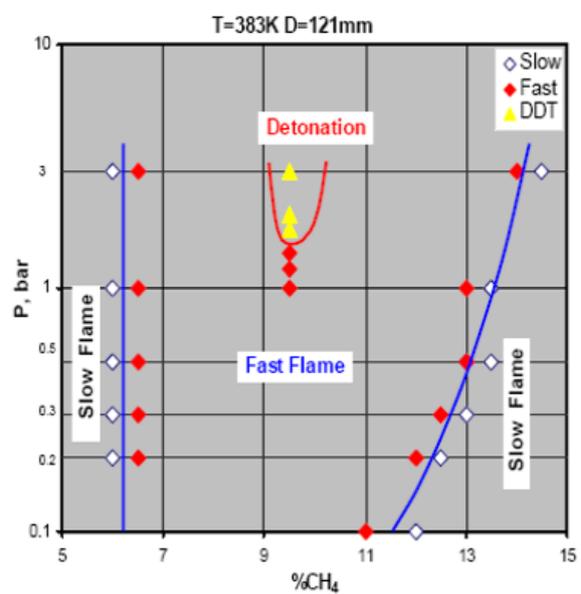


Figure 4-8: Limites d'accélération du méthane dans un tube de 121mm de diamètre T=383K

Ainsi l'élévation de la température initiale induit une augmentation de la limite supérieure d'accélération et les données sont reportées dans le tableau qui suit.

Pression Initiale (bar)	0,1	0,2	0,3	0,5	1	3
%molaire en CH ₄ Limite à 293K	10	11	12	12,5	13	13,5
%molaire en CH ₄ Limite à 383K	11	12	12,5	13	13	14

Tableau 4-1: Limite côté riche d'accélération du méthane pour différentes conditions initiales de température et de pression [90]

4.2 Distance minimale d'accélération de flamme

Lorsque l'on se trouve en présence d'un mélange qui est susceptible de s'accélérer et de transiter depuis un régime de déflagration lente vers celui de déflagration rapide, une distance minimale est nécessaire avant d'atteindre le régime asymptotique. Cette distance est appelée "longueur critique d'accélération", elle est notée L_{cr} . Elle est généralement définie comme étant la longueur minimale nécessaire à la flamme pour atteindre la moitié de la vitesse du son dans les produits de combustion.

Cette distance critique dépend de nombreux paramètres : la composition du mélange, les caractéristiques géométriques du tube (diamètre, longueur) et des obstacles (forme, rapport de blocage, espacement, ...).

L'étude portant sur le méthane réalisée par Kuznetsov et al. [86] a permis de montrer que pour un diamètre de tube donné, la flamme s'accélère fortement avant de voir sa vitesse atteindre une valeur asymptotique appelé régime "choqué". La distance nécessaire à l'établissement de ce régime, L_{cr} , dépend de la teneur en méthane dans le mélange mais aussi du diamètre du tube et de son encombrement. Ils ont ainsi montré que la distance critique nécessaire à l'établissement de ce régime asymptotique était minimale à la stœchiométrie pour une configuration de tube donnée et qu'elle croît dès que l'on s'éloigne de cette composition (Figure 4-9). Ils ont aussi montré que L_{cr} dépend fortement du diamètre du tube et dans une moindre mesure du rapport de blocage. En effet, pour un même diamètre de tube, l'augmentation du rapport de blocage de 0,3 à 0,6 induit une légère baisse des longueurs critiques.

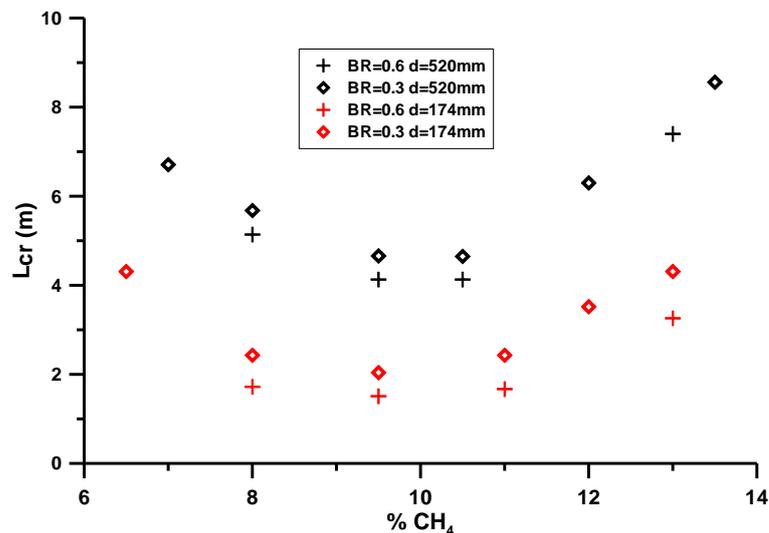


Figure 4-9: Longueur critique d'accélération pour des mélanges méthane / air pour différents diamètres de tube [86].

Ces résultats peuvent être représentés en normalisant L_{cr} par le diamètre du tube comme on peut le voir sur la Figure 4-10. On peut de plus voir sur cette figure que pour un

mélange à 6,5% de méthane dans l'air, l'accélération de flamme ne peut être observée que pour un rapport L/D (L étant la longueur du tube) supérieur à 24.

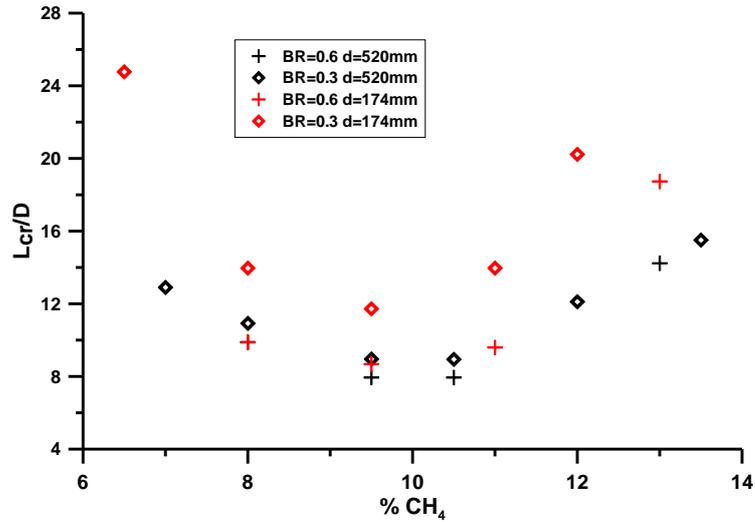


Figure 4-10: Evolution de la L_{cr} en fonction de L/D [86].

Dans le cas du propane, comme on peut voir sur la Figure 4-11, on retrouve une L_{cr} qui dépend fortement de la teneur en propane avec un minimum pour le mélange stœchiométrique. De plus, comme pour le méthane, la variation du rapport de blocage n'influence pas de façon significative la longueur critique d'accélération. La seule différence notable, est observée à 2,2% de propane dans l'air où la longueur critique passe de 3,53 pour un rapport de blocage de 0,6 à 1,64 pour un rapport de blocage de 0,3. Cette variation vient probablement du fait que 2,2% de propane dans l'air est un cas limite d'accélération des flammes de mélange propane- air. Sur le reste de la courbe, les tendances confirment celles observées pour le méthane : l'augmentation du rapport de blocage baisse légèrement la longueur critique d'accélération.

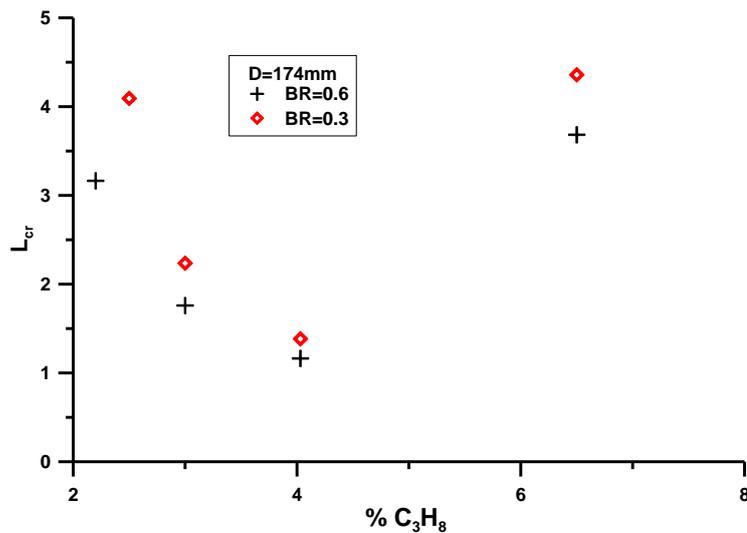


Figure 4-11 Evolution de la L_{cr} en fonction du rapport de blocage pour le propane [85].

Ces résultats sont confirmés par Ciccarelli et al. [89] dont les résultats sont résumés dans le Tableau 4-2. Il nous faut toutefois préciser que la longueur critique d'accélération proposée par Ciccarelli est la distance pour laquelle la flamme atteint la vitesse du son dans les gaz frais et nous allons la noter L_{cr}^* . On constate ici aussi, à la lecture de ces données, que l'augmentation du rapport de blocage permet de baisser légèrement la longueur critique L_{cr}^* et que cette tendance ne change pas avec la variation de la concentration du propane.

%C ₃ H ₈	BR	L _{cr} [*]	%C ₃ H ₈	BR	L _{cr} [*]	%C ₃ H ₈	BR	L _{cr} [*]
3	0,43	1,60	4	0,43	1,15	6	0,43	1,21
	0,6	1,52		0,6	0,96		0,6	1,08
	0,75	1,13		0,75	0,82		0,75	0,89

Tableau 4-2 : Effet du rapport de blocage sur les longueurs critiques d'accélération, d'après Ciccarelli et al. [89].

La Figure 4-12 représente la variation de la longueur critique d'accélération proposée par Ciccarelli et al. [89] (L_{cr}^* , normalisée par le diamètre du tube) en fonction de la composition en propane et dans différents tubes. On peut y voir que pour les mélanges propane- air comportant entre 3 et 6% de propane, on peut observer une accélération de flamme dans des tubes présentant un rapport L/D supérieur à 12. Néanmoins, lorsqu'on se rapproche des limites d'accélération, ce rapport devient de plus en plus important et peut devenir supérieur à 25. Cela implique, par exemple, d'avoir un tube long de 3,85m pour un diamètre de 0,154m pour pouvoir y observer l'accélération de flamme dans le cas d'un mélange de 6% de propane dans l'air.

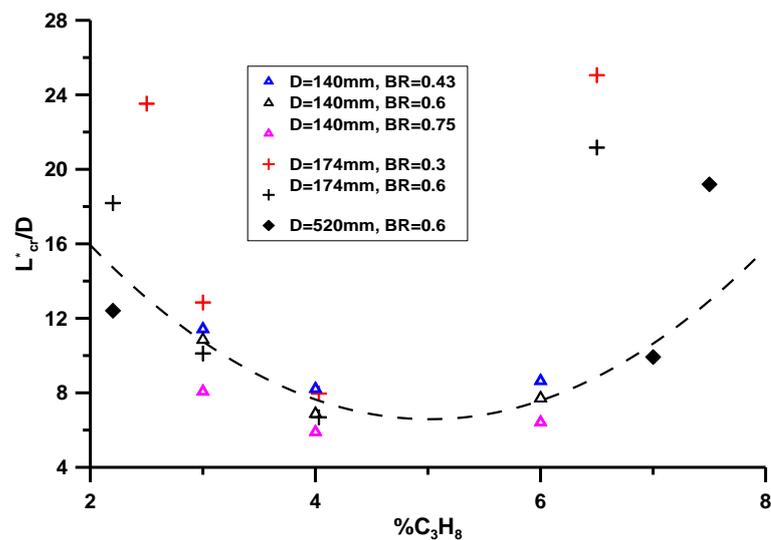


Figure 4-12: L_{cr}^*/D en fonction du pourcentage de propane

Très peu d'études se sont intéressées à l'effet de l'espacement entre les obstacles successifs sur la propagation des flammes de mélanges hydrocarbure/air. Celle de Ciccarelli et al. [89] fournit néanmoins des informations sur l'influence de l'espacement sur les longueurs critiques d'accélération L_{cr}^* définies par les mêmes auteurs. La Figure 4-13, extraite de l'étude de Ciccarelli, permet de suivre l'évolution de L_{cr}^* en fonction du rapport de blocage et de l'espacement. Trois valeurs d'espacement ont été testées: 0,07 m, 0,14 m et 0,21 m qui correspondent respectivement à 0,5, 1, et 1,5 fois le diamètre du tube. On remarque au premier abord, que l'augmentation du rapport de blocage entraîne la réduction de la longueur d'accélération et ce, quel que soit l'espacement choisi. Pour le rapport de blocage le plus faible (0,43), la variation de l'espacement n'influence pas significativement la longueur critique d'accélération. Pour le rapport de blocage le plus élevé (0,75), l'espacement correspondant à 1 diamètre du tube présente une plus grande accélération comparé aux deux autres espacements. Les auteurs en ont conclu que l'espacement optimal pour l'accélération est celui correspondant à une fois le diamètre du tube. Ils ont de plus conclu que l'influence de l'espacement sur l'accélération était négligeable pour de faibles rapports de blocage, et plus prononcé à mesure que l'on augmentait le rapport de blocage.

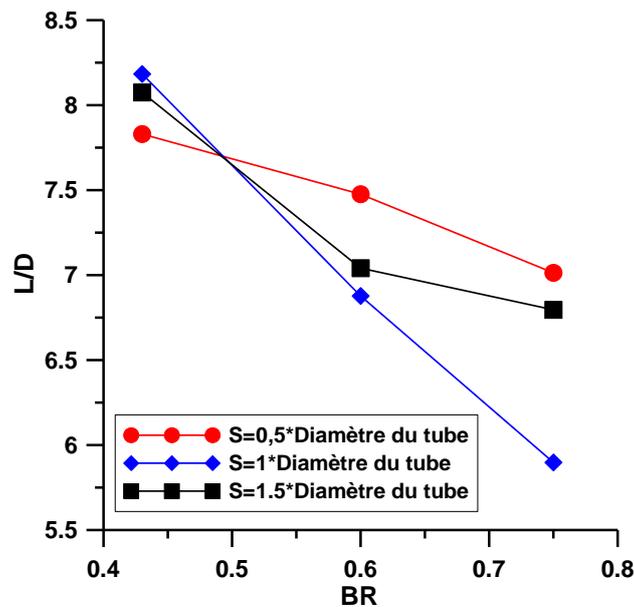


Figure 4-13: Effet de l'espacement sur L_{cr}^*

4.3 Accélérations de flamme d'hydrogène : le critère sigma de prédiction des accélérations

Dans cette partie, nous allons présenter les principales études ayant permis l'établissement du critère de prédiction du potentiel d'accélération des flammes de prémélange hydrogène/air.

Les études de Beauvais et al. [91] et celles de Ciccarelli et al. [92] se sont servies de l'influence de la température initiale sur l'accélération de flamme pour suggérer l'influence du facteur d'expansion sur le potentiel d'accélération des mélanges hydrogène/air. L'étude de Beauvais et al. a montré que l'augmentation de la température ne génèrait pas une accélération supplémentaire. Les auteurs ont tenté d'expliquer cela par la décroissance du facteur sigma avec la température. Cette hypothèse sera confirmée par Ciccarelli qui a, lui, observé une décroissance du taux d'accélération (sur les 5 premiers mètres de la propagation dans le tube) avec l'augmentation de la température aux cours de ses travaux sur les mélanges hydrogène/air comme on peut le voir sur la Figure 4-14.

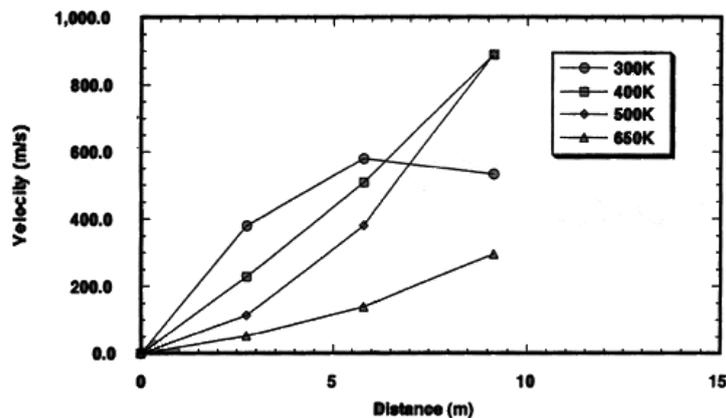


Figure 4-14: Evolution du front de flamme pour un mélange 11% d'hydrogène dans l'air à des températures initiales différentes Ciccarelli et al. [92]

Le Tableau 4-3 montre la décroissance du facteur d'expansion avec l'augmentation de la température et l'augmentation de la vitesse de flamme avec celle de la température ; ce qui a conduit les auteurs à conclure à un rôle dominant du facteur d'expansion sur la vitesse laminaire dans le mécanisme d'accélération de flamme.

Température (K)	Hydrogène (%)	ρ_u/ρ_b	Vitesse de flamme laminaire (m/s)
300	11	3,7	0,5
500		2,6	1,2
600		2,2	1,9

Tableau 4-3: Rapport de masse volumique et vitesse de flamme en fonction de la température (K)

Ainsi, en introduisant des événements dans le tube de propagation et en faisant varier le rapport d'éventage (α défini comme étant le rapport entre la surface des événements et celle du tube) entre 0,2 et 0,4, les auteurs ont pu observer que la vitesse de la flamme diminuait sensiblement avec l'augmentation du rapport d'éventage. Ils ont au cours de leur analyse, qui portait sur l'évaluation d'un sigma critique, proposé une relation théorique entre le sigma critique dans les tubes fermés qu'ils ont nommé σ_{cr}^0 et le sigma critique (σ_{cr}) dans les tubes disposant d'événements. $\sigma_{cr} = \sigma_{cr}^0(1+2\alpha)$. Cette analyse semble d'autant plus juste que la limite expérimentale entre les flammes accélérées et les flammes lentes dans leurs tubes est : $\sigma_{cr} = \sigma_{cr}^0(1+2.24\alpha)$ comme on peut le voir sur la figure qui suit.

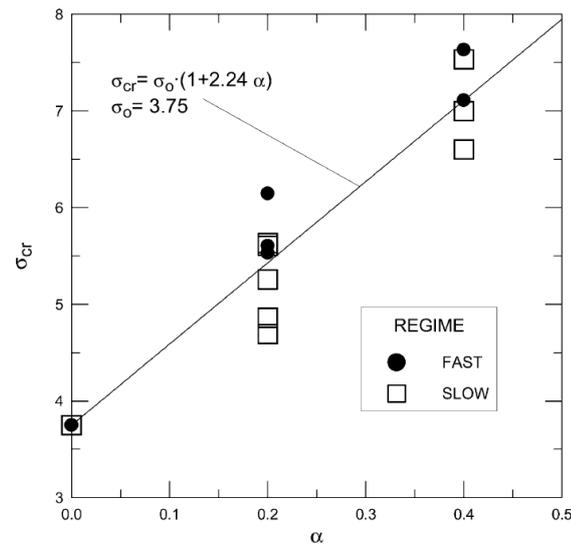


Figure 4-15: Dépendance de σ_{cr} pour l'accélération de flamme sur α , le rapport d'ouverture

Les études de Dorofeev et al. [93, 94] ont porté sur l'établissement d'un critère d'accélération lié au facteur d'expansion. Grâce à l'analyse des données, présentes dans la littérature, les auteurs ont proposé une valeur critique de sigma au-delà de laquelle les mélanges peuvent potentiellement accélérer. Ce sigma critique (σ_{cr}) est évalué à 3,75 pour une température initiale de 300K et une pression de 1 bar pour un mélange hydrogène air. Les auteurs ont toutefois noté que le sigma critique dépendait des conditions de température et de pression ainsi, pour T=400K, $\sigma_{cr}=2,8$, pour T=500K, $\sigma_{cr}=2,2$ et enfin, pour T=650K, $\sigma_{cr}=2,1$.

Cette relation entre la valeur du sigma critique et la température a conduit les auteurs à proposer d'exprimer σ_{cr} en fonction du nombre de l'énergie d'activation normalisée par la température initiale. Ainsi, une expression du sigma critique, basée les données de la littérature, a été proposée :

$$\sigma_{cr} = 0,9 \cdot 10^{-5} x^3 - 0,0019 x^2 + 0,1807 x + 0,2314 \quad \text{Eq. 29}$$

avec $x = \frac{E_a}{RT_u}$ pour l'hydrogène et les hydrocarbures. Cette relation a été basée sur la base des mélanges H₂/air et Hydrocarbures/air (Figure 4-16).

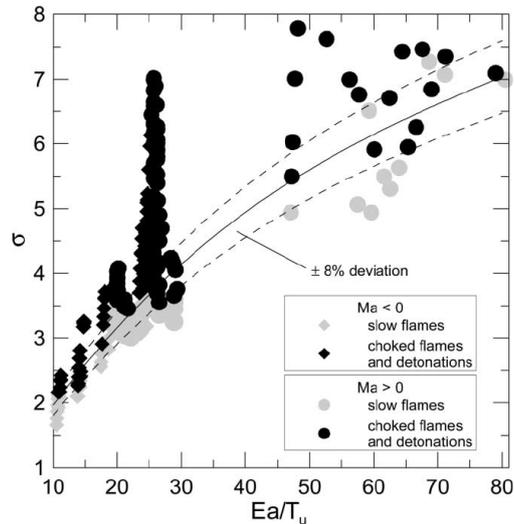


Figure 4-16: Limite d'accélération de flamme pour les mélanges hydrogène air et hydrocarbures air proposée par Dorofeev et al. [94]

Les travaux de Malet [95] au cours de sa thèse, ayant porté sur les mélanges hydrogène/air dans une enceinte d'accélération de flamme verticale, ont permis de définir un critère d'accélération des flammes de mélange hydrogène/air basé sur le nombre de Lewis et celui de Zeldovich :

$$\sigma_{cr} = 0,075\beta(Le-1) + 4,38 \quad \text{Eq. 30}$$

Avec $Le = \frac{\alpha}{D_{H_2, \text{mél}}}$ et β le nombre de Zeldovich : $\beta = \frac{Ea(T_b - T_u)}{RT_b^2}$

Ce critère, présenté dans la Figure 4-17, permet selon Malet d'évaluer la capacité d'un mélange hydrogène/air à donner naissance à une flamme fortement accélérée si les conditions géométriques y sont favorables.

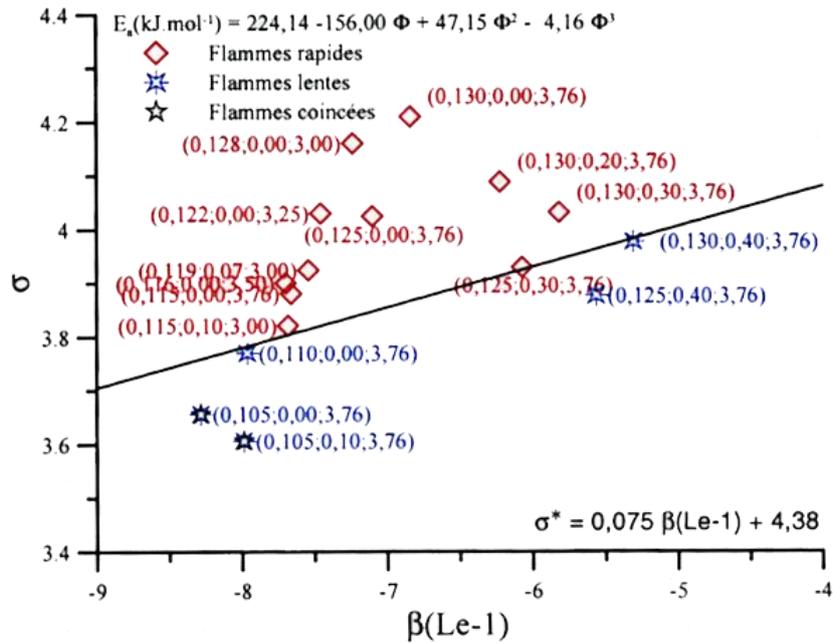


Figure 4-17: Critère d'accélération de flamme: taux d'expansion thermique en fonction du petit nombre de Lewis. Les compositions rapportées mentionnent la teneur en hydrogène, en diluant et le rapport O2/N2 [95]

5 Conclusion

Au cours de ce chapitre, un rappel concernant les aspects fondamentaux de la combustion a été réalisé. Il donne des informations sur les conditions d'existence d'une flamme, les régimes de propagation (déflagration, détonation), le mécanisme d'accélération de flamme et la vitesse fondamentale de flamme à travers la théorie de Maillard et le Châtelier, puis celle de Zeldovich, Frank-Kamenetskii et de Semenov.

Par la suite, un état de l'art concernant les vitesses de flamme des mélanges hydrogène/air, méthane/air hydrogène/méthane/air et hydrogène/monoxyde de carbone/air a été réalisé.

Enfin, dans la dernière partie de ce chapitre, un état de l'art sur l'accélération des flammes de prémélange hydrocarbure/air et hydrogène/air a été réalisé. Concernant les mélanges hydrocarbure/air, l'impact du diamètre du tube, du rapport de blocage, de la température et de la pression sur les limites d'accélération a été détaillé sur la base des données présentes dans la littérature. Il apparaît que le diamètre du tube n'influence pas la limite d'accélération des mélanges hydrocarbure/air côté pauvre. Côté riche, nous avons noté une augmentation de la limite supérieure d'accélération avec l'augmentation du diamètre du tube.

S'agissant des mélanges hydrogène/air, les limites d'accélération proposées par Dorofeev et al. [94] et Malet et al. [95] ont été présentées et soulignent l'importance de la connaissance des paramètres fondamentaux (L_e , E_a , σ le rapport d'expansion des gaz,...) des mélanges dans l'établissement du critère de prédiction de l'accélération de flamme.

Il ressort de l'étude bibliographique que les nombreuses expériences réalisées sur l'hydrogène ont permis, en améliorant de façon significative la connaissance sur le comportement des flammes de prémélange d'hydrogène de définir un critère d'accélération de ces dernières. S'agissant du gaz naturel, les travaux réalisés se sont concentrés sur l'étude du méthane. Afin de compléter ces travaux, l'impact de la dilution en azote et de l'ajout d'hydrogène pourra être étudié. Pour ce faire, deux mélanges gazeux tests et référencés par la norme EN437 représentatifs seront étudiés. Il s'agit du

- G27 : 82% de CH_4 et 18% de N_2
- G222 : 77% de CH_4 et 23% de H_2

Ces mélanges permettent de tester la sensibilité d'un brûleur fonctionnant au gaz naturel vis-à-vis de ses limites de stabilité et offrent donc des profils idéaux pour l'étude d'accélération de flamme de part leur comportement dynamique et leur réactivité (présence ou non d'azote ou d'hydrogène)

Enfin, il apparaît au vu de la littérature qu'aucune étude d'accélération n'a été réalisée sur le gaz de synthèse. Ce gaz produit au cours de la gazéification du charbon revêt un intérêt particulier dans l'application de la gazéification intégrée à cycle combiné (GICC) aux centrales thermiques. Un troisième mélange gazeux représentatif du gaz de synthèse sera donc étudié. Ce dernier composé à 50% de H_2 et à 50% de CO représenterait les gaz à réactivité intermédiaires entre l'hydrogène et les hydrocarbures.

Chapitre II. Dispositifs expérimentaux

Dans ce chapitre, les différents dispositifs expérimentaux utilisés au cours de cette thèse seront décrits. Comme nous avons pu le voir dans le chapitre précédent, il apparaît nécessaire de coupler l'étude laminaire et l'étude des flammes accélérées afin de pouvoir établir un critère d'accélération de flamme : l'étude laminaire permettant la détermination propriétés fondamentales de la flamme, tandis que l'étude de flamme accélérée permet de déterminer les limites (en termes de concentration) d'accélération de flamme. L'analyse des conditions nécessaires à l'obtention d'un régime rapide nécessite la connaissance des paramètres fondamentaux.

1 Mélanges gazeux étudiés

Trois mélanges gazeux ont été étudiés au cours de ce travail de thèse. Il s'agit du G27 et du G222 ainsi que d'un mélange $0,5\text{H}_2/0,5\text{CO}$. Le choix de ces gaz a été réalisé sur la base des données sur l'accélération de flamme présentes dans la littérature.

Les bouteilles de gaz : G222, G27, et Mélange syngaz ($\text{H}_2\text{-CO}$ 50-50) sont fournies par l'air liquide et offrent une pureté standard. L'air est distribué par le réseau d'air asséché comprimé du laboratoire de composition 21% O_2 + 78% N_2 + 1% Ar.

2 Les flammes laminaires

L'étude laminaire dans sa première partie consistera dans un premier temps à évaluer les limites d'inflammabilité et les vitesses de flamme des mélanges que nous avons choisi d'étudier.

2.1 Les limites d'inflammabilité

2.1.1 Dispositif expérimental

L'étude expérimentale sur les limites d'inflammabilité a été réalisée dans une enceinte sphérique en acier inoxydable de 8 L environ, avec un diamètre interne de 250 mm. Elle est équipée de 2 hublots diamétralement opposés. Sur la Figure 2-1, est présentée une vue éclatée de l'enceinte.

L'inflammation est initiée au centre de l'enceinte au moyen d'un plasma induit par laser. La préparation des mélanges pour atteindre la composition souhaitée est effectuée par la méthode des pressions partielles. Les mélanges sont réalisés directement dans l'enceinte et la mesure de la pression partielle de chaque composant est faite au moyen d'un manomètre capacitif MKS pour les pressions inférieures ou égales à 1 bar, soit à l'aide d'un capteur à quartz piezo- résistif KISTLER pour les pressions supérieures à 1 bar.

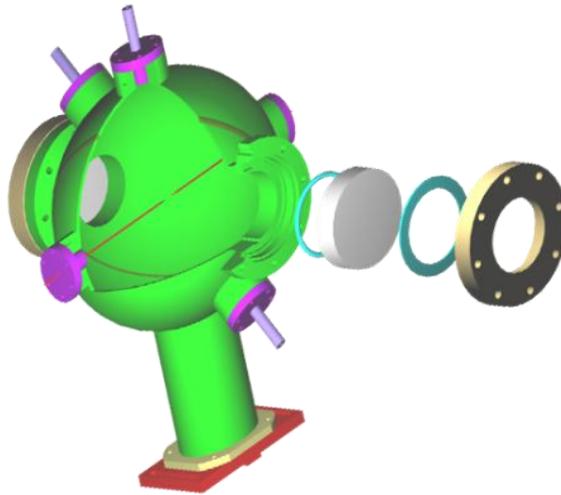


Figure 2-1 : Vue globale de la bombe sphérique de 8L

2.1.2 L'inflammation par focalisation laser

Le laser utilisé est un prototype de laser fourni par la société CILAS. Il s'agit d'un laser Nd/Yag impulsif pompé par diode. Le Tableau 2-1 résume les propriétés principales de ce laser qui émet à une longueur d'onde de 1064 nm.

	LASER
Energie (mJ) à 150 A	80
Longueur d'onde (nm)	1064
Durée de l'impulsion (ns)	13
Fréquence des tirs (Hz)	1 à 20
Mode d'impulsion	TEM _{0c}
Diamètre du faisceau (mm)	3,2
Divergence (mrad)	0,7
M ²	1,6

Tableau 2-1 : Caractéristiques du laser de la société CILAS utilisé au cours de cette étude.

Afin de s'assurer que l'énergie fournie au milieu par le laser soit minimale, il est important de pouvoir atténuer l'énergie incidente sans altérer ses caractéristiques spatiales et temporelles. Cela se fait au moyen d'un atténuateur variable composé d'une lame demi-onde et d'un cube polarisateur Glan-Taylor. Ainsi, la densité d'énergie déposée peut être quantifiée pour chaque essai. La rotation de la lame demi-onde permet d'atténuer l'intensité du faisceau avec une grande précision.

Afin d'obtenir des densités d'énergie suffisantes au point focal, le diamètre du faisceau est élargi avant focalisation au moyen d'un extenseur de faisceau dont le facteur de grandissement est de 10. A la sortie de l'extenseur, le faisceau est réfléchi en direction du centre de la bombe par un miroir plan, traité R_{\max} à 1064 nm. Il est ensuite focalisé au centre de la bombe à l'aide d'une lentille sphérique de 250 mm de focale.

Tous les composants optiques sont traités antireflet à 1064nm sauf les hublots en quartz de la bombe sphérique. Une mesure de la transmission de ces hublots a permis de quantifier une atténuation de l'ordre de 3% par hublot à 1064 nm.

Afin de déduire l'énergie délivrée par le laser à chaque tir, une photodiode rapide (Thorlabs DET1DA) est installée derrière le miroir plan et mesure un faible pourcentage du signal réfléchi.

Un étalonnage a été réalisé à l'aide d'un joule-mètre GENTEC - QE12SP et d'une photodiode rapide (Thorlabs DET1DA). Cet étalonnage permet de déduire l'énergie déposée dans le milieu en fonction du signal délivré par la photodiode à l'aide d'une relation linéaire. La courbe obtenue est présentée sur la Figure 2-2.

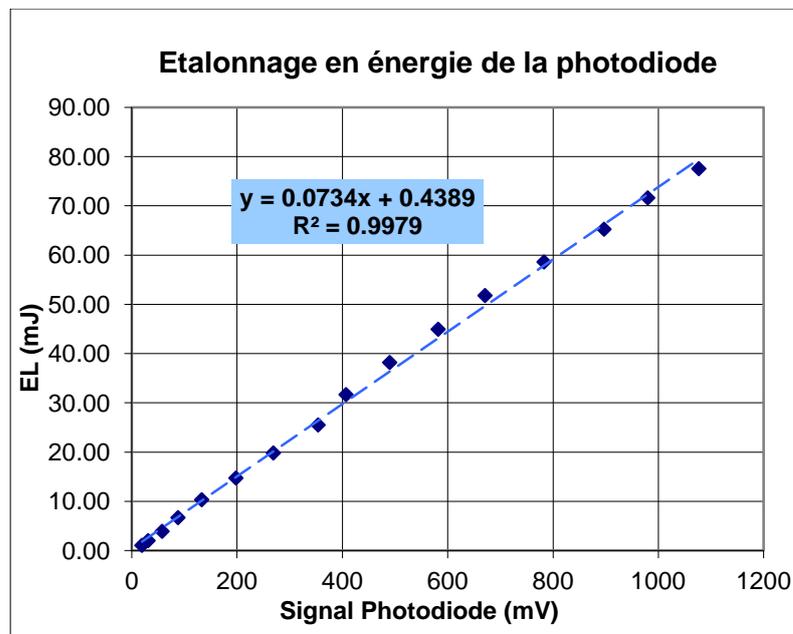


Figure 2-2 : Etalonnage en énergie de la photodiode.

L'ensemble du dispositif d'excitation et d'acquisition est géré et déclenché au moyen d'un générateur de délai (BNC, modèle 575) ayant un temps de résolution de 250 ps. Ce dernier déclenche les tirs laser ainsi que le déclenchement des enregistrements avec la caméra rapide.

L'alignement de tout le dispositif (Figure 2-3) se fait avec l'aide d'une diode laser émettant un faisceau visible (à 635 nm).

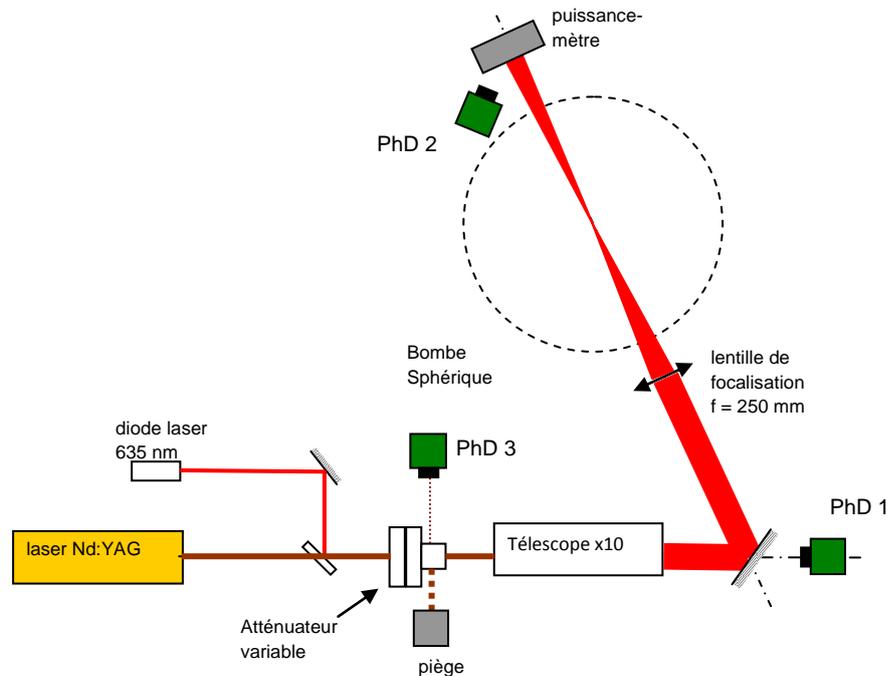


Figure 2-3 : Schéma du dispositif expérimental d'inflammation laser dans la bombe sphérique.

2.1.3 La visualisation du front de flamme

La visualisation de la flamme se fait grâce à un montage schlieren. Ce dispositif est un montage de type Z avec deux miroirs hémisphériques de 100 mm de diamètre et de 50 cm de focale placés de part et d'autre de la bombe sphérique. La source lumineuse utilisée est une lampe xénon (ABET, modèle S150-Xe) d'une puissance de 150 Watts. Une première lentille bi-convergente permet d'obtenir un faisceau parallèle. Ce dernier est focalisé par une seconde lentille bi-convergente au point focal objet du miroir hémisphérique. Le faisceau de lumière parallèle traverse la bombe sphérique avant d'être focalisé par le second miroir hémisphérique. La présence d'un couteau au point focal image intercepte la lumière non déviée. Les images sont projetées sur un écran placé entre le point focal image et une caméra numérique rapide (KODAK, Ektapro 4540 modèle). Cette caméra est équipée d'un détecteur de 256x256 pixels. La fréquence d'acquisition maximale est de 4500 images par seconde en plein format. Un tel montage en Z permet de limiter l'encombrement de l'installation ainsi que les aberrations optiques générées par les différents composants optiques du montage.

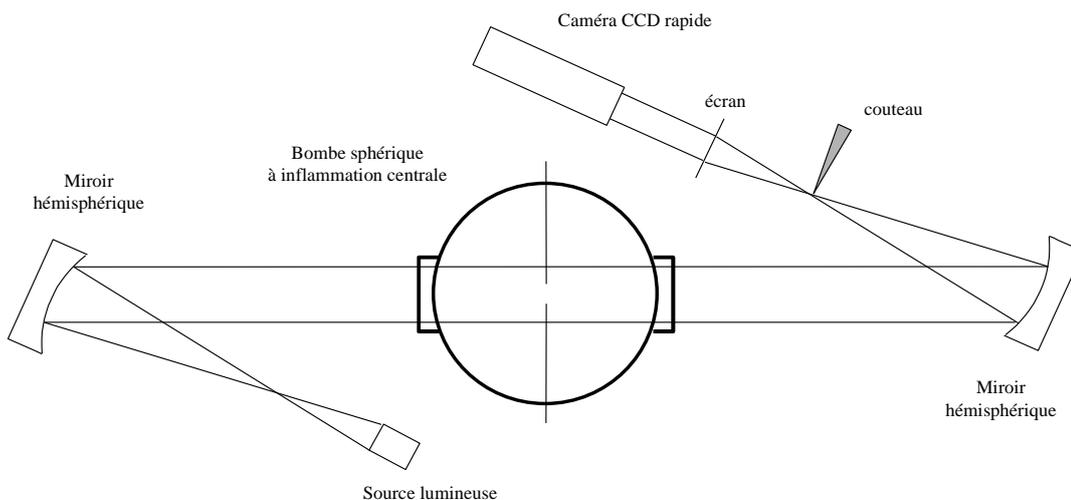


Figure 2-4 : Schéma de visualisation de la flamme par la méthode Schlieren.

2.1.4 Mesure de la surpression

Le comportement temporel de la pression après l'allumage est mesuré grâce à un capteur de pression piézo-électrique rapide (type 601A). Le capteur de pression permet de mesurer des pressions comprises entre 0 et 250 bars pour des températures allant jusqu'à 200°C. Sa fréquence propre est de 150 kHz. Il est couplé à un amplificateur de charge (type 5011B) qui permet de transformer le signal de charge émis en un signal de tension qui lui est proportionnel. Les signaux de pression et de synchronisation obtenus sont visualisés sur un oscilloscope Tektronix (modèle TDS2024B-200MHz).

2.2 Les vitesses de flamme

La méthode de détermination de la vitesse de flamme utilisée au cours de ce travail est la méthode de la bombe sphérique. Le principe en est relativement simple. Il s'agit ici de préparer un pré mélange gazeux au sein d'une enceinte sphérique puis de l'enflammer à l'aide d'une source d'énergie (une étincelle dans notre cas) au moins égale à l'énergie minimale d'inflammation. La flamme ainsi initiée se propage radialement à partir du point d'inflammation, situé au centre de l'enceinte, vers les parois de l'enceinte.

Il est dès lors possible, avec des diagnostics adaptés, de calculer la vitesse fondamentale de flamme à partir des mesures de la vitesse spatiale de flamme.

2.2.1 Dispositif expérimental

Il s'agit d'une enceinte sphérique en acier inoxydable ayant environ 476 mm pour diamètre intérieur et 56 L de volume et disposant d'une double enveloppe permettant la circulation d'un fluide caloporteur entre les deux enveloppes. Ce fluide caloporteur permet de chauffer l'enceinte jusqu'à une température maximale de 200°C environ. La pression maximale de service de l'enceinte est de 50 bars.

Par ailleurs, l'enceinte est équipée de deux hublots en quartz diamétralement opposés de 120 mm de diamètre permettant de visualiser la flamme au cours de sa propagation (97 mm de passage optique) et de deux électrodes en tungstène reliées à une source haute tension afin de produire une étincelle qui va initier la combustion. La décharge permet la création de l'étincelle électrique à l'origine de l'inflammation.

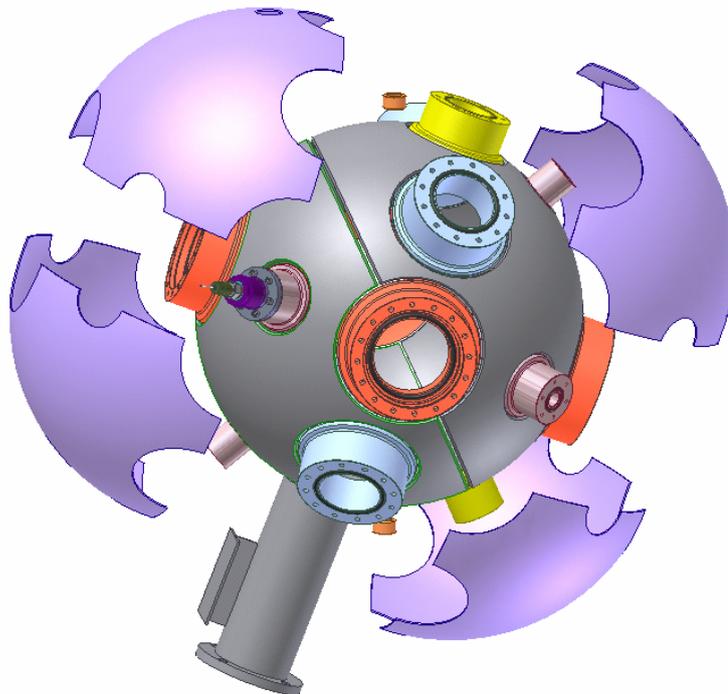


Figure 2-5: Vue éclatée de la bombe sphérique de 56 L

2.2.2 Le prémélange et l'inflammation

L'installation est reliée à deux pompes à vide permettant d'y maintenir un vide d'environ 20 pascals avant le remplissage. Le remplissage de l'enceinte au cours de ce travail a été réalisé avec la méthode des pressions partielles : chaque constituant du mélange cible est introduit séparément dans l'enceinte jusqu'à la pression partielle désirée. La mesure de chaque pression partielle se fait au moyen de deux manomètres capacitifs MKS. Ces deux manomètres permettent de disposer de deux gammes de mesure : la première en 0 et 13 kPa et la deuxième entre 0 et 133 kPa.

Les différents gaz utilisés au cours de cette étude ont été fournis par Air Liquide. S'agissant de l'air, il est fourni par le compresseur du laboratoire filtré et asséché.

L'inflammation est obtenue au moyen de deux électrodes en tungstène reliées à une source permettant de produire une décharge haute tension (environ une dizaine de kV). La position des électrodes et l'espacement entre celles-ci est ajustable. L'inflammation est produite au centre de la sphère. Une sonde de courant (Bergos) et de haute tension (Lecroy) reliées à un oscilloscope permettaient mesure de la tension de claquage ainsi que le courant électrique généré entre les deux électrodes. La mesure des ces deux grandeurs, à chaque essai, permet ainsi de connaître l'énergie déposée dans le milieu.

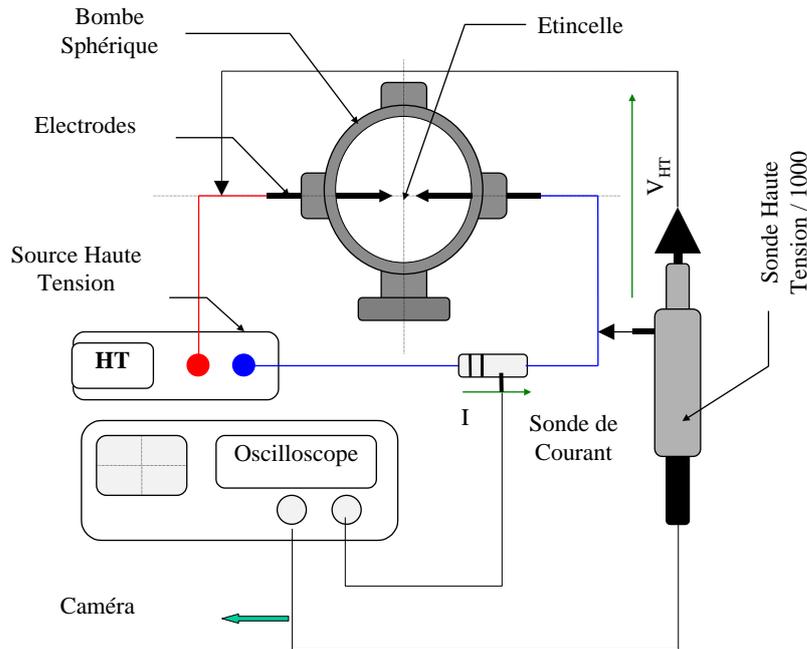


Figure 2-6 : Schéma du dispositif expérimental avec inflammation via le système d'électrodes.

2.2.3 Diagnostics associés

Pour évaluer la vitesse spatiale de propagation de la flamme il est nécessaire de pouvoir l'observer au sein de l'enceinte. Un montage Schlieren (méthode d'ombroscopie) a été utilisée. Elle est basée sur la déviation que subissent les rayons lumineux parallèles suite à une variation de l'indice de réfraction. Cette variation de l'indice de réfraction est due à la variation de la masse volumique de part et d'autre du front de flamme étant donné que d'un côté se trouvent les gaz frais et de l'autre les gaz brûlés.

Le montage schlieren est un montage de type Z similaire à celui présenté sur la Figure 2-4. Les images sont projetées sur un écran translucide placé entre le point focal image du deuxième miroir et une caméra numérique rapide (Photron APX). Cette caméra permet d'enregistrer jusqu'à 120000 images par seconde, aux dépens néanmoins pour de telles vitesses, de la résolution de l'enregistrement. La vitesse d'acquisition choisie dépend

essentiellement de celle de la flamme. En effet il y a un compromis à trouver entre le nombre d'images exploitable et la résolution de ces dernières.

Un exemple de séquence d'image enregistrée lors de la combustion du mélange G222/air ayant un rapport d'équivalence de 1,05 est donné dans la Figure 2-7.

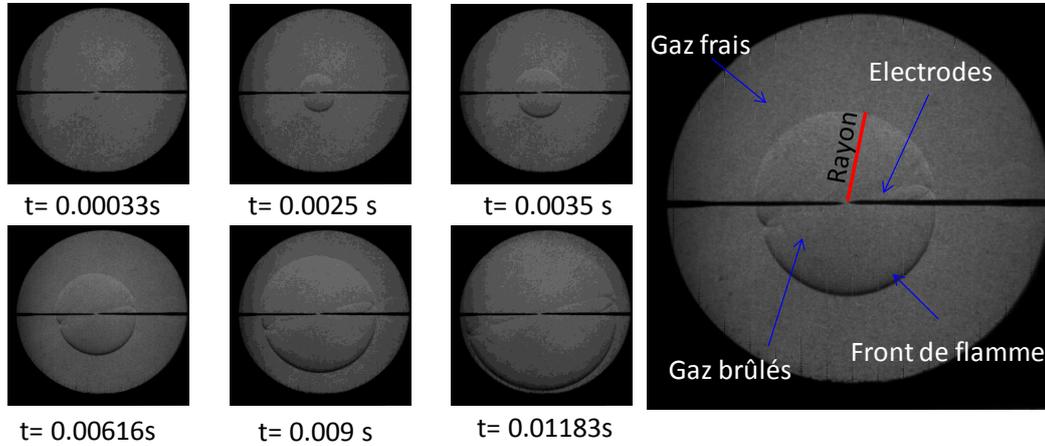


Figure 2-7 : Evolution du front de flamme d'un mélange G222/air pour un rapport d'équivalence de 1,05 à 1 bar et T=363K

2.2.4 La détermination de la vitesse de flamme

Suite à l'inflammation du mélange combustible, une flamme se propage de façon parfaitement sphérique dans l'enceinte (Figure 2-7). Les enregistrements réalisés à l'aide de la caméra rapide permettent de suivre l'évolution du rayon de la flamme en fonction du temps : $r = f(t)$. La vitesse de combustion s'écrit, comme l'ont rappelé Bradley et al. [96] :

$$S_L = -\frac{1}{\rho_u A_f} \frac{dm_u}{dt} \quad \text{Eq. 31}$$

Avec ρ_u , la masse volumique des gaz frais, A_f la surface du front de flamme et enfin $\frac{dm_u}{dt}$ le débit de gaz frais au travers du front de flamme.

En introduisant la conservation de masse, et la conservation de volume, on arrive à

$$\frac{d[\rho_u(R^3 - r_b^3)]}{dt} = -3r_b^2 \rho_u S_L \quad \text{Eq. 32}$$

Avec R le rayon de l'enceinte et r_b le rayon de la flamme

Dans le cas où la flamme est adiabatique, on considère que $P\rho_u^{-\gamma_u} = Cste$ avec P la pression et γ_u le rapport entre la capacité calorifique à pression constante des gaz frais et la capacité calorifique à volume constant des gaz frais.

Ceci qui permet d'écrire que $\frac{d\rho_u}{dt} = \frac{dP\gamma_u}{dt}$ et en dérivant la pression, on obtient que $\frac{d\rho_u}{dt} = \frac{1}{\gamma_u} P^{1-\frac{1}{\gamma_u}} \frac{dP}{dt}$. En introduisant l'expression de la dérivée de ρ_u suivant le temps dans l'expression précédente, on peut réécrire S_L ainsi :

$$S_L = \frac{dr_b}{dt} - \frac{R^3 - r_b^3}{3r_b^2 \gamma_u P} \frac{dP}{dt} \quad \text{Eq. 33}$$

En appliquant la loi de compressibilité aux gaz brûlés au lieu des gaz frais, on obtient l'expression de la vitesse de flamme laminaire la plus couramment rencontrée dans la littérature :

$$S_L = \frac{\rho_b}{\rho_u} \left(\frac{dr_b}{dt} + \frac{r_b}{3\gamma_b P} \frac{dP}{dt} \right) \quad \text{Eq. 34}$$

Cette expression est néanmoins à plusieurs égards moins satisfaisante que celle qui applique la loi de compressibilité aux gaz frais, selon Andrews et Bradley [53], du fait de la loi de compression utilisée qui ne semble pas appropriée pour décrire les gaz brûlés selon les auteurs. Comme nous l'avons mentionné au début, le terme $\frac{dr_b}{dt}$ est obtenu via une imagerie très rapide de la propagation du front de flamme au cours de la combustion. En effet, on peut considérer le rayon du front de flamme comme équivalent au rayon du volume des gaz brûlés et négliger l'épaisseur du front de flamme dont l'ordre de grandeur (mm) devient très vite petit devant celui du rayon des gaz brûlés dans le cas de la strioscopie ou de l'ombroscopie. De plus, le terme $\frac{r_b}{3\gamma_b P} \frac{dP}{dt}$ qui est la partie de la vitesse de flamme induite par la compression thermique peut être négligé [97]. En effet, pour simplifier le calcul de la vitesse de flamme, on se limite durant la visualisation à une fenêtre d'observation suffisamment petite par rapport au volume total afin de s'assurer que la pression reste constante. Dans ces conditions, la vitesse de flamme dépend exclusivement de l'évolution spatiale du front de flamme affecté du coefficient $\frac{\rho_b}{\rho_u}$ Il s'agit de l'inverse du coefficient d'expansion des gaz brûlés ($\sigma = \frac{\rho_u}{\rho_b}$).

On peut observer sur la Figure 2-8 et la Figure 2-9 qu'au cours de nos expériences, un soin particulier a été apporté au suivi de la pression pendant la combustion. Ainsi, on peut noter qu'au cours de l'enregistrement de la propagation de la flamme, la pression reste constante. Par ailleurs, il faut aussi rappeler que le passage optique étant de 97 mm et celui de l'enceinte étant de 476 mm, le volume du mélange ayant brûlé lorsque la flamme atteint les bords de la fenêtre d'observation ne représente que 0,8% du volume total.

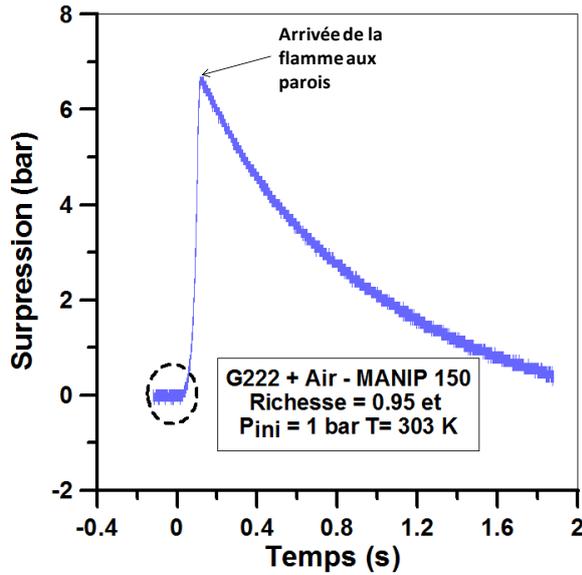


Figure 2-8: Exemple d'évolution de la pression au cours de la combustion

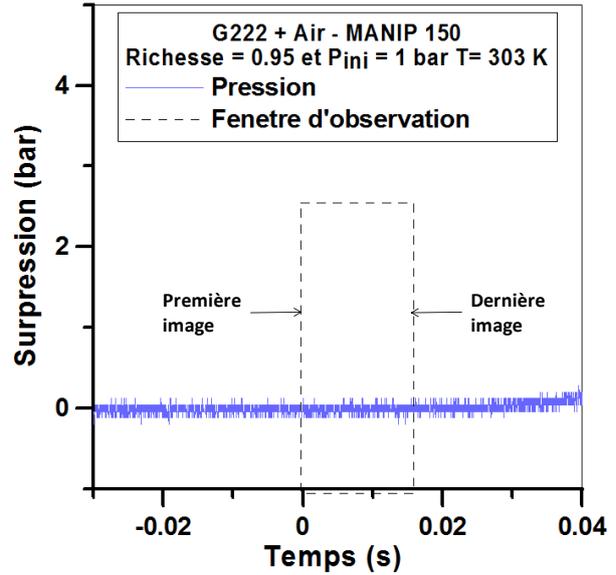


Figure 2-9: Zoom sur la fenêtre d'observation

Il faut cependant tenir compte du fait que la flamme se propageant de façon sphérique, elle est soumise à des effets d'étirement dont il faut tenir compte au cours de l'analyse.

2.2.5 L'étirement

Au cours de sa combustion un mélange combustible est soumis localement à une forte variation de la masse volumique au passage du front de flamme. En 1944, Landau [98] a montré, pour une flamme dont la vitesse était considérée comme constante, que par nature une flamme plane était instable ce qui contredisait les observations expérimentales. En 1964, Markstein [99] a introduit les effets du rayon de courbure du front de flamme sur la structure de cette dernière. Il a ainsi montré que la vitesse normale de combustion (u_n) varie linéairement avec l'inverse du rayon de courbure de la zone réactionnelle :

$$u_n - S_L^0 = S_L^0 \frac{L'}{R} \quad \text{Eq. 35}$$

Où R représente le rayon de courbure de la flamme et L' , une grandeur caractéristique de l'ordre de l'épaisseur du front de flamme. Le terme S_L^0 représente la vitesse normale de combustion à étirement nul et correspond donc à la vitesse de combustion d'une flamme plane et infiniment mince (cas idéal).

La notion d'étirement a été introduite par Karlovitz qui définit une grandeur représentant la variation de la surface de la zone réactionnelle en fonction du temps et normalisée par la surface :

$$K = \frac{1}{A} \frac{dA}{dt} \quad \text{Eq. 36}$$

Où K représente l'étirement auquel est soumise la flamme et A un élément de surface de cette dernière. Lorsque le paramètre K est positif, il y a allongement de la surface et lorsqu'il est négatif, il y a contraction de celle-ci.

Ainsi, selon Markstein et Karlovitz, la vitesse de flamme varie linéairement lorsqu'elle est soumise à un étirement. Il est à noter cependant que cette loi ne se confirme que pour des étirements qui restent faibles devant les limites d'extinction.

$$S_L^0 - S_L = L'K \quad \text{Eq. 37}$$

Avec S_L la vitesse de flamme étirée et S_L^0 la vitesse de flamme à étirement nul.

Expérimentalement, l'imagerie rapide nous permet de mesurer

$$V_s = \frac{dr}{dt} = V_s^0 - L_b K \quad \text{Eq. 38}$$

Avec V_s^0 la vitesse spatiale à étirement nul. En développant, on obtient

$$K = \frac{2V_s}{r} \quad \text{Eq. 39}$$

La combinaison des équations 32 et 33 permet d'obtenir après intégration la vitesse spatiale à étirement nul en fonction du temps et du rayon de la flamme.

$$V_s^0 t = r + 2L_b \ln(r) + Cste \quad \text{Eq. 40}$$

Une régression sur la base de la méthode des moindres carrés permet de déterminer V_s^0 et L_b .

2.2.6 Evaluation de l'erreur sur l'évaluation de la vitesse de flamme en bombe sphérique

Le traitement des données se fait à l'aide d'un script Matlab développé au laboratoire. Ce script évalue le rayon de la flamme selon l'angle puis effectue une moyenne sur l'ensemble des rayons mesurés pour évaluer le rayon de la flamme. L'erreur sur la mesure en pixel est fixée à plus ou moins 1 pixel ce qui correspond à 0,094 mm (le diamètre du hublot est de 97 mm). L'incertitude sur le temps est de 0,16 ms et correspond à la fréquence d'échantillonnage de la caméra (6000 images/secondes).

L'expression permettant de calculer la vitesse de flamme en fonction de l'évolution du rayon en fonction du temps est celle-ci :

$$r + 2L_b \ln(r) = V_s^0 t + Cste \quad \text{Eq. 41}$$

Avec V_s^0 la vitesse spatiale à étirement nul.

Pour résoudre cette expression et en déduire la vitesse de flamme ainsi que la longueur de Markstein, la méthode des moindres carrés est utilisée. Il s'agit ainsi de minimiser l'erreur entre le modèle et l'expérience avec $J(V_s^0, L_b, Cste) = \sum_{i=1}^N (V_s^0 t + Cste - r - 2L_b \ln(r))^2$ ce qui revient à annuler le système d'équation suivant :

$$\begin{cases} \frac{\partial J}{\partial V_s^0} = \sum_{i=1}^N 2t(V_s^0 t + Cste - r - 2L_b \ln(r)) = 0 \\ \frac{\partial J}{\partial Cste} = \sum_{i=1}^N 2(V_s^0 t + Cste - r - 2L_b \ln(r)) = 0 \\ \frac{\partial J}{\partial L_b} = \sum_{i=1}^N -4\ln(r)(V_s^0 t + Cste - r - 2L_b \ln(r)) = 0 \end{cases} \quad \text{Eq. 42}$$

On gagne à exprimer ce système sous forme matricielle et à le diviser par N afin d'obtenir des valeurs moyennes à la place des sommations :

$$\begin{pmatrix} \langle t^2 \rangle & \langle -2t \ln(r) \rangle & \langle t \rangle \\ \langle t \rangle & \langle -2 \ln(r) \rangle & \langle 1 \rangle \\ \langle -2t \ln(r) \rangle & \langle 4 \ln^2(r) \rangle & \langle -2 \ln(r) \rangle \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_s^0 \\ L_b \\ Cste \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \langle rt \rangle \\ \langle r \rangle \\ \langle 2r \ln(r) \rangle \end{pmatrix} \quad \text{Eq. 43}$$

Pour résoudre ce système, la méthode de Cramer sera employée avec le déterminant de matrice Δ ainsi que les déterminants secondaires $\delta_1, \delta_2, \delta_3$.

Les solutions de ce système d'équations sont donc :

$$V_s^0 = \frac{\delta_1}{\Delta}, L_b = \frac{\delta_2}{\Delta}, Cste = \frac{\delta_3}{\Delta} \quad \text{Eq. 44}$$

La formule de propagation d'erreur appliquée dans le cas de V_s^0 et L_b donne l'expression qui suit :

$$\delta V_s^0 = \sqrt{\left(\frac{\partial \delta_1}{\partial r} \frac{\Delta - \delta_1 \frac{\partial \Delta}{\partial r}}{\Delta^2} \delta_r \right)^2 + \left(\frac{\partial \delta_1}{\partial t} \frac{\Delta - \delta_1 \frac{\partial \Delta}{\partial t}}{\Delta^2} \delta_t \right)^2} \quad \text{Eq. 45}$$

Avec δV_s^0 l'erreur sur la vitesse spatiale à étirement nul

$$\delta L_b = \sqrt{\left(\frac{\partial \delta_2}{\partial r} \frac{\Delta - \delta_2 \frac{\partial \Delta}{\partial r}}{\Delta^2} \delta_r \right)^2 + \left(\frac{\partial \delta_2}{\partial t} \frac{\Delta - \delta_2 \frac{\partial \Delta}{\partial t}}{\Delta^2} \delta_t \right)^2} \quad \text{Eq. 46}$$

Avec δL_b l'erreur sur la longueur de markstein

L'application de cette expression sur un ensemble de données [50% H_2 /50% CO]/Air pour un rapport d'équivalence de 1 a permis d'évaluer l'erreur de mesure sur les vitesses de flamme à 4% et l'erreur sur la longueur de Markstein de son côté a été évaluée à 15%.

2.3 Les paramètres d'explosivité

Au cours de ce travail, les paramètres d'explosivité seront mesurés, il s'agit d'une part du taux maximum de variation de pression $\left(\frac{dp}{dt}\right)_{max}$ et du facteur d'explosivité K appelé aussi indice de déflagration défini comme étant $\left(\frac{dp}{dt}\right)_{max} \cdot V_{enceinte}^{\frac{1}{3}}$

Un capteur Kistler 601A est monté affleurant la paroi dans l'enceinte afin d'enregistrer l'évolution de la pression en fonction du temps au cours de la propagation de la flamme. Ce capteur, dont les caractéristiques sont reportées dans le Tableau 2-2 est monté à l'intérieur d'un adaptateur pare-flamme qui permet d'isoler la surface sensible du capteur de la flamme.

Plage Dynamique	0-250 bars
Fréquence propre	≈ 150kHz
Sensibilité	≈ 16 pC/bar
Polarité de sortie	Positive
Elément sensible	Quartz
Linéarité	≤ ±0,5% FSO
Diaphragme	Acier Inoxydable

Tableau 2-2 : Caractéristiques du capteur de pression

Les mesures de pression ainsi réalisées permettent non seulement de mesurer les pressions maximales atteintes au cours de la combustion, mais aussi d'évaluer le taux maximum de variation de pression. Ce taux de combustion correspond à la valeur de la dérivée de la pression par rapport au temps au point d'inflexion de la courbe de pression pendant la montée de celle-ci. Deux approches peuvent dès lors être utilisées pour évaluer ce taux maximal d'augmentation de la pression.

La première approche consiste à faire correspondre un polynôme du troisième degré avec la zone de montée de pression qu'on peut observer sur la Figure 2-8. Cette approche, bien que satisfaisante pour ce qui est des ordres de grandeurs de $\left(\frac{dp}{dt}\right)_{max}$ nécessite cependant d'avoir une idée de la position du point d'inflexion. Ceci permet de s'assurer que la région de la courbe de pression interpolée à l'aide du polynôme intègre le point d'inflexion.

La deuxième approche consiste à évaluer directement à partir des mesures de pression le rapport $\frac{\Delta P}{\Delta t}$. Si Δt est suffisamment petit alors le rapport $\frac{\Delta P}{\Delta t}$ est très proche de la dérivée de la pression en fonction du temps. Au cours de nos expériences, l'échantillonnage était fixé à 10^{-5} s. Cela constitue un intervalle de temps suffisamment court pour permettre l'estimation de la dérivée de la pression à partir de la différence entre deux valeurs de pressions successives. Cependant, il est nécessaire de s'affranchir des oscillations de la pression entre deux mesures successives qui sont visibles sur la Figure 2-8. Pour ce faire, il est possible de lisser la courbe

de pression en fonction du temps. Ce lissage permet de réduire l'amplitude des oscillations sans toutefois les diminuer significativement. Pour les diminuer significativement, il faut effectuer une transformation de Fourier discrète de la courbe puis une transformée de Fourier inverse en gardant 2000 points au lieu des 100.000 points du signal brut. Cette opération se fait via Matlab et s'est révélée plus efficace qu'un simple lissage.

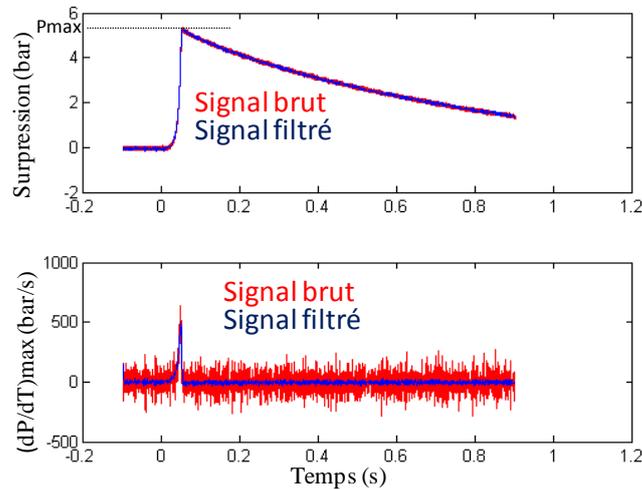


Figure 2-10 : Illustration de l'évaluation de la vitesse maximale de montée en pression pour un mélange H_2/CO

3 Les flammes accélérées

L'accélération de flamme est étudiée dans une enceinte hautement instrumentée mise en place à l'institut de Combustion, Aéronautique, Réactivité et Environnement du CNRS d'Orléans. Le dôme de l'enceinte utilisé au cours des travaux de Malet [95] sur la détermination d'un critère d'accélération des flammes de mélange hydrogène/air a été modifié afin de permettre la réalisation des travaux de Cheikhvat sur l'impact de l'aspersion sur la propagation de flamme. Nous avons utilisé ce dernier système au cours de nos travaux.

3.1 Dispositif expérimental : ENACCEF

L'enceinte d'accélération de flamme : ENACCEF est composée de deux parties principales : un tube d'accélération d'une longueur de 3,2 m et de 154 mm de diamètre interne et un dôme de 1,682 m de haut et de 737,6 mm de diamètre interne.

Le tube d'accélération est constitué de 6 éléments tubulaires de 154 mm de diamètre interne. Le premier de ces tubes est constitué d'un tube de 200 mm de long présentant deux bossages diamétralement opposés permettant lui permettant d'accueillir les électrodes (situées à 0,148 m de l'extrémité basse du tube) nécessaires à l'inflammation du mélange. Suivent

ensuite, 3 tubes identiques de 508 mm de long disposant de bossages pouvant être équipés de hublots en quartz pour la détection spectrophotométrique du passage la flamme, de capteur de pression ou de vannes d'introduction ou de prélèvement. La cinquième section mesure, elle, 608 mm de long. Elle propose 3 piquages rectangulaires qui servent au montage de hublots rectangulaires en quartz offrant un passage optique de $(300 \times 40) \text{ mm}^2$. Chacune des sections étant interchangeable, cette dernière section offre l'avantage particulier de permettre l'observation de la flamme au début de sa propagation dans le tube d'accélération ou au contraire d'observer la flamme en fin du tube d'accélération. Enfin, une dernière section constituée d'un tube de 909 mm de long est placée avant le dôme. Cette section à l'instar de toutes les autres dispose aussi de bossages.

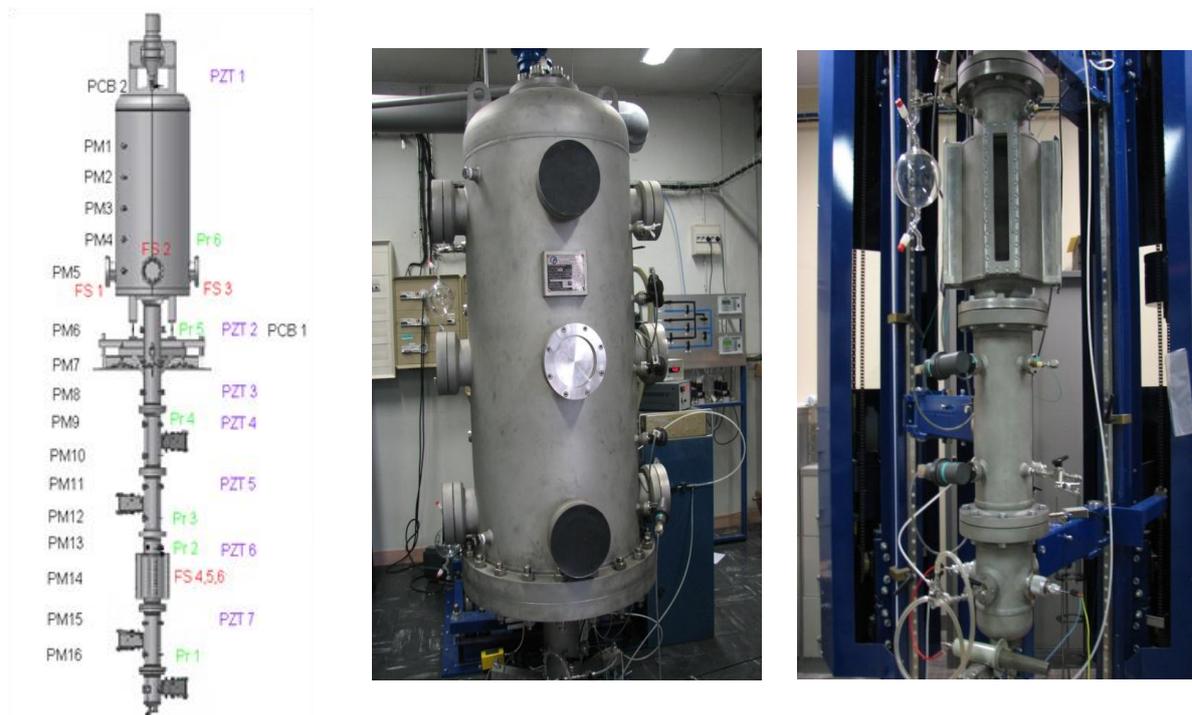


Figure 3-1 : De gauche à droite, Schéma d'ENACCEF, Photo du dôme, Photo du tube d'accélération

Chaque section du tube d'accélération peut accueillir des obstacles répétés qui permettent d'accélérer la propagation de la flamme. Ces obstacles, annulaires, sont séparés les uns des autres par une distance égale au diamètre interne du tube. Le nombre de ces obstacles ainsi que le rapport de blocage ($BR=1-d^2/D^2$, avec d le diamètre intérieur et D le diamètre extérieur du disque) peuvent être modifiés afin d'obtenir la meilleure configuration d'accélération de la flamme. Dans ce travail, nous avons fait varier le nombre d'obstacles : 8, 11, 14 obstacles et le rapport de blocage : 0,3, 0,4 et 0,6.

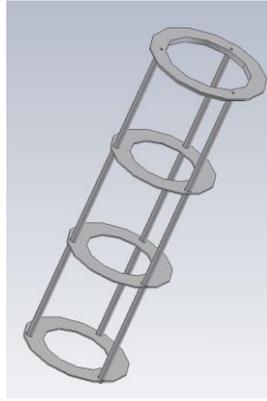


Figure 3-2: Obstacles annulaires servant à encombrer le tube d'accélération

Le dôme est lui, aussi équipé de 6 bossages équidistants équipés de hublots en quartz permettant le montage de photomultiplicateurs rendant compte de la position de la flamme en fonction du temps. De même, 3 séries de 3 piquages de 168,3 mm de diamètre sont réparties sur la hauteur du dôme. Pour chaque série, deux des piquages sont diamétralement opposés et le troisième est à 90° du plan des deux autres. Ces piquages servent de support pour des hublots de visualisation.

Au cours de ce travail, nous avons modifié le système de détection de la flamme afin de diminuer les incertitudes sur les vitesses de propagation de flamme. En effet, chaque photomultiplicateur est à présent équipé d'un filtre Schott UG11 permettant de détecter principalement l'émission de OH^* . Un dispositif optique monté devant chaque photomultiplicateur permet de ne détecter que l'émission induite au sein d'un pinceau horizontal de 4 mm de hauteur. Ce dispositif est composé d'une fente horizontale (1 mm*10 mm) disposé au foyer d'une lentille convergente de 50 mm de focale. Il en résulte une meilleure précision dans la mesure du temps de passage de la flamme (Figure 3-3).

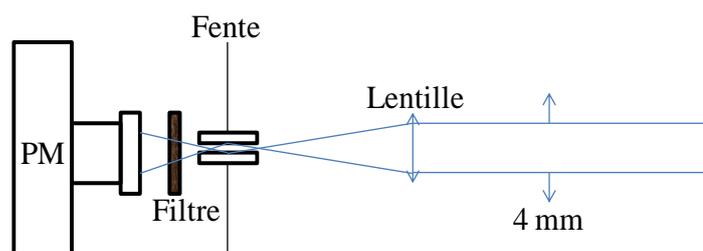


Figure 3-3 : Schéma de montage des photomultiplicateurs.

3.2 Conditions Initiales

Les mélanges sont étudiés à 1 bar et 297 K. Ils sont introduits directement dans l'enceinte par des lignes équipées de contrôleurs de débits massique Brooks instruments (58505 – 5 et 20 L.min⁻¹) permettant d'ajuster les débits respectifs correspondant à la

composition désirée. La pression totale après introduction du mélange combustible est contrôlée à l'aide d'un manomètre capacitif ayant une gamme de mesure de 0 à 133 kPa. Des prélèvements sont effectués avant ou après la combustion afin de rendre compte de la composition du mélange ou de la quantité du mélange initial ayant brûlé au cours de la combustion. L'enceinte est vidée avant chaque expérience par l'intermédiaire de 2 pompes à vide permettant d'atteindre une pression minimale de l'ordre de 10 à 30 Pa.

L'inflammation est réalisée à l'aide d'une source haute tension délivrant des tensions primaires de l'ordre de la dizaine de kV.

3.3 Diagnostics associés

L'enceinte d'accélération de flamme est équipée de différents moyens de mesure. Ces diagnostics sont les suivants :

- 16 photomultiplicateurs (Hamamatsu IP28) régulièrement espacés le long du tube qui permettent de détecter le passage du front de flamme et donc de suivre la propagation de la flamme dans l'enceinte.
- 7 capteurs de pression Chimie métal (détecteurs de choc), qui permettent de suivre l'évolution de la pression dans l'enceinte au cours de la propagation de la flamme.
- 1 capteur de pression piézo-électrique équipé d'un pare-flamme de marque Kistler

Le tableau qui suit, résume tous les diagnostics associés à l'enceinte ainsi que leurs positions relatives par rapport aux électrodes.

Détecteur	Position/électrodes (m)	Détecteur	Position/électrodes (m)	Détecteur	Position/électrodes (m)
Kistler	2,877	PM16	0,277	PM8	2,377
CP1	4,779	PM15	0,527	PM7	2,627
CP2	2,627	PM14	0,777	PM6	2,877
CP3	2,377	PM13	1,027	PM5	3,341
CP4	2,139	PM12	1,277	PM4	3,591
CP5	1,527	PM11	1,527	PM3	3,841
CP6	1,027	PM10	1,772	PM2	4,091
CP7	0,527	PM9	2,037		

Tableau 3-1: Position relative par rapport à la position des électrodes des photomultiplicateurs, des capteurs de choc et des du capteur de pression

La mesure de la vitesse de propagation de flamme est effectuée à l'aide des signaux des photomultiplicateurs. Elle est déduite de l'analyse des signaux comme on peut le noter sur la Figure 3-4

Le passage de la flamme sur les capteurs de chocs entraîne une déviation du signal physique due à l'augmentation soudaine de la température. Il est donc possible de confronter les résultats obtenus par l'analyse des signaux des photomultiplicateurs et les signaux relevés grâce aux capteurs de chocs.

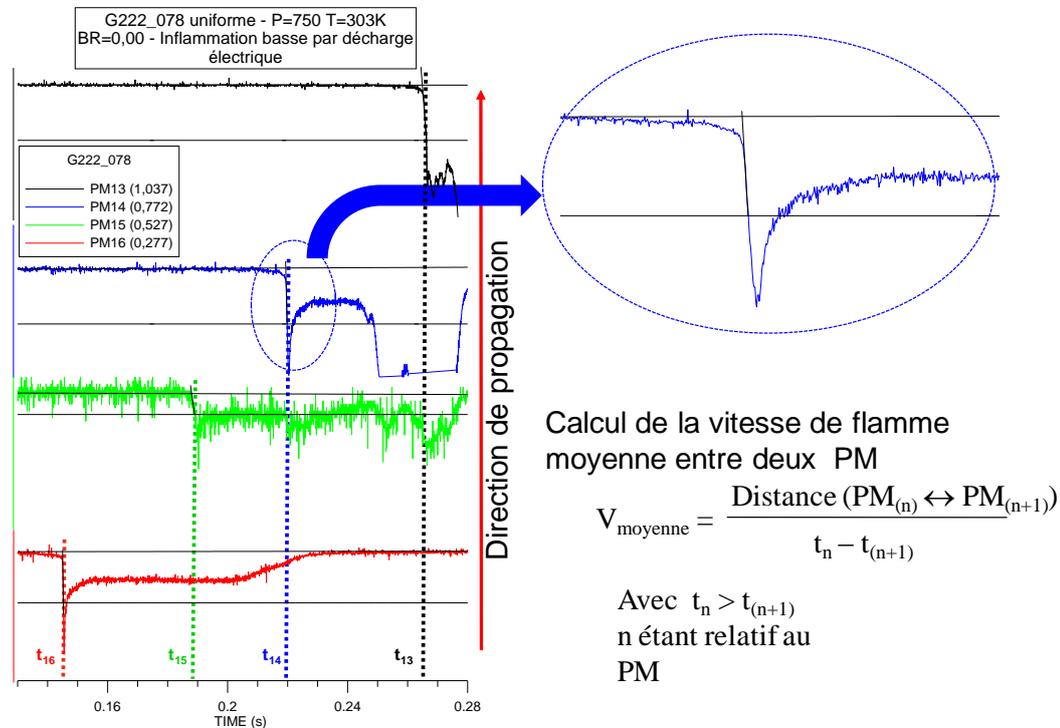


Figure 3-4 : Détermination de la vitesse de propagation du front de flamme sur la base de l'analyse des signaux des photomultiplicateurs

3.4 Incertitudes sur la mesure de la vitesse

Afin d'évaluer l'incertitude sur la vitesse moyenne calculée, il est nécessaire de connaître l'incertitude sur la distance parcourue par la flamme entre deux photomultiplicateurs et l'incertitude sur le temps de passage de la flamme entre deux photomultiplicateurs.

3.4.1 Incertitudes sur la distance parcourue par la flamme

L'incertitude sur la position est déterminée à partir du schéma de montage des photomultiplicateurs (Figure 3-3). En effet, comme expliqué dans la section 3.1.1, la détection de la flamme se fait au sein d'un pinceau horizontal de 4 mm de hauteur. Si l'on suppose que le PM_n reçoit suffisamment de lumière dès l'entrée de la flamme dans le pinceau de détection, la position de la flamme correspondrait dans ce cas à la position du $PM_n - 2$ mm. A l'inverse, si le PM_{n+1} détecte le passage de la flamme que plus tard dans le pinceau de détection, la position de la flamme correspondrait à la position du $PM_{n+1} + 2$ mm. L'incertitude sur la distance parcourue est donc de 4 mm. L'erreur commise sur la distance parcourue étant

maximale lorsque cette distance est la plus faible (0,245 mm), il est alors établi que $\frac{\delta Distance}{Distance} = 1,6\%$

3.4.2 Incertitudes sur l'instant de passage de la flamme

Afin d'évaluer l'incertitude sur l'instant de passage, il convient de revenir sur sa méthode de détermination. Comme on peut le voir sur la Figure 3-4, au passage de la flamme, une déviation du signal délivré par les photomultiplicateurs est observée. Une régression linéaire du signal plat (avant la déviation) est réalisée. L'instant de passage de la flamme est déterminé par l'intersection entre la tangente de la déviation du signal et la droite résultant de la régression réalisée précédemment. Ainsi, selon le tracé de la tangente, l'instant de passage peut être sur ou sous-estimé. S'agissant des flammes lentes, le temps de passage entre deux photomultiplicateurs est suffisamment long pour que l'erreur commise sur le temps de passage entre deux photomultiplicateurs soit négligeable. Dans le cas des flammes rapides, une analyse a été réalisée avec une flamme de mélange H₂/CO/Air et l'erreur maximale sur temps mesurée est de 6,3%

L'erreur commise sur la mesure de la vitesse de flamme est la somme de l'erreur commise sur la distance parcourue par la flamme et de celle commise sur le temps de passage de flamme et est au maximum de l'ordre de 8%

3.5 Analyse des gaz

Des prélèvements gazeux sont réalisés afin de contrôler l'homogénéité et la composition des mélanges avant et après la combustion. Ces prélèvements sont réalisés en bas du tube et du dôme avec des ampoules en verre et l'analyse se fait à la fin de l'essai. L'analyse se fait par CPG dont le principe repose sur la séparation des constituants d'un mélange gazeux. Cette séparation se fait, en sortie de la colonne, sur la base des affinités des constituants avec la phase stationnaire contenue dans la colonne. Les gaz passent dans un détecteur qui répond quantitativement aux passages successifs des composés qui sont eux même caractérisés par le temps qu'ils mettent pour parcourir la colonne appelé temps de rétention.

3.5.1 Chromatographe phase gazeuse

L'injection se fait à l'aide d'un piston qui permet de comprimer le mélange à la pression désirée (760 Torr, dans le cadre de notre travail) avant son injection dans la colonne de séparation. Le chromatographe utilisé (HP5890II) en phase gazeuse et la détection des gaz analysés est réalisée à l'aide d'un catharomètre (TCD). Le signal obtenu dépend de la différence des conductivités thermiques du gaz vecteur et des gaz analysés. Le gaz vecteur utilisé est l'argon pour les mélanges G222/Air et H₂/CO/Air. Bien que la conductivité thermique du méthane ($3.28 \cdot 10^{-2} \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$) et celle de l'argon ($1.64 \cdot 10^{-2} \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$) sont

relativement proches le CH₄ a pu être analysé car il était présent en forte quantité, il est aisément détectable. Dans le cas des mélanges G27/Air, le gaz vecteur était l'hélium.

3.5.2 Etalonnage de la CPG

L'étalonnage de la CPG est une étape importante dans l'analyse. Il s'agit ici de préparer des mélanges dits étalons auxquels vont être associés des surfaces de pics de détection des composés. Pour ce faire, les mélanges sont préparés sur un banc de préparation de mélanges étalons au laboratoire, dans des ballons étalons de 10L. Ce banc est notamment équipé d'un capteur de pression de marque MKS pour une gamme de mesure de 0-1000 Torr ainsi que d'une pompe à vide qui permettant de réaliser le vide dans le ballon étalon. La préparation du ballon se fait par la méthode des pressions partielles et les ballons ainsi préparés sont agités puis passés en analyse chromatographique par la suite. On peut alors tracer la droite d'étalonnage des composés qui représente le pourcentage souhaité du composé en fonction de l'aire mesurée au cours de l'analyse chromatographique. Un ballon étalon est préparé et est testé régulièrement dans le chromatographe pour vérifier la validité de l'étalonnage.

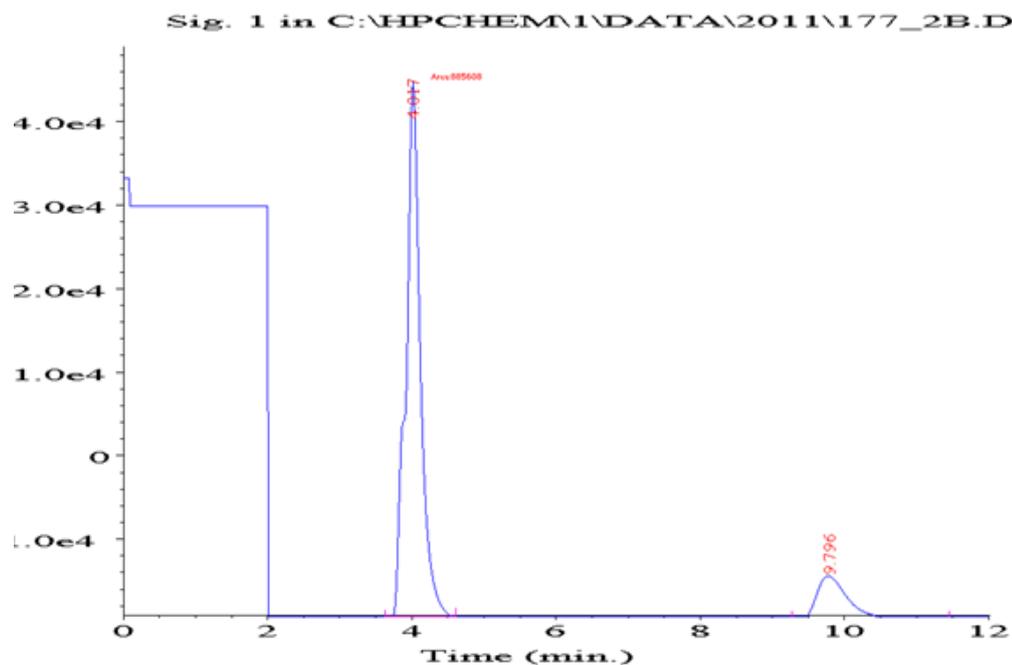


Figure 3-5 : Exemple de chromatographe type.

Chapitre III. Les Limites d'Inflammabilité

En présence d'un mélange combustible gazeux, une énergie supérieure ou égale à l'énergie minimale d'inflammation est nécessaire pour initier la combustion. Néanmoins, si cette condition est nécessaire, elle n'est pas suffisante car il faut en plus que la teneur en combustible soit comprise en deux valeurs limites qui se définissent comme étant les limites d'inflammabilité. Ainsi, il ne peut y avoir de combustion si la teneur en combustible est inférieure la valeur limite minimale appelée limite inférieure d'inflammabilité. De même, si cette teneur est supérieure à la valeur maximale appelée limite supérieure d'inflammabilité il ne peut y avoir de combustion.

Au cours de ce chapitre, nous allons présenter les résultats de la mesure des limites d'inflammabilité pour le G27, le G222 et le H₂/CO à 300 K et deux pressions initiales (1 et 2 bar).

1 Les mélanges G27 (82%CH₄+18%N₂)/Air

1.1 Les limites d'inflammabilité P_{ini}=1 bar, T_{ini}=300 K

Lorsque la teneur en G27 est fixée à 6,3%, suite à l'initiation par le laser, on note la formation d'une flamme qui ne se propage que partiellement et uniquement dans la direction ascendante. La surpression enregistrée dans ce cas n'est que de 0,29 bar rendant bien compte d'une combustion partielle puisqu'elle ne représente que 7% de la surpression totale calculée pour une combustion totale adiabatique à volume constant notée P_{AICC}. En effet, la P_{AICC} dans ce cas est de 3,9 bar. La Figure 1-1 et la Figure 1-2 montrent respectivement la visualisation de la flamme dans l'enceinte et l'évolution de la pression pour cette composition de mélange.

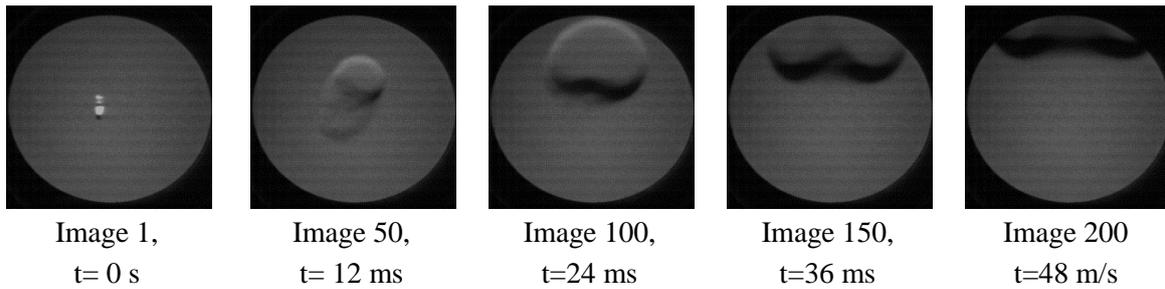


Figure 1-1 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 6,3% de G27 initialement à 1 bar et 300 K

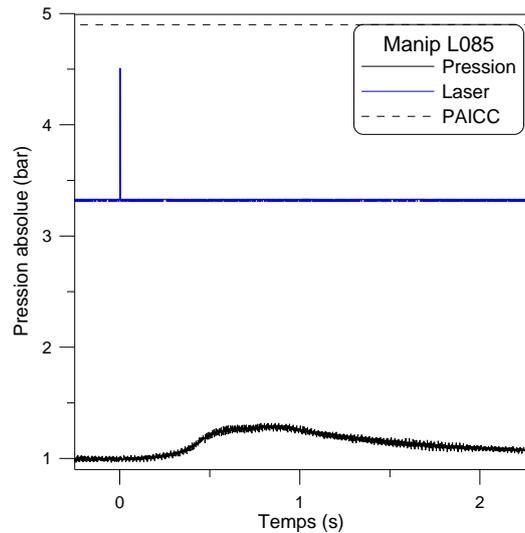


Figure 1-2 : Evolution de la pression dans l'enceinte pour 6,3% de G27 dans l'air initialement à 1 bar et 300 K

Ce comportement est observé jusqu'à une teneur de 5,9% de G27 dans l'air. Par contre, si ce mélange ne contient plus que 5,7% de G27, alors le noyau initial faisant suite au dépôt d'énergie dans le milieu disparaît très rapidement et ne donne pas naissance à une flamme. La limite d'inflammabilité inférieure est atteinte. La Figure 1-2 et Figure 1-3 montrent la visualisation de la flamme ainsi que l'évolution de la pression dans l'enceinte. On observe sur cette dernière que le signal de pression reste plat.

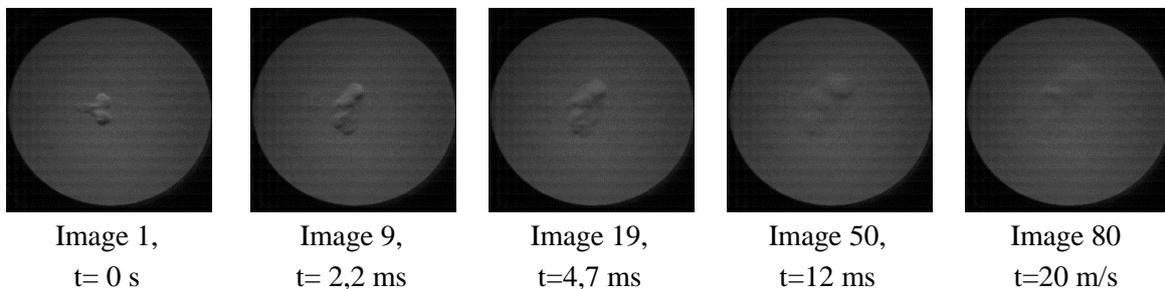


Figure 1-3 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 5,7% de G27 initialement à 1 bar et 300 K

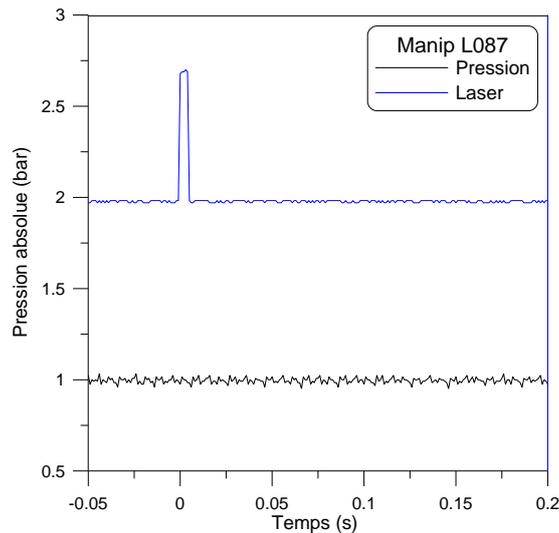


Figure 1-4 : Evolution de la pression dans l'enceinte pour 5,7% de G27 dans l'air initialement à 1 bar et 300 K

Lorsque, au contraire, on augmente la teneur en G27 au-delà de 6,3% pour atteindre les mélanges riches en combustible, on observe la formation d'une flamme qui se propage à l'ensemble de l'enceinte et ce jusqu'à une teneur de 15,6% de G27 dans l'air. La flamme initiée lorsque le mélange est composé de 15,6% de G27 se propage tout d'abord dans la direction ascendante puis s'étend par la suite à l'ensemble du mélange. Enfin, lorsque la teneur de G27 est fixée à 16,1% dans l'air, la perturbation liée à l'inflammation se dissipe très vite et aucune propagation de flamme n'est observée : la limite d'inflammabilité supérieure est atteinte.

Ainsi, pour une pression initiale de 1 bar et une température initiale de 300 K, deux limites d'inflammabilités ont été identifiées : la limite inférieure d'inflammabilité (LII) mesurée à 5,7% de G27 dans l'air, et la limite supérieure d'inflammabilité (LSI) à 16,1% de G27 dans l'air.

1.2 Effet de la pression sur les limites d'inflammabilité, $P_{ini}=2$ bars, $T_{ini}=300$ K

Ici, la pression initiale a été fixée à 2 bar afin d'observer les effets de la pression initiale sur les limites d'inflammabilité.

Pour une pression initiale de 2 bar, lorsque le pourcentage de G27 dans l'air était de 6,1%, on ne notait pas d'inflammation du mélange dans l'air. Lorsque ce pourcentage est porté à 6,2%, on note une inflammation du mélange suivie d'une propagation ascendante dans le mélange. La Figure 1-5 montre l'observation de l'évolution de la flamme dans l'enceinte pour cette composition.

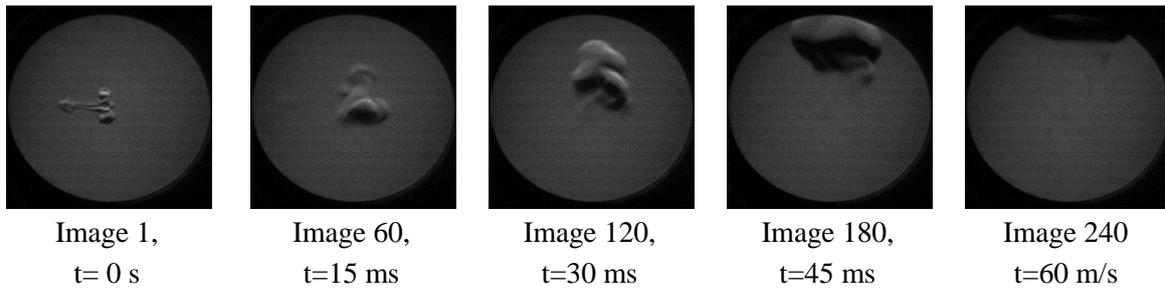


Figure 1-5 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 6,2% de G27 dans l'air, initialement à 2 bar et 303 K

Côté riche, lorsque le pourcentage de G27 dans l'air est fixé à 15,8% on observe une propagation préférentielle vers le haut puis qui s'étend ensuite à l'ensemble du gaz dans l'enceinte. Si ensuite ce pourcentage est augmenté jusqu'à 15,9% de G27 dans l'air, on note une propagation ascendante qui, elle ne se propage pas ensuite à l'ensemble de l'enceinte. Enfin, pour 16,1% de G27 dans l'air, on ne note pas d'inflammation du mélange gazeux : la perturbation initiale liée à l'énergie du laser se dissipe rapidement.

Le Tableau 1-1 montre les limites d'inflammabilité des mélanges G27/Air lorsque la pression initiale est fixée à 1 puis à 2 bar. On y voit que l'augmentation de la pression initiale résulte en une réduction du domaine d'inflammabilité. Ainsi, pour une pression initiale de 1 bar, la LII était de 5,7% et passait à 6,1% avec l'augmentation de la pression. Côté riche par contre, l'augmentation de pression n'influe pas la limite supérieure d'inflammabilité.

Pression	LII	LSI
1 bar	$5,7 \pm 0,01\%_{\text{mol}}$	$16,1 \pm 0,02\%_{\text{mol}}$
2 bar	$6,1 \pm 0,04\%_{\text{mol}}$	$16,1 \pm 0,09\%_{\text{mol}}$

Tableau 1-1 : Influence de la pression sur les limites d'inflammabilité du G27 dans l'air à température ambiante

2 Cas du G222

2.1 Les limites d'inflammabilité $P_{\text{ini}}=1$ bar, $T_{\text{ini}}=300$ K

Dans le cas du G222, lorsque la pression initiale et la température initiale sont fixées respectivement à 1 bar et 300 K, pour un pourcentage molaire de 4,5% de G222 dans l'air, on n'observe pas d'inflammation. Comme observé précédemment, la perturbation locale liée à l'inflammation se dissipe très rapidement comme on peut le voir sur la Figure 2-1. De même aucune augmentation de la pression dans l'enceinte n'est enregistrée. C'est ce que l'on observe sur la Figure 2-1 et la Figure 2-2

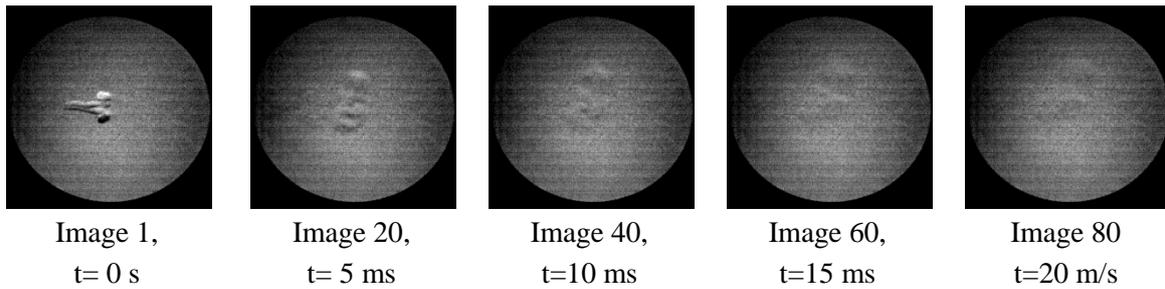


Figure 2-1 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une extinction. Le mélange est constitué de 4,5% de G222 dans l'air, initialement à 1 bar et 300 K

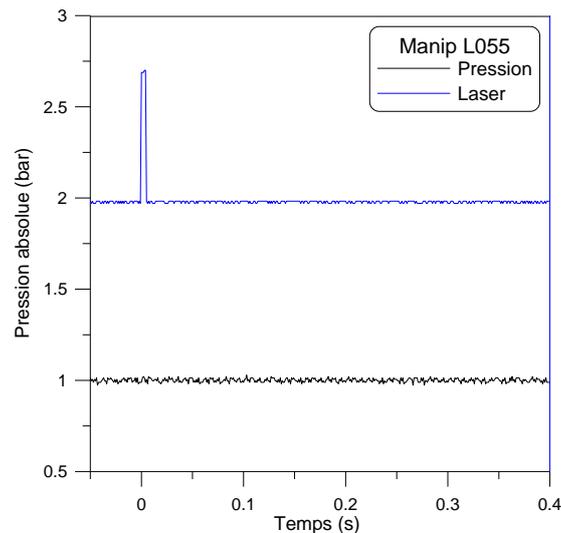


Figure 2-2 : Mesure de la pression dans l'enceinte pour une concentration initiale de 4,5% de G222 dans l'air, initialement à 1 bar et 300 K

Lorsque la teneur en G222 est fixée à 4,6%, comme on peut voir sur la Figure 2-3, l'inflammation mène à la formation d'un noyau de plus grande dimension que précédemment. Il est convecté vers la partie supérieure de l'enceinte sans que l'on note une augmentation de taille pour autant. L'enregistrement de la pression dans l'enceinte indique qu'il n'y a aucune variation de celle-ci (Figure 2-4).

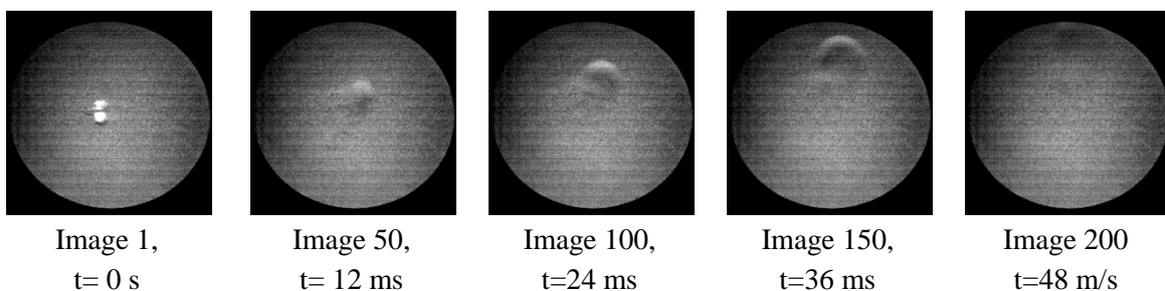


Figure 2-3 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 4,6% de G222 dans l'air, initialement à 1 bar et 300 K

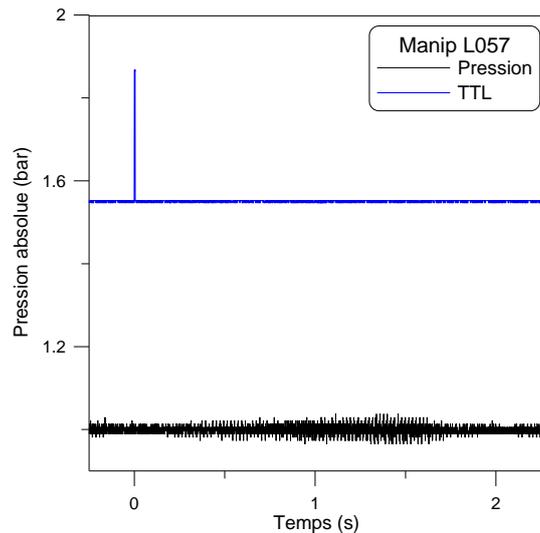


Figure 2-4 : Mesure de la pression dans l'enceinte pour une concentration initiale de 4,6% de G222 dans l'air, initialement à 1 bar et 300 K

On note néanmoins une augmentation de pression dans l'enceinte associée à une propagation ascendante lorsque la concentration initiale est de 5% de G222 dans l'air. Cette surpression est de 0,06 bar correspond à 1,3% de la surpression calculée dans le cas d'une combustion totale adiabatique à volume constant.

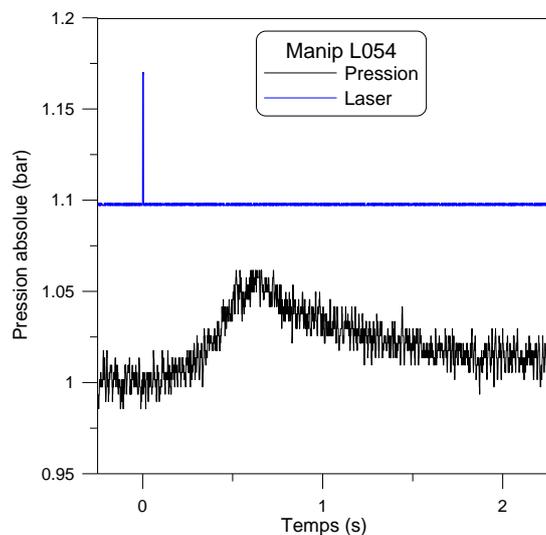


Figure 2-5 : Mesure de la pression dans l'enceinte pour une concentration initiale de 5% de G222 dans l'air, initialement à 1 bar et 300 K

Afin de déterminer la limite supérieure d'inflammabilité, des essais ont été réalisés pour des pourcentages molaires compris entre 16,8 et 17% de G222 dans l'air. Ainsi, si le mélange contient 16,8% de G222 dans l'air, on note la formation d'une flamme ascendante. Par contre, si la teneur en G222 est fixée à 17% dans l'air, alors, plus aucune flamme n'est obtenue dans le milieu, la perturbation initiale étant dissipée rapidement.

En conclusion, les limites d'inflammabilité mesurées au cours de cette étude sont de 4,5% pour ce qui est de la limite inférieure et de 17% pour ce qui est de la limite supérieure d'inflammabilité. Ces limites mesurées au cours de notre étude sont comparées à celles mesurées par Van den Schoor et al. [100] pour les mélanges CH₄/H₂ composés à 80% de méthane et à 20% d'hydrogène qui sont très proches du G222 en termes de composition. Deux méthodes ont été utilisées au cours de leur étude. La première consistait à enflammer le mélange dans un tube en verre, placé verticalement, à l'aide de deux électrodes. Ce tube, long de 300 mm présentait un diamètre interne de 60 mm. Les électrodes délivrent une énergie d'inflammation estimée à 2 J. Au cours de cette étude, une méthode visuelle a permis de caractériser la limite d'inflammabilité : les auteurs considéraient que l'inflammation a eu lieu si la flamme se propageait sur une distance de 100 mm. Une deuxième méthode en enceinte sphérique a été utilisée par les auteurs au cours de leurs expériences. Cette enceinte sphérique ne disposant pas d'accès optique, les auteurs se sont basés sur les mesures de pression dans l'enceinte pour caractériser la combustion. En effet, si la pression mesurée au cours de la combustion était supérieure à la 5% de la P_{AICC} ils en concluaient une combustion du mélange gazeux.

La première méthode se rapprochant le plus de notre méthode d'analyse, nous avons choisi de comparer nos résultats à ceux mesurés par Van den Schoor en tube. On note une différence significative entre les limites observées au cours de notre études et celles proposées par Van den Schoor et al. Le Tableau 2-1, regroupe nos résultats ainsi que ceux de la littérature qui se rapportent à des mélanges contenant 80%CH₄/20%H₂ proposés par Van den Schoor et al. [100] et par Wierzba et Ale [101], ainsi que ceux estimés selon la loi de Le Chatelier.

Auteur	Méthode	Mélange	LII	LSI
Cette étude	Visualisation en bombe sphérique	77%CH ₄ /23%H ₂	4,5	17
Van den Schoor et al. [100]	Visualisation en tube	80%CH ₄ /20%H ₂	4,2	19
Wierzba et Ale [101]	Visualisation en tube	80%CH ₄ /20%H ₂		18
Loi de Le Chatelier	Corrélation	77%CH ₄ /23%H ₂	4,5	18,4

Tableau 2-1 : Comparaison des limites d'inflammabilité du G222 avec les mélanges 80%CH₄/20%H₂ à 1 bar

Si la limite inférieure d'inflammabilité est en accord avec les limites de la littérature, on note cependant que la limite supérieure est inférieure à celle relevées dans la littérature. Une telle différence est certainement liée à l'énergie d'inflammation. En effet, si dans notre étude l'énergie minimale d'inflammation a été évaluée à des valeurs inférieures à 80 mJ, dans l'étude proposée par Van den Schoor cette énergie était estimée à 2 J (une valeur supérieure à celles que nous avons utilisées au cours de notre étude). Cette analyse pourrait aussi justifier

les légères différences observées côté pauvre dans le cas des limites inférieures d'inflammabilité.

2.2 Influence de la pression sur les limites d'inflammabilité

Des expériences ont été réalisées pour déterminer le domaine d'inflammabilité du G222 dans l'air à 2 bar et 303 K

Pour des teneurs en G222 inférieures à 4,9% dans l'air, le claquage du laser au sein du mélange gazeux ne donne naissance à aucune flamme. L'énergie déposée induit la formation d'une perturbation locale dissipée rapidement comme le montrent les enregistrements vidéo et dont une séquence est extraite (Figure 2-6). De même, les signaux de pression restent plats et confirment ainsi, l'absence de combustion, même partielle.

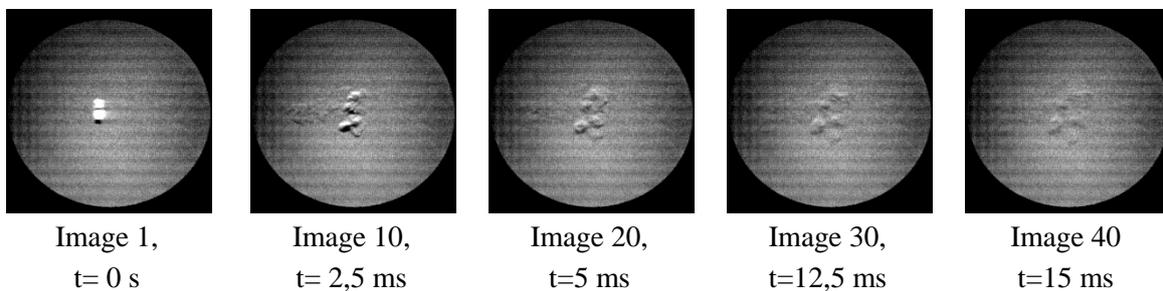


Figure 2-6 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une extinction. Le mélange est constitué de 4,8% de G222 dans l'air, initialement à 2 bar et 300 K

Lorsque la teneur en G222 est fixée à 4,9% dans l'air, le dépôt d'énergie donne naissance à un noyau initial qui croît très lentement tout en étant convecté dans la direction ascendante (Figure 2-8). Ainsi, à ce pourcentage molaire, une flamme ascendante est obtenue avec une vitesse de combustion tellement lente que la flamme doit atteindre le haut de l'enceinte sans avoir eu le temps de consommer un volume de gaz frais significatif. En effet le suivi de la pression dans l'enceinte n'indique aucune augmentation de cette dernière. Ce régime est observé jusqu'à 5,1% de G222 dans l'air. En effet, ce n'est que lorsque le pourcentage molaire atteint 5,3% dans l'air que l'on note une surpression au sein de l'enceinte suite à la propagation d'une flamme ascendante. Dans ce cas, le maximum de pression est de 2,12 bar et correspond à une surpression qui représente 1,5% de la surpression théorique (Figure 2-8)

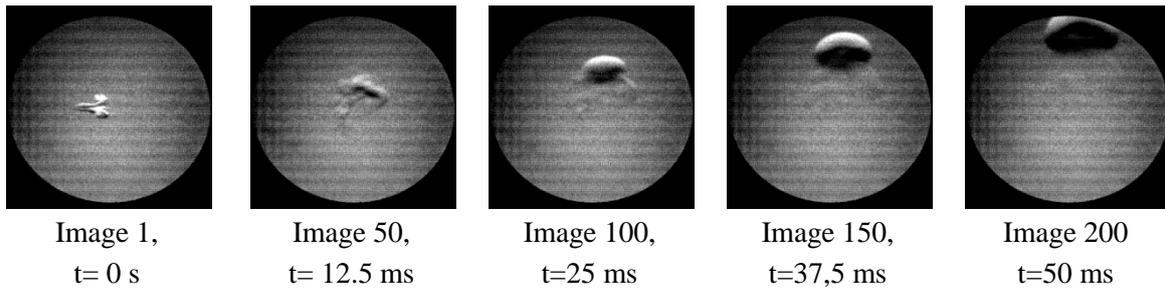


Figure 2-7 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 4,9% de G222 dans l'air, initialement à 2 bar et 300 K

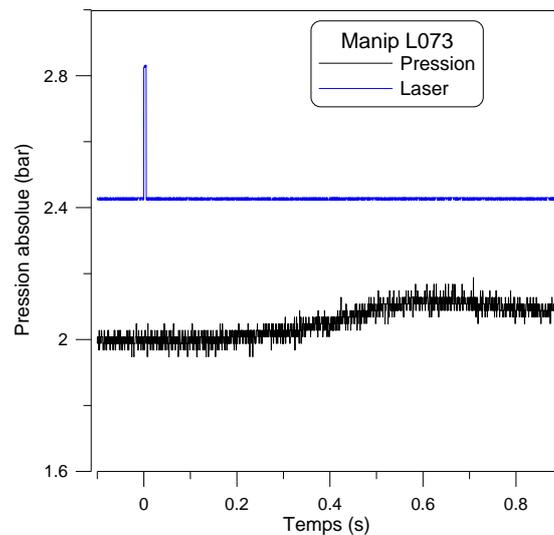


Figure 2-8 : Evolution de la pression enregistrée pour un mélange constitué de 5,3% de G222 dans l'air initialement à 2 bar et 300 K

Côté riche, on observe une propagation ascendante pour un pourcentage molaire de G222 dans l'air de 16,7%. Lorsqu'on augmente ce pourcentage, qui passe à 17,6%, on n'observe pas de propagation de flamme et comme pour la limite inférieure d'inflammabilité, on note que le signal de pression reste plat au cours de l'enregistrement. Il n'y a donc pas de combustion et la limite supérieure d'inflammabilité du G222 pour une pression initiale de 2 bars à température ambiante est donc de 17,6% de G222 dans l'air.

La comparaison avec les limites mesurées à 1 bar montre que l'augmentation de la pression initiale induit un déplacement du domaine d'inflammabilité. Ce déplacement est caractérisé par une limite inférieure d'inflammabilité qui passe de 4,5% à 4,8% de G222 dans l'air, pour une pression initiale de 1, puis 2 bars respectivement. Pour ce qui est de la limite supérieure, elle passe de 17% à 17,6% côté riche pour des pressions initiales respectives de 1 et 2 bars.

Pression	LII	LSI
1 bar	$4,5 \pm 0,01\%_{\text{mol}}$	$17 \pm 0,02\%_{\text{mol}}$
2 bar	$4,8 \pm 0,03\%_{\text{mol}}$	$17,6 \pm 0,1\%_{\text{mol}}$

Tableau 2-2 : Limites d'inflammabilité du G222 à 1 et 2 bar.

3 Cas du mélange H₂/CO

3.1 Limites d'inflammabilité à P=1 bar et T=300 K

Lorsque l'énergie apportée par le laser est déposée au centre de la sphère, deux régimes sont obtenus selon le pourcentage molaire du combustible dans l'air.

- Pour des teneurs inférieures ou égales à 6,1% de 0,5H₂/0,5CO dans l'air, l'initiation induit la formation d'un noyau de produits de combustion qui s'éteint au bout de quelques mm de distance. (Figure 3-1). Cette zone de combustion s'éteignant très rapidement, aucune élévation de pression n'est enregistrée par le capteur de pression (Figure 3-2)

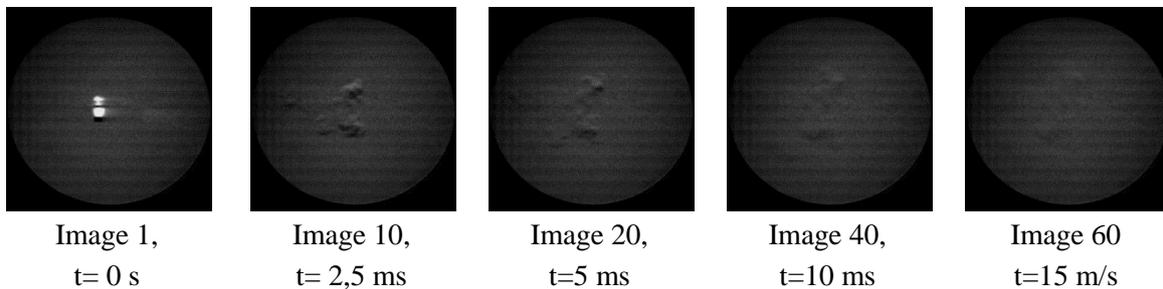


Figure 3-1 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une extinction. Le mélange est constitué de 6,1% de H₂/CO dans l'air initialement à 1 bar et 300 K

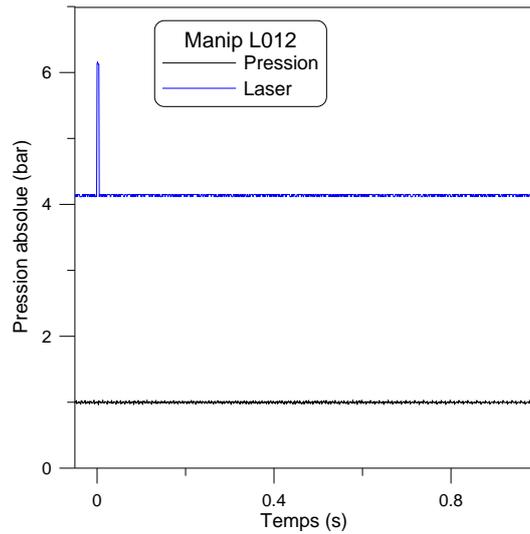


Figure 3-2 : Signal de pression plat pour un mélange constitué de 6,1% de {0,5H₂/0,5CO} dans l'air

- Lorsque le pourcentage molaire de H₂/CO atteint la valeur de 6,4%, le noyau initial issu de l'interaction laser mélange gazeux donne naissance à une flamme de forme oblongue qui se propage vers le haut de l'enceinte (Figure 3-3), le volume de gaz brûlés augmente très lentement si bien que la flamme atteint le haut de l'enceinte et s'éteint sans avoir consommé une quantité suffisante de gaz brûlés pour générer une élévation de pression mesurable. Le signal de pression reste constant et égal à la pression initiale.

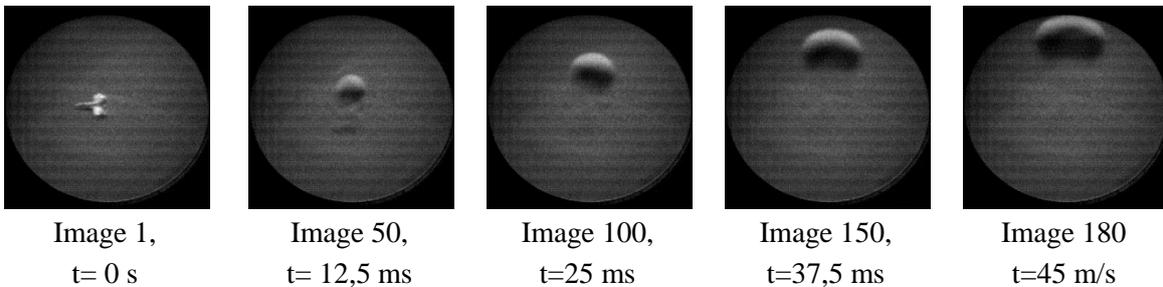


Figure 3-3 : Visualisation de l'inflammation suivie d'une propagation ascendante. Le mélange est constitué de 6,4% de H₂/CO dans l'air initialement à 1 bar et 300 K

- Enfin, lorsque le pourcentage molaire du mélange H₂/CO atteint 7,3%, la flamme initiée se propage dans la direction ascendante avec une vitesse de consommation de gaz brûlés suffisamment importante pour induire une augmentation de vitesse significative de la pression au sein de l'enceinte. En effet, comme on peut le voir sur la Figure 3-4, on note une surpression de 0,05 bar correspondant à 1,8% de la surpression calculée dans le cas d'une combustion idéale.

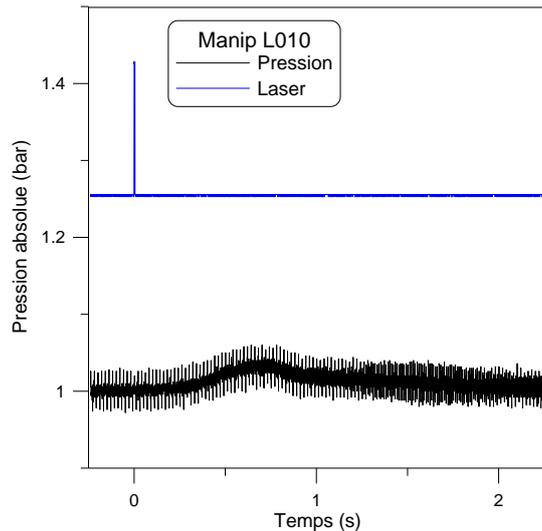


Figure 3-4 : Evolution de la pression pour un mélange constitué de 7,3% de {0,5H₂/0,5CO} dans l'air

Pour la détermination de la limite supérieure d'inflammabilité, différents essais ont été menés pour des pourcentages molaires en H₂/CO supérieurs à 70%. Ainsi, lorsque la teneur en H₂/CO est de 70,3%, l'inflammation suite à l'impulsion laser est suivie de la propagation d'une flamme avec une direction ascendante privilégiée avec une combustion totale puisque la surpression totale correspond à 90% de la surpression dans le cas d'une combustion idéale. Enfin, plus aucune combustion n'a lieu lorsque la teneur initiale est portée à 71,2% de H₂/CO dans l'air.

Ces limites mesurées au cours de notre étude sont confrontées à celle de Wierzba et Kilchyk [102]. Leur étude a été réalisée dans un tube cylindrique de 1 m de long. Leurs mélanges sont préparés à l'aide de la méthode des pressions partielles puis enflammés à l'aide d'une décharge électrique entre deux électrodes. Le Tableau 3-1 illustre cette comparaison qui a été étendue à la loi de Le Châtelier sur les limites d'inflammabilité sur la base des limites individuelles des deux gaz composants le mélange.

	Cette étude	Wierzba et Kilchyk [102]	Loi de Le Chatelier
LII % _{mol}	6,1	5,7	6
LSI% _{mol}	71,2	73,5	75

Tableau 3-1 : Comparaison des limites d'inflammabilité du H₂/CO avec la littérature à 1 bar 300 K

Comme dans le cas du G222, on note un domaine d'inflammabilité réduit dans le cas de notre étude en comparaison aux limites proposées par Wierzba et Kilchyk. Il faut noter que dans leur étude, Wierzba et Kilchyk ont réalisé des mesures avec de l'air humide. La présence de vapeur d'eau, en faible teneur peut modifier considérablement l'initiation de la combustion. De plus, le temps de résidence est un autre facteur qui modifie la valeur de la limite d'inflammabilité. Enfin, l'énergie d'inflammation qui peut être sensiblement différente, mais sur ce dernier point, aucune valeur n'a été donnée dans leur article.

3.2 Effet de la pression sur les limites d'inflammabilité du H₂/CO

Dans cette partie, les limites d'inflammabilité du mélange {0,5H₂/0,5CO} ont été mesurées pour une pression initiale fixée à 2 bars et une température initiale de 300 K.

Pour un pourcentage molaire initial de 6,2% de H₂/CO dans l'air, à l'inflammation, on observe une perturbation initiale qui se dissipe très vite dans le milieu. Les relevés de pression n'indiquent pas d'augmentation de pression dans l'enceinte au cours de l'opération : le mélange initial ne s'est pas enflammé. Les images de l'évolution de la flamme au sein de l'enceinte sont présentées sur la Figure 3-5

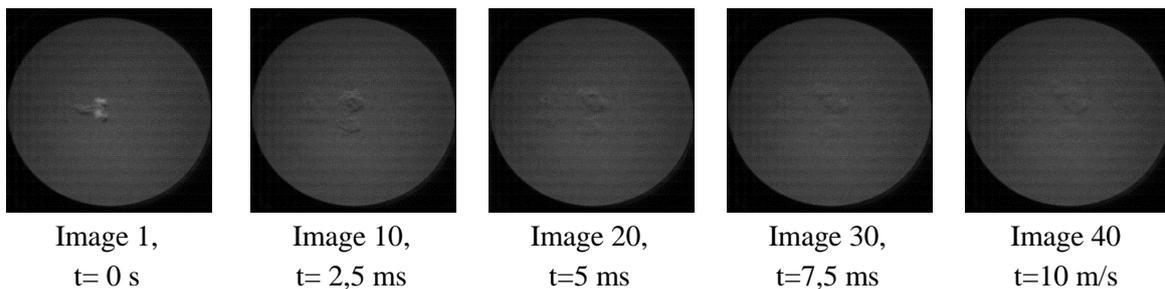


Figure 3-5 : Observation dans l'enceinte après inflammation pour 6,2% de H₂/CO

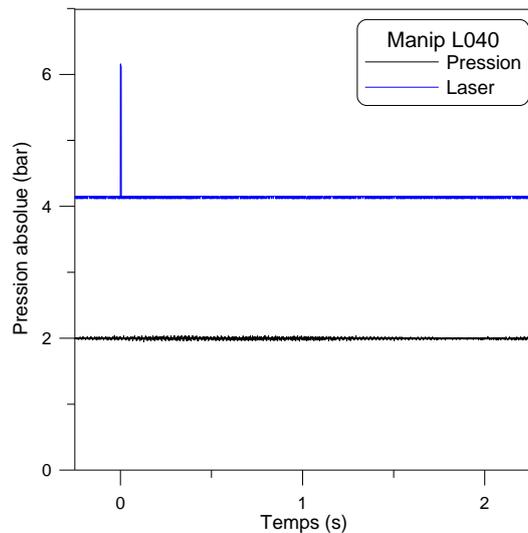


Figure 3-6 : Evolution de la pression au sein de l'enceinte pour 6,2% de H₂/CO

Lorsqu'ensuite la concentration initiale est fixée à 6,6% de H₂/CO dans l'air, après l'inflammation, on observe une propagation ascendante (Figure 3-7) sans toutefois observer d'augmentation de pression dans l'enceinte au cours de la propagation. Il s'agit de la limite inférieure d'inflammabilité.

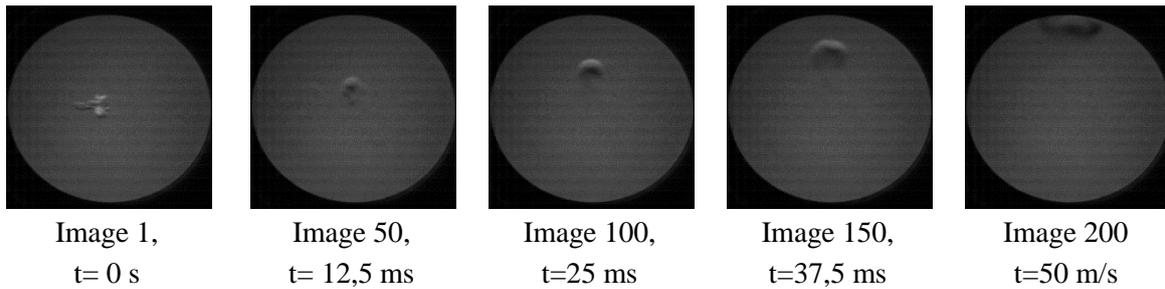


Figure 3-7 : Evolution de la flamme pour 6,6% de H₂/CO dans l'air.

Côté riche, lorsque la concentration initiale était de 70,4% de H₂/CO dans l'air, on note une propagation plus ou moins sphérique de flamme au sein de l'enceinte. Si cette concentration passe ensuite à 71,1% de H₂/CO dans l'air, la flamme ne se propage plus dans le milieu et le signal de pression reste plat. Il s'agit de la limite supérieure d'inflammabilité des mélanges H₂/CO Air pour une pression initiale de 2 bars.

En conclusion, l'augmentation de la pression initiale se traduit, dans le cas du mélange H₂/CO, par le même effet que pour les mélanges G222/air pour ce qui est de la limite inférieure d'inflammabilité. En effet note que cette limite passe de 6,4% à 6,6% lorsque la pression initiale est successivement fixée à 1 et 2 bars. Par ailleurs, en ce qui concerne la limite supérieure d'inflammabilité, on note ici aussi, une augmentation de cette limite qui passe de 70,3% de H₂/CO dans l'air, pour une pression initiale de 1 bar, à 71,1% pour une pression initiale de 2 bars. Globalement, on note un déplacement du domaine d'inflammabilité caractérisé par des limites d'inflammabilité plus élevées avec l'augmentation de la pression initiale.

Pression	LII	LSI
1 bar	6,4±0,01% _{mol}	70,3±0,02% _{mol}
2 bar	6,6±0,04% _{mol}	71,1±0,4% _{mol}

Tableau 3-2 : Limites d'inflammabilité du H₂/CO à 1 et 2 bar

4 Conclusion

L'objet de ce chapitre était la détermination des limites d'inflammabilité des mélanges G27/Air, G222/Air, et H₂/CO/Air à 303K pour des pressions initiales de 1 et 2 bars.

S'agissant du G27, pour une pression initiale fixée à 1 bar, la limite inférieure d'inflammabilité mesurée est de 5,7% de G27 dans l'air tandis que, la limite supérieure d'inflammabilité est de 16,1% de G27 dans l'air. L'augmentation de la pression initiale, fixée par la suite à 2 bar, conduit à une augmentation de limite d'inflammabilité côté pauvre (elle passe de 5,7% à 1 bar à 6,1% à 2 bar). Côté riche, l'augmentation de la pression initiale n'affectait pas la limite supérieure d'inflammabilité.

En ce qui concerne le G222, pour une pression initiale de 1 bar, la LII était de 4,5% de G222 dans l'air tandis que la LSI était de 17% de G222 dans l'air. Ces limites ont été comparées avec les données présentes dans la littérature concernant des mélanges 80%CH₄/20%H₂. Un bon accord est obtenu dans le cas de la LII contrairement à la LSI pour laquelle les résultats divergent selon les auteurs. Lorsque la pression initiale augmente, on note un déplacement du domaine d'inflammation qui passe de 4,5-17% à 4,8-17,6%.

Enfin, les limites d'inflammabilité du mélange 0,5H₂/0,5CO à 1 bar et 300 K ont été mesurées et sont de 6,1% pour la LII et de 71,2% pour la LSI. Les limites proposées par Wierzba et al. [102] en ce qui concerne le même mélange indiquent un domaine d'inflammabilité plus large. Ceci pourrait être lié à l'énergie déposée lors de l'inflammation. L'augmentation de la pression initiale conduit à un déplacement du domaine d'inflammation qui passe de 6,4-70,3% à 6,6-71,1%.

L'énergie fournie par l'impulsion est au maximum de 80 mJ. Lorsque la limite d'inflammabilité est atteinte, pour tous les mélanges étudiés, une combustion locale est initiée et qui ne dure que le temps nécessaire à l'énergie initiale pour se dissiper. Ainsi, il semble que l'énergie d'inflammation du laser était raisonnablement suffisante pour la détermination des limites d'inflammabilités.

Chapitre IV. : Etude des Flammes Laminaires

L'objectif de ce chapitre est de présenter les résultats de l'étude réalisée dans la bombe sphérique concernant les propriétés laminaires des trois mélanges choisis à l'issue de la bibliographie.

Il s'agit ici de déterminer les paramètres fondamentaux, notamment la vitesse de flamme laminaire, les longueurs de Markstein et l'énergie d'activation globale. Cette dernière n'étant accessible que par l'intermédiaire d'une modélisation cinétique. Ces paramètres, comme cela a été vu dans la littérature, sont déterminants en ce qui concerne l'évaluation d'une limite d'accélération de flamme.

Au cours de ce travail, les vitesses fondamentales de flamme et les longueurs de Markstein des différents mélanges ont été mesurées à différentes températures (303, 333, 363 K) et à deux pressions (1 et 2 bar). Une modélisation cinétique détaillée sera réalisée afin de choisir un modèle cinétique sur lequel sera basé le calcul de l'énergie d'activation.

Différents modèles de la littérature seront utilisés pour simuler les vitesses fondamentales de flamme mesurées expérimentalement. Cette comparaison permettra de choisir le modèle cinétique le plus performant sur l'ensemble du domaine étudié afin de l'utiliser pour estimer l'énergie d'activation dans le cas où la vitesse de combustion est supposée être représentée par une seule réaction globale.

1 Cas du G27 (82%CH₄+18%N₂)

1.1 Les vitesses fondamentales de flamme

1.1.1 La vitesse de flamme à pression et à température ambiante.

Les vitesses de flamme ont été mesurées dans le cas du G27 pour une pression de 1 bar et une température de 303K. Les valeurs de la vitesse fondamentale de flamme ont été déduites de la mesure des vitesses de propagation spatiale puis de la prise en compte de l'effet de l'étirement comme nous l'avons mentionné. L'erreur moyenne est de 4%.

La vitesse fondamentale de flamme évolue en fonction du rapport d'équivalence selon une courbe en cloche comme on peut le voir sur la Figure 1-1.

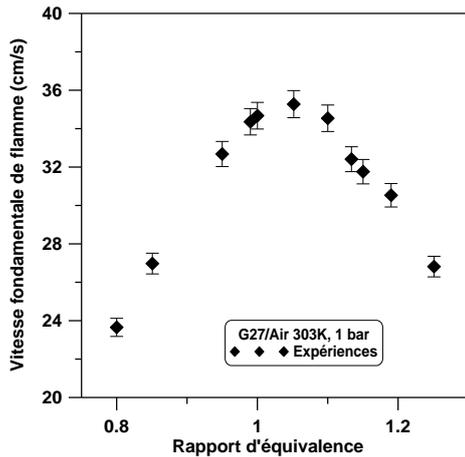


Figure 1-1 : Vitesse fondamentale de flamme du G27 en fonction du rapport d'équivalence à 1 bar et 303 K

La vitesse de flamme atteint la valeur maximale de 35 cm/s pour un rapport d'équivalence de 1,05. Aucune mesure n'a été réalisée en dessous d'un rapport d'équivalence de 0,8 car dès 0,7 la flamme présente des plissements rendant la mesure impossible. De même, les mesures côté riche ont été limitées à des rapports d'équivalence inférieurs ou égaux à 1,25 car aucune inflammation n'a été possible.

Devant l'absence de données de la littérature concernant la mesure de la vitesse de flamme dans le cas du G27, nous comparerons les vitesses du G27 à celles du méthane, étant donné que le G27 est composé à 82% de méthane et à 18% d'azote. On peut noter sur la Figure 1-2, que les vitesses mesurées pour le G27 dans le cadre de notre étude restent inférieures à celles mesurées dans la littérature sur les mélanges méthane/air par Gu et al. [58], Hassan et al. [62], Bradley et al. [96], Tahtouh et al. [103], Coppens et al. [104]. Cela est dû à la baisse de la température résultant de la dilution en azote pour un même rapport d'équivalence et entraînant une baisse du taux d'oxydation dans le cas du G27.

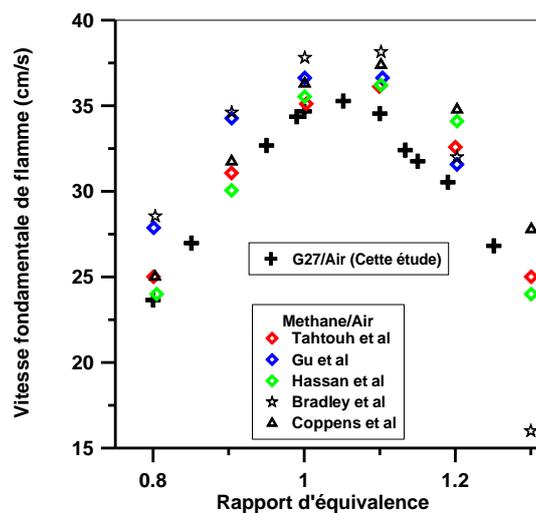


Figure 1-2 : Vitesse fondamentale de flamme du G27 en fonction du rapport d'équivalence et comparaison avec la littérature

1.1.2 Effet de la température sur la vitesse de flamme

Dans cette partie l'effet de la température sur les vitesses de flamme a été étudié. Dans un premier temps, des mesures de vitesse de flamme ont été réalisées pour une température initiale de 333 K et les résultats sont présentés sur la Figure 1-3. On note que, comme pour les mélanges à 303 K, la vitesse fondamentale suit une évolution en forme de cloche en fonction du rapport d'équivalence. La vitesse maximale mesurée ici est de 41 cm/s pour un rapport d'équivalence de 1,05. Au-delà de ce dernier, la vitesse fondamentale décroît avec l'augmentation du rapport d'équivalence. Globalement, avec l'augmentation de la température, la vitesse fondamentale mesurée augmente sur le tout le domaine de rapport d'équivalence. De plus le rapport d'équivalence minimal pour laquelle la mesure de vitesse de flamme était possible passe de 0,8 pour 303 K à 0,7 pour 333 K, tandis que le rapport d'équivalence pour lequel la vitesse est maximale reste inchangé.

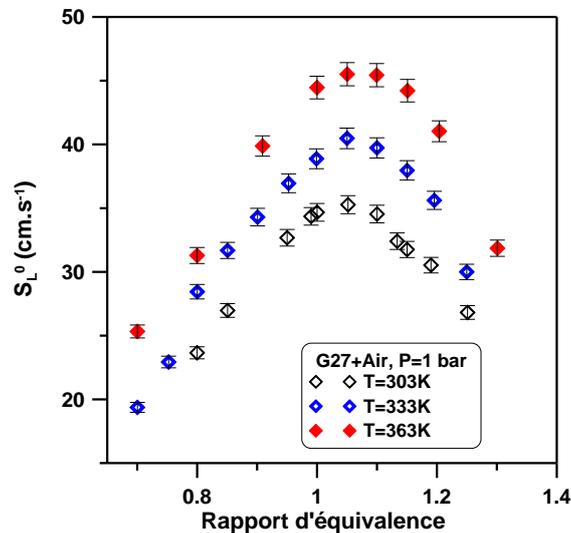


Figure 1-3: Vitesse de flamme des mélanges G27/Air en fonction du rapport d'équivalence initialement à 1 bar et trois températures initiales

Une troisième série d'essais a été réalisée avec une température initiale de 363 K. On note que cette nouvelle augmentation de la température initiale résulte, ici aussi, en l'augmentation de la vitesse fondamentale sur tout le domaine de rapport d'équivalence étudié tout en conservant l'allure de la courbe. La vitesse maximale de 46 cm/s est observée pour un rapport d'équivalence de 1,05 comme pour les deux autres températures initiales et est suivie d'une décroissance de la vitesse fondamentale de flamme avec l'augmentation supplémentaire du rapport d'équivalence. Comme précédemment, l'augmentation de la température initiale résulte en une extension du domaine de mesure des vitesses fondamentales de flamme. Celui-ci passe ainsi de 0,7-1,25 à 333 K à 0,7-1,3 à 363 K. En effet, avec l'augmentation de la température, il a été possible d'enflammer le mélange gazeux lorsque le rapport d'équivalence était supérieur à 1,25.

Enfin on peut conclure que l'augmentation de la température résulte en l'augmentation de la vitesse sur le domaine de rapport d'équivalence étudié mais n'affecte pas le rapport d'équivalence pour laquelle la vitesse maximale est mesurée.

1.1.3 Influence de la pression sur les vitesses de flamme des mélanges G27/Air

L'effet de la pression initiale a été étudié en mesurant les vitesses fondamentales de flamme pour une pression de 2 bars et une température fixée à 303 K. On note toujours l'évolution caractéristique en forme de cloche. En effet, la vitesse de flamme augmente puis atteint un maximum de 28 cm/s pour un rapport d'équivalence de 1,05 avant de décroître avec l'augmentation du rapport d'équivalence. Sur l'ensemble du domaine, l'augmentation de la pression initiale résulte en une diminution de la vitesse de flamme. L'augmentation de la pression ne modifie pas le domaine de mesure des vitesses fondamentales de flamme. On note toutefois, côté pauvre, l'apparition d'instabilités pour des rapports d'équivalence inférieurs à 0,8, qui ne permettent pas la détermination de la vitesse fondamentale de flamme.

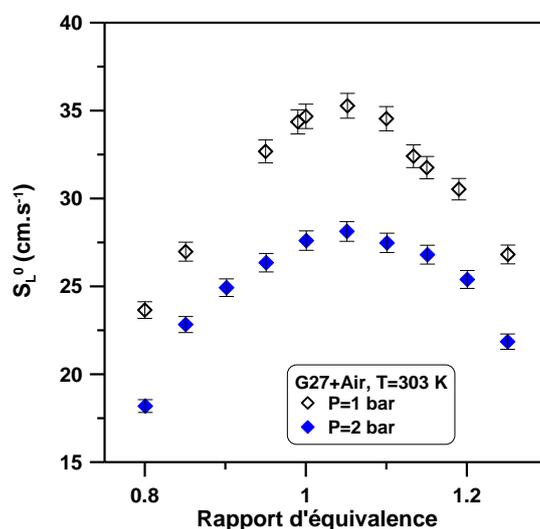


Figure 1-4: Vitesse de flamme des mélanges G27/Air en fonction du rapport d'équivalence initialement à 303 K et deux pressions initiales

L'étude des vitesses de flammes a permis de proposer une expression de la vitesse de flamme du G27 en fonction de la température et de la pression du mélange pour des domaines de températures compris entre 303 K et 393 K et 1 et 2 bar :

$$\forall \begin{cases} \phi \in [0,8; 1,25] \\ T \in [303; 363] \\ P \in [1; 2] \end{cases}, S_L^0(\phi, T, P) = (-150,5\phi^2 + 314,9\phi - 130,8) \left(\frac{T}{T_{ref}}\right)^{1,61} \left(\frac{P}{P_{ref}}\right)^{-0,3} \quad \text{Eq. 47}$$

Avec $T_{ref} = 303\text{K}$ et $P_{ref}=1$ bar.

Cette expression de la vitesse est comparée à l'expression proposée par Gu et al. [58] concernant les flammes de mélange méthane/air à la stœchiométrie. Il en ressort un excellent

accord en ce qui concerne l'influence de la température sur la vitesse de flamme. En effet le coefficient d'évolution de la température est de 1,612 selon Gu et al. et de 1,61 dans le cas de nos expériences. En ce qui concerne l'influence de la pression, nous notons un moins bon accord. Le coefficient de la température tel que proposé par Gu et al est de -0,374 et de -0,3 dans le cas de nos expérience. Cet écart pourrait provenir du fait que la corrélation proposée par Gu et al. a été validée sur une gamme de pression beaucoup plus importante que la notre (1 à 10 bars). Toutefois, l'étude de Gu et al. semble indiquer que la baisse de vitesse liée à l'augmentation de la pression est plus importante loin de la stœchiométrie (coefficients de -0,5 pour une richesse de 0,8 et de -0,44 pour une richesse de 1,2).

1.2 Les longueurs de Markstein

1.2.1 Les longueurs de Markstein pour une pression et température ambiantes

Les longueurs de Markstein (L') ont été évaluées pour les mélanges G27/Air sur la base du développement asymptotique. Elles traduisent la susceptibilité de la flamme à réagir à un étirement par une accélération ou au contraire une décélération. Les résultats obtenus lorsque les essais sont réalisés à 1 bar et 300 K sont reportés sur la Figure 1-5. Les longueurs de Markstein augmentent avec le rapport d'équivalence passant de 0,05 à 0,27 cm. Les valeurs positives de ces longueurs indiquent bien que la flamme est stable vis-à-vis des instabilités thermo-diffusives confirmées par l'absence de création de cellules lors des essais expérimentaux.

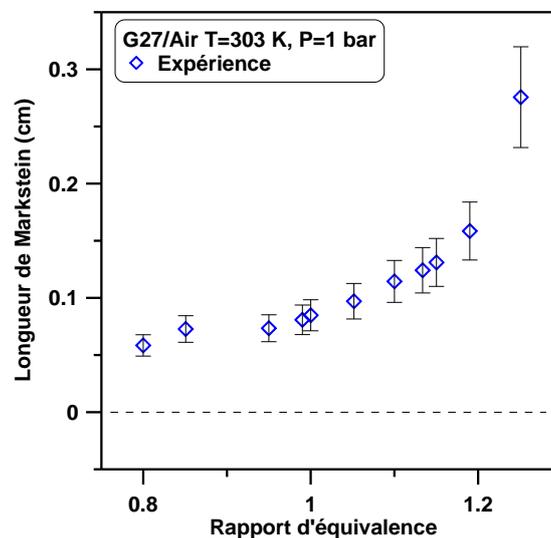


Figure 1-5: Longueurs de Markstein en fonction du rapport d'équivalence pour le G27/Air

Ces longueurs de Markstein mesurées sont comparées aux valeurs de la littérature sur les flammes de méthane proposées par Gu et al. [58], Tahtouh et al. [103], et Bradley et al. [96]. On note un bon accord entre nos expériences et les valeurs proposées dans la littérature

sur les longueurs de Markstein. La présence d'une faible quantité d'azote n'a donc pas modifié les longueurs de Markstein d'une manière significative.

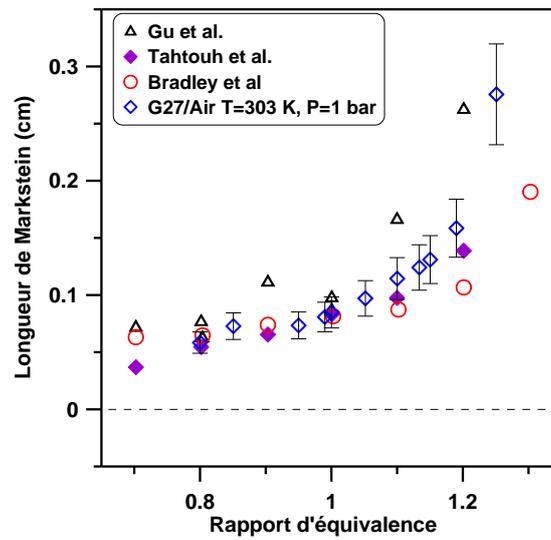


Figure 1-6 : Comparaison des longueurs de Markstein en fonction du rapport d'équivalence des mélanges G27/Air avec la littérature pour les mélanges méthane/air [58, 96, 103]

1.2.2 Effet de la température sur les longueurs de Markstein

L'effet de la température sur les longueurs de Markstein des mélanges G27/Air a été analysé dans cette partie (Figure 1-7).

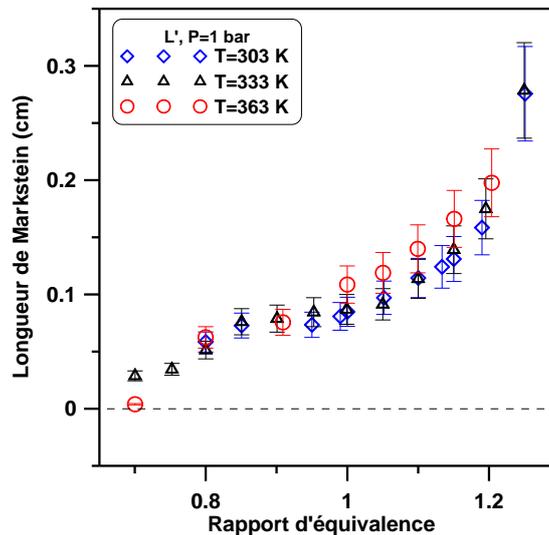


Figure 1-7: Evolution des longueurs de Markstein en fonction du rapport d'équivalence pour les mélanges G27/Air initialement à 1 bar et différentes températures initiales

Comme on peut le voir sur la Figure 1-7 lorsque la température initiale passe de 303 K à 333 K, de façon globale, on note une légère augmentation de la longueur de Markstein qui traduit une augmentation de la stabilité de la flamme. Le même constat peut être réalisé lorsque la température initiale passe de 333 K à 363 K. Ainsi, l'augmentation de la température initiale ne modifie pas d'une manière significative les longueurs de Markstein.

1.2.3 Effet de la pression sur les longueurs de Markstein des mélanges G27/Air

La Figure 1-8 présente l'effet de l'augmentation de la pression sur les longueurs de Markstein. Globalement, lorsque la pression initiale passe de 1 à 2 bars, le nombre Markstein baisse légèrement sur l'ensemble du domaine de rapport d'équivalence étudié tout en restant positif. Cet abaissement est plus marqué dans le cas des mélanges riches.

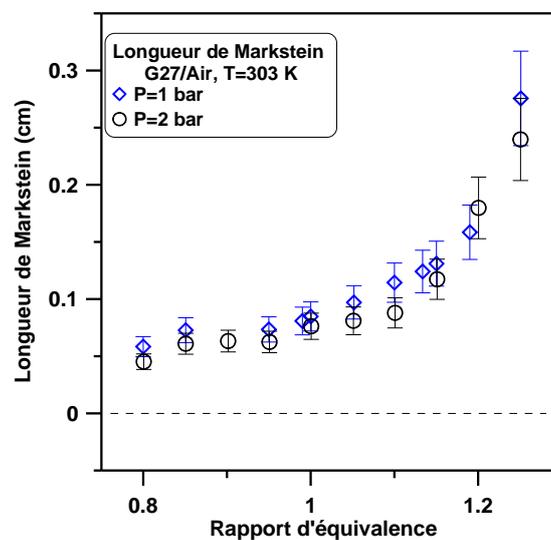


Figure 1-8: Evolution des longueurs de Markstein en fonction du rapport d'équivalence pour les mélanges G27/Air initialement à 303 K à deux pressions initiales

1.3 Explosivité des mélanges G27/Air

1.3.1 Les pressions maximales de combustion des mélanges G27/Air

Les pressions maximales de combustion ont été mesurées pour les mélanges G27/Air au cours de nos expériences. Sur la Figure 1-9, nous avons représenté les pressions maximales mesurées au cours de la combustion du G27 à 1 bar et 303 K. On note une augmentation, avec le rapport d'équivalence, de la pression maximale mesurée jusqu'à une valeur maximale de 8 bars pour un rapport d'équivalence de 1,1. Si l'évolution de la pression mesurée dans l'enceinte est comparable à celle de la P_{AICC} calculée, on constate cependant que la pression mesurée est systématiquement inférieure à celle correspondant à une condition adiabatique à volume constant. Cet écart représenté sur la Figure 1-10, est généralement compris entre 4 et 8% de la P_{AICC} . Cet écart n'est pas dû à une combustion qui serait incomplète mais

probablement à 2 phénomènes qui contribuent à la sous-estimation de la pression au sein de l'enceinte.

- Lors de la propagation de la flamme les gaz frais sont aussi comprimés et voient leur température augmentée. Cette augmentation en fin de combustion serait suffisamment importante pour induire un abaissement du signal dû à l'échauffement du capteur.
- Les pertes aux parois sont responsables d'un refroidissement des gaz brûlés limitant ainsi la pression maximale atteinte en fin de combustion.

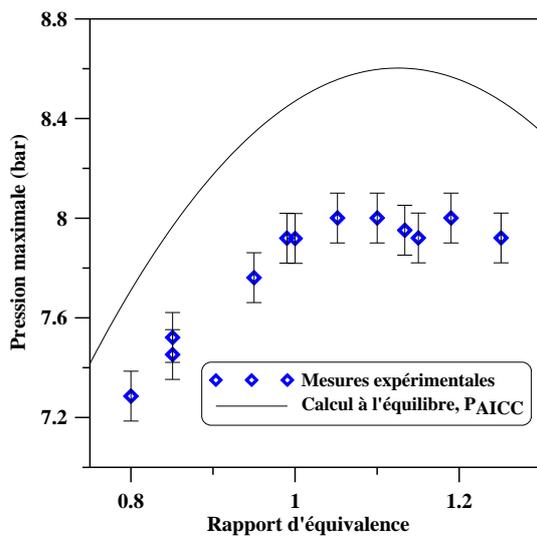


Figure 1-9 : Pression maximales de combustion des mélanges G27/air à température ambiante et 1 bar

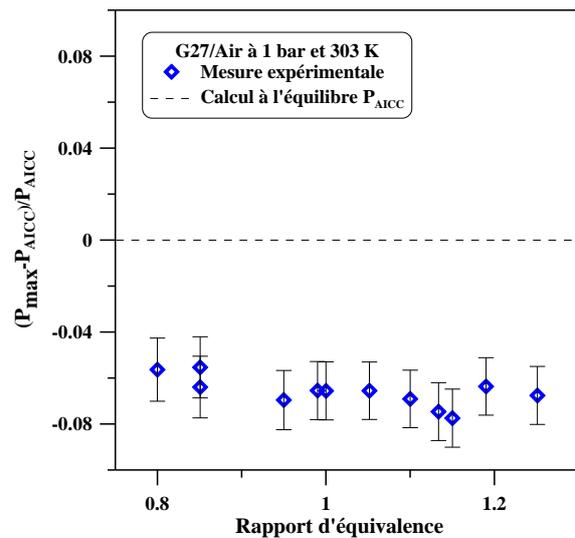


Figure 1-10 : Evolution de l'écart entre pression maximale et mesure de la P_{AICC}

L'effet de l'augmentation de la température initiale sur les pressions maximales de combustion mesurées ont-elles aussi été investiguées et sont présentées sur la Figure 1-11. On y remarque, tout d'abord que l'augmentation de la température initiale ne modifie pas l'allure de la courbe de la pression maximale mesurée en fonction de la température. Ainsi, lorsque la température initiale est fixée à 333 K ; la pression mesurée augmente en même temps que le rapport d'équivalence pour atteindre une valeur maximale de 7,5 bars pour un rapport d'équivalence de 1,1. S'en suit une baisse de la pression avec l'augmentation du rapport d'équivalence. Lorsque la température initiale est ensuite fixée à 363 K, on note un même comportement de la courbe de pression. Le maximum de pression mesuré est de 7 bars pour un rapport d'équivalence de 1,05. Enfin, globalement on observe que la courbe du maximum de pression décroît avec l'augmentation de la température initiale. Cette décroissance est liée à la baisse de la masse volumique du mélange G27/Air lorsque la température initiale augmente. Par ailleurs, la Figure 1-12 montre que la sous-estimation de la pression idéale par la pression mesurée diminue avec l'augmentation de la température. En effet, lorsque la température initiale est fixée à 333 K, la pression mesurée est comprise entre 93 et 96,5% de la P_{AICC} tandis que lorsqu'elle est fixée à 363 K, la pression mesurée est comprise entre 93 et 97% de la P_{AICC}.

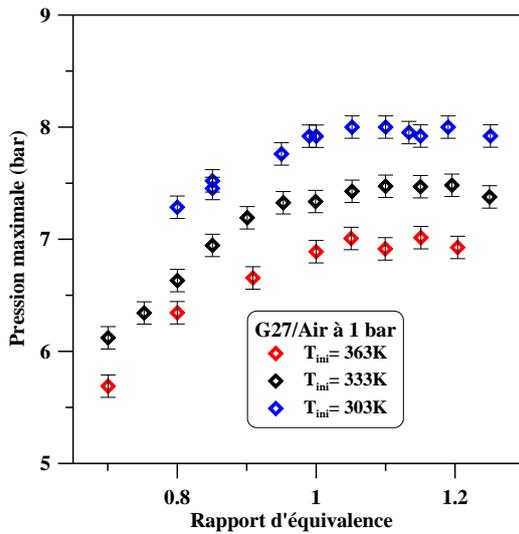


Figure 1-11 : Evolution de la pression maximale mesurée en fonction du rapport d'équivalence pour différentes températures initiales

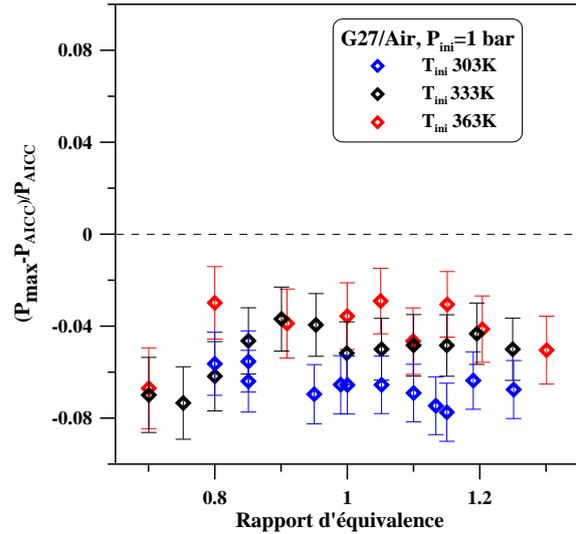


Figure 1-12 : Evolution de l'écart entre pression maximale et mesure de la P_{AICC} pour différentes températures initiales

1.3.2 Indice de déflagration et vitesse maximale de montée en pression

A partir de la méthode présentée au troisième chapitre sur les mesures de pression dans l'enceinte de combustion la vitesse maximale de montée en pression $\left(\frac{dP}{dt}\right)_{max}$ en fonction du rapport d'équivalence a été déterminée (Figure 1-13) pour les trois températures initiales investiguées. Sur la Figure 1-14, l'indice de déflagration $Kg = \left(\frac{dP}{dt}\right)_{max} * V^{\frac{1}{3}}$ (V le volume de l'enceinte) est représenté en fonction de la richesse. On y remarque notamment une évolution en cloche de la courbe en fonction du rapport d'équivalence. Elle est caractérisée par une augmentation rapide dans un premier temps jusqu'à une valeur maximale suivie d'une décroissance à mesure que le rapport d'équivalence augmente quelle que soit la température initiale.

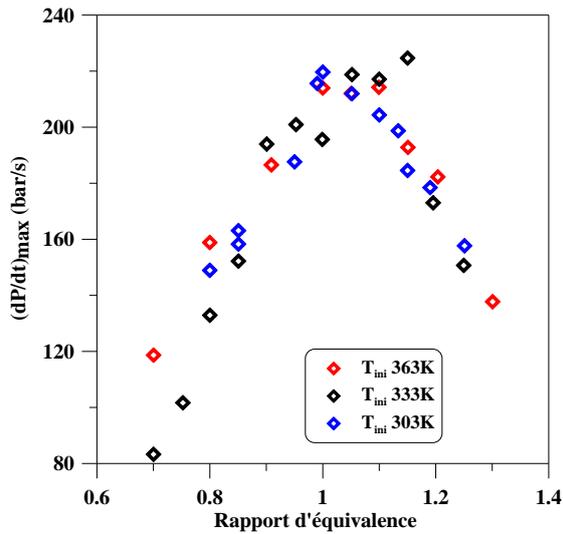


Figure 1-13 : Evolution de la vitesse de montée en pression en fonction du rapport d'équivalence pour les mélanges G27/Air à différentes températures initiales

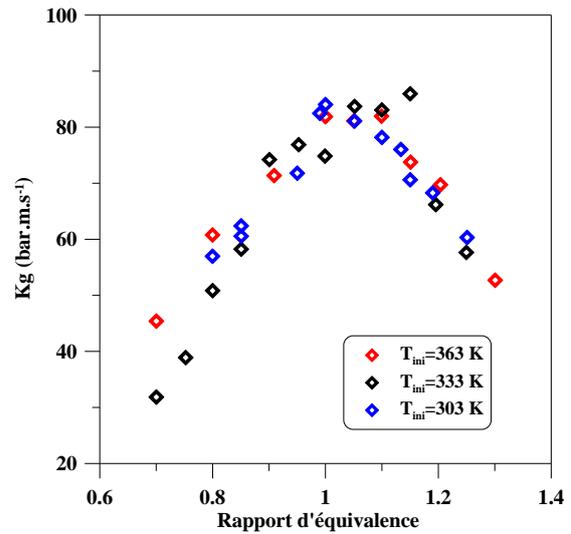


Figure 1-14 : Evolution de l'indice de déflagration (Kg) en fonction du rapport d'équivalence pour les mélanges G27/Air à différentes températures initiales

Lorsque la température initiale est fixée à 303 K, le maximum de la courbe de $\left(\frac{dp}{dt}\right)_{max}$ est de 219 bars/s et le maximum de la courbe de l'indice de déflagration est de 84 $\text{bar.s}^{-1}.\text{m}^{-1}$ pour un rapport d'équivalence de 1. Si cette température est ensuite fixée à 333 K, on note que le maximum de la vitesse maximale de montée en pression ne change pas beaucoup et se situe à 224 bars/s correspondant à un indice de déflagration de 85 $\text{bar.s}^{-1}.\text{m}^{-1}$ et un rapport d'équivalence de 1,15. Enfin, lorsque la température initiale est fixée à 363 K, on relève un maximum de $\left(\frac{dp}{dt}\right)_{max}$ de 214 bar/s, associé à un indice de déflagration de 82 $\text{bar.s}^{-1}.\text{m}^{-1}$ et un rapport d'équivalence de 1,1.

Ainsi, l'augmentation de la température initiale induit un abaissement de la pression maximale de combustion, par contre, elle ne réduit pas la vitesse d'augmentation de la pression ainsi que le Kg. Ce résultat s'explique : bien que les pressions maximales de combustion soient diminuées, la vitesse de propagation de la flamme a par contre augmenté, ces deux effets contraires se compensent.

1.4 Modélisation des vitesses de flamme

Une étude de simulation de vitesses de flamme a été réalisée en vue de valider un mécanisme cinétique détaillé qui par la suite servira à évaluer les énergies d'activation globales propres aux mélanges G27/Air. De plus, côté pauvre, nous avons réalisé que lorsque le rapport d'équivalence devenait trop faible, la mesure des vitesses de flamme n'était plus possible. La modélisation cinétique offre donc l'avantage de pouvoir extrapoler et ainsi avoir accès aux vitesses de flamme qui ne sont pas accessibles par l'expérience.

1.4.1 Choix d'un modèle cinétique détaillé

Trois mécanismes cinétiques ont été testés et comparés avec les résultats des expériences afin de choisir celui qui présentait le meilleur accord avec les données expérimentales.

Le GRI Mech 3.0 est un mécanisme cinétique détaillé proposé par le Gas Research Institute [105] validé sur des données de vitesse de flamme pour des mélanges méthane/air pour :

- des rapports d'équivalence allant de 0,7 à 1,43 pour une pression de 1 atm et une température de 300K
- à la stœchiométrie pour une pression de 3 atm et une température initiale de 300 K
- à la stœchiométrie pour des pressions allant de 4,9 à 19,7 atm et une température initiale de 400K.

Le mécanisme USC développé au University of Southern California [106]) et qui a été validé sur des données de vitesse de flamme de mélanges méthane air pour des rapports d'équivalence allant de 0,6 à 1,5 à pression atmosphérique et température ambiante.

Le mécanisme de Galway sur le gaz naturel et qui a été validé par Petersen et al. [107] sur l'oxydation du méthane et du propane à haute pression.

1.4.2 Comparaison expérience/modélisation

Les vitesses de flamme simulées avec le mécanisme de Galway en fonction du rapport d'équivalence sont regroupées dans la Figure 1-15. A 1 bar et 303 K, on note que la vitesse de flamme est surestimée sur l'ensemble du domaine de rapport d'équivalence. Cette erreur est caractérisée, côté pauvre, par des valeurs supérieures à 10% qui diminuent autour de la stœchiométrie avec des valeurs inférieures à 5% pour enfin augmenter à nouveau quand on s'éloigne de la stœchiométrie côté riche. Cette tendance est conservée avec l'augmentation de la température, d'abord à 333 K puis à 363 K avec néanmoins une différence notable observée autour de la stœchiométrie. En effet, l'erreur commise sur la prédiction ne diminue pas à 5% pour les rapports d'équivalence proches de la stœchiométrie mais reste de près de 10%. On note ainsi la difficulté du mécanisme à prédire les vitesses de flammes pour des températures autres que la température ambiante. Enfin, avec l'augmentation de la pression, on note un très bon accord entre l'expérience et la vitesse prédite par le modèle pour des rapports d'équivalence compris entre 0,85 et 1,15 et une difficulté du modèle à prédire les vitesses de flamme lorsque l'on s'éloigne de cette gamme de rapport d'équivalence. Cette difficulté se traduit par une valeur absolue de l'erreur supérieure à 10% lorsque le rapport d'équivalence est de 0,8 côté pauvre et au-delà de 1,2 côté riche. L'expression, basée sur le modèle de Galway, de la vitesse de flamme modélisée en fonction de la température, de la pression et de la vitesse de flamme à la température et la pression de référence est la suivante :

$$\frac{S_L^0}{S_{LRef}^0} = \left(\frac{T}{T_{Ref}} \right)^{1,78} \left(\frac{P}{P_{Ref}} \right)^{-0,44} \quad \text{Eq. 48}$$

La référence a été prise comme étant $T_{ini}=300$ K et $P_{ini}=1$ bar

Le coefficient traduisant l'impact de l'augmentation de la température initiale sur les vitesses modélisées est de 1,78 alors qu'expérimentalement, il est de 1,6. De l'autre côté, la baisse de la vitesse de flamme liée à l'augmentation de la pression initiale est surévaluée avec un coefficient de -0,44 pour le mécanisme contre -0,3 pour les vitesses expérimentales.

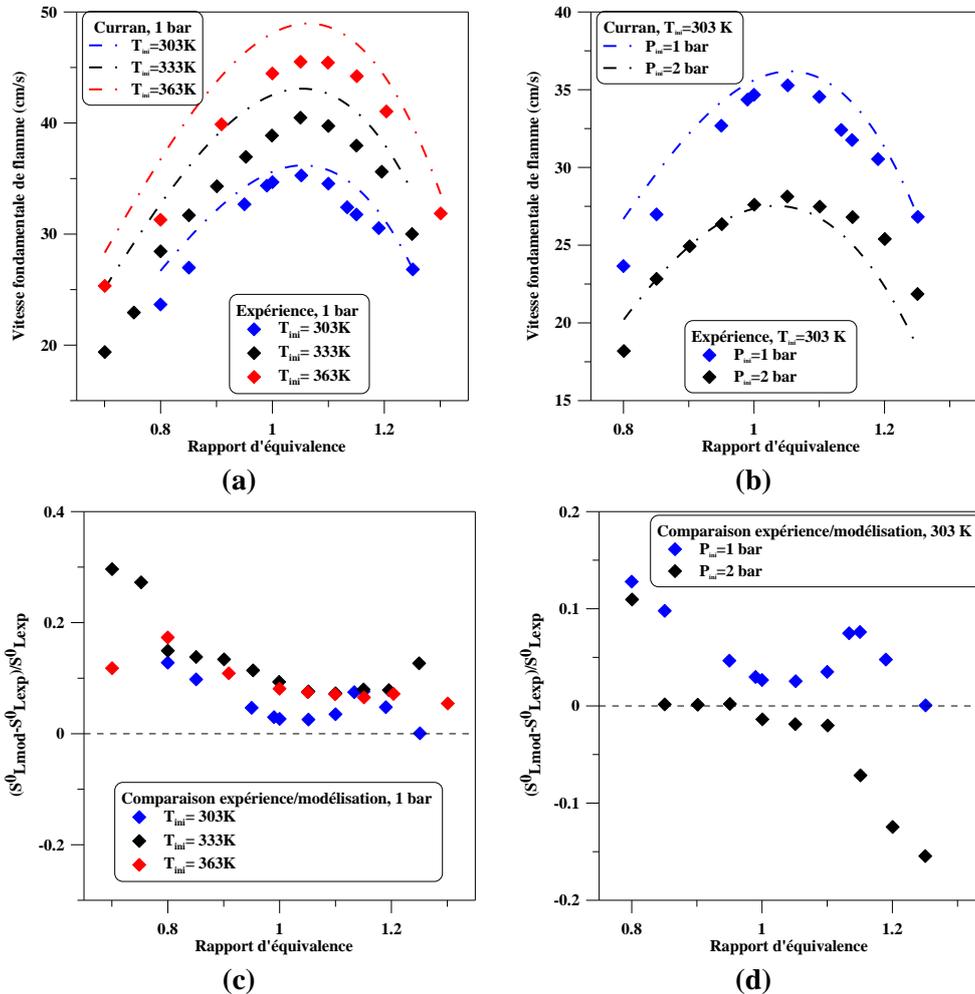


Figure 1-15 : Vitesses de flamme laminaire S_L des mélanges G27/air mesurées et calculées avec le mécanisme de Curran. (a) S_L en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (b) S_L en fonction de la richesse à différentes pressions initiales. (c) Ecart entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (d) Ecart entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes pressions initiales.

S'agissant du GRI Mech 3.0, à 1 bar et 300 K, le comportement est très proche de celui du mécanisme proposé par Galway. Il est caractérisé par une surestimation de la vitesse de flamme sur la gamme de rapport d'équivalence et des prédictions proches de l'expérience autour de la stœchiométrie Figure 1-16 (a). Pour une température initiale de 333 et 363 K, on note aussi une surestimation de la vitesse de flamme. Comme précédemment, l'écart entre la valeur simulée et l'expérience augmente lorsque la température augmente. Globalement quelle que soit la température initiale, on note un très bon accord pour les rapports d'équivalence compris entre 0,85 et 1,2. Lorsque la pression initiale passe de 1 à 2 bars, le

mécanisme sous-estime la vitesse de flamme sur l'ensemble du domaine de rapport d'équivalence étudié contrairement à ce qui était observé à 1 bar. Un bon accord (erreurs inférieures à 5%) est obtenu pour les rapports d'équivalence allant de 0,85 à 1,1 puis comme pour le mécanisme de Galway, l'augmentation du rapport d'équivalence au-delà de 1,1 résulte en une sous-estimation croissante de la vitesse de flamme jusqu'aux limites du domaine de rapport d'équivalence étudié.

L'effet de la température et de la pression sur les vitesses prédites par le mécanisme cinétique du GRI a par la suite été évalué à l'aide d'une corrélation basée sur les résultats de la modélisation :

$$\frac{S_L^0}{S_{LRef}^0} = \left(\frac{T}{T_{Ref}} \right)^{1,6} \left(\frac{P}{P_{Ref}} \right)^{-0,44} \quad \text{Eq. 49}$$

L'effet de la variation de température initiale sur les vitesses de flamme modélisées à l'aide du GRI apparaît ainsi en bon accord avec celui observé au cours de nos expériences : 1,6 dans le deux cas. Cependant, l'influence de la pression initiale est moins bien reproduite. En effet, le coefficient qui traduit la baisse de la vitesse de flamme avec l'augmentation de la pression est de -0,44 dans le cas du GRI contre -0,3 au cours de nos expériences.

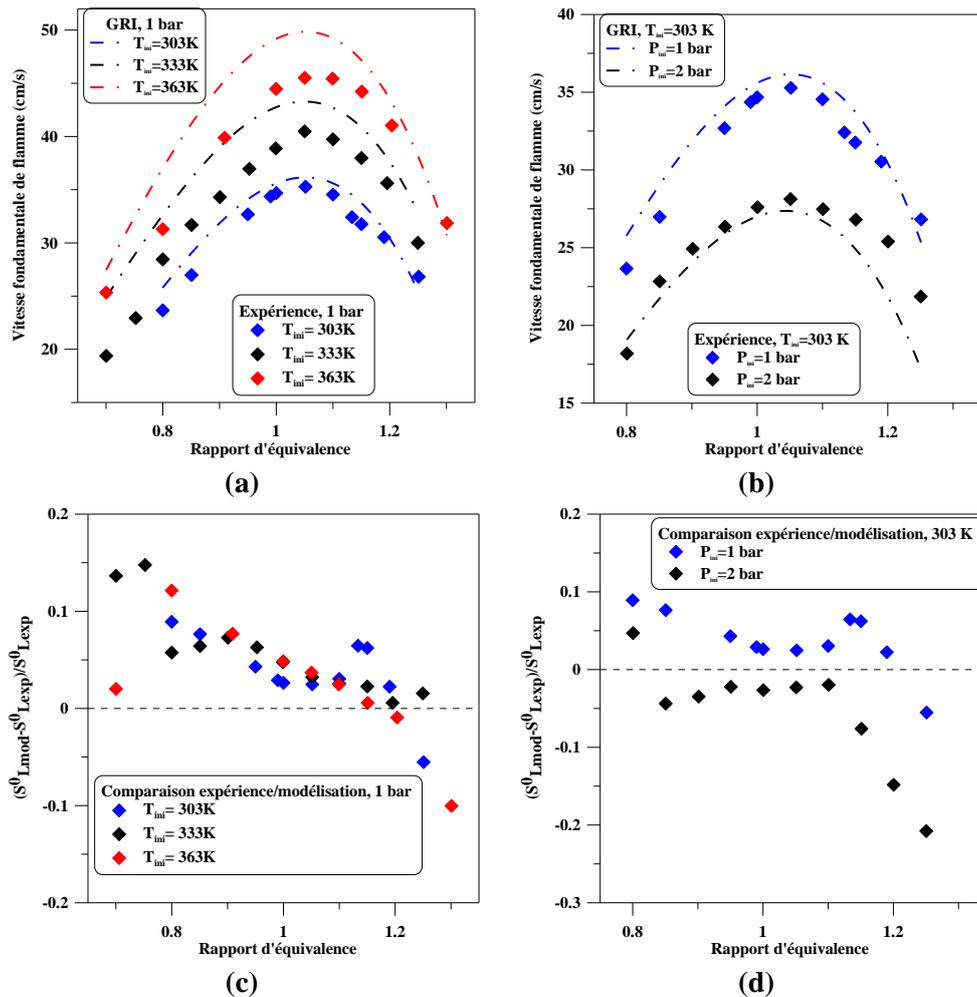


Figure 1-16 : Vitesses de flamme laminaire S_L des mélanges G27/air mesurées et calculées avec le mécanisme du GRI. (a) S_L en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (b) S_L en fonction de la richesse à différentes pressions initiales. (c) Ecart entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (d) Ecart entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes pressions initiales

Enfin, avec le mécanisme du USC, pour 1 bar et 303 K, on observe un comportement relativement différent de celui des deux mécanismes précités. En effet, côté pauvre, pour les rapports d'équivalence inférieurs à 0,95 le mécanisme surestime la vitesse de flamme tandis que, contrairement au GRI mech et au mécanisme proposé par Galway, pour des rapports d'équivalence égaux ou supérieurs à 0,95 la vitesse de flamme est sous-estimée. Il faut aussi noter que sur l'ensemble du domaine, l'erreur commise sur la vitesse de flamme est inférieure à 10% et devient inférieure à 5% pour les rapports d'équivalence compris entre 0,95 et 1,2. Par ailleurs, l'augmentation de la température initiale de 303 K à 333 K ne montre pas une différence notable du comportement des vitesses prédites. Ainsi, côté pauvre, pour les rapports d'équivalence de 0,7 et 0,75, la vitesse de flamme est surestimée et l'erreur commise est proche de 20%. Des erreurs proches de 5% sont ensuite relevées sur le reste de la gamme de rapport d'équivalence avec une sous-estimation de la vitesse de flamme à partir de la stœchiométrie. La difficulté de prédiction des vitesses de flamme côté pauvre est encore mise en évidence lorsque la température passe de 333 K à 363 K avec, une fois encore une gamme

de rapport d'équivalence autour de la stœchiométrie pour laquelle l'erreur est inférieure à 5%. Enfin, pour une pression initiale de 2 bars, ainsi que pour les deux mécanismes précédents, une bonne prédiction de la vitesse de flamme dans une gamme de rapport d'équivalence proche de la stœchiométrie suivie d'une sous-estimation croissante de la vitesse à mesure que le rapport d'équivalence augmente.

L'effet de la température initiale et de la pression initiale sur la vitesse de flamme modélisée à l'aide du mécanisme cinétique proposé par le USC ont été exprimés au travers de la corrélation suivante :

$$\frac{S_L^0}{S_{LRef}^0} = \left(\frac{T}{T_{Ref}} \right)^{1,84} \left(\frac{P}{P_{Ref}} \right)^{-0,36} \quad \text{Eq. 50}$$

Il apparaît au travers de l'Eq.43 que l'augmentation de la vitesse de flamme liée à l'augmentation de la température initiale est surestimée par le mécanisme du USC avec un coefficient de 1,84 contre 1,6 pour les expériences. Toutefois, il faut noter un bon accord sur l'effet de la pression initiale entre le modèle et l'expérience.

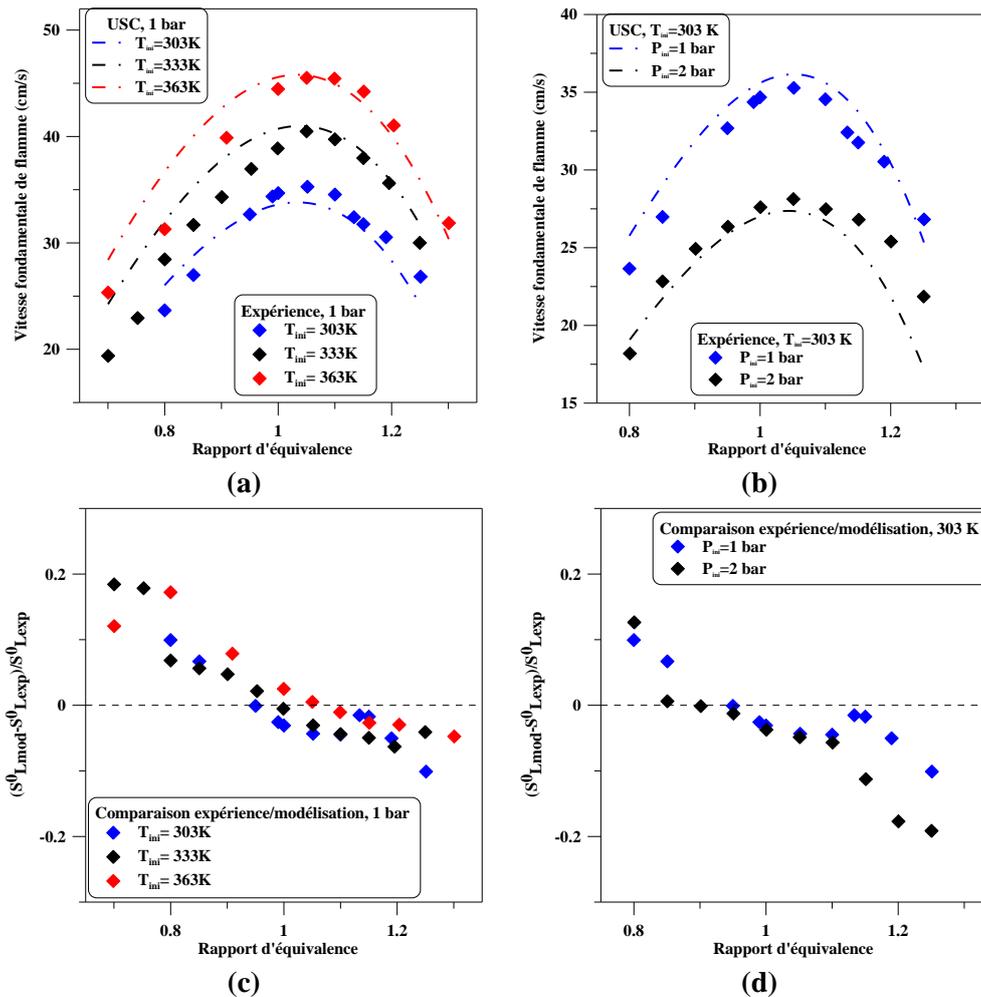


Figure 1-17 : Vitesses de flamme laminaire S_L des mélanges G27/air mesurées et calculées avec le mécanisme du USC. (a) S_L en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (b) S_L en fonction de la richesse à différentes pressions initiales. (c) Ecart entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (d) Ecart entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes pressions initiales

Pour chacune des conditions de température, on peut noter que les trois mécanismes surestiment la vitesse de flamme côté pauvre puis suivent des tendances différentes côté riche tandis que, quand la pression initiale est fixée à 2 bars, on observe une sous-estimation de la vitesse de flamme par les différents mécanismes. Néanmoins, pour réaliser une analyse plus complète, il nous faut évaluer l'erreur commise dans l'évaluation de la vitesse de flamme par les différents modèles en exprimant la différence entre la vitesse prédite et la vitesse mesurée rapportée à la vitesse mesurée, comme on peut le voir sur la Figure 1-18 pour les différentes conditions expérimentales.

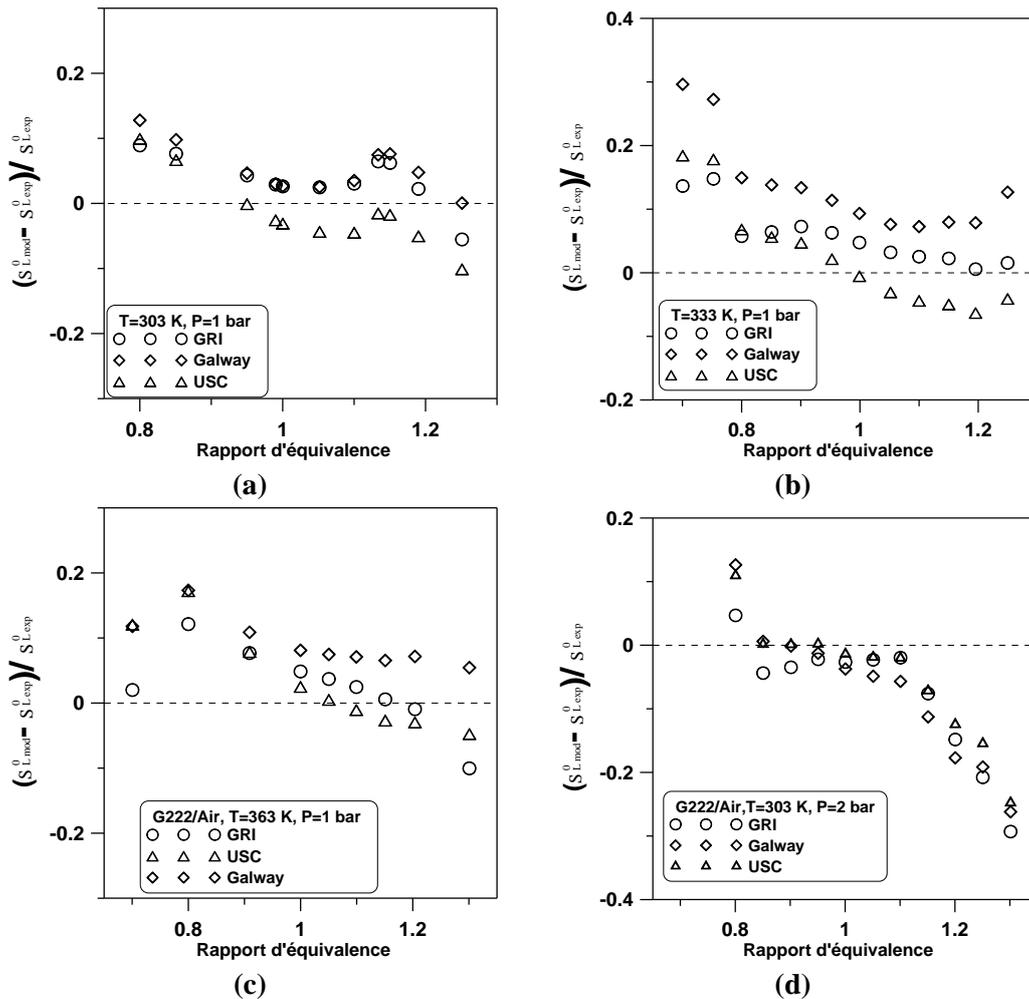


Figure 1-18: Erreur commise par les différents modèles sur l'évaluation de la vitesse de flamme à différentes conditions, (a) $P=1\text{ bar}, T=303\text{K}$, (b) $P=1\text{ bar}, T=333\text{K}$, (c) $P=1\text{ bar}, T=363\text{K}$, (d) $P=2\text{ bar}, T=303\text{K}$

Cette partie de l'étude a révélé un assez bon accord entre les vitesses prédites par le GRI mech 3.0 et le mécanisme du USC sur une gamme de rapport d'équivalence proche de la stoechiométrie tandis que dans le cas du mécanisme de Galway, on observait globalement un moins bon accord avec les données expérimentales. Une analyse cinétique poussée des voies réactionnelles ainsi qu'une étude de sensibilité auraient pu permettre de proposer un mécanisme chimique adapté au mélange étudié mais c'est au-delà des objectifs du travail présenté au cours de cette thèse. Nous allons, dans la prochaine partie retenir le mécanisme cinétique du GRI afin d'évaluer les énergies d'activation des mélanges G27/Air. Ce choix relève de la meilleure prédiction de la vitesse expérimentale par le mécanisme du GRI côté pauvre et de la bonne prédiction de l'effet de la température par le mécanisme.

1.4.3 Evaluation de l'énergie globale d'activation et du nombre de Zeldovich (β)

L'évaluation de l'énergie globale d'activation, peut être basée sur l'approche simple proposée par Mallard et Le Chatelier [108] quant à l'expression de la vitesse de flamme qui peut être exprimée comme dépendante de la diffusivité thermique α et du taux de conversion ω .

$$S_L \sim [\alpha \omega]^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 51}$$

Plus tard, l'analyse de Zeldovich et al. [18], pour une réaction se déroulant en une étape unique suivant la loi d'Arrhenius, montre que la vitesse de flamme laminaire peut être reliée à l'énergie d'activation :

$$S_L \sim \left[\exp\left(\frac{E}{RT_b}\right) \right]^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. 52}$$

En supposant que la relation entre la vitesse de flamme laminaire et la température des gaz brûlés peut être écrite comme suit :

$$S_L^2 \sim A \exp\left(-\frac{E}{RT_b}\right) \quad \text{Eq. 53}$$

Avec A un coefficient pré-exponentiel, E l'énergie d'activation globale de la réaction et T_b la température des gaz brûlés. En réécrivant l'expression précédente, on définit le logarithme de la vitesse de flamme comme étant fonction de l'inverse de la température des gaz brûlés.

$$2 \ln(S_L) \sim \ln A - \frac{E}{R} * \frac{1}{T_b} \quad \text{Eq. 54}$$

Les énergies sont par la suite évaluées par la modélisation des vitesses de flamme laminaire pour un rapport d'équivalence fixé en faisant varier la fraction molaire d'azote de $\pm 3\%$. Ce faisant, on observe une variation de la vitesse de flamme ainsi que de la température des gaz brûlés. La pente de la courbe de la vitesse de flamme en fonction de la température ainsi obtenue correspond au rapport $-\frac{E}{R}$. La Figure 1-19 illustre le calcul de l'énergie d'activation à la stœchiométrie.

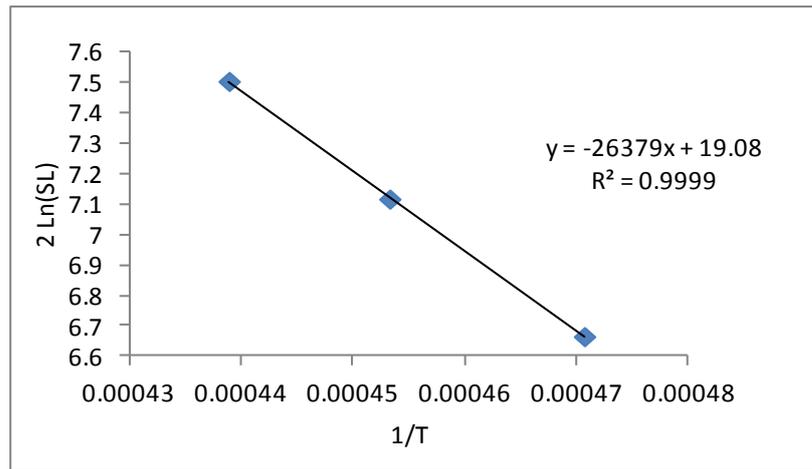


Figure 1-19 : Calcul de l'énergie d'activation pour le rapport d'équivalence de 1 pour le G27

La Figure 1-20 montre E_a en fonction du rapport d'équivalence.

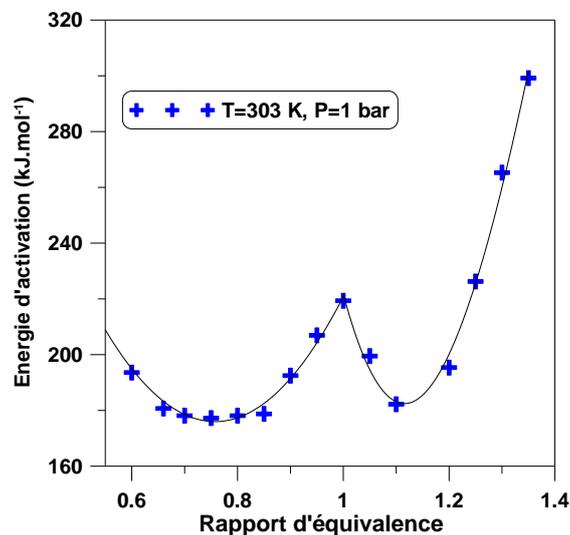


Figure 1-20 : Energies d'activation en fonction du rapport d'équivalence du G27 dans l'air pour une température et une pression ambiants

On observe sur la figure précédente que l'énergie d'activation du G27 dans l'air décrit une évolution en W caractérisée par un minimum local lorsque le rapport d'équivalence est de 0,75 avec une valeur de 169 kJ/mol. Avec l'augmentation du rapport d'équivalence l'énergie d'activation croit ensuite jusqu'à atteindre un maximum local de 187kJ/mol pour un rapport d'équivalence fixée à 0,95. S'en suit une décroissance de l'énergie d'activation avec l'augmentation du rapport d'équivalence vers un nouveau minimum local de 174kJ/mol et un rapport d'équivalence de 1,1 suivie d'une nouvelle augmentation de l'énergie d'activation avec l'augmentation du rapport d'équivalence.

Une corrélation basée sur deux polynômes : (degré 3 coté riche et degré 2 coté pauvre) a été proposé pour l'évaluation de l'énergie d'activation. Cette corrélation est valable sur la

gamme de rapport d'équivalence étudiée : 0,7 à 1,35 pour une température initiale de 303 K et une pression initiale de 1 bar

$$\Phi \in [0,7; 1], \rightarrow E_a = 614,3 - 11,57 \cdot 10^2 \Phi + 763,54 \Phi^2 \quad \text{Eq. 55}$$

$$\Phi \in [1; 1,35], \rightarrow E_a = 6398,96 - 137,97 \cdot 10^2 \Phi + 9741,42 \Phi^2 - 2126 \Phi^3 \quad \text{Eq. 56}$$

2 Cas du G222

Dans cette partie, nous présenterons les résultats obtenus dans le cas des expériences sur le G222 en adoptant la même méthodologie que celle utilisée précédemment dans le cas du G27.

2.1 Les vitesses fondamentales de flamme

Les vitesses de flamme du G222 ont été mesurées par la méthode de la bombe sphérique pour trois températures initiales 303, 333, 363 K et 2 pressions initiales 1 et 2 bar. Pour mémoire, le G27 est constitué d'un mélange binaire contenant 23% H₂ et 77% de CH₄.

2.1.1 Vitesse de flamme à température et pression ambiantes

Pour une température initiale de 303 K et une pression initiale de 1 bar, nous avons représenté sur la Figure 2-1 l'évolution de la vitesse fondamentale de flamme en fonction du rapport d'équivalence. Les vitesses ont été mesurées pour des rapports d'équivalence (ϕ) compris entre 0,8 et 1,3. En effet pour des ϕ inférieurs à 0,8, l'apparition des instabilités thermo-diffusives rendent les mesures difficiles à réaliser. De même, aucune mesure n'a été réalisée au-delà de $\phi=1,3$ car aucune inflammation n'était possible. Comme on peut le voir sur la Figure 2-2, la vitesse fondamentale en fonction de ϕ suit une évolution en forme de cloche. Cette évolution est marquée par une augmentation de la vitesse à mesure de l'augmentation du rapport d'équivalence jusqu'à une vitesse maximale de 47,2 cm/s pour un rapport d'équivalence de 1,1 correspondant à une fraction molaire de 12% de G222 dans l'air. Une fois ce maximum atteint, on note une décroissance de la courbe avec l'augmentation supplémentaire du rapport d'équivalence. L'erreur moyenne sur la mesure est de 4%.

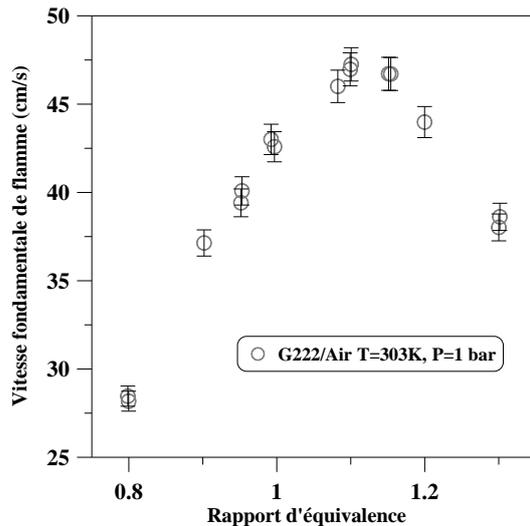


Figure 2-1 : Vitesse fondamentale de flamme en fonction du rapport d'équivalence des mélanges G222/Air

Nos résultats expérimentaux ont ensuite été confrontés à ceux de la littérature proposés par Yu et al. [72] et Halter et al. [59] sur les vitesses de flamme des mélanges CH_4/H_2 à 80/20 qui sont proches de la composition du G222. On note, côté pauvre, des vitesses de flamme assez proches de celles mesurées par Halter et al. [59] tandis que côté riche, on observe des vitesses plus élevées dans le cas du G222, qui se justifie par sa composition en hydrogène légèrement plus élevée. Par ailleurs on note que sur l'ensemble du domaine, les vitesses mesurées par Yu et al. [72] sont plus élevées que celles du G222. Cela s'explique par le fait que les auteurs n'avaient pas pris en compte l'effet de l'étirement, qui dans ce cas génère une accélération de la flamme conduisant à une surestimation de la vitesse de flamme. Néanmoins, on peut noter que la vitesse maximale de flamme est atteinte aussi bien pour les données de Halter que celles de Yu.

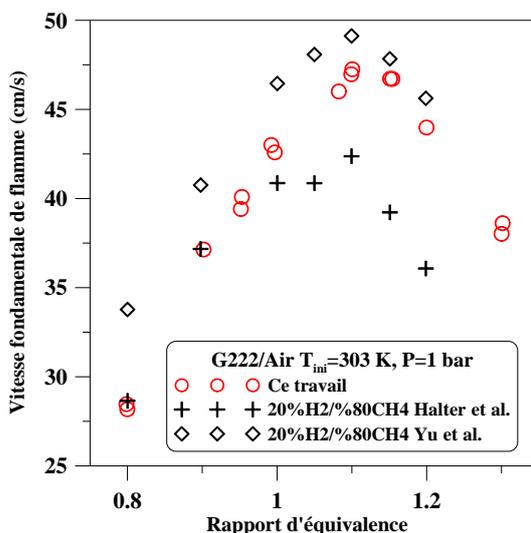


Figure 2-2: Vitesse fondamentale de flamme en fonction du rapport d'équivalence des mélanges G222/Air et comparaison avec la littérature (Halter et al. [59], Yu et al. [72])

2.1.2 Effet de la température sur les vitesses de flamme du G222

Dans cette partie, l'impact de l'augmentation de la température initiale sur les vitesses de flammes a été étudié. Les résultats sont présentés sur la Figure 2-3. On note, pour une température initiale fixée à 333 K, une augmentation globale de la vitesse de flamme sur l'ensemble du domaine par rapport aux vitesses obtenues lorsque la température initiale était fixée à 303 K. La vitesse de flamme laminaire augmente côté pauvre avec l'augmentation du rapport d'équivalence puis atteint un maximum de 54 cm/s pour un rapport d'équivalence de 1,1, puis, elle décroît ensuite côté riche. Par ailleurs, on observe une extension du domaine de rapport d'équivalence pour lequel les vitesses de flamme sont accessibles, qui passe de 0,8 côté pauvre pour une température initiale fixée à 303 K à 0,7 pour une température initiale de 333 K tandis que côté riche elle ne change pas.

Les mêmes observations sont faites lorsque la température initiale est de 363 K. En effet, on constate une augmentation de la vitesse de flamme laminaire sur l'ensemble du domaine de rapport d'équivalence avec l'augmentation de la température. Avec l'augmentation du rapport d'équivalence, la vitesse de flamme laminaire croît jusqu'à atteindre une valeur maximale de 62 cm/s pour un rapport d'équivalence de 1,1, puis décroît sur le reste du domaine de rapport d'équivalence.

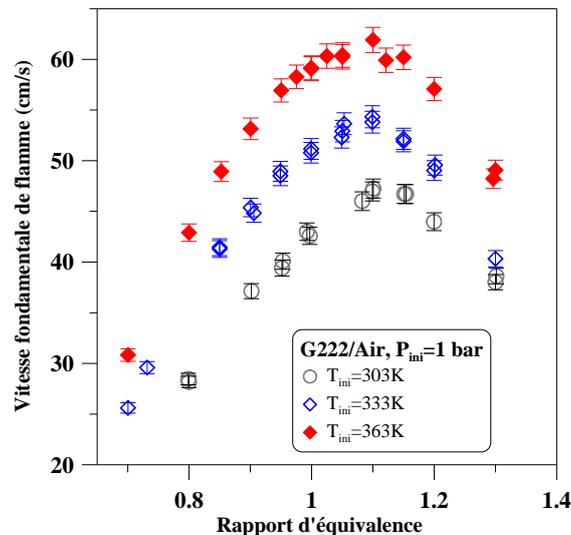


Figure 2-3 : Effet de la température initiale sur l'évolution des vitesses de flamme en fonction du rapport d'équivalence des mélanges G222/Air initialement à 1 bar

2.1.3 Effet de la pression sur les vitesses de flamme du G222

L'effet de la pression initiale sur les vitesses fondamentales de flamme a été étudié en réalisant des mesures à 2 bar. On observe que l'augmentation de la pression initiale entraîne une baisse de la vitesse de flamme sur l'ensemble du domaine de rapport d'équivalence. Cela se traduit par une baisse de la vitesse maximale de la flamme qui est de 47 cm/s à 1 bar et qui

diminue à 35 cm/s. Ces observations confirment celles réalisées dans le cas du G27 où l'augmentation de la pression initiale a résulté en une diminution de la vitesse de flamme sur le domaine de mesure.

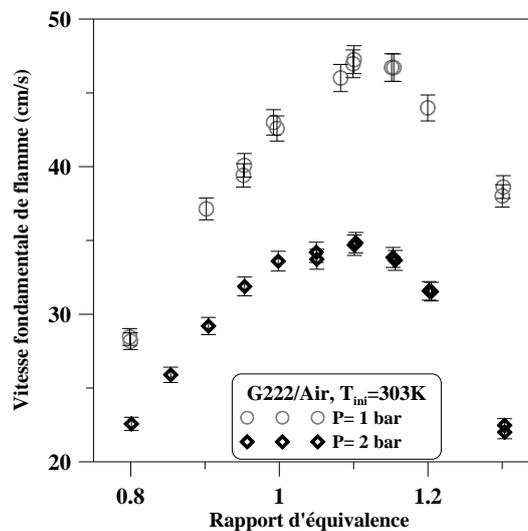


Figure 2-4 : Effet de la pression initiale sur l'évolution vitesses de flamme en fonction du rapport d'équivalence des mélanges G222/Air initialement à 303 K

Les expériences menées au cours de ce travail ont permis de proposer une corrélation permettant d'exprimer la vitesse fondamentale en fonction de la richesse, de la température ainsi que de la pression. Ainsi,

$$\forall \begin{cases} \phi \in [0,8; 1,3] \\ T \in [303; 363] \\ P \in [1; 2] \end{cases}, S_L^0(\phi, T, P) = (-176,8\phi^2 + 380,9\phi - 159,8) \left(\frac{T}{T_{ref}}\right)^{1,64} \left(\frac{P}{P_{ref}}\right)^{-0,44} \quad \text{Eq. 57}$$

Avec $T_{ref} = 303\text{K}$ et $P_{ref}=1 \text{ bar}$.

2.2 Les longueurs de Markstein

2.2.1 Les longueurs de Markstein à 1 bar et 303 K

Sur la Figure 2-5, sont représentées les longueurs de Markstein du mélange G222/Air en fonction du rapport d'équivalence pour une température initiale de 303 K et une pression initiale de 1 bar. On remarque sur la courbe que la longueur de Markstein croît avec l'augmentation du rapport d'équivalence sur le domaine de rapport d'équivalence étudié.

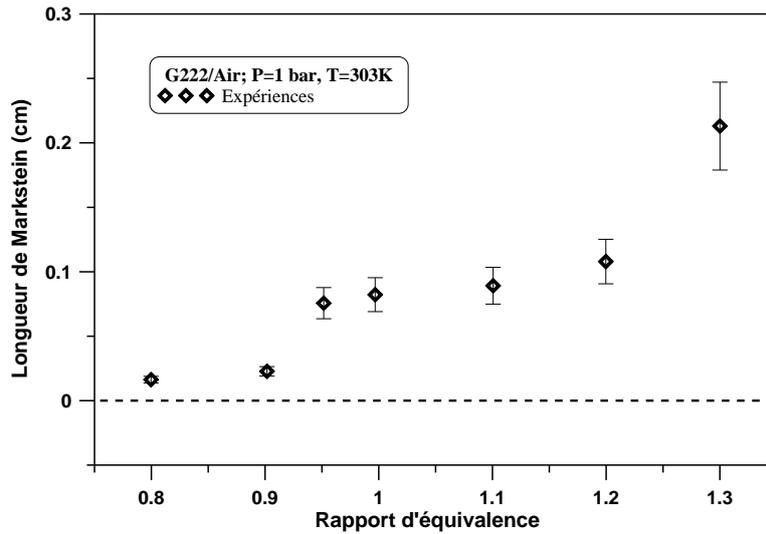


Figure 2-5 : Longueurs de Markstein des mélanges G222/Air en fonction du rapport d'équivalence, initialement à 1 bar et 303 K

2.2.2 Influence de la température sur les longueurs de Markstein

L'effet de la température initiale sur les longueurs de Markstein des mélanges G222/Air a aussi été étudié. Nous avons tracé sur la Figure 2-6 l'évolution de la longueur de Markstein en fonction du rapport d'équivalence pour différentes températures initiales (303, 333, 363 K) avec une pression initiale fixée à 1 bar. On observe que l'allure générale de l'évolution de la longueur de Markstein est la même quelle que soit la température initiale.

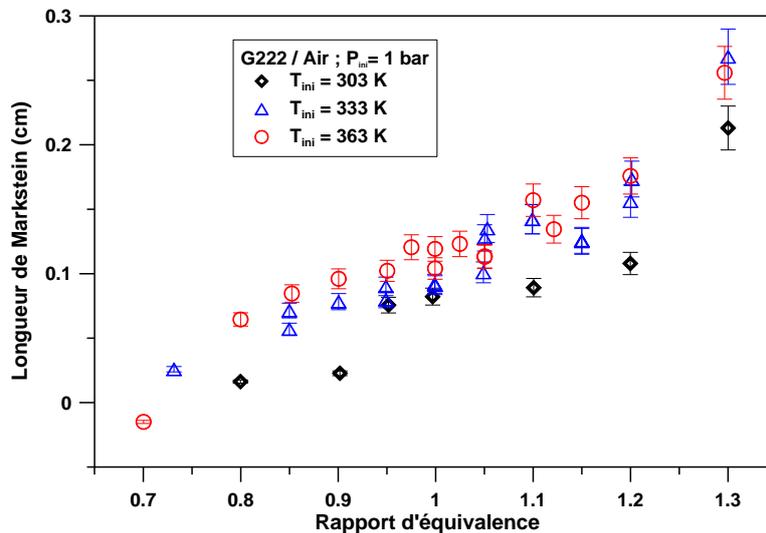


Figure 2-6 : Influence de la température initiale sur l'évolution des longueurs de Markstein en fonction du rapport d'équivalence des mélanges G222/Air pour une pression initiale de 1 bar

Globalement, on peut noter une augmentation de la longueur de Markstein sur l'ensemble du domaine avec l'augmentation de la température initiale comme nous l'avons noté dans le cas des mélanges G27/Air et que la longueur de Markstein reste positive.

2.2.3 Influence de la pression sur les longueurs de Markstein

Sur la Figure 2-7, nous avons représenté l'influence de la pression initiale sur les longueurs de Markstein. Comme ce fut le cas dans le cas du G27, on note que l'augmentation de la pression ne modifie pas l'allure générale de la courbe.

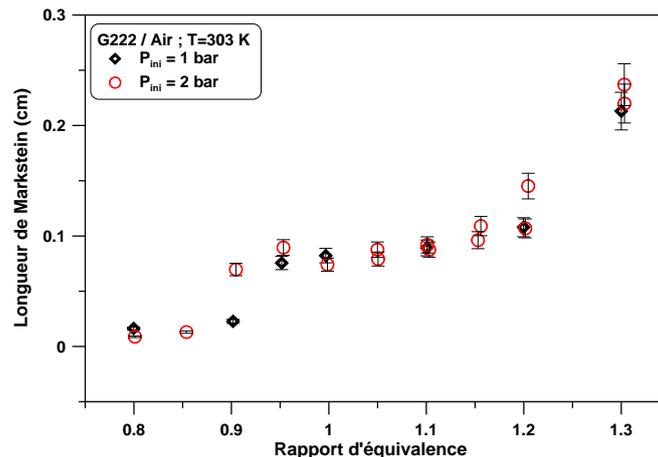


Figure 2-7 : Influence de la pression initiale sur l'évolution la longueur de Markstein en fonction du rapport d'équivalence

2.3 Paramètres d'explosivité des mélanges G222/Air

2.3.1 La pression maximale de combustion

Les pressions maximales de combustion ont été mesurées dans le cadre de nos essais en bombe sphérique pour les mélanges G222/Air. Sur la Figure 2-8, nous avons représenté les pressions maximales de combustion en fonction du rapport d'équivalence. On observe sur cette figure que la pression maximale augmente rapidement avec l'augmentation du rapport d'équivalence jusqu'à un maximum de 8,1 bars pour un rapport d'équivalence de 1,1. Ce maximum est suivi d'un plateau autour duquel la pression maximale mesurée se stabilise avec l'augmentation du rapport d'équivalence. Si l'on compare cette pression mesurée à la P_{AICC} , on note une évolution différente. En effet, la P_{AICC} suit une évolution qui, bien que marquée elle aussi par une augmentation rapide avec le rapport d'équivalence, se distingue côté riche par une décroissance une fois que le maximum de pression est atteint (rapport d'équivalence 1,1). Par ailleurs, nous observons que la pression maximale de combustion mesurée est toujours inférieure à la pression calculée pour le cas d'une combustion complète adiabatique et isochore. Cette sous-estimation de la pression maximale semble aussi liée au fait que la combustion au sein de l'enceinte n'est pas un processus adiabatique comme dans le cas idéal.

En effet au cours de la combustion, de la chaleur est perdue au cours des échanges avec la paroi de la bombe sphérique.

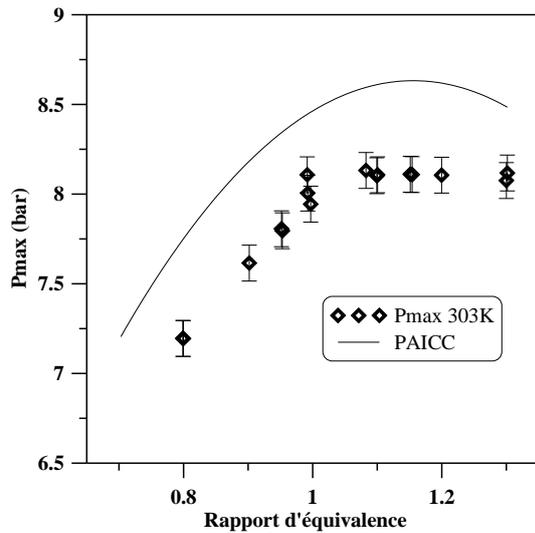


Figure 2-8 : Evolution de la pression maximale dans l'enceinte pour les mélanges G222/Air à 1 bar et 303 K

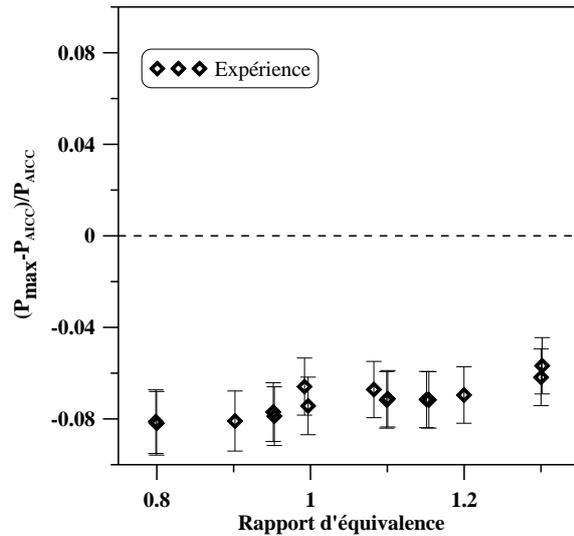


Figure 2-9 : Comparaison entre la pression mesurée et la P_{AICC} pour les mélanges G222/Air à 1 bar et 303 K

Cette dernière hypothèse semble se confirmer lorsque l'on analyse les résultats de l'effet de la température initiale sur la pression maximale de combustion. Ces résultats sont présentés sur la Figure 2-10 pour ce qui est de l'effet de la température sur les pressions maximales de combustion et sur la Figure 2-11 pour ce qui est de la comparaison entre la pression mesurée et la P_{AICC} . On note que l'augmentation de la température initiale ne change pas l'évolution de la pression maximale mesurée en fonction du rapport d'équivalence avec toutefois une baisse de la globale de la pression maximale mesurée sur tout le domaine étudié.

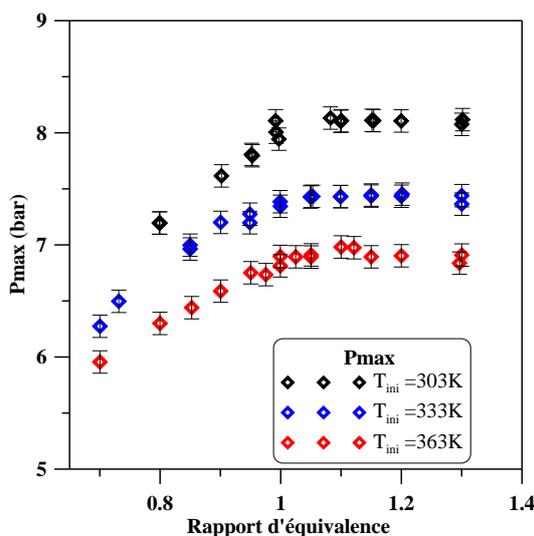


Figure 2-10 : Effet de la température initiale sur l'évolution de la pression maximale de combustion pour les mélanges G222/Air

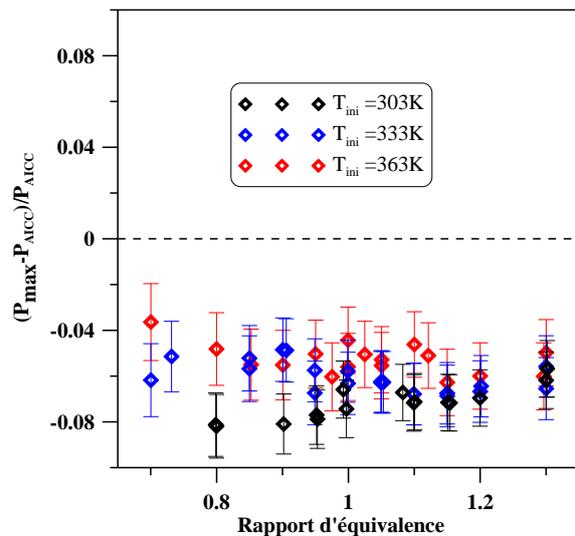


Figure 2-11 : Comparaison entre la pression mesurée et la P_{AICC} pour différentes températures initiales

Cette baisse de la pression maximale avec l'augmentation de la température est liée à la baisse de la masse volumique du mélange combustible/air. Sur la Figure 2-11, on observe qu'avec l'augmentation de la température initiale, l'erreur commise sur la mesure de la pression semble légèrement baisser. Ainsi, la pression mesurée est comprise entre 93 et 96% de la P_{AICC} , pour une température initiale de 333 K et est comprise entre 94 et 97% de la pression mesurée.

2.3.2 $\left(\frac{dp}{dt}\right)_{max}$, et indice de déflagration k_G

Comme nous l'avons souligné dans le 2.2.6, les mesures de pression réalisées au cours de la combustion ont été analysées pour évaluer la vitesse maximale de montée en pression au cours de la combustion au travers de la méthode ainsi décrite. Les résultats sont représentés sur la Figure 2-12. Cette méthode, bien que présentant des erreurs de l'ordre de 10% sur les mesures nous permet cependant d'avoir une idée sur les valeurs de la vitesse de montée en pression et de l'indice de déflagration des mélanges étudiés.

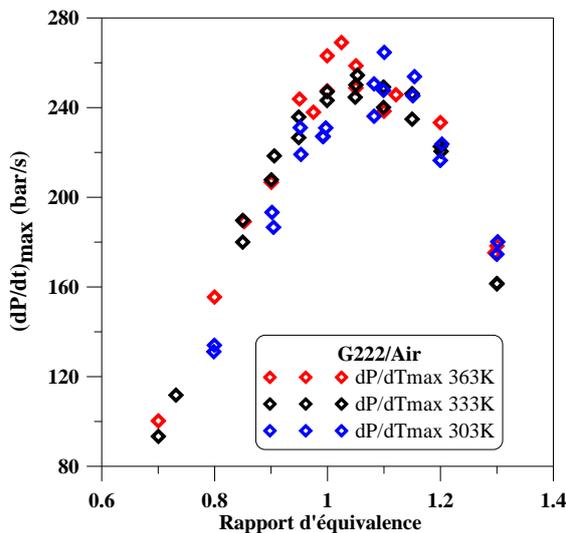


Figure 2-12 : Evolution du $\left(\frac{dp}{dt}\right)_{max}$ en fonction du rapport d'équivalence pour différentes températures initiales

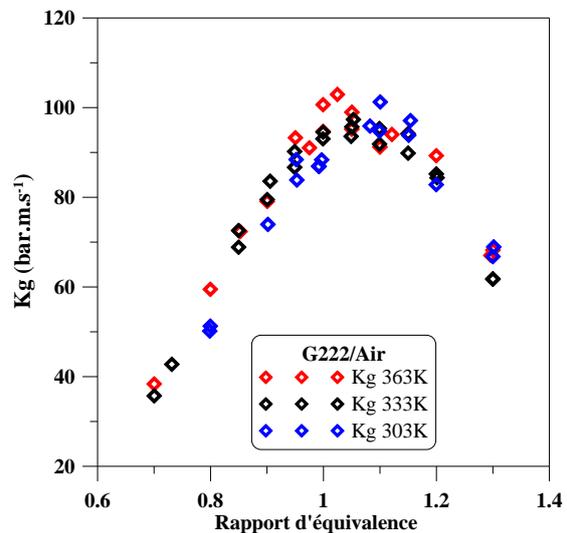


Figure 2-13 : Indice de déflagration en fonction du rapport d'équivalence pour différentes températures initiales

On remarque que $\left(\frac{dP}{dt}\right)_{max}$ suit une évolution en forme de cloche proche de celle de la vitesse fondamentale de flamme avec l'augmentation du rapport d'équivalence. Cette évolution est la même quelle que soit la température initiale. A température ambiante, on note que la vitesse maximale de montée en pression atteint son maximum à 264 bars/sec pour un rapport d'équivalence de 1,1. Pour une température initiale de 333 K, ce maximum est de 254 bars/sec et est associé à un rapport d'équivalence de 1,05 tandis que pour une température initiale de 363 K, il est de 269 bar/s pour un rapport d'équivalence de 1,02. Sur la Figure 2-13, nous avons tracé l'indice de déflagration en fonction du rapport d'équivalence pour les trois températures étudiées. On note que la valeur maximale de l'indice de déflagration des mélanges G222/Air à 303 K, est de $101 \text{ bars.s}^{-1}.\text{m}^{-1}$.

2.4 Modélisation cinétique détaillée

Une modélisation cinétique a été réalisée dans le cas du G222 sur la base des modèles cinétiques utilisés pour la modélisation des vitesses de flamme des mélanges G27/Air.

2.4.1 Comparaison expérience modélisation

Lorsque le mécanisme utilisé est celui proposé par Galway (Curran), pour une température initiale de 303 K, on remarque une surestimation de la vitesse de flamme côté pauvre comme mentionné précédemment. Cette surestimation est caractérisée par une erreur proche de 20% lorsque le rapport d'équivalence est de 0,8. L'erreur décroît ensuite avec l'augmentation du rapport d'équivalence pour atteindre une valeur minimale 0,2% lorsque le rapport d'équivalence est de 1,05. Par la suite, côté riche, on note une sous-estimation de la vitesse de flamme avec une erreur maximale proche de 20% ici encore. Lorsque la température initiale est fixée à 333 K et 363 K, un excellent accord entre l'expérience et la modélisation est obtenu. Si l'allure générale de la courbe est semblable à celle obtenue à 303 K (surestimation côté riche suivie d'une sous-estimation côté pauvre) il n'en est pas de même en ce qui concerne la précision de la prédiction des vitesses. Ainsi, sur l'ensemble du domaine, pour une température initiale de 333 K et 363 K, on note une erreur comprise entre -8% et +10% de la vitesse mesurée. Lorsqu'on se limite à un domaine de rapport d'équivalence compris entre 0,8 et 1,2, cette erreur n'est plus comprise qu'entre -3 et 3% de la valeur expérimentale du rapport d'équivalence.

De même que pour le G27, une corrélation tenant compte de l'effet de la température initiale et de la pression a été déterminée :

$$\frac{S_L^0}{S_{LRef}^0} = \left(\frac{T}{T_{Ref}} \right)^{1,57} \left(\frac{P}{P_{Ref}} \right)^{-0,42} \quad \text{Eq. 58}$$

Ainsi, l'impact de la variation de la température initiale sur l'augmentation de la vitesse mesurée est sous-estimé par le mécanisme : le coefficient traduisant cette variation est de 1,57 pour le modèle et de 1,64 pour l'expérience. Néanmoins, l'effet de la variation de pression est quant à lui bien reproduit par le mécanisme, en témoigne le coefficient de variation de pression qui est de -0,42 pour le modèle contre -0,44 pour l'expérience.

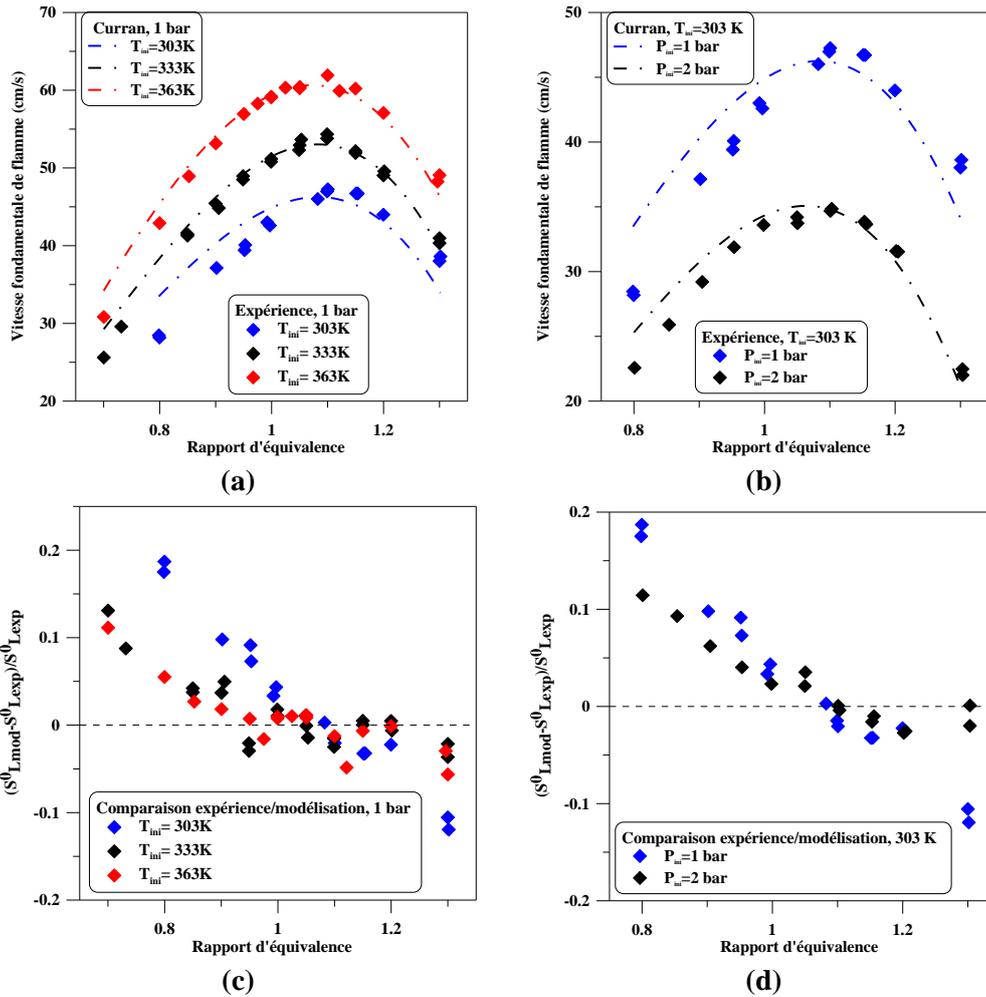


Figure 2-14 : Vitesses de flamme laminaire S_L des mélanges G222/air mesurées et calculées avec le mécanisme de Curran. (a) S_L en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (b) S_L en fonction de la richesse à différentes pressions initiales. (c) Ecart entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (d) Ecart entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes pressions initiales

Les vitesses de flamme simulées en utilisant le mécanisme de USC sont regroupées Figure 2-15. On peut y voir que le modèle ne reproduit pas correctement les valeurs expérimentales à l'exception de valeurs obtenues à 2 bars où l'on note une nette amélioration. La corrélation exprimée Eq.46 permet de comparer l'influence de la pression et de la température sur les vitesses de flamme prédites par le mécanisme à celle observée expérimentalement. Il apparaît que l'effet de la température initiale est sous-estimé par le mécanisme de même que celui de la pression initiale. Ainsi, le coefficient traduisant l'influence de la température est de 1,58 contre 1,64 pour l'expérience et celui de la pression est de -0,38 contre -0,44 pour l'expérience.

$$\frac{S_L^0}{S_{LRef}^0} = \left(\frac{T}{T_{Ref}} \right)^{1,58} \left(\frac{P}{P_{Ref}} \right)^{-0,37} \quad \text{Eq. 59}$$

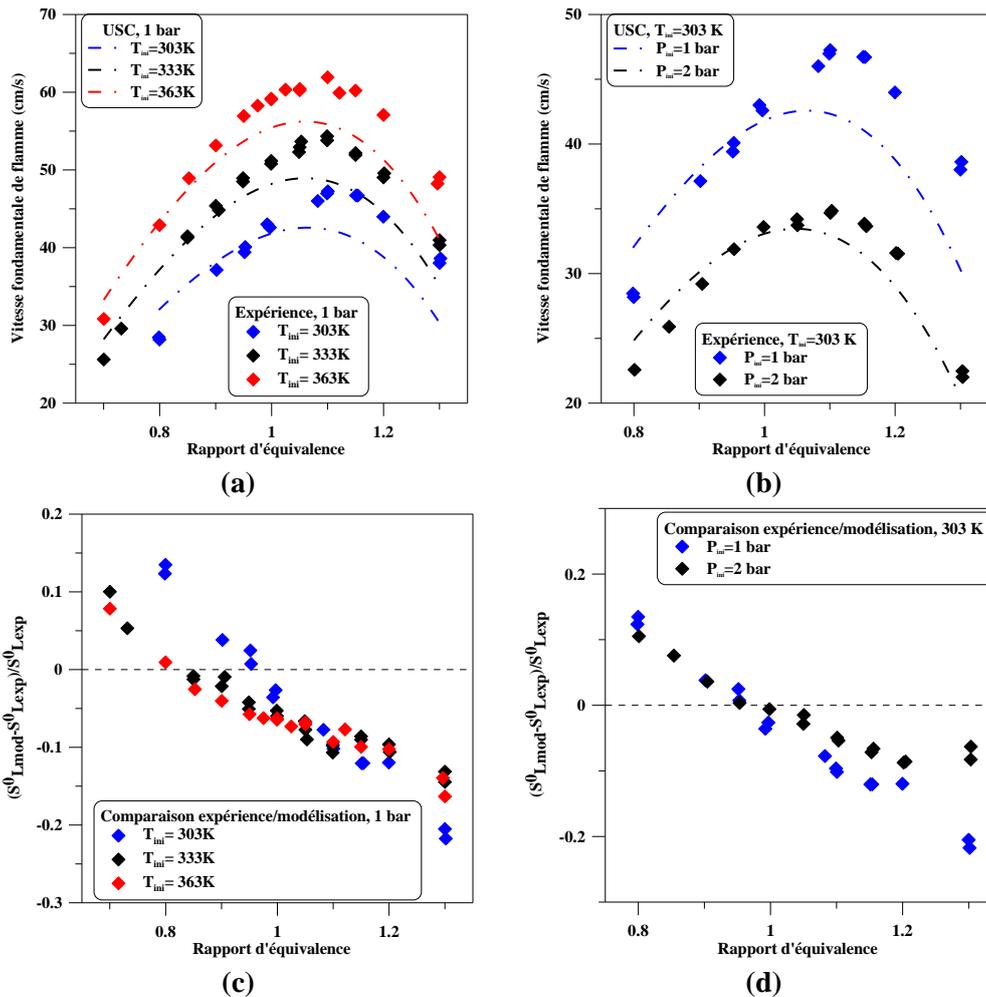


Figure 2-15 : Vitesses de flamme laminaire S_L des mélanges G222/air mesurées et calculées avec le mécanisme du USC. (a) S_L en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (b) S_L en fonction de la richesse à différentes pressions initiales. (c) Ecart entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (d) Ecart entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes pressions initiales

En ce qui concerne le mécanisme du GRI, nous notons un assez bon accord avec l'expérience pour une température initiale de 303 K. Comme dans le cas des deux précédents mécanismes cinétiques utilisés, on observe une surestimation de la vitesse expérimentale côté pauvre suivie d'une sous-estimation côté riche. Cette tendance est néanmoins caractérisée par des prédictions proches de l'expérience autour de la stœchiométrie puisque la valeur absolue de l'erreur commise pour des rapports d'équivalence compris entre 0,9 et 1,2 est inférieure à 10%. Par la suite, avec l'augmentation de la température initiale, on note un excellent accord avec les valeurs expérimentales. A titre d'exemple, à la stœchiométrie, la valeur absolue de l'erreur était inférieure à 1% dans les deux cas.

Enfin, la corrélation des vitesses de flammes issues de la modélisation par le GRI et proposée Eq.47 illustre ce bon accord entre les résultats expérimentaux et la modélisation. En effet, l'impact de l'augmentation de la température initiale est bien reproduit par le modèle cinétique puisque le coefficient associé est de 1,6 pour le GRI et de 1,64 expérimentalement.

De même, l'impact de la pression initiale est bien reproduit avec un coefficient associé de -0,42 pour le modèle et de -0,44 pour les expériences.

$$\frac{S_L^0}{S_{LRef}^0} = \left(\frac{T}{T_{Ref}}\right)^{1,6} \left(\frac{P}{P_{Ref}}\right)^{-0,42} \quad \text{Eq. 60}$$

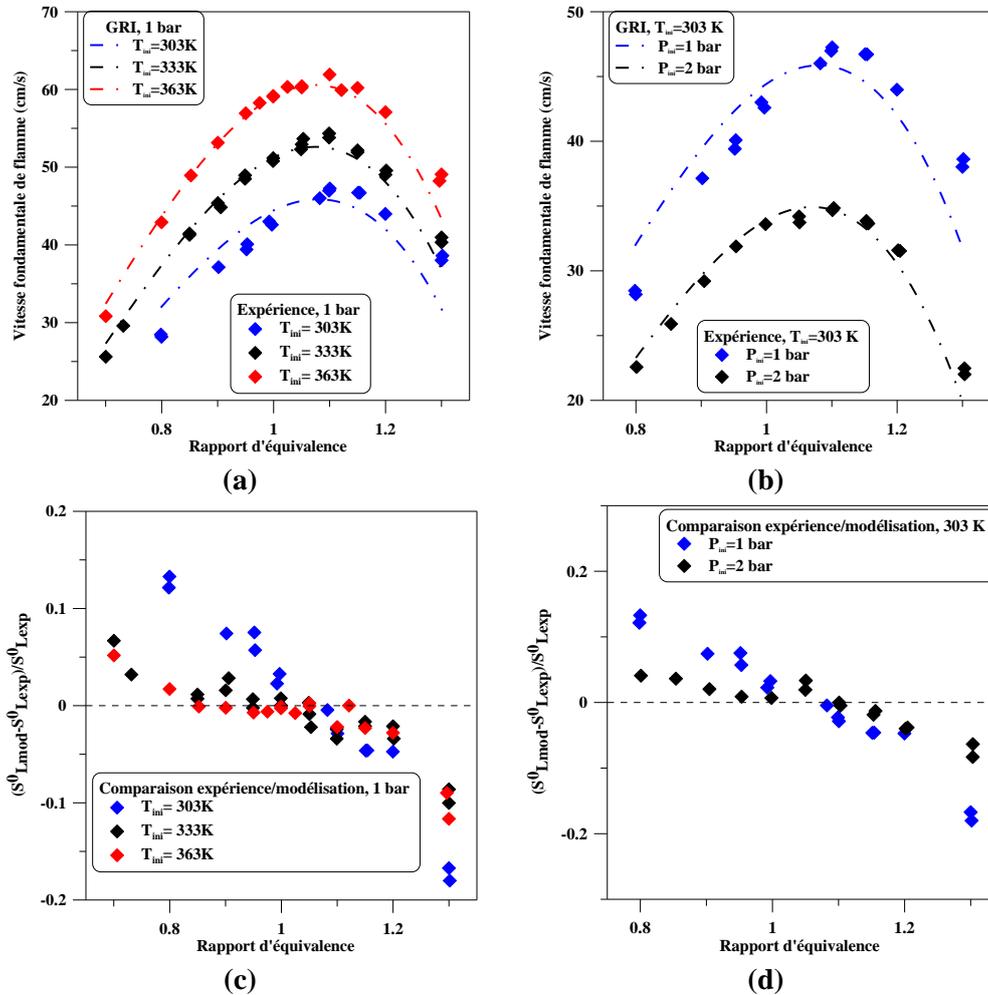


Figure 2-16 : Vitesses de flamme laminaire S_L des mélanges G222/air mesurées et calculées avec le mécanisme du GRI. (a) S_L en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (b) S_L en fonction de la richesse à différentes pressions initiales. (c) Ecarts entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes températures initiales. (d) Ecarts entre S_L mesurées et calculées en fonction de la richesse à différentes pressions initiales

En conclusion, l'évolution de la vitesse de flamme laminaire a été comparée avec celle des vitesses prédites par les différents modèles cinétiques. Globalement, on observe que, pour une température initiale de 303 K, la vitesse de flamme est surestimée côté pauvre par l'ensemble des modèles. A cette surestimation succède une sous-estimation de la vitesse mesurée côté riche. Toutefois, on remarque, contrairement aux observations faites pour le G27, que l'ensemble des modèles prédisent bien le rapport d'équivalence pour lequel le maximum de vitesse est atteint lorsque la température varie.

L'évolution de $\frac{S_{L,exp} - S_{L,model}}{S_{L,exp}}$ pour chacun des modèles en fonction du rapport d'équivalence est présentée Figure 2-17.

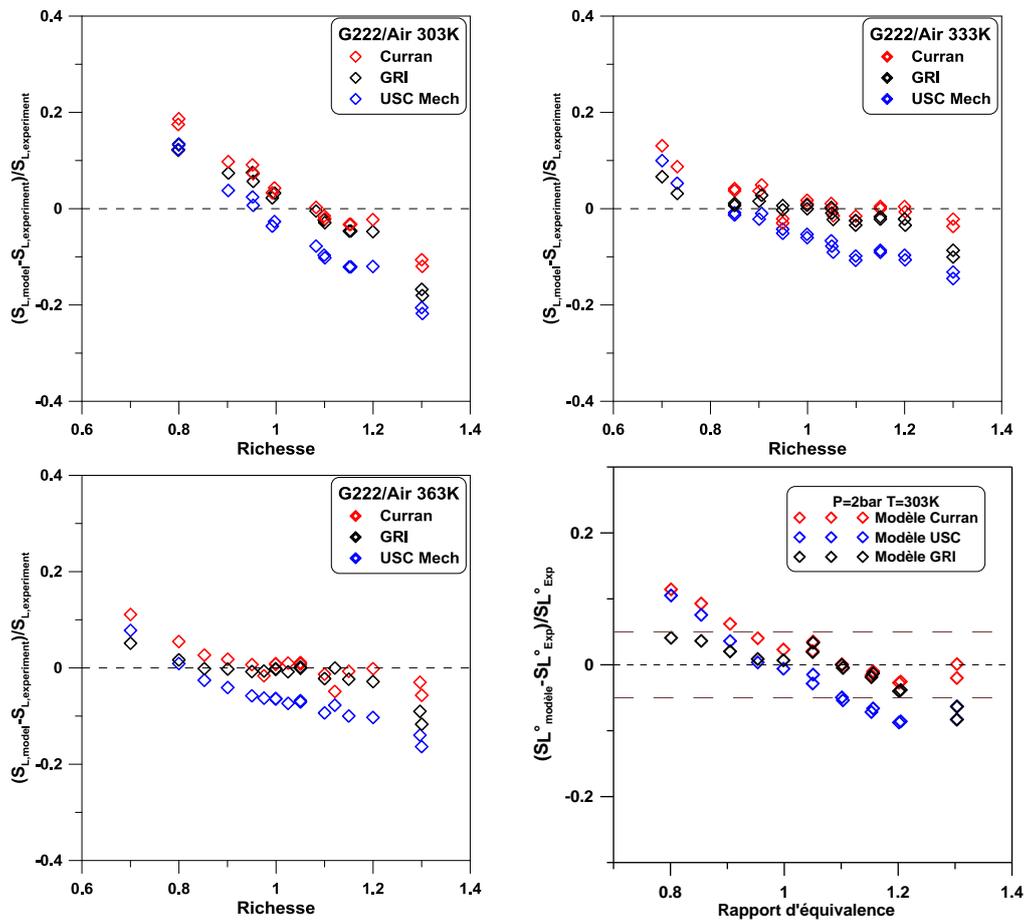


Figure 2-17 : Evolution de l'erreur sur la prédiction en fonction du rapport d'équivalence pour différentes conditions initiales

On constate sur cette étude de modélisation cinétique un excellent accord entre l'expérience et les modèles cinétiques détaillé du GRI et de Curran dans l'ensemble des cas, avec toutefois une meilleure prédiction dans le cas du GRI. L'évaluation des énergies d'activation se fera donc sur la base de ce mécanisme.

2.4.2 Evaluation des énergies d'activation et du nombre de Zeldovich

Les énergies d'activation des flammes de G222/Air ont été évaluées avec le GRI 3.0 mech suivant la méthode détaillée au cours de l'évaluation de celles du G27. Les résultats sont reportés sur la Figure 2-18.

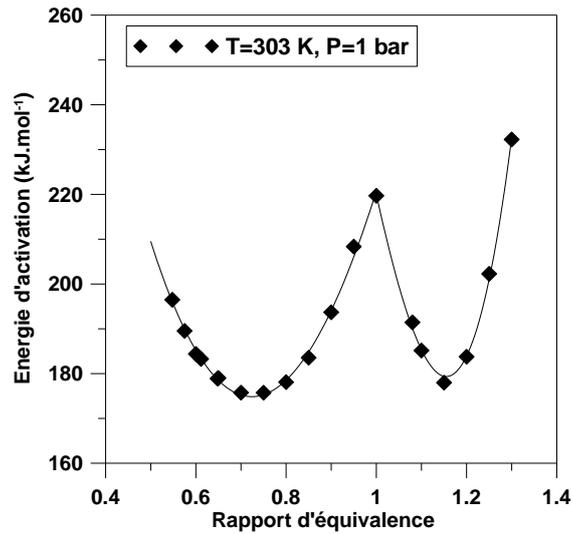


Figure 2-18 : Energies d'activation des mélanges G222/Air à pression et température ambiantes

On constate sur cette courbe une évolution en forme de W, que nous avons déjà notée dans le cas du G27, pour l'énergie d'activation en fonction du rapport d'équivalence. Ainsi, une décroissance de l'énergie d'activation pour les très faibles rapports d'équivalence jusqu'à un minimum local de 175 kJ/mol est observée. Cette décroissance est suivie d'une augmentation de l'énergie avec l'augmentation du rapport d'équivalence vers un maximum local de 220 kJ/mol pour un rapport d'équivalence de 1. On note par la suite une décroissance vers un nouveau minimum local (177 kJ/mol) pour un rapport d'équivalence de 1,15.

Nous avons proposé deux corrélations polynômiales en fonction du rapport d'équivalence pour exprimer l'énergie d'activation des mélanges G222/Air :

$$\Phi \in [0,6:1], \rightarrow E_a = 542,08 - 1065,75\Phi + 843,21\Phi^2 - 98,71\Phi^3 \quad \text{Eq. 61}$$

$$\Phi \in [1:1,3], \rightarrow E_a = -1338,31 + 6401,84\Phi - 7672,55\Phi^2 + 2829\Phi^3 \quad \text{Eq. 62}$$

3 Cas du H₂/CO

Ici, nous allons présenter les résultats des expériences en bombe sphérique sur le mélange hydrogène-monoxyde de carbone composé à 50% d'hydrogène et à 50% de monoxyde de carbone. Les bouteilles en aluminium utilisées pour le stockage du mélange ne présentaient pas le risque de corrosion avec formation de pentacarbonyle de fer comme nous l'avions mentionné précédemment pour le cas de des bouteilles en acier inoxydable.

3.1 Les vitesses de flamme

Les vitesses de flamme ont été mesurées dans la bombe sphérique pour différentes conditions initiales.

3.1.1 Les vitesses de flamme à 300 K et 1 bar

Les vitesses de flamme des mélanges H₂/CO à 1 bar et 300 K ont été mesurées pour des rapports d'équivalence allant de 0,5 à 4 et sont reportées dans la Figure 3-1. On note sur la figure que l'allure en cloche de la courbe est semblable à celles déjà observées dans le cas du G222 et du G27. Elle est caractérisée par une augmentation de la vitesse de flamme qui atteint un maximum de 194,1 cm/s pour un rapport d'équivalence de 2,2. S'en suit une rapide décroissance de la vitesse avec l'augmentation du rapport d'équivalence pour les rapports d'équivalence supérieurs à 2,2. L'erreur moyenne est de 4%

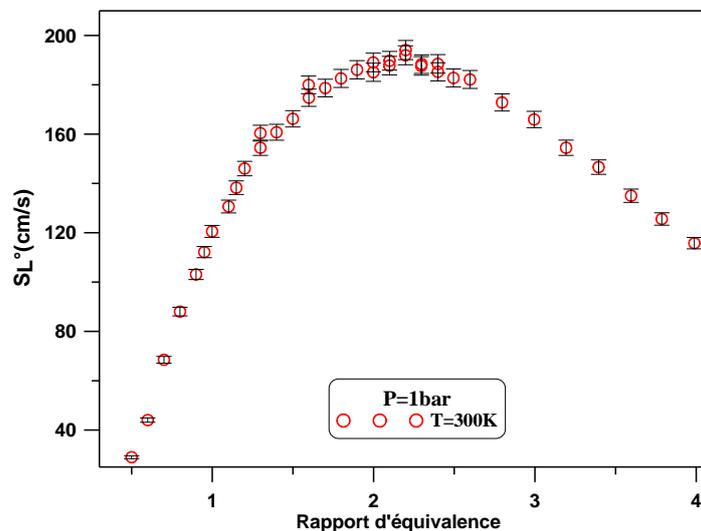


Figure 3-1 : Vitesses de flamme des mélanges H₂/CO 50/50 en fonction du rapport d'équivalence à 1 bar et 300 K

Si ensuite on compare nos résultats expérimentaux à ceux de la littérature, on note un très bon accord côté pauvre pour des rapports d'équivalence inférieurs à 1. Côté riche, tous les auteurs de la littérature à l'exception de Burke et al. [78] sous-estiment largement la vitesse de flamme. Ceci avait été évoqué par Burke et al. [78] qui l'ont attribué à la décomposition du CO stocké dans les bouteilles en acier inoxydable en pentacarbonyle de fer. Celui-ci se comporte comme un diluant au cours de la combustion et entraîne une sous-estimation de la vitesse de flamme côté riche. En ce qui concerne les données proposées par Burke et al., on note un maximum de vitesse (185cm/s) obtenu pour un rapport d'équivalence de 2. Cela s'explique par le fait que les auteurs n'ont pas réalisé de mesures de vitesses entre les rapports d'équivalence 2 et 2,5.

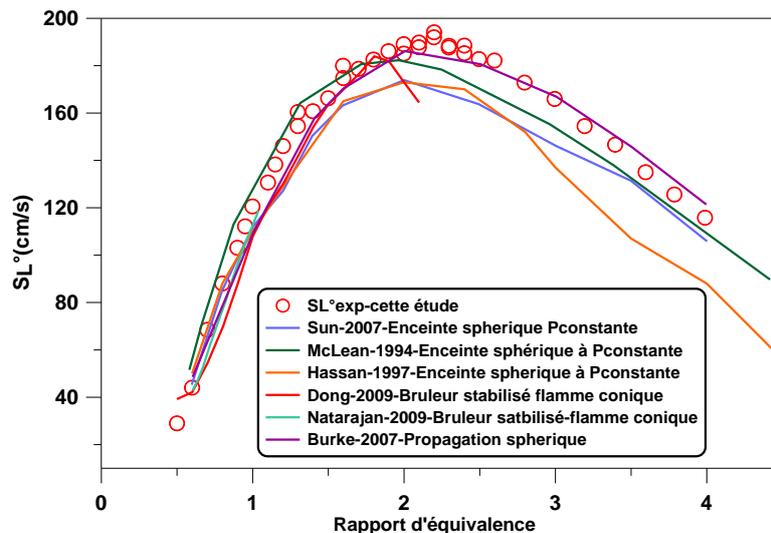


Figure 3-2 : Vitesses de flamme des mélanges en fonction du rapport d'équivalence pour les mélanges H_2/CO 50/50 à 1 bar et 300 K, comparaison avec la littérature et les données de Sun et al. [77], McLean et al. [75], Hassan et al. [76], Natarajan et al. [83], Burke et al. [78]

3.1.2 Influence de la température initiale

L'effet de la température initiale sur les vitesses de flamme des mélanges $H_2/CO/Air$ a été étudié et est présenté dans la Figure 3-3. Tout d'abord, concernant les limites du domaine de rapport d'équivalence dans lequel les vitesses de flamme étaient accessibles, on note qu'avec l'augmentation de la température, ce domaine s'étend très significativement côté riche. Il passe ainsi d'un rapport d'équivalence de 4 pour une température initiale de 300 K, à 4,8 pour une température initiale de 333K puis à 5,8 pour une température initiale fixée à 363 K. En ce qui concerne l'allure générale (en cloche) de la courbe il apparaît qu'elle n'est pas soumise à l'influence de la température initiale.

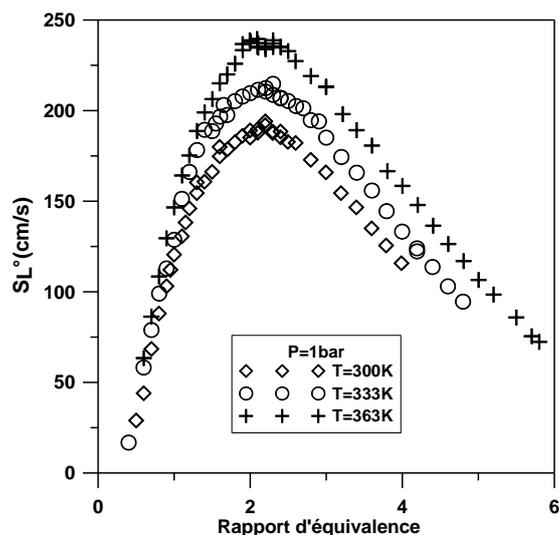


Figure 3-3 : Influence de la température initiale sur l'évolution de la vitesse de flamme en fonction du rapport d'équivalence pour les mélanges H₂/CO 50/50 /Air

On note néanmoins, globalement une augmentation de la vitesse de flamme avec l'augmentation de la température initiale sur l'ensemble du domaine de rapport d'équivalence. Cette augmentation moins prononcée côté pauvre est plus prononcée côté riche et se traduit par des vitesses maximales de flamme qui passent de 194 cm/s lorsque la température initiale est fixée à 300 K à 214,8 cm/s (rapport d'équivalence 2,3) lorsque la température était fixée à 333 K. Lorsque cette température passe à 363 K, on observe une vitesse maximale de 239,6 cm/s pour un rapport d'équivalence de 2,09.

3.1.3 Influence de la pression initiale sur la vitesse de flamme

L'augmentation de la pression initiale à 2 bar est caractérisée par l'apparition d'instabilités thermo-diffusives dans le cas où le diluant est l'air. Ces instabilités sont un facteur limitant de la mesure de la vitesse de flamme. Ces instabilités résultent du déséquilibre entre les diffusions thermiques et massique et induisent un plissement du front de flamme. Ce plissement du front de flamme résulte en une accélération supplémentaire du front de flamme. Cette accélération supplémentaire altère les mesures de vitesse de flamme et devrait être quantifiée afin de prendre ses effets en compte au moment de la détermination de la vitesse de flamme. A l'heure actuelle, il n'est pas possible de prendre en compte l'effet du plissement de flamme et la détermination des vitesses fondamentales de flamme dans ces conditions n'est tout simplement pas possible. Pour accéder aux vitesses de flammes des mélanges H₂/CO à pression initiale de 2 bar, nous avons substitué de l'hélium à l'azote de l'air. L'hélium disposant d'une masse molaire proche de celle de l'hydrogène, on réduit ainsi le phénomène de diffusion massique dans le milieu qui est à l'origine de l'apparition des instabilités thermo-diffusives.

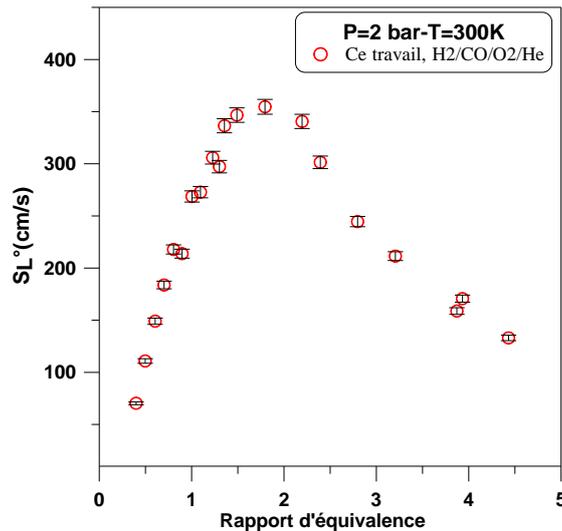


Figure 3-4 : Vitesses de flamme en fonction du rapport d'équivalence des mélanges H₂/CO/O₂/Hé à 2 bar et 300 K

Enfin, une corrélation basée sur l'étude des vitesses de flamme des mélanges H₂/CO/Air à 1 bar a permis d'exprimer la vitesse de flamme en fonction de la richesse et de la température. Les données sur l'augmentation de pression n'ont pas été incluses dans la corrélation étant donné que les expériences associées n'ont pas été réalisées dans l'air.

$$\forall \begin{cases} \phi \in [0,5; 4] \\ T \in [303; 363] \end{cases}, S_L^0(\phi, T) = (-23,3\phi^2 + 125,2\phi - 16,2) \left(\frac{T}{T_{ref}} \right)^{1,3} \quad \text{Eq. 63}$$

Avec $T_{ref} = 303\text{K}$.

3.2 Les longueurs de Markstein

3.2.1 Les longueurs de Markstein à température et à pression ambiante

Sur la Figure 3-5, nous avons représenté l'évolution de la longueur de Markstein des mélanges H₂/CO en fonction du rapport d'équivalence. On remarque sur cette courbe que la longueur de Markstein augmente sur l'ensemble du domaine avec l'augmentation du rapport d'équivalence. Elle reste néanmoins positive côté riche indiquant la stabilité de la flamme tandis que côté pauvre, pour les deux premiers rapports d'équivalence étudiés (0,5, 0,6), cette longueur est négative.

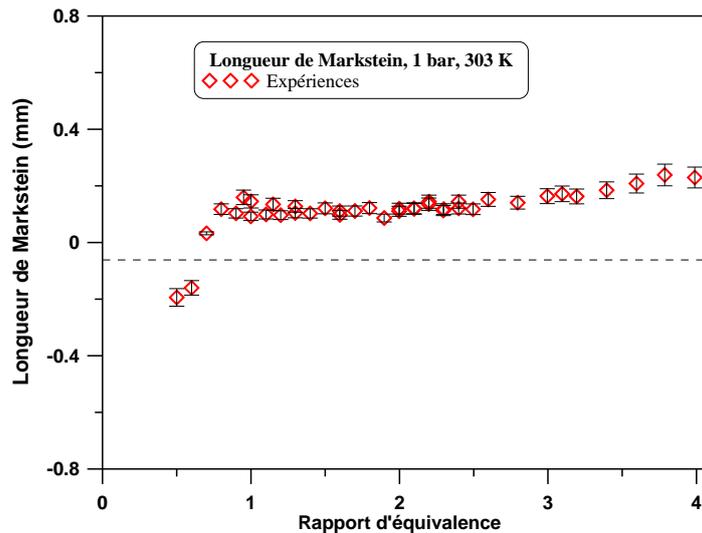


Figure 3-5 : Les longueurs de Markstein en fonction du rapport d'équivalence pour les mélanges H_2/CO à $T=300\text{ K}$ et $P=1\text{ bar}$

3.2.2 Influence de la température initiale

Sur la Figure 3-6, nous avons représenté les longueurs de Markstein en fonction du rapport d'équivalence pour trois températures initiales : 300 K, 333 K et enfin 363 K. On note, dans l'ensemble, que l'augmentation de la température ne modifie pas la forme de la courbe de la longueur de Markstein. Cette courbe se caractérise par un accroissement de la longueur de Markstein avec le rapport d'équivalence. Côté pauvre, pour les températures initiales de 300 K et de 333 K, on note des longueurs de Markstein négatives qui caractérisent une flamme instable tandis que pour une température initiale fixée à 363 K, on note des longueurs de Markstein proches de zéro caractéristiques d'une faible influence de l'étirement sur l'accélération de la flamme.

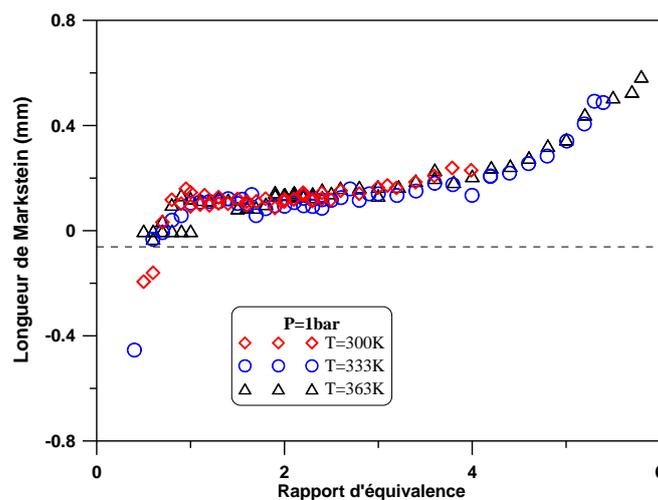


Figure 3-6 : Effet de la température initiale sur les longueurs de Markstein en fonction du rapport d'équivalence des mélanges $H_2/CO/Air$

3.3 Paramètres d'explosivité des mélanges H₂/CO dans l'air

3.3.1 Pressions maximales de combustion

Les pressions maximales mesurées au cours de la combustion des mélanges H₂/CO ont été représentées sur la Figure 3-7 en même temps que la P_{AICC}. On peut y voir que la pression maximale mesurée croît en même temps que le rapport d'équivalence pour atteindre une valeur maximale de 7,14 bars pour un rapport d'équivalence de 1,2. Cette augmentation est par la suite suivie d'une décroissance de la pression maximale à mesure de l'augmentation du rapport d'équivalence. Cette évolution de la pression maximale est conforme à celle calculée dans le cas d'une combustion idéale. Les pressions maximales ainsi mesurées représentent ainsi 96% de la P_{AICC} lorsque le rapport d'équivalence est de 0,4. Ce pourcentage décroît ensuite à mesure que le rapport d'équivalence augmente pour atteindre une valeur minimale de 88% pour un rapport d'équivalence de 1,2 puis se remet à croître avec l'augmentation du rapport d'équivalence. Cette évolution qui semble liée à la température de flamme comme on peut le voir sur la Figure 3-8 traduit la sensibilité du capteur de pression à une variation brusque de la température de flamme. Ceci résulte du couplage entre les vitesses élevées qui caractérisent les mélanges H₂/CO et l'augmentation de la température dans l'enceinte liée à la combustion. Pour limiter cet effet, de la graisse a été appliquée sur la partie sensible du capteur dans la suite des essais (pour les températures initiales de 333 K et 363 K).

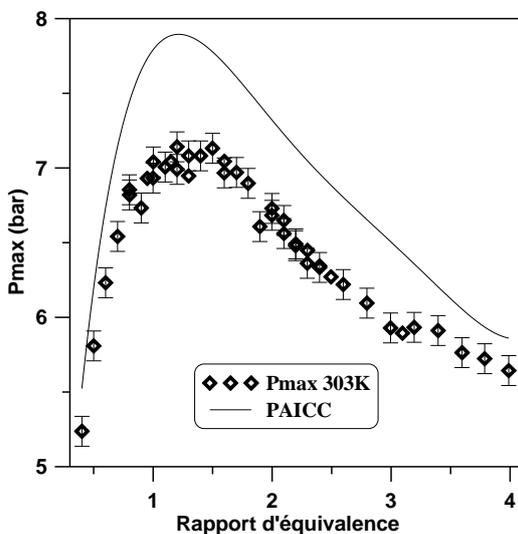


Figure 3-7 : Pressions maximales de combustion et P_{AICC} en fonction du rapport d'équivalence pour le mélange H₂/CO à 303 K et 1 bar

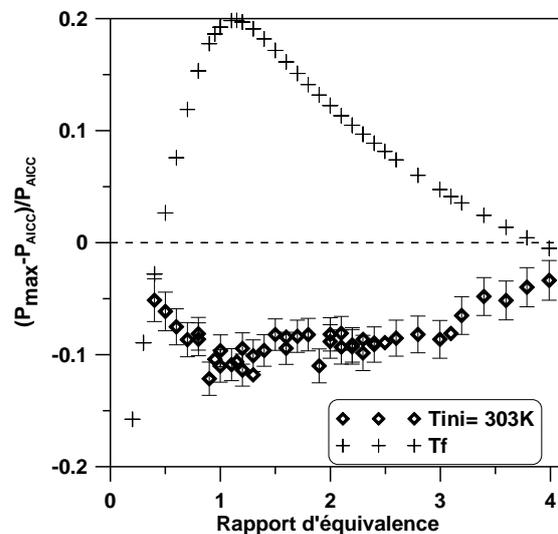


Figure 3-8 : Comparaison entre la pression mesurée et la P_{AICC} en fonction du rapport d'équivalence pour le mélange H₂/CO à 303 K et 1 bar

Les résultats de l'effet de la température initiale sur la pression maximale mesurée sont reportés sur la Figure 3-9 et la Figure 3-10.

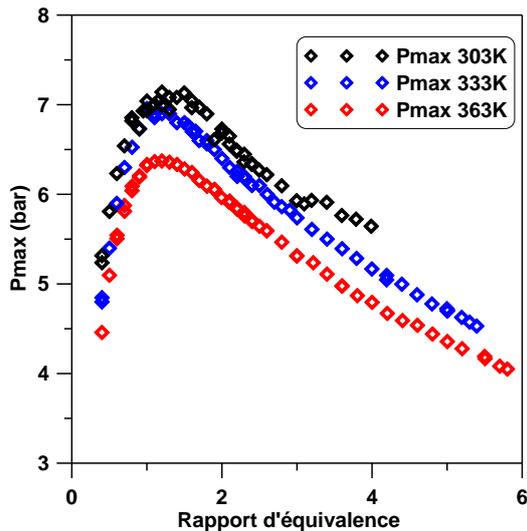


Figure 3-9 : Influence de la température initiale sur les pressions maximales mesurées selon le rapport d'équivalence pour les mélanges H₂/CO Air

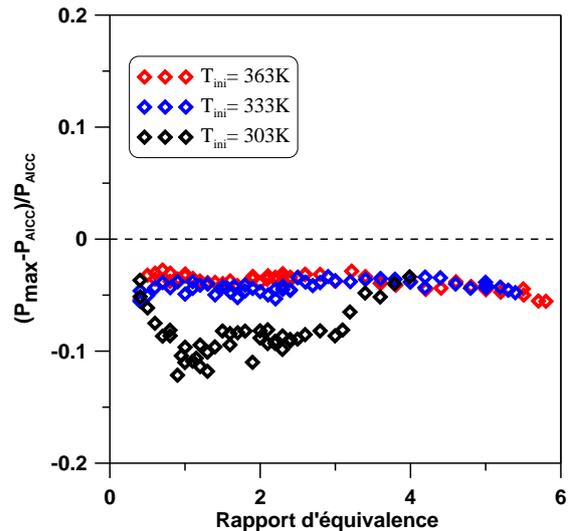


Figure 3-10 : Comparaison entre les pressions maximales de combustion et les P_{AICC} pour le mélange H₂/CO à 303 K et 1 bar à différentes températures initiales pour les mélanges H₂/CO Air

On y constate comme pour les hydrocarbures précédemment étudiés que l'augmentation de la température initiale résulte en une diminution de la pression maximale de combustion sur l'ensemble du domaine de rapport d'équivalence. On observe cependant, une baisse moins importante de la pression mesurée dans le cas où la température initiale passait de 303 K à 333 K. Ceci est dû à la sous-estimation de la pression maximale de flamme à température ambiante tandis que, pour une température initiale de 333 K et 363 K, le problème avait été corrigé par l'application de graisse sur la surface sensible du capteur de pression.

3.3.2 Vitesses maximales de montée en pression et indice de déflagration.

Les vitesses maximales de montée en pression ainsi que l'indice de déflagration des mélanges H₂/CO ont été évaluées et reportées sur les Figure 3-11 et Figure 3-12. On y observe que les vitesses maximales de montée en pression du H₂/CO suivent la même évolution que celle notée dans le cas des hydrocarbures. Par ailleurs, il est important de noter que contrairement au cas des hydrocarbures, il apparaît que sur l'ensemble du domaine de rapport d'équivalence, la valeur de $\left(\frac{dP}{dt}\right)_{max}$ croît avec l'augmentation de la température initiale. Cette augmentation semble pourtant très faible lorsque la température initiale passe de 303 K à 333 K. Cela se justifie par la sous-estimation de la valeur de la pression maximale et la sensibilité du capteur à l'augmentation brusque de température lorsque la pression initiale était fixée à 303 K.

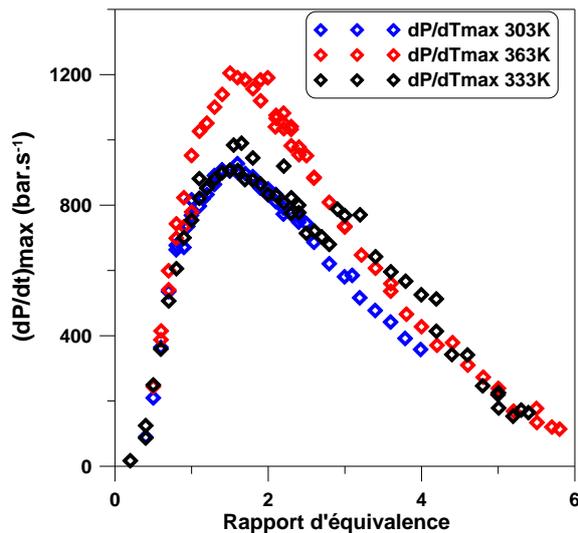


Figure 3-11 : Vitesse maximale de montée en pression en fonction du rapport d'équivalence à différentes températures initiales pour les mélanges H₂/CO Air

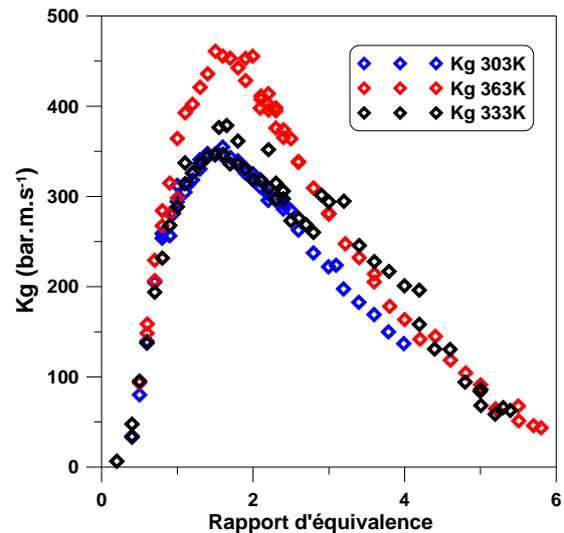


Figure 3-12 : Indice de déflagration en fonction du rapport d'équivalence à différentes températures initiales pour les mélanges H₂/CO Air

On note ainsi qu'à température ambiante, la vitesse maximale de montée en pression était de 927 bar/s pour un indice de déflagration de 354 bar.s⁻¹.m⁻¹. A titre de comparaison, dans le cas du G27 cette valeur était de 84 bar.s⁻¹.m⁻¹ et dans le cas du G222 elle était de 101 bar.s⁻¹.m⁻¹. Cette différence entre les indices de déflagration traduit la très forte réactivité des mélanges H₂/CO en comparaison aux mélanges hydrocarbures testés dans les mêmes conditions.

Avec l'augmentation de la température initiale qui est ensuite fixée à 333 K, on note une augmentation de la vitesse maximale de montée en pression dont le maximum est évalué à 989 bar/s associé à un indice de déflagration de 378 bar.s⁻¹.m⁻¹ pour un rapport d'équivalence de 1,35. Enfin, lorsque la température initiale était fixée à 363 K, cette vitesse était 1200 bar/s, l'indice de déflagration était de 460 bar.s⁻¹.m⁻¹ pour un rapport d'équivalence de 1,5.

3.4 Modélisation cinétique détaillée

Nous avons modélisé les vitesses de flamme des mélanges H₂/CO/Air en utilisant trois modèles cinétiques détaillés. En plus de celui du GRI, qui a été présenté dans le cadre de la modélisation des flammes d'hydrocarbures, deux autres mécanismes ont été testés. Il s'agit :

- Du mécanisme cinétique détaillé proposé par le Creck à Milan sur les flammes hydrogène + monoxyde de carbone dans sa version 11/01 (Janvier 2011)
- Du mécanisme cinétique proposé par Li et al. [80] en 2007 pour les flammes hydrogène + monoxyde de carbone

3.4.1 Comparaison expérience modélisation

La comparaison entre les expériences et la modélisation est réalisée uniquement sur vitesses mesurées à 1 bar. Ceci est dû au fait que lorsque la pression était fixée à 2 bar, des problèmes ont été rencontrés pour atteindre la convergence pour les mécanismes du GRI et du Creck.

A température ambiante, le mécanisme du GRI présente un excellent accord avec les valeurs expérimentales. On constate que l'erreur de prédiction est inférieure à 5% sur une large gamme de rapport d'équivalence (1 à 3,5). Il apparaît de plus que le modèle surestime la vitesse de flamme pour des valeurs de rapport d'équivalence proches de 2,1 pour laquelle le maximum de vitesse est observé. De part et d'autre de ce rapport d'équivalence, le modèle sous-estime la vitesse de flamme. L'augmentation de la température initiale à 333 K, confirme ces tendances même s'il faut noter une moins bonne prédiction de la vitesse de flamme pour autour du rapport d'équivalence pour lequel le maximum de vitesse est relevé ainsi qu'un moins bon accord global entre l'expérience et la modélisation. Pour une température initiale fixée à 363 K, on note une surestimation de la vitesse de flamme, par le modèle, sur une gamme de rapport d'équivalence compris entre 1 et 4, et une sous-estimation de cette vitesse de parts et d'autres de cette gamme. Ce comportement est caractérisé tant côté pauvre que côté très riche par des erreurs absolues supérieures à 5% et allant même jusqu'à 20% côté riche. La corrélation proposée Eq.41 permet de comparer l'influence de la température initiale telle que prédite par le mécanisme du GRI aux observations expérimentales. Ainsi, il apparaît que l'effet de la température sur l'augmentation de la vitesse de flamme est surestimé par le modèle (1,6 pour le modèle et 1,3 pour l'expérience).

$$\frac{S_L^0}{S_{LRef}^0} = \left(\frac{T}{T_{Ref}} \right)^{1,6} \quad \text{Eq. 64}$$

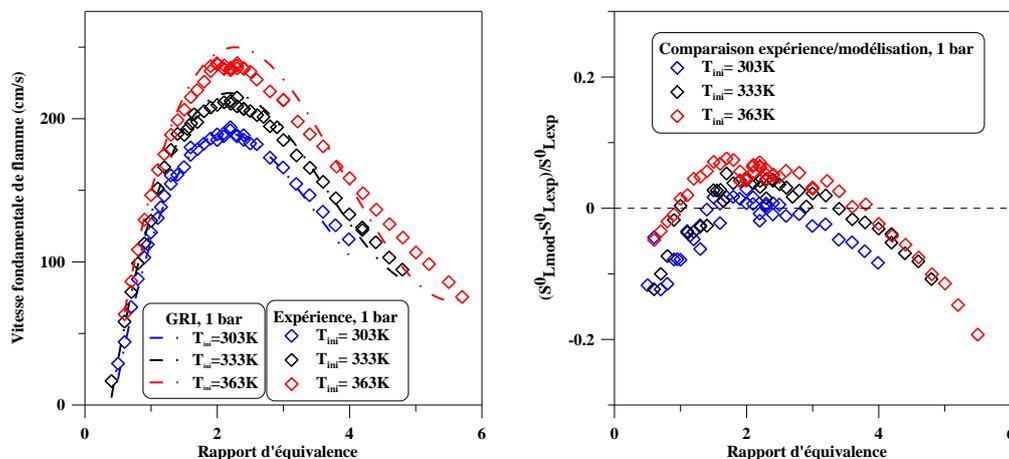


Figure 3-13 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges $[0,5H_2+0,5CO]/Air$ à différentes températures initiales pour le modèle du GRI

S'agissant du mécanisme cinétique proposé par Li et al., on note un bon accord entre les vitesses modélisées et l'expérience caractérisé par une erreur absolue inférieure à 5% sur près de l'ensemble du domaine de rapport d'équivalence. Toutefois, on note une sous-estimation de la vitesse de flamme sur ce domaine tant côté pauvre que côté riche. De l'augmentation de la température à 333 K, il résulte des erreurs absolues inférieures à 5% de la vitesse mesurée. On observe par ailleurs une sous-estimation de la vitesse de flamme lorsque le rapport d'équivalence est inférieur à 2 et une surestimation de ladite vitesse lorsque ce rapport est supérieur à 2. Enfin, pour une température initiale de 363 K, on obtient encore un excellent accord entre l'expérience et la modélisation avec une vitesse modélisée supérieure à la vitesse mesurée sur l'ensemble du domaine de rapport d'équivalence.

L'influence de la température initiale sur la vitesse de flamme est exprimée dans Eq.42. On y voit que le modèle surestime l'influence de la température sur l'augmentation de la vitesse de flamme en comparaison à la corrélation expérimentale. Le coefficient d'évolution de la température est ainsi de 1,69 dans le cas du modèle du GRI contre 1,3 dans le cas des expériences.

$$\frac{S_L^0}{S_{LRef}^0} = \left(\frac{T}{T_{Ref}} \right)^{1,69} \quad \text{Eq. 65}$$

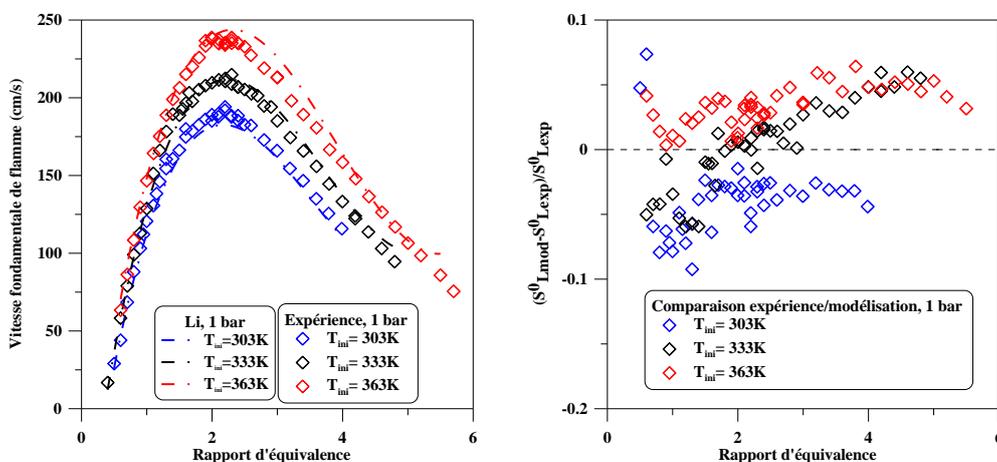


Figure 3-14 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges $[0,5H_2+0,5CO]/Air$ à différentes températures initiales pour le modèle de Li

Enfin, pour ce qui est du mécanisme cinétique proposé par le Creck à Milan, on note une sous-estimation très importante de la vitesse de flamme sur l'ensemble du domaine de rapport d'équivalence quelque soit la température initiale. Cette sous-estimation est caractérisée par des erreurs absolues de l'ordre de 10% de la vitesse de flamme. On note toutefois une diminution de l'erreur de prédiction avec l'augmentation de la température initiale.

La corrélation donnant la valeur de la vitesse de flamme en fonction de la vitesse de référence (à P= 1 bar et T=303 K) a été proposée comme pour les deux précédents mécanismes (Eq.43). Elle traduit la surestimation de l'influence de la température initiale sur la vitesse de flamme par le modèle cinétique du Creck en comparaison à l'expérience.

$$\frac{S_L^0}{S_{LRef}^0} = \left(\frac{T}{T_{Ref}} \right)^{2,1} \quad \text{Eq. 66}$$

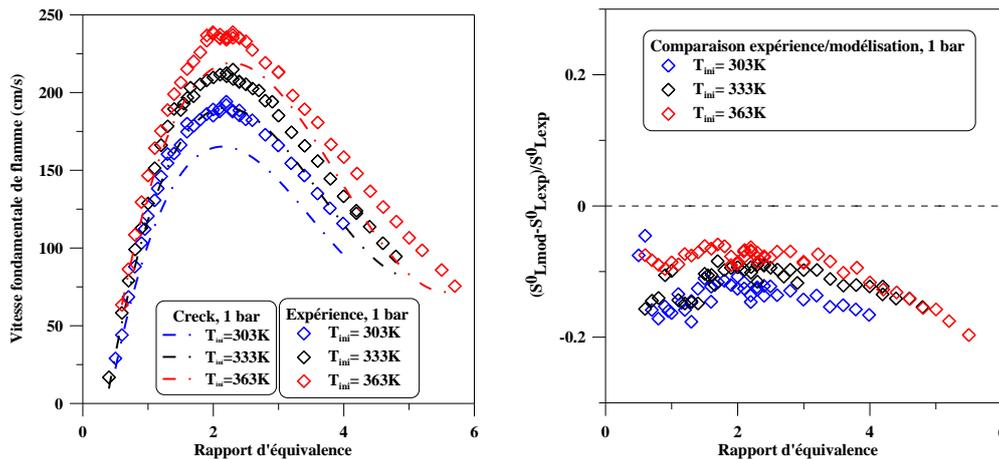


Figure 3-15 : Comparaison entre l'expérience et la modélisation des vitesses de flamme des mélanges $[0,5H_2+0,5CO]/Air$ à différentes températures initiales pour le modèle du Creck

Conclusion :

La figure suivante montre les résultats de la comparaison entre le modèle et l'expérience pour les vitesses de flamme des mélanges H_2/CO dans l'air. Globalement, on y voit que les différents modèles cinétiques utilisés présentent un bon accord avec l'évolution générale de la courbe expérimentale. Cela se traduit notamment par une bonne prédiction du rapport d'équivalence pour laquelle le maximum de vitesse est atteint dans l'ensemble des cas.

L'analyse des erreurs d'estimation de la vitesse de flamme en fonction du rapport d'équivalence pour les trois modèles est présentée sur la Figure 3-17.

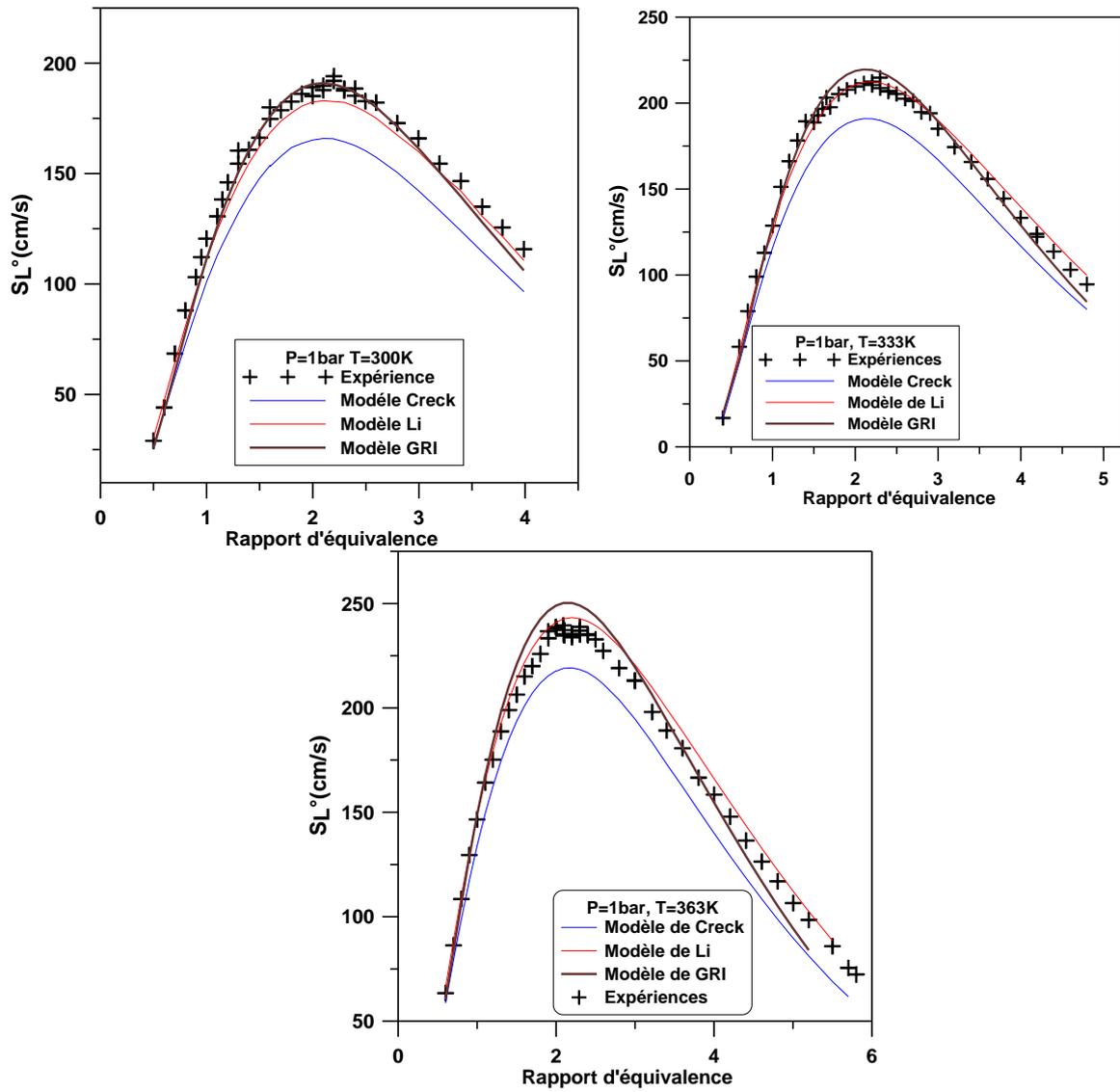


Figure 3-16 : Comparaison de la vitesse de flamme mesurée avec la modélisation pour les différentes températures

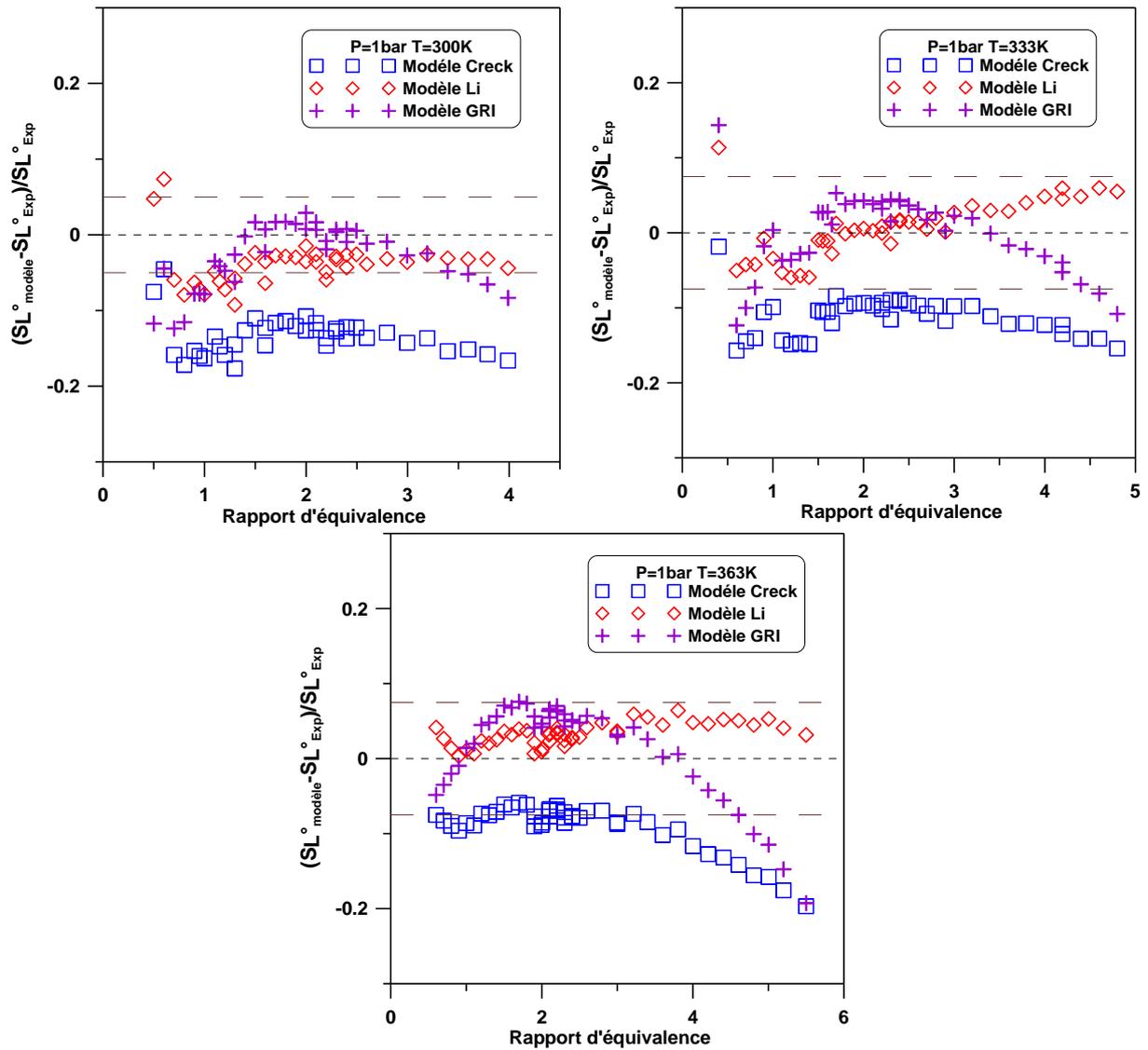


Figure 3-17 : Evolution de l'erreur commise pour différentes conditions initiales

Ainsi, pour les mélanges pauvres, le mécanisme le plus indiqué est celui de Li. Ce mécanisme sera donc utilisé pour prédire l'énergie d'activation globale nécessaire au calcul du nombre de Zeldovich.

3.4.2 Evaluation des énergies d'activation et du nombre de Zeldovich

Les énergies d'activation des mélanges H_2/CO dans l'air ont été évaluées sur la base du mécanisme cinétique proposé par Li et al. [80]. La méthode employée est la même que celle utilisée pour les mélanges hydrocarbure/air étudiés précédemment. La courbe est présentée sur la Figure 3-18. Cette courbe présente trois régions en forme de cloche. La première, pour les rapports d'équivalence de 0,3 à 1,2 est caractérisée par un minimum local à 130 kJ/mol. Ce minimum local est suivi d'une croissance vers un maximum local pour un rapport d'équivalence de 1,2 avec une énergie de 160kJ/mol. La deuxième partie de la courbe,

pour les rapports d'équivalence de 1,2 à 2,6 est caractérisée par un minimum local de 84 kJ/mol lorsque le rapport d'équivalence est de 1,8. Enfin, la troisième partie, elle, est caractérisée par un minimum local de 91 kJ/mol pour un rapport d'équivalence de 3.

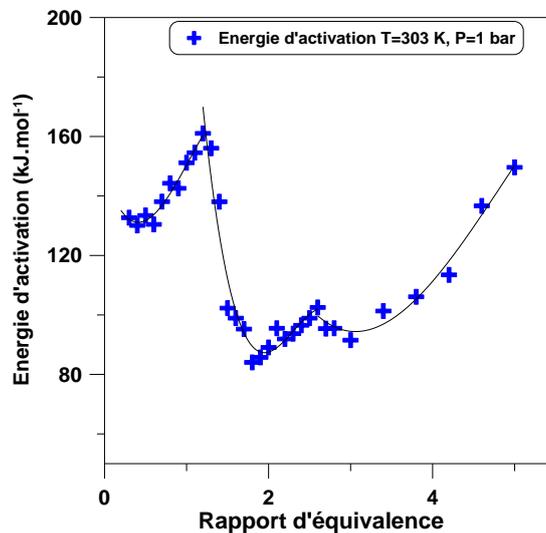


Figure 3-18 : Energies d'activation des mélanges en fonction du rapport d'équivalence pour les mélanges H₂/CO air à 1 bar et 300 K

Afin de représenter le mieux possible cette courbe des énergies d'activation, trois corrélations polynomiales ont été proposées suivant les gammes de rapport d'équivalence. Ainsi, l'énergie d'activation s'exprime comme suit :

$$\Phi \in [0, 3: 1, 2], \rightarrow E_a = 147.87 - 88.60\Phi + 134.19\Phi^2 - 43.02\Phi^3 \quad \text{Eq. 67}$$

$$\Phi \in [1, 2: 2, 6], \rightarrow E_a = 1013.16 - 1255.33\Phi + 557.02\Phi^2 - 80.38\Phi^3 \quad \text{Eq. 68}$$

$$\Phi \in [1, 2: 2, 6], \rightarrow E_a = 432.45 - 260.85\Phi + 62.18\Phi^2 - 4.25\Phi^3 \quad \text{Eq. 69}$$

4 Conclusion

L'objectif de cette étude en bombe sphérique était d'évaluer les propriétés fondamentales des mélanges que nous avons choisi d'étudier au cours de ce travail.

Ainsi, les vitesses de flamme des mélanges G27/Air, G222/Air et H₂/CO/Air ont été mesurées pour trois températures initiales (303, 333 et 363 K) et deux pressions (1 et 2 bars). Pour l'ensemble des mélanges gazeux étudiés, nous avons noté une augmentation de la vitesse fondamentale de flamme avec l'augmentation de la température initiale. Inversement, l'augmentation de la pression initiale entraînait une diminution de la vitesse fondamentale. Pour des conditions initiales de 1 bar et 303 K, un bon accord a été obtenu, dans le cas du G27 et du G222, avec les données présentes dans la littérature ayant des compositions semblables. En ce qui concerne le mélange H₂/CO, un excellent accord a été obtenu avec les données de Burke et al. [78]. Une corrélation basée sur les expériences a été proposée pour chacun des trois mélanges et permet d'exprimer la vitesse fondamentale de flamme selon la richesse, la température et la pression initiales. Cette corrélation, dans le cas du G27, a fait l'objet d'une comparaison avec la corrélation proposée par Gu et al. [58] pour les mélanges méthane/air à la stœchiométrie. Un bon accord concernant l'effet de la température et de la pression sur la vitesse de flamme a été observé.

Les longueurs de Markstein ont-elles aussi été mesurées pour ces trois mélanges et un assez bon accord a été obtenu avec les données présentes dans la littérature pour des mélanges ayant une composition similaire au G27 et au G222. Nous avons noté une légère augmentation de la longueur de Markstein avec l'augmentation de la température initiale. De même, lorsque la pression initiale augmentait, une légère baisse était observée.

Une modélisation cinétique détaillée a été réalisée avec les mécanismes cinétiques du GRI, du USC et le modèle de Galway pour le G27 et le G222. Il est apparu que le mécanisme du GRI prédisait le mieux les vitesses de flamme de ces deux mélanges et a donc servi de base pour l'évaluation des énergies d'activation. Dans le cas du H₂/CO, les mécanismes cinétiques du GRI, du Creck et de Li et al. ont été testés. Un excellent accord a été obtenu entre l'expérience et la modélisation dans le cas du modèle de Li qui a donc servi de base à l'évaluation des énergies d'activation des mélanges H₂/CO.

Enfin, la comparaison (Figure 4-1) de la vitesse de fondamentale de flamme et des énergies d'activation des trois mélanges étudiés permet d'illustrer les différences entre leurs propriétés fondamentales. En effet, il était important de choisir des mélanges gazeux présentant de propriétés différentes, aussi bien concernant l'aspect dynamique que celui de la réactivité (vitesse de flamme, énergie d'activation, longueurs de Markstein), dans le but de la généralisation du critère sigma d'accélération de flamme.

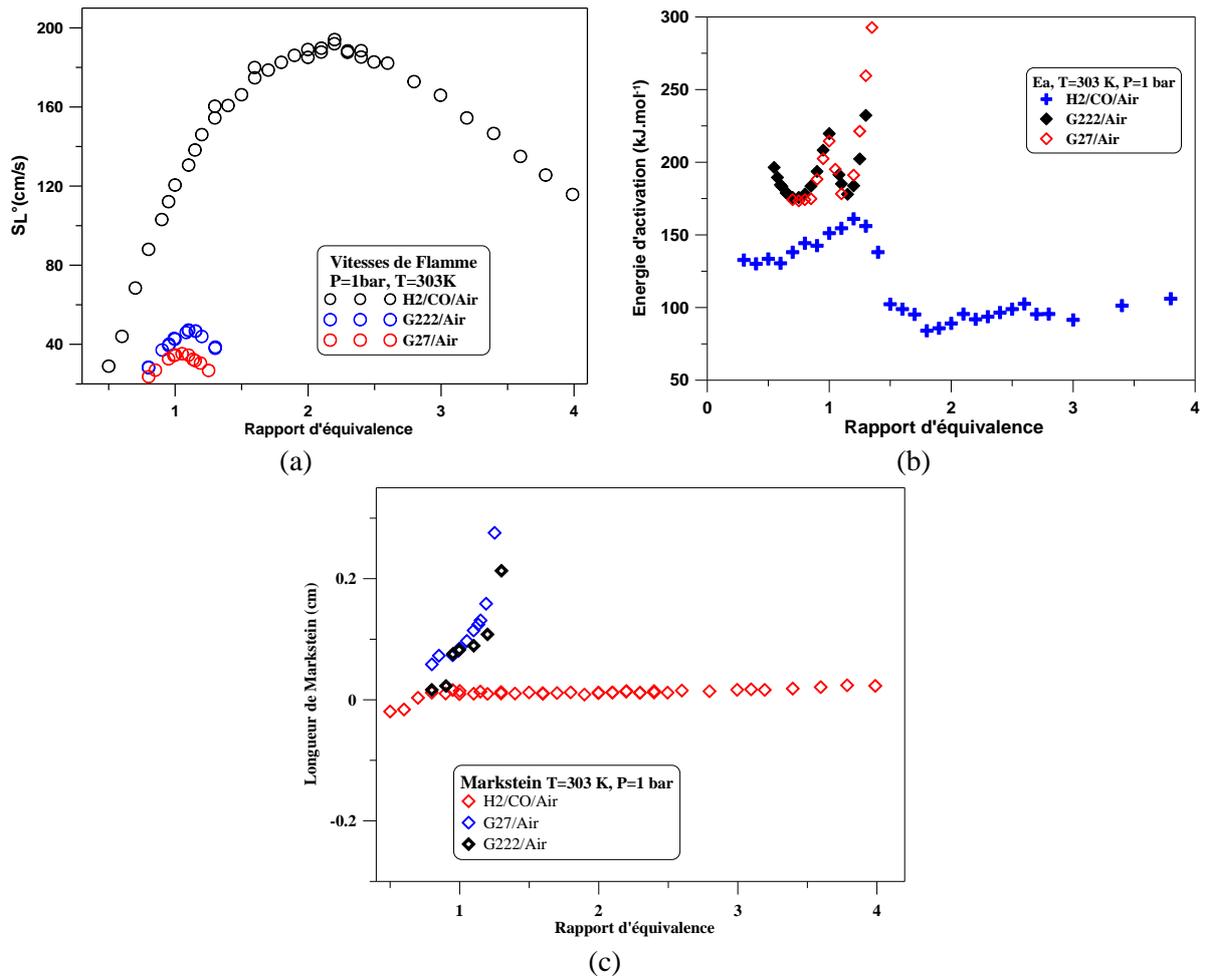


Figure 4-1 : (a) Récapitulatif des vitesses fondamentales de flamme G27, G222, H₂/CO (b) Energies d'activation du G27, G222, H₂/CO, (c) Longueurs de Markstein du G27, G222, H₂/CO

Chapitre V. Flammes Fortement Accélérées

L'objectif de ce chapitre est de présenter les résultats de l'étude que nous avons menée dans l'installation ENACCEF concernant la caractérisation de la propension d'une flamme à s'accélérer dans une enceinte confinée encombrée d'obstacles. Il s'agit ici de déterminer l'effet de différents paramètres caractéristiques du mélange combustible (nature du combustible, composition) et de la géométrie sur l'accélération de la flamme.

Au cours de ce travail, différentes configurations géométriques correspondant à différents degrés d'encombrement (nombre d'obstacle, taux de blocage, ..) ont été étudiées. Nous avons aussi déterminé l'influence de la composition sur la propagation de la flamme.

Adoptant la même classification que celle utilisée dans la littérature, [84, 85, 86, ...] et lors des précédentes thèses au laboratoire (Malet, Cheikhvat), on peut ainsi définir trois régimes de combustion : extinction, flamme lente et flamme rapide.

Dans le cas où la flamme ne s'éteint pas au cours de la propagation, on s'intéresse aux vitesses maximales de propagation de la flamme à l'aide desquelles on discrimine les différents régimes de propagation. Ainsi, si la vitesse maximale atteinte par la flamme au cours de sa propagation est supérieure à la moitié de la vitesse du son dans les gaz brûlés la flamme sera dite rapide. Dans le cas où, au contraire, la vitesse maximale atteinte par la flamme est inférieure à la moitié de la vitesse du son dans les gaz brûlés, la flamme sera dite lente.

L'étude réalisée dans le cadre de ce travail n'inclut pas la transition du régime de la déflagration vers celui de la détonation. Aussi, cet aspect ne sera pas abordé dans la suite de ce document.

1 Cas du G27 (82%CH₄+18%N₂)

Rappelons ici que le G27 est composé de 82% de méthane et de 18% d'azote. L'incertitude maximale sur la mesure de la vitesse est de 8%.

1.1 Propagation en tube lisse

La propagation de la flamme dans l'enceinte d'accélération de flamme sans obstruction a été étudiée. Les résultats sont présentés sur la Figure 1-1. On peut y voir l'évolution de la vitesse de flamme en fonction de la position dans l'enceinte pour différentes compositions initiales.

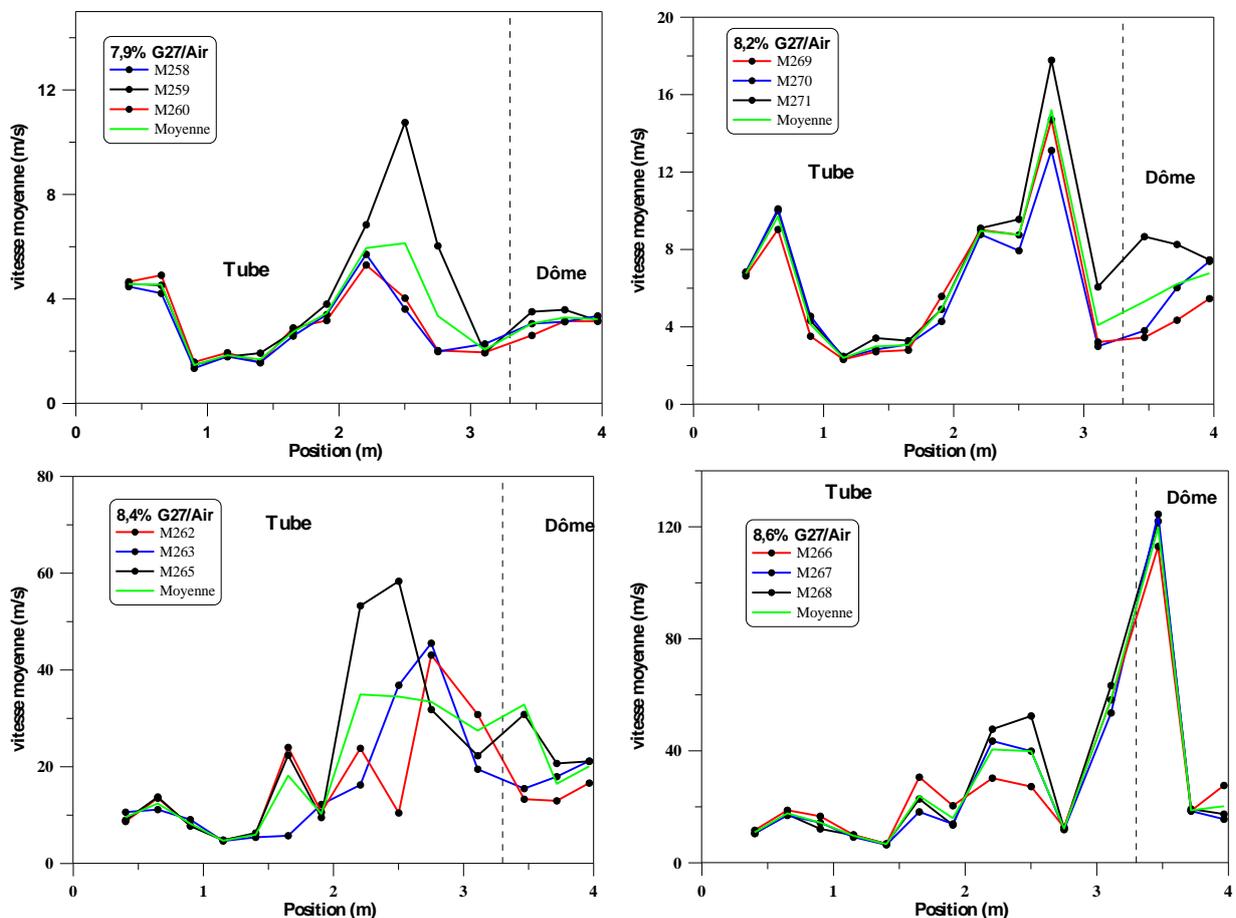


Figure 1-1 : Evolution de la vitesse de flamme en fonction de la position dans l'enceinte pour différentes compositions et en configuration de tube lisse

Trois essais répétés ont été réalisés avec une concentration initiale de G27 fixée à 7,9% dans l'air. Il apparaît, que la vitesse de flamme après l'inflammation est d'environ 4 m/s. Cette vitesse chute ensuite à 1 m/s lorsque la flamme est à 1 m du point d'inflammation et se remet à croître jusqu'à atteindre une vitesse maximale de 5 m/s correspondant à une position relative au point d'inflammation de 2,2 m pour les essais 258 et 260. Cette vitesse maximale qui est plus importante dans le cas de l'essai 259 (10 m/s) est atteinte lorsque la

flamme se situe à 2,5 m du point d'inflammation. Enfin, il est observé une baisse de la vitesse de flamme après ce maximum de vitesse et avant l'entrée dans le dôme au sein duquel, la flamme se propage à une vitesse proche de 3 m/s dans l'ensemble des trois essais.

Le pourcentage de G27 a, par la suite, été augmenté et porté à 8,2% dans l'air. Les mêmes observations que précédemment sont faites quand au premier mètre de propagation. Celui-ci est caractérisé par une augmentation de la vitesse de flamme lorsque la flamme se trouve à 0,6 m du point d'inflammation, suivie d'une baisse de vitesse. S'en suit ensuite, une croissance de la vitesse de flamme qui atteint une valeur maximale d'environ 15 m/s pour une position dans le tube de 2,7 m. Ce maximum est suivi d'une chute de la vitesse avant l'entrée dans le dôme au sein duquel la vitesse moyenne de propagation est de 6 m/s.

L'augmentation supplémentaire de la composition initiale en G27, fixée à 8,4% dans l'air conduit à un profil de vitesse moins homogène suivant les trois essais. Dans l'ensemble, il apparaît une augmentation de la vitesse jusqu'à une valeur maximale dans le tube 40 m/s à 2,7 m du point d'inflammation. Cette augmentation est suivie d'une chute de la vitesse qui se prolonge dans le dôme de l'enceinte.

Enfin, lorsque le pourcentage de G27 dans le mélange initial est porté 8,6%, on note pour l'ensemble des essais réalisés une accélération ponctuelle dans un premier temps par une vitesse maximale dans le tube de 40 m/s suivie d'une décélération puis d'une ré-accélération à l'entrée du dôme de l'enceinte. La vitesse maximale atteinte est de 119 m/s à 3,4 m du point d'inflammation.

Globalement, il faut noter l'augmentation de la vitesse avec l'augmentation de la concentration initiale de G27 dans l'air. De plus, pour toutes les teneurs en G27 testées, nous avons une propagation caractérisée par une vitesse qui oscille avec une amplitude qui augmente à mesure que l'on s'éloigne du point d'inflammation.

Sur l'ensemble des essais, on note l'apparition d'un maximum local de la vitesse de flamme à 0,65 m du point d'inflammation et ce, quelque soit la composition initiale. Il s'agit de la deuxième étape de la propagation de flamme en tube lisse décrite dans le 2.3.2 et qui est caractérisée par une vitesse maximale à 4 diamètres du point d'inflammation (0,154 m étant le diamètre de notre enceinte). Ce résultat conforte les observations de Phylaktou et al. [36]

En considérant la flamme hémisphérique dans le tube au cours de sa propagation, il est possible d'estimer une vitesse théorique de propagation de flamme et qui peut être exprimée comme étant fonction de la vitesse spatiale de flamme laminaire et du rapport entre la surface de flamme et celle du tube. Ainsi :

$$V_{S_{théo}} = \sigma S_L^0 \frac{A_{Fl}}{S_{tube}} \quad \text{Eq. 70}$$

Avec A_{Fl} la surface de flamme, S_{tube} la section du tube. Les vitesses fondamentales de flamme sont modélisées à l'aide du mécanisme du GRI puisqu'elles n'étaient pas accessibles

expérimentalement. Les résultats sont présentés sur le Tableau 1-1. Un bon accord est obtenu à 7,9% de G27 dans l'air entre la vitesse mesurée sur le premier mètre de propagation et la vitesse théorique. Cependant, avec l'augmentation de la concentration initiale de G27, la vitesse moyenne sur le premier mètre de propagation est sous-estimée par la vitesse théorique.

Ceci peut s'expliquer par une sous-estimation de la surface de flamme par l'approximation hémisphérique. En effet, il est clair que nous avons une transition de la flamme du régime laminaire au régime turbulent : l'accélération des gaz frais par la flamme induit une modification de l'écoulement en amont de celle-ci.

%G27	ϕ	σ	S_L^0 GRI (m/s)	V_s moyenne (m/s)	V_S Théorique (m/s)
7,9%	0,66	5,85	0,16	3	3,8
8,2%	0,69	6,00	0,18	6	4,4
8,4%	0,71	6,10	0,19	8	4,8
8,6%	0,73	6,20	0,21	12	5,2

Tableau 1-1 : Comparaison entre la vitesse théorique dans l'approximation d'une flamme hémisphérique et la vitesse moyenne mesurée dans le tube de l'enceinte

1.2 Influence du nombre d'obstacles sur le profil de vitesse

L'effet de l'obstruction du tube sur la vitesse de propagation de la flamme a été étudié dans le cas d'obstacles annulaires ayant un rapport de blocage de 0,33 et équidistants de 0,154 m (correspondant à une distance égale au diamètre interne du tube). Trois configurations différentes ont été choisies selon le nombre d'obstacles introduits dans le tube d'accélération de flamme.

- i) Une série de 8 obstacles, le premier et le dernier sont situés respectivement à 0,558 m et 1,667 m du point d'inflammation.
- ii) Une série de 11 obstacles, le premier étant aussi situé à 0,558 m du point d'inflammation alors que le dernier est placé lui, à 2,116 m du point d'inflammation
- iii) Une série de 14 obstacles, le premier est inséré à 0,142 m du point d'inflammation tandis que le dernier est situé à 2,116 m du point d'inflammation.

Pour un mélange constitué de 7,9% de G27 dans l'air, la présence de 8 obstacles dans le tube induit une accélération de la vitesse spatiale de propagation de la flamme qui atteint une vitesse maximale de 100 m/s à la fin du champ d'obstacles, Figure 1-2. Lorsque le tube était lisse, la vitesse maximale atteinte était de 11 m/s pour la flamme la plus rapide. Enfin, à la sortie du champ d'obstacles, on note une forte décélération de la vitesse de propagation qui atteint une vitesse de 40 m/s à l'entrée du dôme. Ensuite, la flamme se propage dans le dôme à une vitesse moyenne à peu près constante autour de 40 m/s

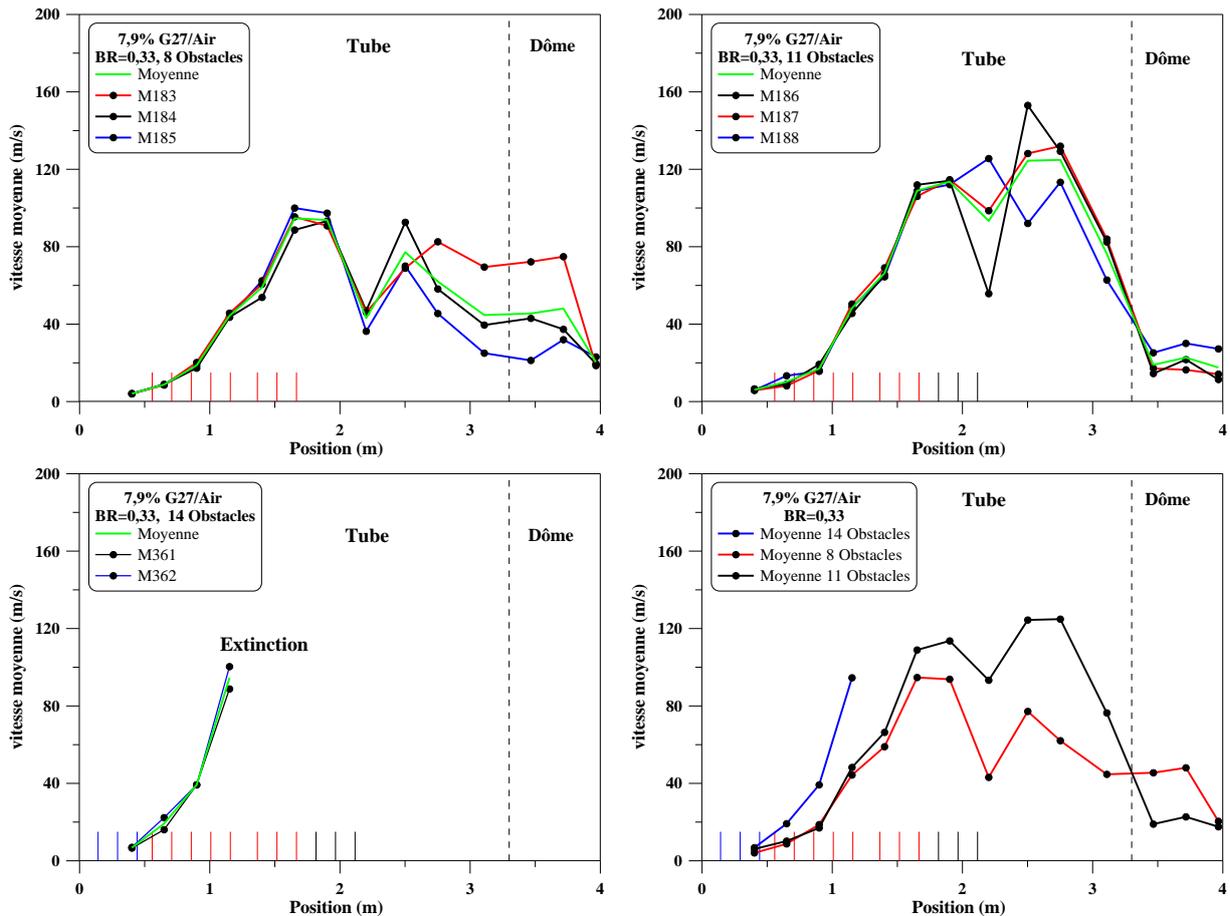


Figure 1-2 : Influence des obstacles sur l'accélération d'un mélange 7,9% G27/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar

Lorsque le nombre d'obstacles est augmenté et fixé à 11, on note ici aussi une augmentation de la vitesse de propagation de la flamme dans le champ d'obstacles. Ainsi, le profil de vitesse se confond, aux erreurs de mesure près, avec celui obtenu dans le cas où 8 obstacles étaient utilisés. Par contre, la présence des trois obstacles supplémentaires a pour conséquence une augmentation supplémentaire de la vitesse de flamme qui atteint un maximum de 125 m/s en sortie du champ d'obstacles. Au-delà du dernier obstacle, la vitesse décroît fortement pour atteindre des vitesses proches de 20 m/s dans le dôme.

Afin de voir si l'on peut accélérer plus fortement encore la flamme et atteindre des vitesses plus élevées, des essais ont été réalisés avec 14 obstacles dans le tube. Dans ce cas, la présence d'obstacles proches de l'inflammation induit un déclenchement plus tôt de la phase d'accélération de la flamme dans le tube. Par contre, contrairement aux deux précédentes configurations, on note une extinction totale de la flamme au milieu du champ d'obstacles. Il est important de noter que cette extinction s'est produite alors que la flamme avait atteint une vitesse proche de 100 m/s, soit une vitesse plus faible que celles atteintes précédemment mais avec une accélération beaucoup plus forte. Cette accélération importante génère de la turbulence et accroît l'étirement de la flamme qui conduit à l'extinction lorsqu'elle prend le pas sur la combustion.

Cette extinction totale de la flamme est confirmée par l'enregistrement de la pression comme il est possible de le voir sur la Figure 1-3 pour les trois configurations étudiées. Dans le cas où le nombre d'obstacles était fixé à 8, la surpression maximale liée à la combustion est de 4,2 bar et correspond à 70% de la surpression calculée dans le cas d'une combustion idéale. Dans le cas où le nombre d'obstacles est fixé à 11 obstacles, on note que la surpression maximale liée à la combustion est de 4,4 bar correspondant à 72% de la P_{AICC} . Dans ces deux cas, il pourrait s'agir d'une combustion partielle. Toutefois les analyses chromatographiques post combustion n'ont pas révélé la présence de méthane. Ceci peut être dû à la fois à la sensibilité du détecteur et aux pertes de chaleur aux parois de l'enceinte au cours de la combustion. Dans le cas où le nombre d'obstacles est fixé à 14, on note une très faible augmentation de la pression liée à la combustion dans le tube d'accélération. Cette augmentation n'est néanmoins pas significative au regard de la surpression calculée dans le cas d'une combustion idéale.

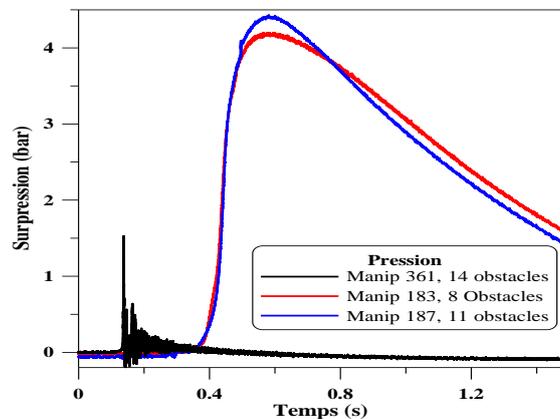


Figure 1-3 : Evolution de la surpression pour un mélange 7,9% de G27 dans l'air, initialement à 298 K et 1 bar

Les résultats de l'analyse chromatographique post combustion sont reportés dans le tableau ci après. Le pourcentage molaire initial de méthane est de 6,45%

Position /inflammation	0,277	0,527	1,277	2,139	2,877	3,341
% CH4-8 obstacles	0%	-	-	-	-	0%
% CH4-11 obstacles	0%	-	-	-	-	0%
%CH4-14 obstacles	1,6%	2,5%	5,7%	6,4	6,4%	6,5%

Tableau 1-2 : Analyse chromatographique post combustion pour 7,9% de G27 dans l'air initialement à 298 K et 1 bar

Lorsque l'on augmente la teneur en G27 à 8,4%, dans le cas où 8 obstacles sont présents, la vitesse de propagation de la flamme augmente non seulement dans le champ d'obstacles mais aussi dans la section lisse. La décroissance ne s'opère qu'à l'entrée du dôme comme on peut le voir sur la Figure 1-4.

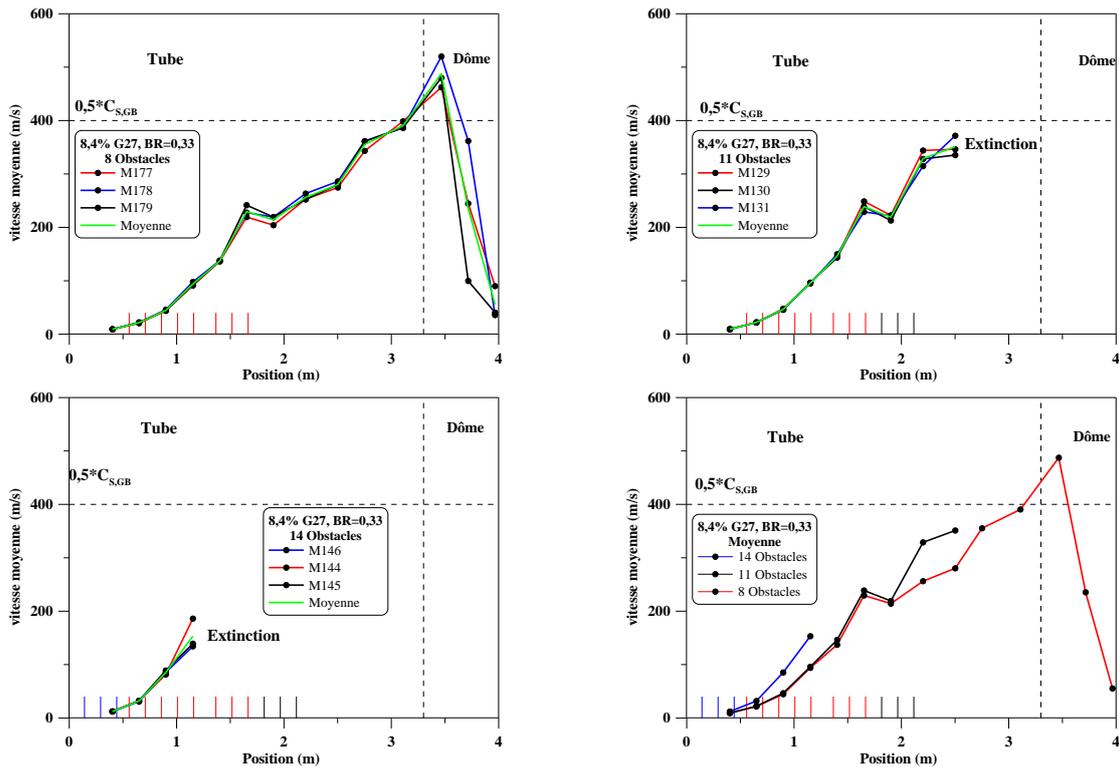


Figure 1-4 : Influence des obstacles sur l'accélération d'un mélange 8,4% G27/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar

S'agissant de l'effet du nombre d'obstacles sur la propagation de flamme, il est comparable à celui observé précédemment pour le mélange à 7,9% de G27. En effet, lorsque le nombre d'obstacles passe de 8 à 11, le profil de vitesse est similaire sur les 8 premiers obstacles du réseau d'obstacles. La différence apparaît après ces 8 premiers obstacles et est caractérisé, dans le cas où le nombre d'obstacles était fixé à 11, par une augmentation supplémentaire de vitesse générée par les 3 derniers obstacles. Cette dernière va entraîner l'extinction de la flamme pour les mêmes raisons que celles évoquées dans le cas où la concentration de G27 était de 7,9%. De même lorsque le nombre d'obstacles est fixé à 14, on observe une extinction de la flamme dans le réseau d'obstacles pour les mêmes raisons. Cette extinction est confirmée par l'analyse des gaz chromatographique qui est reportée dans le Tableau 1-3. Par ailleurs, il faut noter que la vitesse maximale atteinte par la flamme pour un nombre d'obstacles de 8 était de 463 m/s et était supérieure à la moitié de la vitesse du son dans les gaz brûlés avec un rapport $\frac{V_{max}}{C_{S,GB}}$ de 0.55. Il s'agit d'une flamme rapide.

Position /inflammation	0,277	0,527	1,277	2,139	2,877	3,341
% CH4 8 obstacles	0	-	-	-	-	0
% CH4 11 obstacles	2%	-	-	-	6,9%	6,9%
% CH4 14 obstacles	1,4%	2,5%	6,1%	6,9%	6,9%	6,9%

Tableau 1-3 : Analyse chromatographique post combustion pour 8,4% de G27 (6,9% CH₄) dans l'air initialement à 298 K et 1 bar

Les mêmes observations sont faites lorsque le pourcentage de G27 a été porté à 8,6% dans l'air comme on peut le voir sur la Figure 1-5. Ici, l'extinction reste systématique lorsque le nombre d'obstacles est fixé à 11 comme à 14. Pour un nombre d'obstacles de 8, le régime de propagation de la flamme est celui d'une flamme rapide.

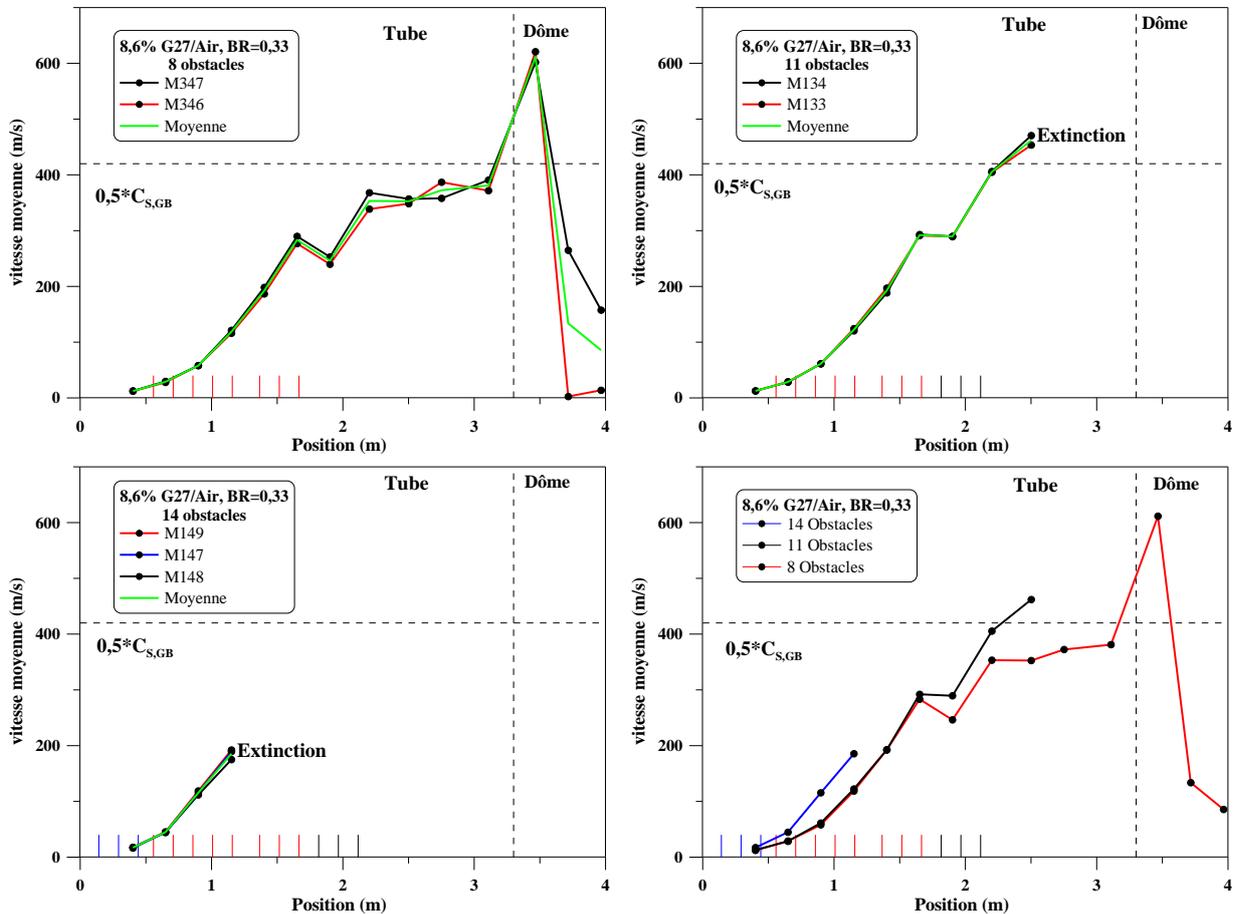


Figure 1-5: Influence des obstacles sur l'accélération d'un mélange 8,6% G27/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar

Les analyses chromatographiques réalisées après la combustion confirment ici aussi l'extinction de la flamme dans le réseau d'obstacle pour 11 et 14 obstacles.

Position /inflammation	0,277	0,527	1,277	2,139	2,877	3,341
% CH4 11 obstacles	1,3%	2,5%	3%	7%	7,1%	7,1%
%CH4 14 obstacles	1,6%	2,9%	6,4%	7%	7%	7,1%

Tableau 1-4 : Analyse chromatographique post combustion pour 8,6% de G27 (7,05% CH₄) dans l'air initialement à 298 K et 1 bar

Nous avons rassemblé dans le Tableau 1-5 les différentes compositions de mélanges G27/Air ainsi que les différentes configurations et les régimes de propagation observés. Il apparaît à la lumière de ce tableau que le régime de flamme rapide est observé pour la première fois lorsque le pourcentage de G27 est fixé à 8,4 pour 8 obstacles. Pour cette même

composition, lorsque le nombre d'obstacles était plus important, nous avons observé une extinction systématique dans le tube confirmée par les relevés de pression

En configuration 11 obstacles, la zone d'extinction systématique est de 8,4 à 9,1% de G27 dans l'air. Le régime de flamme rapide est observé lorsque la concentration initiale était fixée à 9,4% ainsi qu'à 9,7% de G27 dans l'air.

En configuration 14 obstacles, nous avons observé une extinction systématique pour l'ensemble des pourcentages de G27 testés sauf lorsque ce pourcentage était de 10% de G27 dans l'air.

Composition en G27	14 obstacles	11 obstacles	8 obstacles
7,9%	Extinction	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)
8,2%	-	-	Totale (Flamme lente)
8,4%	Extinction	Extinction	Totale (Flamme rapide)
8,6%	Extinction	Extinction	Totale (Flamme rapide)
9,1%	-	Extinction	-
9,4%	Extinction	Totale (Flamme rapide)	-
9,7%	Extinction	Totale (Flamme rapide)	-
10%	Totale (Flamme rapide)	-	-

Tableau 1-5 : Propagations observées en fonction de la composition et de la configuration pour le G27

1.3 Influence du rapport de blocage sur le profil de vitesse

L'influence du rapport de blocage sur le profil de vitesse des flammes de G27 a aussi été étudiée et est présentée sur la Figure 1-6 pour 7,9% de G27 dans l'air.

On remarque sur la Figure 1-7 que l'augmentation du rapport de blocage résulte en l'augmentation des vitesses des flammes. Ceci est dû notamment au fait que pour passer les obstacles, la flamme a besoin d'adapter sa forme. Ceci résulte en l'augmentation de la surface de la flamme et conduit à des vitesses de propagation plus importantes lorsque l'obstruction créée par la présence de l'obstacle est importante. Ainsi dans le cas où le rapport de blocage était fixé à 0,33 on note une augmentation de la vitesse dans le réseau d'obstacles suivie par une légère baisse de la vitesse en sortie de la zone obstruée. Lorsque le rapport de blocage est ensuite fixé à 0,4, on note un profil différent, avec une vitesse qui reste croissante même en sortie de la zone obstruée et qui décroît finalement en fin du tube. Dans le cas où le rapport de blocage était fixé à 0,6 on constate l'extinction de la flamme dans le réseau d'obstacles.

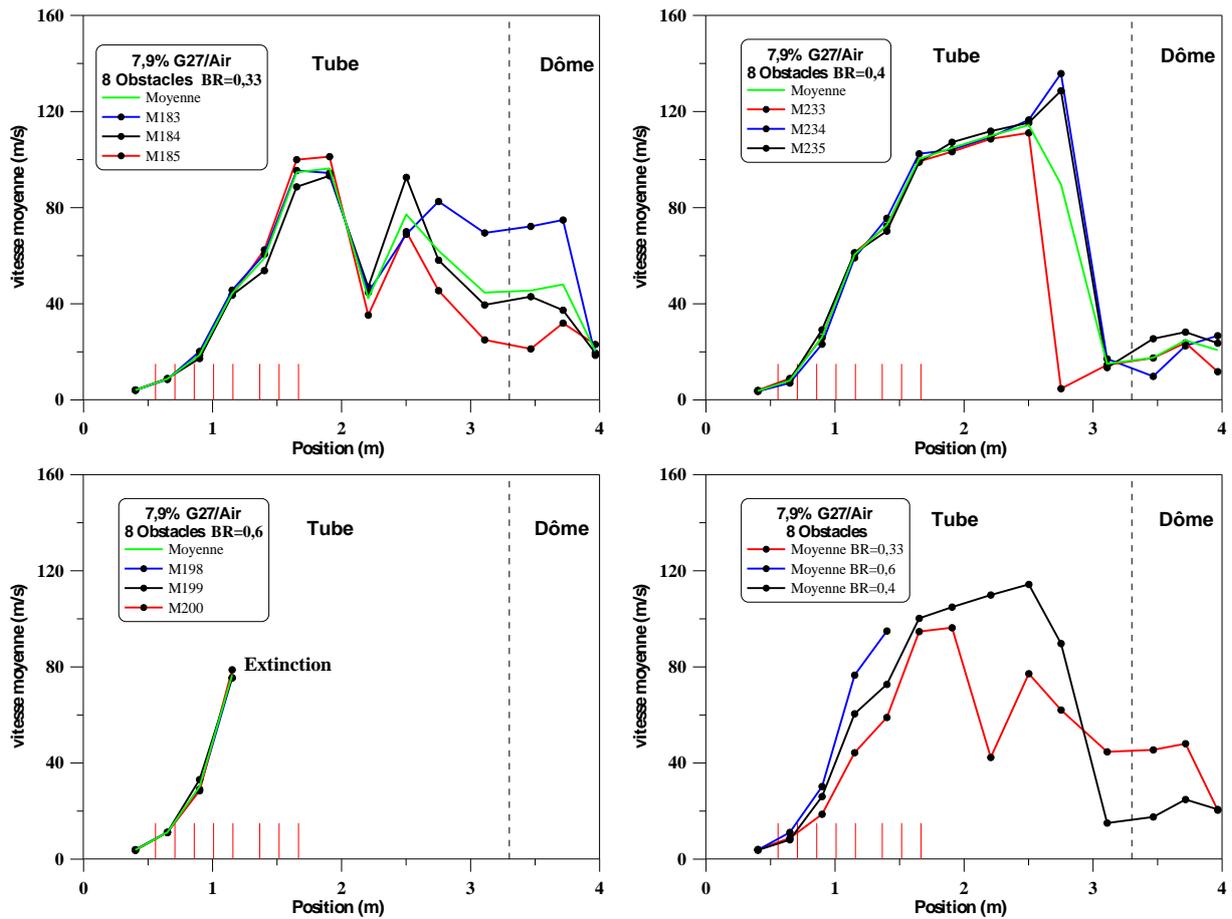


Figure 1-6 : Influence du rapport de blocage sur l'accélération d'un mélange 7,9% G27/Air, 8 obstacles, initialement à 298 K et 1 bar

Cette extinction, encore une fois, étant due à l'augmentation de la turbulence qui finit par prendre le pas sur le processus de combustion. Les profils de pression, représentés sur la Figure 1-7 confirment l'extinction dans le cas où le rapport de blocage est de 0,6. On peut voir aussi que lorsque le rapport de blocage augmente de 0,33 à 0,4, le temps de combustion diminue fortement puisque l'on passe de 0,7 s à 0,55 s.

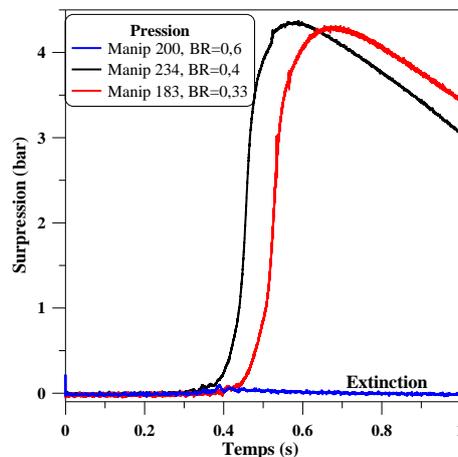


Figure 1-7 : Evolution des profils de pression pour 7,9% de G27 dans l'air, initialement à 298 K et 1 bar pour différents rapport de blocage

De plus, l'analyse des gaz chromatographiques dont les résultats sont reportés dans le tableau suivant confirme l'extinction lorsque le rapport de blocage est fixé à 0,6. Le pourcentage molaire initial de méthane est de 6,45%

Position /inflammation	0,277	0,527	1,277	2,139	2,877	3,341
% CH4 BR=0,33	0%	-	-	-	-	0%
%CH4 BR=0,6	1,4%	4,0%	6,1%	6,4%	6,4%	6,4%

Tableau 1-6 : Analyse chromatographique post combustion pour un mélange composé de 7,9% de G27 dans l'air initialement à 298 K et 1 bar

Par la suite, lorsque l'on augmente la teneur en G27 en la portant à 8,2%, on note le même effet promoteur de l'augmentation du rapport de blocage sur l'accélération de la flamme. Néanmoins, on note que contrairement au mélange composé à 7,9% de G27, on assiste à l'extinction de la flamme dans le réseau d'obstacles lorsque le rapport de blocage est fixé à 0,4. Par ailleurs, le régime de propagation est toujours celui d'une flamme lente.

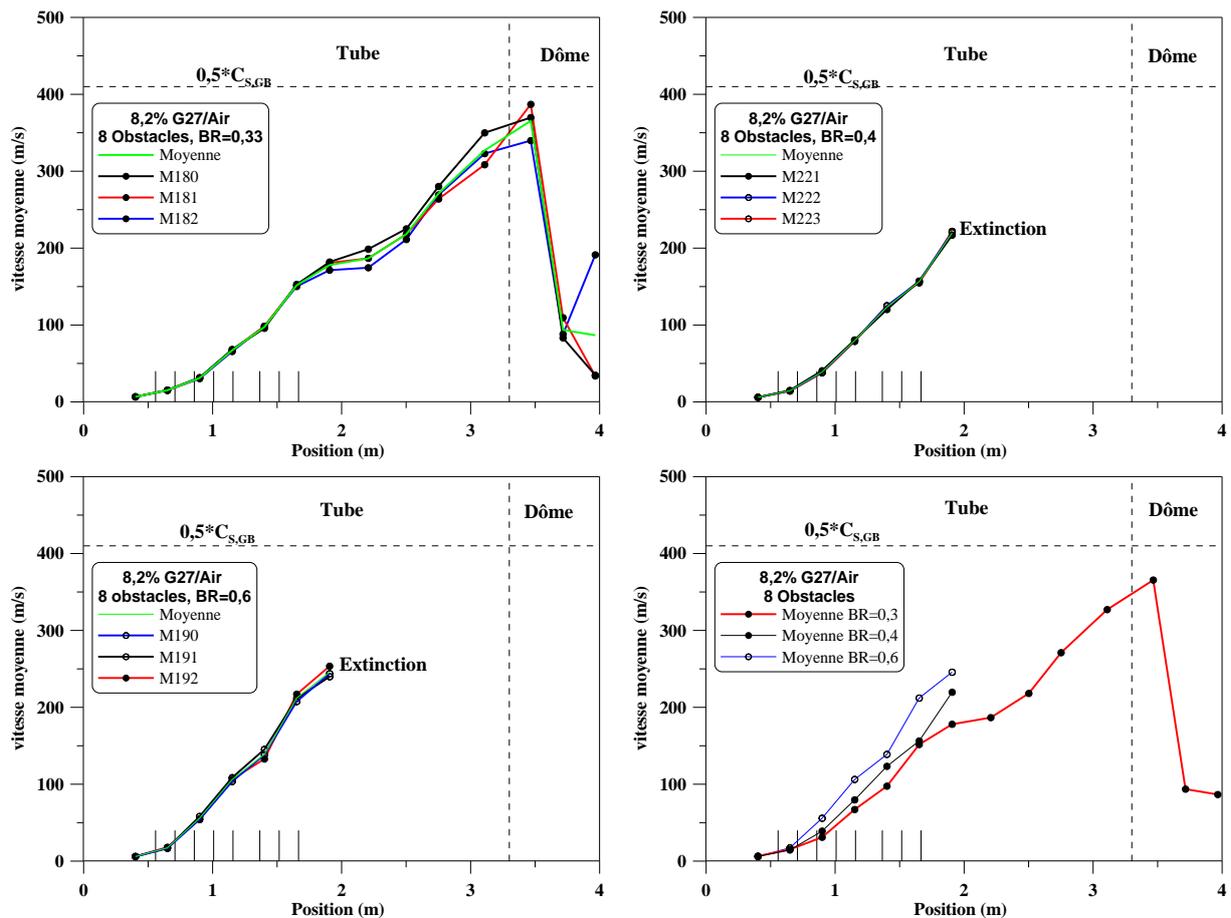


Figure 1-8 : Influence du rapport de blocage sur l'accélération d'un mélange 8,2% G27/Air, 8 obstacles, initialement à 298 K et 1 bar

Sur le Tableau 1-7, nous avons récapitulé les différents régimes de propagation observés pour la propagation des flammes de G27/air en fonction du rapport de blocage des obstacles. On constate ainsi que pour l'ensemble des 4 configurations testées pour le rapport de blocage 0,33, il y a eu une extinction systématique de la flamme dans le réseau d'obstacle. Cette extinction est, comme nous l'avons mentionné précédemment, liée à l'augmentation de la turbulence et de la vitesse de flamme.

Lorsque le rapport de blocage des obstacles était de 0,4, pour 7,9% de G27 dans l'air, la flamme s'est propagée dans l'ensemble avec une vitesse maximale inférieure à la moitié de la vitesse du son dans les gaz brûlés. Lorsque cette concentration initiale est ensuite de 8,2 et 8,4%, on a assisté à une extinction de la flamme dans le réseau d'obstacles et lorsque la concentration initiale était de 8,6, le régime de flamme rapide a pu être observé.

En ce qui concerne les essais réalisés avec un rapport de blocage de 0,33, pour l'ensemble des essais réalisés, nous n'avons pas noté d'extinction de la flamme. Le régime de flamme rapide a été observé lorsque le pourcentage de flamme a été porté à 8,4.

Composition en G27	BR=0,6	BR=0,4	BR=0,33
7,9%	Extinction	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)
8,2%	Extinction	Extinction	Totale (Flamme lente)
8,4%	Extinction	Extinction	Totale (Flamme rapide)
8,6%	Extinction	Totale (Flamme rapide)	Totale (Flamme rapide)

Tableau 1-7 : Régimes de propagations observés en fonction de la configuration pour le G27/Air (8 obstacles)

2 Cas du G222 (77%CH₄+23%H₂)

Rappelons ici que le G222 est composé de 77% de CH₄ et 23% H₂. L'étude est conduite de la même manière que les essais sur le G27. L'incertitude maximale sur la mesure de la vitesse est de 8%.

2.1 Propagation en tube lisse

Les résultats de l'étude de la propagation de flamme des mélanges G222/Air en tube lisse sont présentés sur la Figure 2-1.

Différents essais ont été réalisés en tube lisse tout en faisant varier le pourcentage de G222 dans l'air. Ainsi, lorsque ce pourcentage était fixé à 6,8%, il est observé une accélération de la flamme dans l'enceinte ponctuée par une vitesse maximale pour les deux essais réalisés. L'évolution des profils de vitesse dans le cas de ces deux essais révèle un

comportement oscillatoire de la flamme avec une vitesse maximale comparable. Cette vitesse qui est de 25 m/s est mesurée dans le cas de l'essai 76 à 2,5 m du point d'inflammation tandis que, dans le cas de l'essai 72, elle est mesurée à 2,7 m du point d'inflammation. Cette différence dans les profils de vitesse semble toutefois à relativiser puisque dans les deux cas, on note une première forte accélération suivie d'une forte décélération qui elle-même est suivie de la forte accélération conduisant à la vitesse maximale de propagation.

Avec l'augmentation du pourcentage de G222 dans le mélange initial (celui-ci étant porté à 7,2%), on note une augmentation de la vitesse de la flamme de façon globale sur l'ensemble de l'enceinte d'accélération. Cette augmentation est caractérisée par des vitesses maximales comprises entre 35 et 40 m/s. A l'instar des essais réalisés à 6,8% de G222 dans l'air, le profil de vitesse exhibe une première accélération à 1,5 m du point d'inflammation (visible sur les deux essais réalisés) suivie d'une décélération elle-même suivie d'une nouvelle accélération conduisant à la vitesse maximale de propagation à 2,5 m dans le cas de l'essai 79 et à 2,7 m du point d'inflammation dans le cas de l'essai 78.

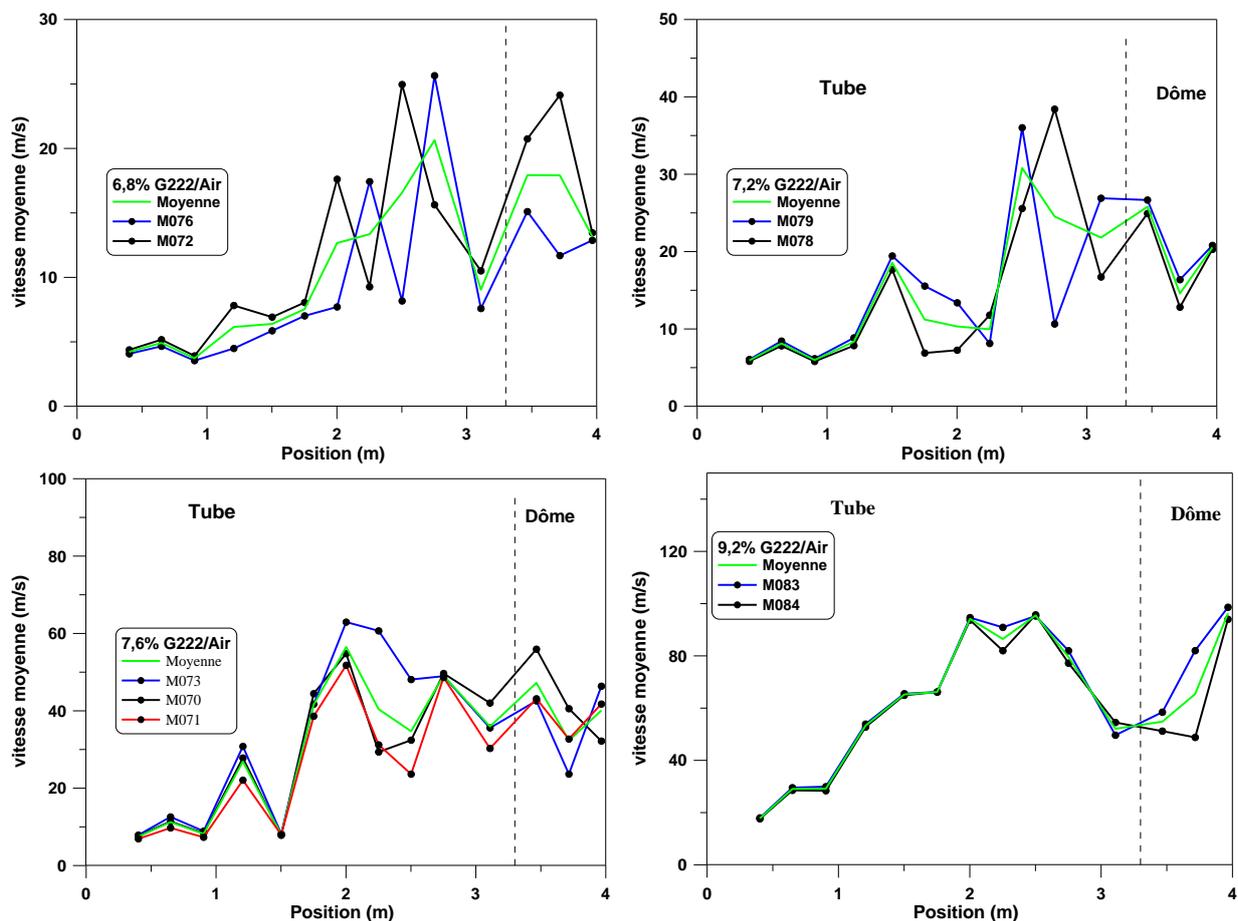


Figure 2-1 : Evolution de la vitesse de flamme de G222/air en fonction de la position dans l'enceinte pour différentes compositions et en configuration de tube lisse

Une nouvelle augmentation du pourcentage initial en G222 à 7,6% dans l'air, confirme l'augmentation du profil de vitesse avec l'augmentation du pourcentage initial de G222. Pour cette composition, le profil de vitesse apparaît répétable quelque soient les essais. Comme

pour les deux compositions précédentes, on note une première accélération suivie d'une décélération elle-même suivie de l'accélération conduisant à la vitesse maximale comprise entre 50 et 60 m/s selon les essais. Cependant, contrairement aux essais précédents, la vitesse maximale est atteinte plus tôt dans le tube. Ainsi, la vitesse maximale est mesurée à 2 m du point d'inflammation. A la suite de cette vitesse maximale, on observe que la vitesse semble osciller autour d'une vitesse moyenne de 40 m/s.

Enfin, lorsque la composition du mélange initial en G222 est portée à 9,2%, on note une accélération faisant suite à l'inflammation jusqu'à une vitesse maximale de 95 m/s. Cette vitesse est atteinte à 2 m du point d'inflammation et est suivie d'une décélération avec une vitesse d'entrée dans le dôme de 50 m/s. Par la suite, dans le dôme, on note une nouvelle accélération conduisant à une vitesse maximale dans le dôme de 95 m/s.

A l'instar, des essais réalisés en tube lisse pour le G27, on note pour les essais en G222 un maximum local de vitesse à 0,65 m du point d'inflammation.

Dans Tableau 2-1 est présentée la comparaison entre la vitesse théorique avec l'approximation d'une flamme hémisphérique et la vitesse moyenne mesurée sur le premier mètre de propagation. On note que la vitesse moyenne mesurée est plus importante que la vitesse théorique calculée en utilisant l'approximation hémisphérique de la surface de flamme. L'amplification de la vitesse au cours de la propagation est plus importante que celle prédite en supposant que la flamme reste laminaire au cours de sa propagation, nous avons bien là une transition du régime laminaire vers le régime turbulent.

%G222	ϕ	σ	S_L^0 GRI (m/s)	V_s moyenne (m/s)	V_s Théorique (m/s)
6,8	0,57	5,35	0,12	4,7	2,6
7,2	0,61	5,57	0,15	7,1	3,4
7,6	0,65	5,78	0,18	8,9	4,2
9,2	0,80	6,58	0,31	25	8,2

Tableau 2-1 : Comparaison entre la vitesse théorique avec l'approximation d'une flamme hémisphérique et la vitesse moyenne mesurée dans le tube de l'enceinte

2.2 Influence du nombre d'obstacles

L'impact de la configuration géométrique sur le régime de combustion de différents mélanges de G222 a été investigué. Sur la Figure 2-2, illustre l'effet du nombre d'obstacles sur les profils de vitesse pour un mélange composé de 6,5% de G222 dans l'air. On remarque que la présence d'obstacles supplémentaires induit une accélération plus importante de la flamme dans l'enceinte comme dans le cas du G27. Cela se traduit par l'augmentation de la vitesse au début de la propagation avec des vitesses globalement supérieures dans le cas où le nombre d'obstacles est fixé à 14. Dans le cas où le nombre d'obstacles est fixé à 11, on observe un profil de vitesse très proche de celui obtenu pour un nombre d'obstacles fixé à 8 sur les premiers mètres de la propagation. On note néanmoins dans la configuration à 8

obstacles (pour cette composition) que la vitesse maximale atteinte en sortie du champ d'obstacles est supérieure à celles relevées dans le cas où le nombre d'obstacles était fixé à 11 et 14.

On constate ainsi que l'augmentation du nombre d'obstacles, induit une accélération supplémentaire de la flamme au cours de sa propagation. Cette accélération due à l'augmentation de la turbulence peut néanmoins, conduire à l'extinction de la flamme lorsque cette dernière prend le dessus sur le processus de combustion. Ainsi, lorsque le pourcentage molaire initial de G222 est fixé à 6,8%, pour 14 obstacles, on note une extinction systématique de la flamme. Cette tendance à l'extinction est confirmée lorsque le nombre d'obstacles est fixé à 11. De plus, l'extinction se produit alors que la flamme atteint une vitesse 160 m/s, inférieure à la vitesse maximale mesurée lorsque le nombre d'obstacles est fixé à 8 puis à 11. L'extinction résulterait alors d'une forte accélération. Enfin, lorsque le nombre d'obstacles est fixé à 8, sur les 3 essais réalisés, aucune extinction n'est observée. Les résultats sont reportés dans la Figure 2-3.

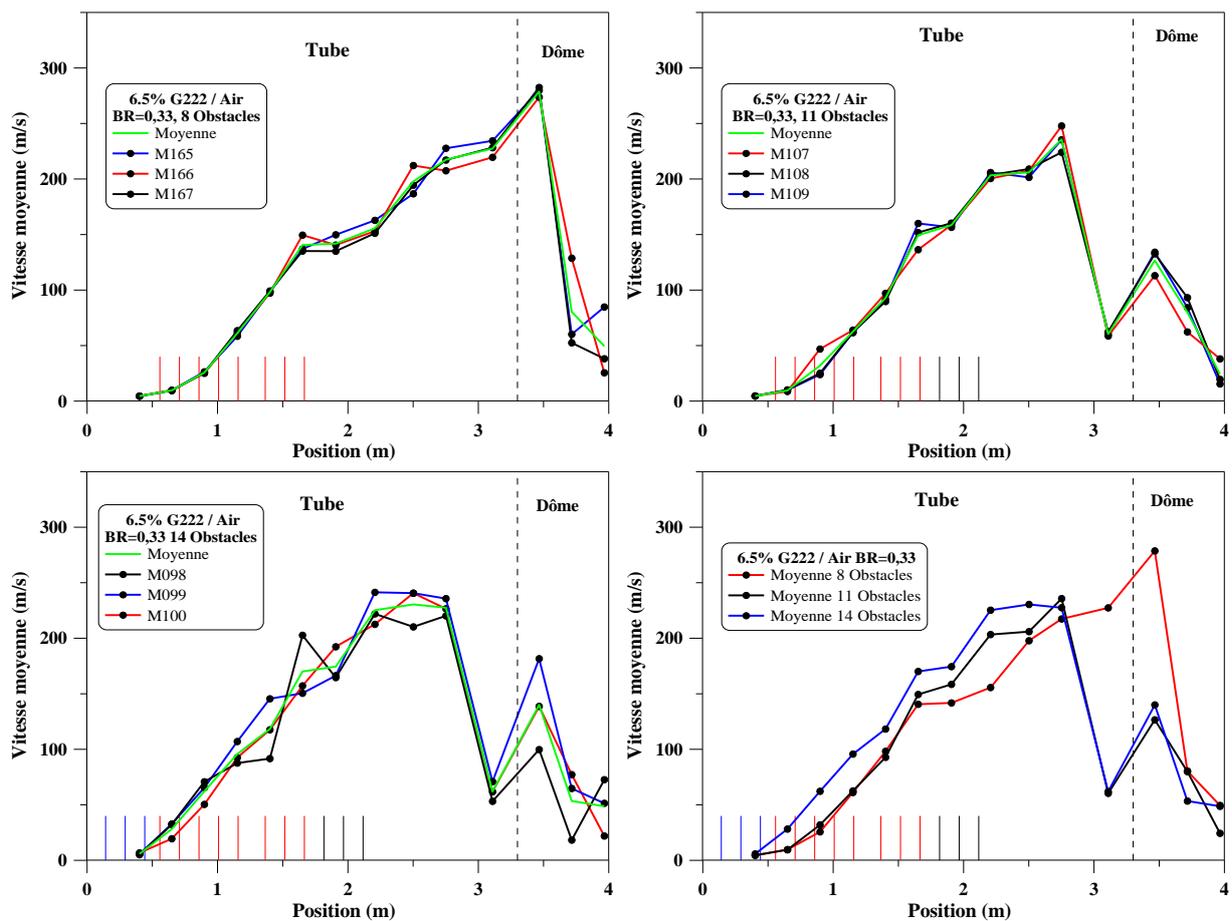


Figure 2-2 : Influence du nombre d'obstacles sur l'accélération d'un mélange 6,5% G222/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar

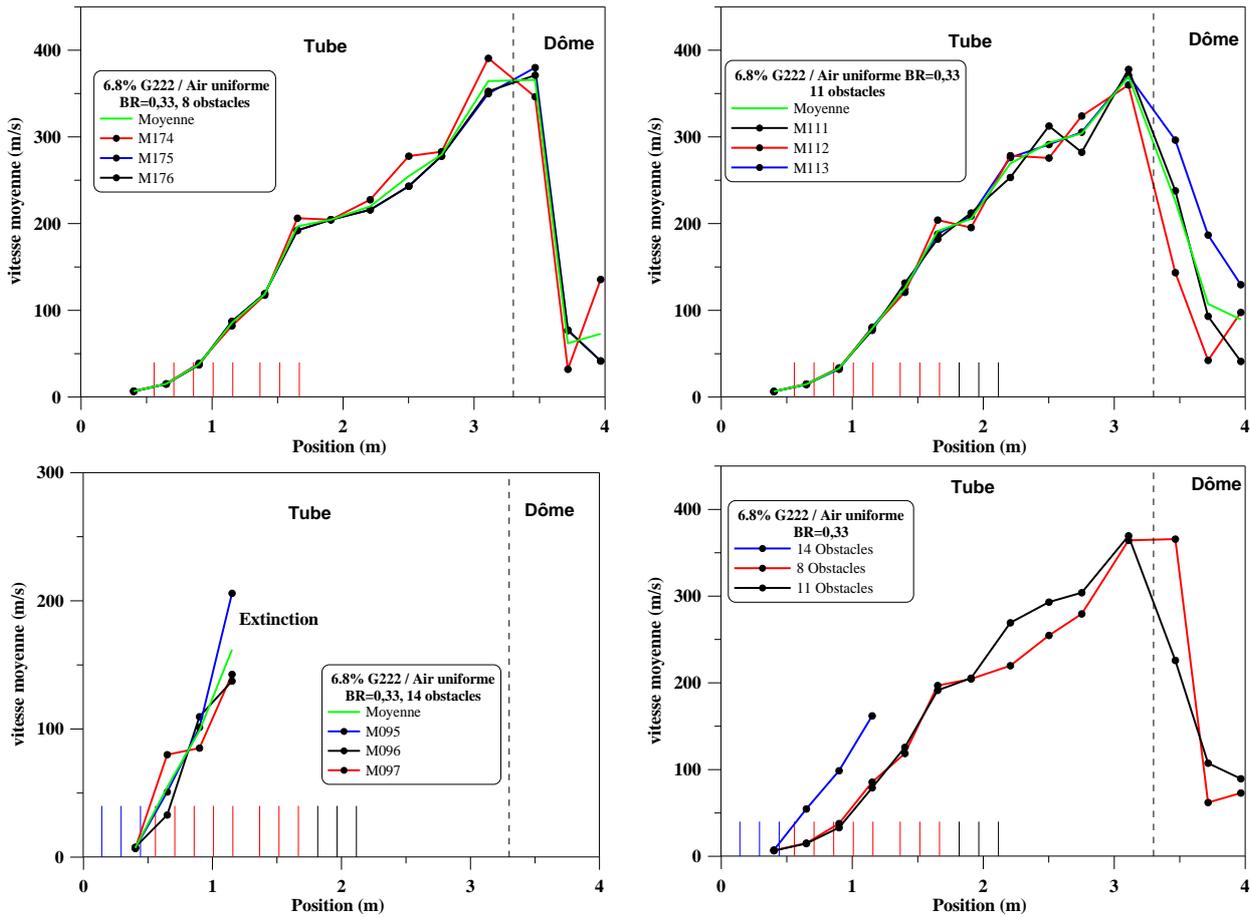


Figure 2-3 : Influence du nombre d'obstacles sur l'accélération d'un mélange 6,8% G222/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar

L'évolution de la pression dans l'enceinte au cours de la combustion est représentée sur la Figure 2-4. On y remarque notamment que dans le cas d'une extinction dans le réseau d'obstacles, la pression maximale de combustion est largement inférieure à la P_{AICC} de combustion calculée. Dans ce cas, la surpression maximale mesurée était de 0,85 bar, soit, seulement 15% de la surpression calculée. On peut aussi voir que globalement, le temps de combustion total est comparable que le tube soit équipé de 8 ou 11 obstacles ce qui est similaire aux profils de vitesse qui eux aussi sont très proches.

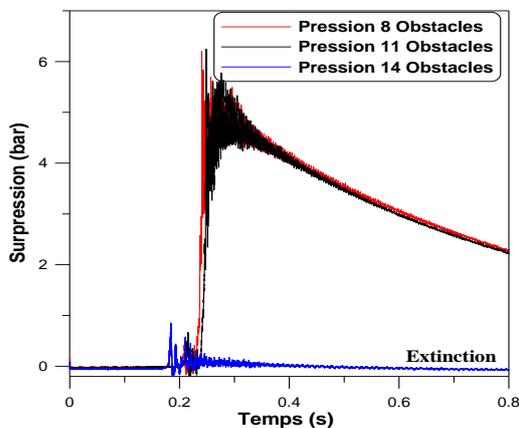


Figure 2-4 : Evolution de la pression dans l'enceinte pour différents nombres d'obstacles pour 6,8% de G222 dans l'air initialement à 1 bar et 298 K

Si par la suite, le pourcentage molaire de G222 est portée à 7,2% dans l'air, on note que l'extinction de la flamme n'est plus limitée seulement au cas où le nombre d'obstacles est fixé à 14 obstacles mais qu'elle se produit aussi systématiquement pour un nombre d'obstacles fixé à 11. Enfin, on ne note pas d'extinction lorsque le nombre d'obstacle est fixé à 8 quelque soit la composition initiale de G222 (Figure 2-5). De plus, le régime de flamme rapide est obtenu lorsque le nombre d'obstacles est fixé à 8

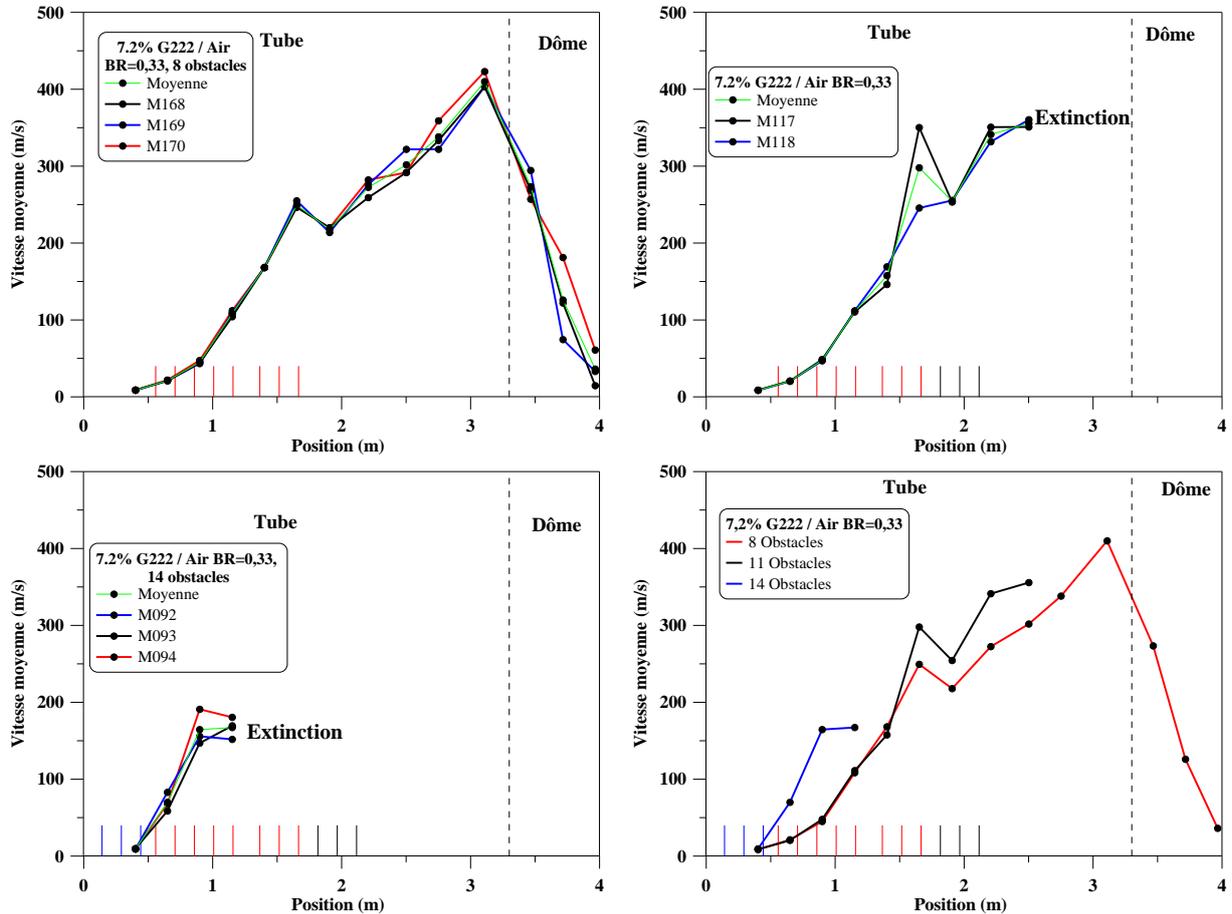


Figure 2-5 : Influence du nombre d'obstacles sur l'accélération d'un mélange 7,2% G222/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar

Cette situation est reproduite lorsque la concentration initiale de G222 dans l'air est fixée à 7,6% : une forte accélération marquée par une extinction dans le réseau d'obstacles lorsque le rapport de blocage est supérieur à 0,33 (Figure 2-6).

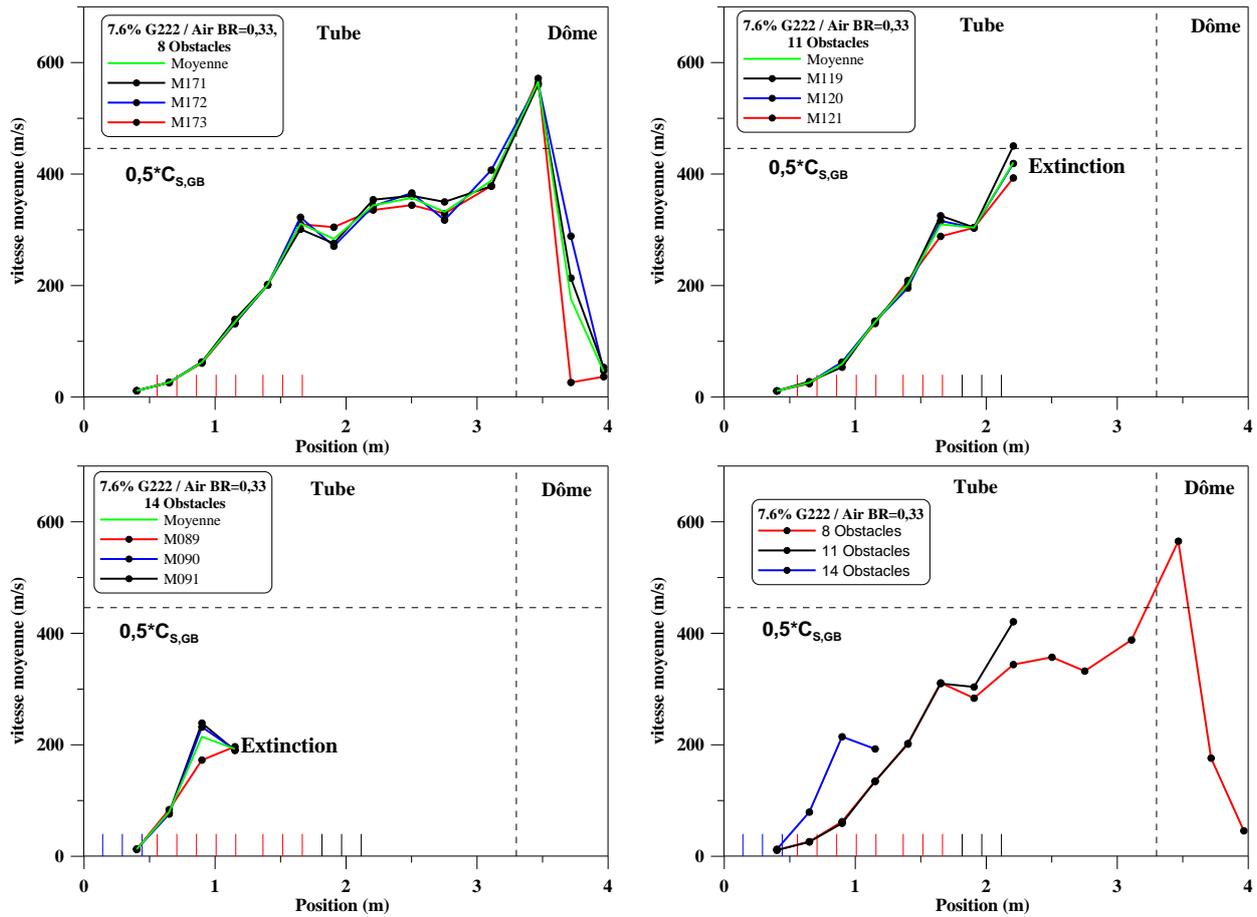


Figure 2-6 : Influence du nombre d'obstacles sur l'accélération d'un mélange 7,2% G222/Air, BR=0,33 initialement à 298 K et 1 bar

Nous notons un régime de flamme rapide lorsque le rapport de blocage est de 0,33 caractérisé par une vitesse maximale (565 m/s) supérieure à la moitié de la vitesse du son dans les gaz brûlés et offrant un rapport $\frac{V_{max,flamme}}{C_{S,GB}} = 0,69$.

On note ainsi, une gamme de concentration en G222 pour laquelle se produit une extinction de la flamme avec l'augmentation du nombre d'obstacles dans le tube. Les résultats concernant le type de propagation fonction de la composition sont notés dans le Tableau 2-2.

Composition en G222	14 obstacles	11 obstacles	8 obstacles
6,5%	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)
6,8%	Extinction	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)
7,2%	Extinction	Extinction	Totale (Flamme rapide)
7,6%	Extinction	Extinction	Totale (Flamme rapide)
8,1%	Extinction	Extinction	-
8,6%	Totale (Flamme rapide)	Totale (Flamme rapide)	-

Tableau 2-2 : Types de propagation en fonction de la composition et de la configuration

Ce tableau montre que lorsque le nombre d'obstacles était fixé à 14, pour une concentration de G222 comprise entre 6,8 et 8,1%, l'extinction de la flamme se produit de façon systématique. En sortie de ce domaine d'extinction, la composition est de 8,6% de G222 dans l'air et on observe le régime de flamme rapide avec un rapport $\frac{V_{max}}{C_{S,GB}}$ proche de 0,8.

2.3 Effet du rapport de blocage sur l'accélération de flamme.

Dans cette partie de l'étude, nous avons fixé le nombre d'obstacles à 8 et fait varier le rapport de blocage successivement à 0,33, 0,4, et 0,6. Les profils de vitesse obtenus dans le cas du mélange composé de 6,5% de G222 sont représentés sur la Figure 2-7. Pour des rapports de blocage fixés à 0,33 et 0,4, le profil de vitesse observé est similaire même si l'augmentation du rapport de blocage conduit à des vitesses moyennes supérieures. Le profil est caractérisé par l'accélération de flamme dans le réseau d'obstacles. Cette accélération est suivie d'une légère baisse de la vitesse en sortie de ce même réseau d'obstacle suivi par la suite par une accélération de la flamme en dans le reste du tube et dans le dôme. Lorsque le rapport de blocage est fixé à 0,6, on note des vitesses moyennes beaucoup plus importantes dans la partie obstruée du tube en comparaison à celles mesurées lorsque ce même rapport était fixé à 0,33 et 0,4. Néanmoins on remarque une baisse de vitesse plus importante en sortie du réseau d'obstacles suivie d'une accélération qui n'est toutefois pas suffisante pour atteindre une vitesse maximale en sortie de tube supérieure à celles mesurées dans les cas précédents. L'augmentation globale de la vitesse moyenne de propagation dans le réseau d'obstacles est liée à l'augmentation de la turbulence induite par celles-ci au cours de la propagation. Cette augmentation de turbulence, peut être aussi responsable de l'extinction comme on l'a vu précédemment.

L'évolution de la pression au cours de la propagation est présentée ci-dessous. On peut y voir que la pression maximale est atteinte plus tôt lorsque le rapport de blocage est fixé à 0,4. Cela se justifie par le fait que pour ce rapport de blocage, la flamme est plus rapide et le mélange initial est consommé plus vite que dans les cas où le rapport de blocage est fixé à 0,33 puis à 0,6.

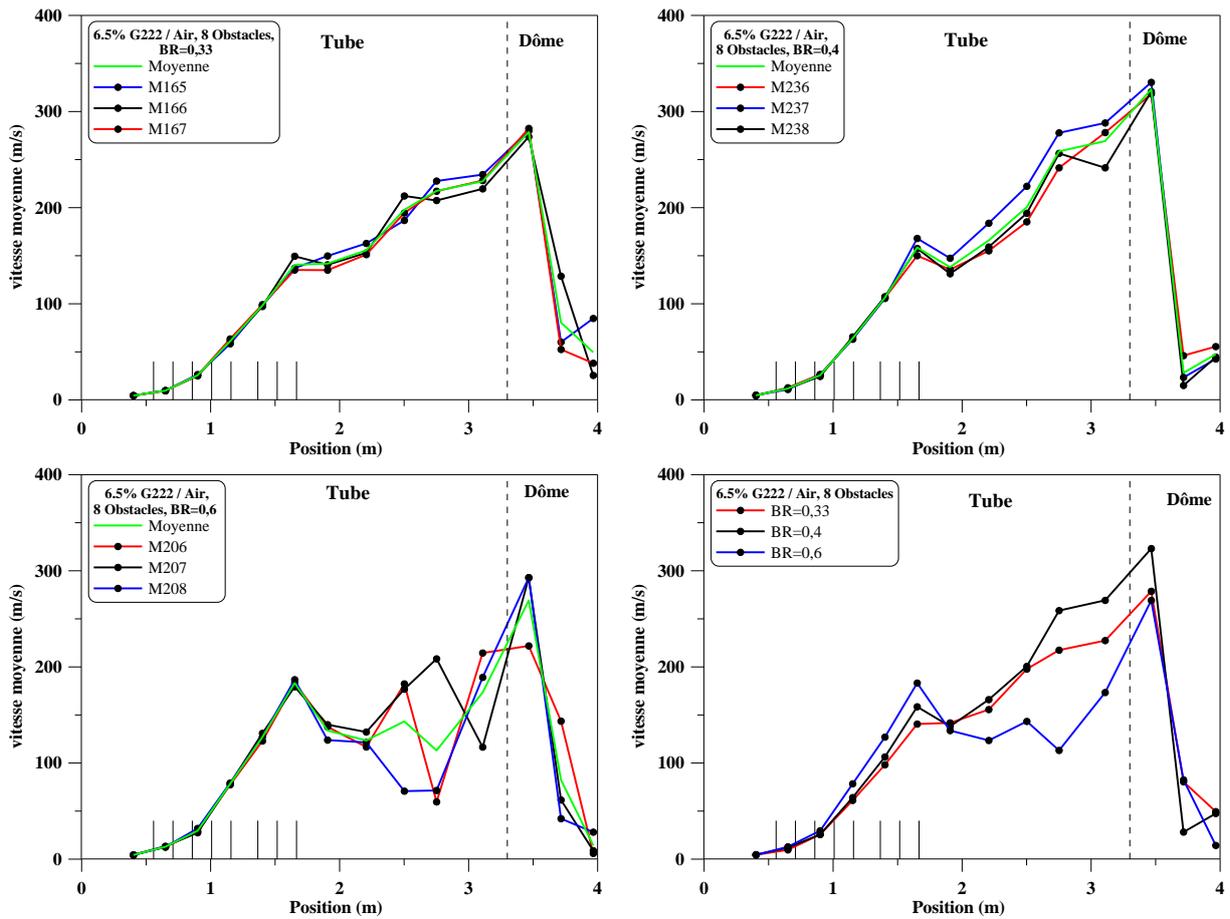


Figure 2-7 : Influence du rapport de blocage sur l'accélération d'un mélange 6,5% G222/Air, 8 obstacles initialement à 298 K et 1 bar

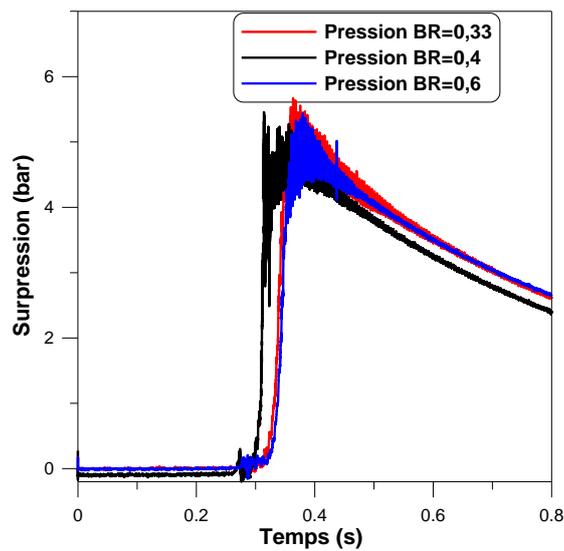


Figure 2-8 : Evolution de la surpression dans l'enceinte pour différents rapports de blocage pour 6,5% de G222 dans l'air initialement à 1 bar et 298 K

Lorsque la concentration en G222 est portée à 6,8% dans l'air, le comportement dans le réseau d'obstacles est le même qu'observé précédemment. Ainsi, avec l'augmentation du rapport de blocage, on note une augmentation globale du profil de vitesse dans le réseau d'obstacles comme on peut le voir sur la Figure 2-9. Les analyses chromatographiques des ballons prélevés après la combustion à 0,277 et 3,341 m du point d'inflammation ont montré que le mélange avait brûlé dans son ensemble.

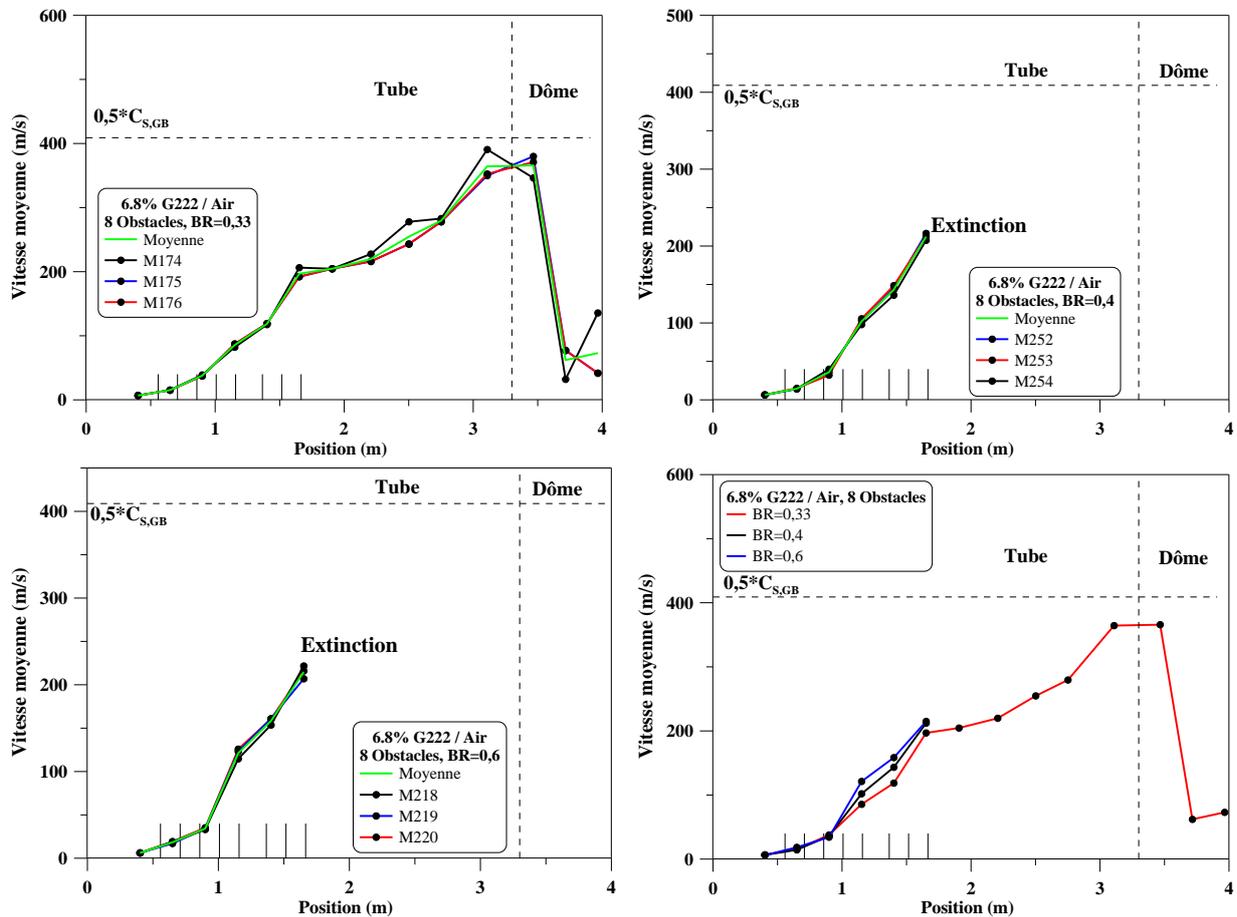


Figure 2-9 : Influence du rapport de blocage sur l'accélération d'un mélange 6,8% G222/Air, 8 obstacles initialement à 298 K et 1 bar

Cette augmentation de la vitesse est suivie dans le cas où $BR = 0,33$, d'une baisse de la vitesse en sortie du réseau d'obstacle puis d'une ré-accélération de la flamme. A l'inverse, dans le cas où BR est égal à 0,4 et 0,6, l'augmentation de la vitesse moyenne résulte en une augmentation importante du taux de turbulence qui aboutit à l'extinction de la flamme en sortie du réseau d'obstacles. Ces extinctions sont caractérisées par des pressions maximales très en deçà de la P_{AICC} calculée pour ces combustions (Figure 2-10) et des analyses chromatographiques de prélèvements effectués post-combustion indiquent la présence d'hydrogène et de méthane dans l'enceinte d'accélération de flamme (Tableau 2-3)

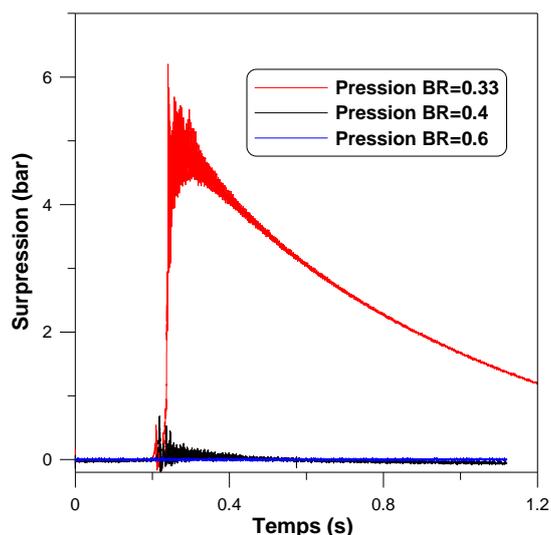


Figure 2-10 : Maximums de pression mesurés pour différents rapports de blocage

Position /inflammation	0,277	0,527	1,277	2,139	2,877	3,341
%G222 BR=0,33	0	-	-	-	-	0
%G222 BR=0,4	1,6%	4,1%	5,8%	6,8%	6,8%	6,8%

Tableau 2-3 : Analyse chromatographique post combustion pour 6,8% de G222 dans l'air initialement à 298 K et 1 bar

Par la suite lorsque la concentration initiale est fixée à 7,2% de G222 dans l'air (Figure 2-11), on note toujours l'extinction pour un rapport de blocage de 0,6 en sortie du réseau d'obstacles. Cependant, lorsque le rapport de blocage est fixé à 0,4 on obtient une propagation totale avec une vitesse maximale supérieure à la moitié de la vitesse du son dans les gaz brûlés. Il s'agit d'une flamme rapide. De même, le régime de flamme rapide est observé lorsque BR est égal 0,33.

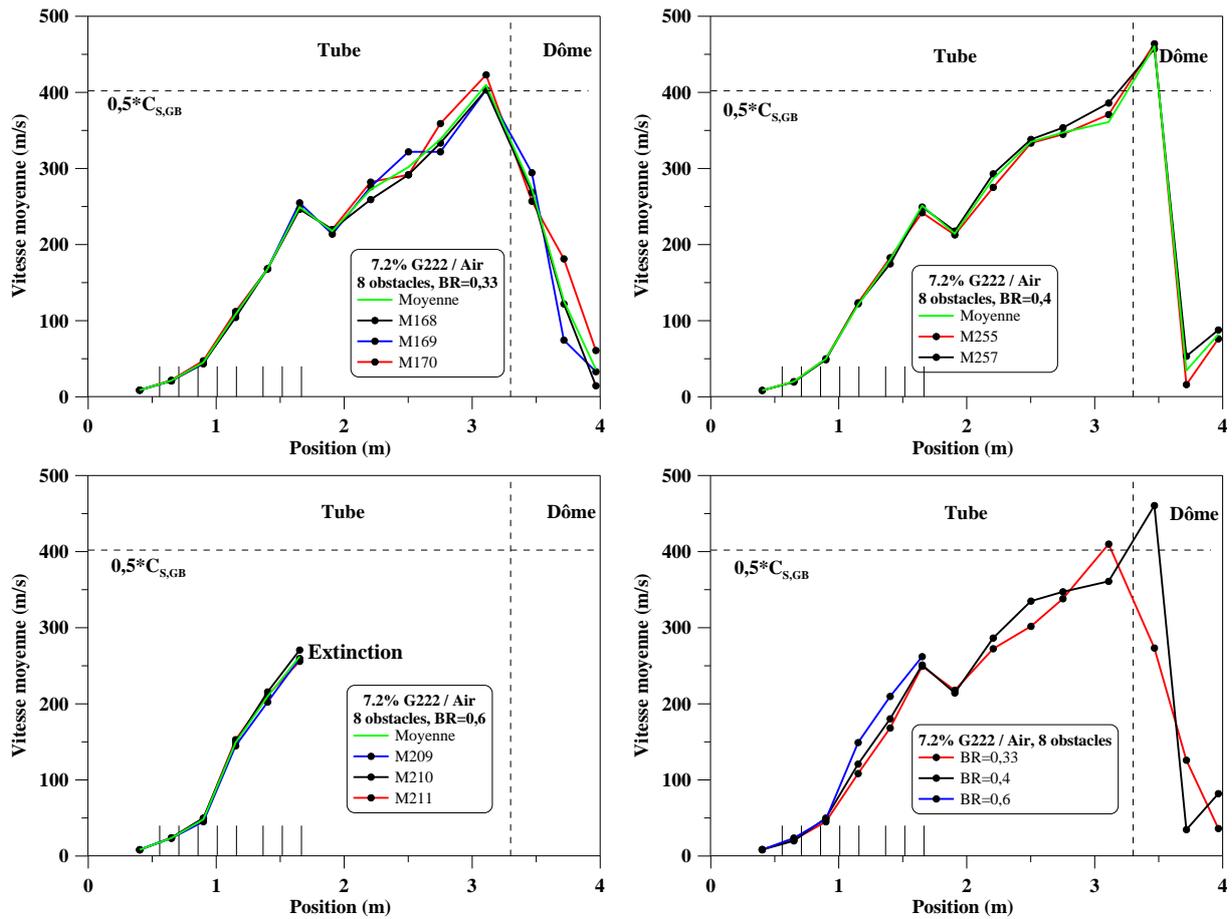


Figure 2-11 : Influence du rapport de blocage sur l'accélération d'un mélange 7,2% G222/Air, 8 obstacles initialement à 298 K et 1 bar

Position /inflammation	0,277	0,527	1,277	2,139	2,877	3,341
%G222 BR=0,33	0	-	-	-	-	0
%G222 BR=0,6	1,3%	4%	6,6%	7,2%	7,2%	7,2%

Tableau 2-4 : Analyse chromatographique des gaz post combustion pour 7,2% G222 dans l'air initialement à 298 K et 1 bar

Ainsi, pour un même nombre d'obstacles, 8, le comportement de la flamme dépend fortement du rapport de blocage :

- (i) Pour un BR=0,33, la propagation est totale pour toute les compositions étudiées, des flammes dites rapides sont obtenues pour des pourcentages molaires en G222 supérieurs ou égales à 7,2%
- (ii) Pour les deux autres rapports de blocage, 0,4 et 0,6, en plus des flammes rapides et lentes, des extinctions ont pu être observées pour des teneurs en G222 qui augmentent avec le rapport de blocage.

Ainsi, on passe par un régime d’extinction lié à l’augmentation de la vitesse de propagation et donc de la turbulence lorsque le rapport de blocage est fixé à 0,4 et la concentration à 6,8%. Si par la suite, la concentration initiale est augmentée à nouveau (7,2% et 7,6% de G222), on observe un régime de flamme rapide. Dans le cas où le rapport de blocage est fixé à 0,6, le domaine d’extinction de la flamme est plus étendu et on note l’extinction pour des concentrations initiales en G222 de 7,2% (5 essais réalisés) et 7,6% (3 essais réalisés). Le régime d’accélération de flamme est observé dans cette configuration, pour 8,1% de G222 avec une vitesse maximale de propagation de 730 m/s correspond à 0.8 fois la vitesse du son dans les gaz brûlés. Les résultats sont reportés et synthétisés dans le Tableau 2-5.

Composition en G222	BR=0,6	BR=0,4	BR=0,33
6,5%	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)
6,8%	Extinction	Extinction	Totale (Flamme lente)
7,2%	Extinction	Totale (Flamme rapide)	Totale (Flamme rapide)
7,6%	Extinction	Totale (Flamme rapide)	Totale (Flamme rapide)
8,1%	Totale (Flamme rapide)	-	-

Tableau 2-5 : Influence du rapport de blocage sur le régime de propagation de la flamme

3 Cas du mélange hydrogène- monoxyde de carbone

3.1 Propagation en tube lisse

La propagation des flammes des mélanges H₂/CO/Air en tube lisse a été étudiée. Les résultats sont présentés Figure 3-1. L'incertitude maximale sur la mesure de la vitesse est de 8%.

Lorsque le pourcentage initial de H₂/CO dans l'air est fixé à 12,6%, la vitesse de flamme est inférieure à 2 m/s dans le tube d'accélération. Ceci conduit à une vitesse d'entrée dans le dôme égale à 1 m/s pour l'ensemble des trois essais réalisés. S'en suit une accélération dans le dôme de l'enceinte qui conduit à une vitesse maximale de 2 m/s. L'augmentation de ce pourcentage afin de le porter à 13,7% conduit à une vitesse qui est maximale 5 m/s pour les deux essais réalisés à 0,4 m du point d'inflammation. Cette vitesse maximale est suivie d'une décélération puis d'une accélération conduisant à une vitesse de 4,2 m/s à 2 m du point d'inflammation. Une nouvelle décélération est observée jusqu'à l'entrée dans le dôme de l'enceinte au sein duquel la vitesse est comprise entre 2,5 et 3 m/s.

Une nouvelle augmentation du pourcentage de H₂/CO dans l'air conduit à un profil de vitesse différent de celui observé dans le cas des essais commentés précédemment. On note ainsi une vitesse de flamme à peu près constante autour de 5 m/s dans le tube d'accélération suivie d'une forte accélération en fin de tube avec une vitesse de 15 m/s et une vitesse maximale relevée dans le dôme de 40 m/s. Ce profil observé est sensiblement le même lorsque le pourcentage initial de H₂/CO dans l'air est fixé à 14,8% dans l'air. Ce dernier profil diffère toutefois dans le fait qu'une première accélération est notée dans le tube et est caractérisée par une vitesse maximale de 40 m/s (moyenne sur l'ensemble des trois essais) à 2,7 m du point d'inflammation. Cette vitesse maximale est suivie d'une baisse de la vitesse de propagation à 20 m/s à l'entrée du dôme de l'enceinte et une nouvelle accélération dans celui-ci suivie d'une vitesse maximale, cette fois-ci de 100 m/s. Enfin, on note une forte décélération avec des vitesses proches de 15 m/s au bout de l'enceinte.

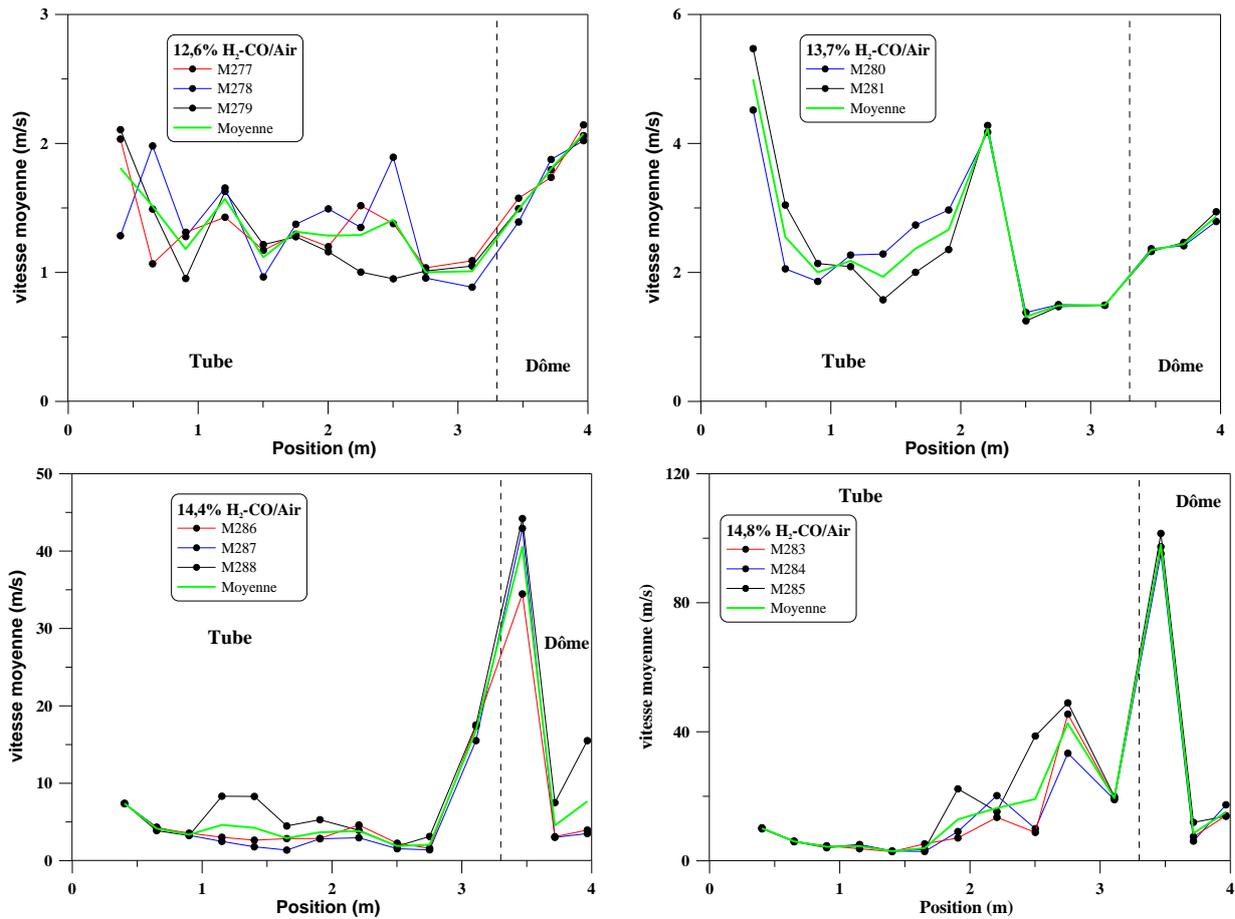


Figure 3-1 : Propagation de flamme des mélanges H₂/CO dans l'air en tube lisse initialement à 298 K et 1 bar

Sur le Tableau 3-1, nous présentons la comparaison entre la vitesse théorique calculée à l'aide de l'approximation hémisphérique de la surface de flamme et la vitesse moyenne mesurée sur le premier mètre de propagation de la flamme. Un bon accord est obtenu pour les faibles concentrations (12,6 et 13,7). Cependant, lorsque le pourcentage initial de H₂/CO dans le mélange est fixé à 14,4 puis à 14,8 on note une sous-estimation de la vitesse par le modèle théorique. Ceci donne l'indication d'une surface de flamme plus importante que celle supposée

%H ₂ /CO	ϕ	σ	$S_L^0 Li$ (m/s)	V_s moyenne (m/s)	V_s Théorique (m/s)
12,6	0,34	4,1798	0,084	1,31	1,4
13,7	0,38	4,413	0,12	2,47	2,1
14,4	0,4	4,5584	0,15	5	2,7
14,8	0,42	4,6277	0,18	6,2	3,3

Tableau 3-1 Comparaison entre la vitesse théorique avec l'approximation d'une flamme hémisphérique et la vitesse moyenne mesurée sur les premiers mètres de la propagation

3.2 Effet du nombre d'obstacles

L'effet du nombre d'obstacles sur la propagation de la flamme a été étudié pour différentes compositions initiales de H_2/CO . Sur la Figure 2-8, nous avons représenté les profils de vitesse d'un mélange composé à 12,3% de H_2/CO pour 14, 11 et 8 obstacles. On y voit, comme pour le cas des hydrocarbures étudiés précédemment, que la présence d'obstacles dans le tube génère l'accélération de la flamme. Dans le cas où le nombre d'obstacles est fixé à 8, on note une augmentation de la vitesse de flamme dans le réseau d'obstacles suivi d'une légère baisse de vitesse à la fin de cette zone.

Lorsque le nombre d'obstacles est ensuite fixé à 11 (3 obstacles supplémentaires en haut du tube), on note des profils similaires de la vitesse de flamme sur les 8 premiers obstacles puis une vitesse maintenue constante sur les 3 derniers obstacles. Cette accélération supplémentaire induite par ces trois obstacles supplémentaires conduit à l'extinction de la flamme en sortie du réseau d'obstacles. De même, lorsque le nombre d'obstacles est fixé à 14, on assiste à une accélération plus importante sur les premiers mètres de la propagation conclue par l'extinction, ici encore, de la flamme en raison de l'augmentation de la turbulence.

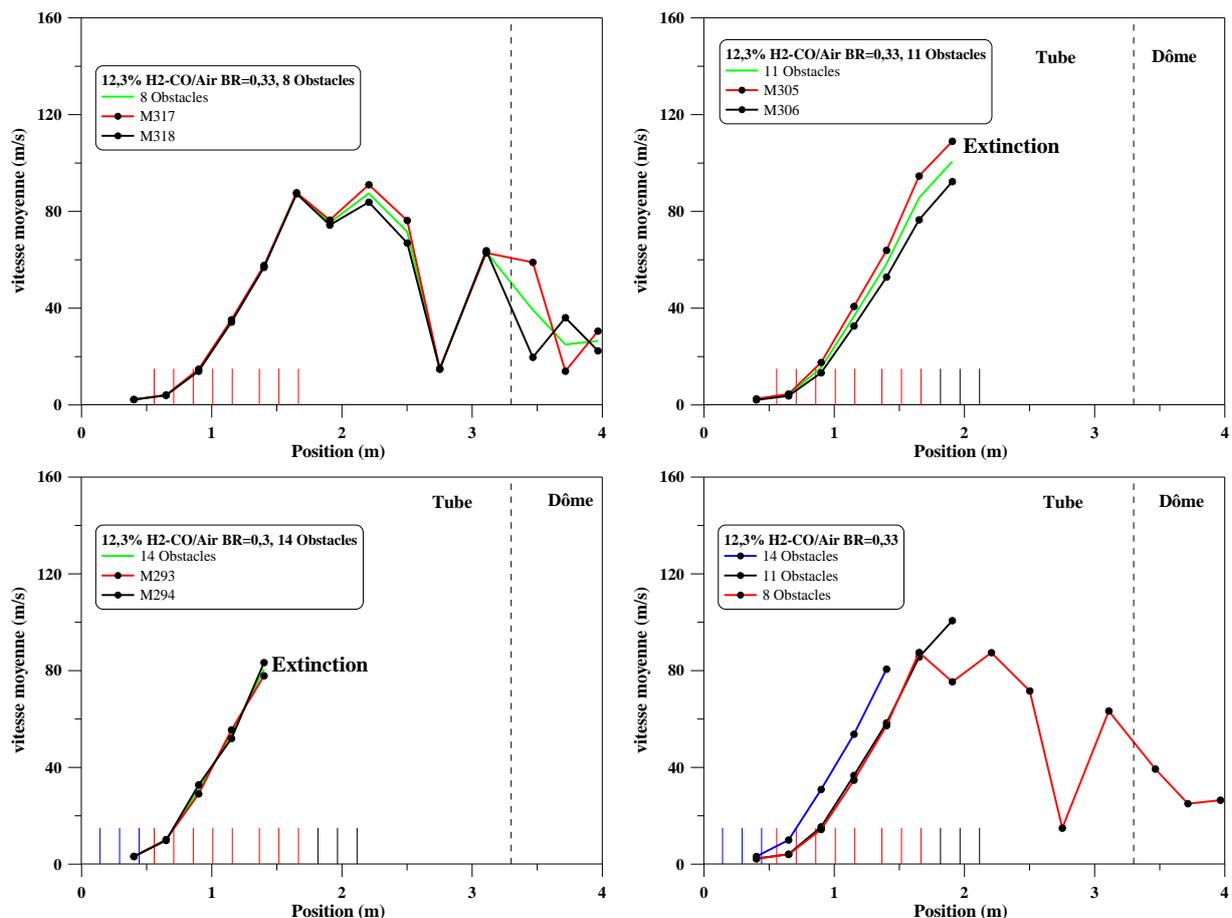


Figure 3-2 : Effet du nombre d'obstacles sur l'accélération des flammes d'un mélange 12,3% H_2 -CO/Air, initialement à 298 K et 1 bar

L'enregistrement des signaux de pression montre que la propagation de la flamme est complète lorsque le nombre d'obstacles est fixé à 8 tandis que, lorsque ce même nombre est fixé successivement à 11 et 14 obstacles, la légère surpression observée est caractéristique d'une combustion qui ne s'est pas propagée au dôme de l'enceinte.

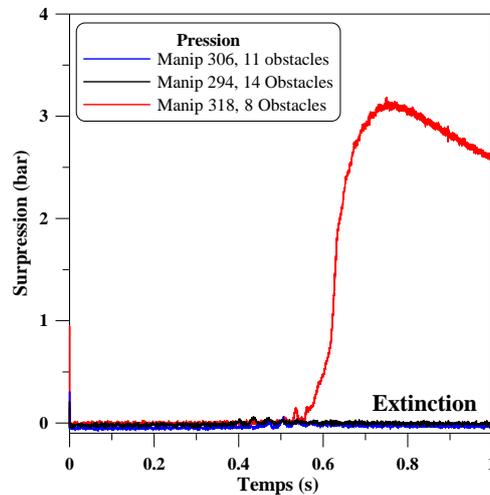


Figure 3-3 : Evolution de la surpression dans l'enceinte pour 12,3% de H₂/CO dans l'air initialement à 298 K, et 1 bar

De même, l'analyse chromatographique des ballons prélevés après la combustion montre que le mélange initial n'a pas été consommé en dehors de la zone obstruée comme reporté dans le tableau suivant. La concentration initiale d'hydrogène dans le mélange est de 6,15%

Position /inflammation	0,277	0,527	1,277	2,139	2,877	3,341
% H2 8 obstacles	0	-	-	-	-	0
% H2 11 obstacles	1,7%	-	-	-	-	6,1%
%H2 14 obstacles	-	4,6%	5,8%	6,1%	6,1%	6,1%

Tableau 3-2 : Analyse chromatographique des ballons post combustion pour un mélange de 12,3% H₂/CO dans l'air initialement à 298 K et 1 bar

Lorsque la composition initiale du mélange est par la suite fixée à 13,1% de H₂/CO dans l'air (Figure 3-4), l'augmentation du nombre d'obstacles se traduit par des profils de vitesse assez différents. Ainsi, dans le cas où le nombre d'obstacles était fixé à 8, la décélération en sortie du réseau d'obstacles a fait suite à une ré-accélération qui aboutit à une vitesse maximale dans le dôme de 312 m/s.

Dans le cas où le nombre d'obstacles est de 11, comme précédemment, on observe un profil de vitesse similaire à celui obtenu pour 8 obstacles, sur les 8 premiers obstacles. Cependant, la présence des 3 obstacles supplémentaires en haut du tube est nettement ressentie sur le profil de vitesse. Cependant, l'augmentation de vitesse est suivie d'une baisse

de vitesse dans le dôme. De même, pour un nombre d'obstacles de 14, si la présence d'obstacles en début de tube conduit à un profil de vitesse plus élevé, on remarque néanmoins une baisse de vitesse importante en sortie du réseau d'obstacles avec une vitesse en fin de tube de 110 m/s.

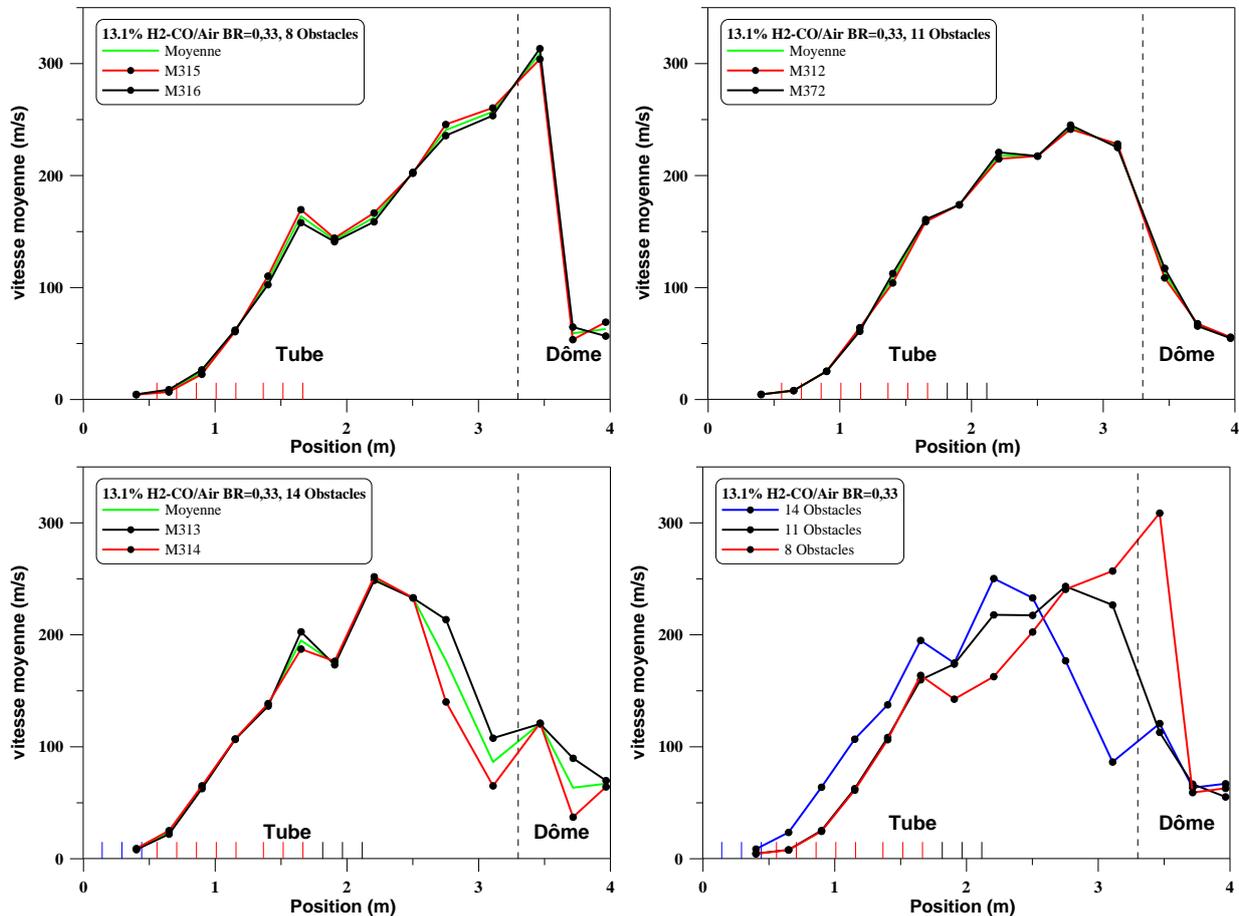


Figure 3-4 : Effet du nombre d'obstacles sur l'accélération des flammes d'un mélange 13,1% H₂-CO/Air, initialement à 298 K et 1 bar

Dans le Tableau 3-3, nous avons récapitulé l'influence de la composition et de la configuration sur le régime de propagation de la flamme.

On y voit lorsque le nombre d'obstacles est fixé à 11 et 14, pour une concentration initiale de 10,5% on observe une flamme se propageant dans l'ensemble de l'enceinte. Le phénomène d'extinction lié à l'augmentation de la turbulence que nous avons noté dans le cas des hydrocarbures se produit ici pour 12,3% de H₂/CO dans l'air. Le régime de flamme rapide est observé lorsque pourcentage initial de H₂/CO était de 14,1% dans l'air.

Lorsque le nombre d'obstacles était de 8, comme dans le cas des hydrocarbures le phénomène d'extinction de la flamme dans le réseau d'obstacles ne s'est pas produit. Par ailleurs, il faut noter l'apparition du régime de flamme accéléré pour un pourcentage initial de 13,7% de H₂/CO dans l'air.

Composition en H ₂ /CO	14 obstacles	11 obstacles	8 obstacles
10,5%	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)	-
12,3%	Extinction	Extinction	Totale (Flamme lente)
13,1%	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)
13,7%	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme rapide)
14,1%	Totale (Flamme rapide)	-	Totale (Flamme rapide)
14,4%	Totale (Flamme rapide)	Totale (Flamme rapide)	Totale (Flamme rapide)

Tableau 3-3 : Influence de la composition et du nombre d'obstacles sur le régime de propagation des mélanges H₂/CO

3.3 Effet du rapport de blocage sur les profils de vitesse

Dans cette partie de l'étude, nous avons fait varier le rapport de blocage tout en gardant le nombre d'obstacles fixé à 8 afin d'étudier l'impact du rapport de blocage sur le profil de vitesse ainsi que sur le régime de propagation de la flamme.

Sur la Figure 3-5, nous avons représenté les profils de vitesse pour un mélange composé à 12,3% de H₂/CO. On y observe que pour un rapport de blocage fixé à 0,3, la flamme subit une forte accélération dans le réseau d'obstacles suivie d'une décélération en sortie de cette zone obstruée. L'augmentation du rapport de blocage résulte en une accélération plus forte dans le réseau d'obstacles comme nous l'avons constaté dans le cas des hydrocarbures que nous avons étudiés. Cependant, l'augmentation de la turbulence associée à cette accélération conduit à l'extinction de la flamme dans le réseau d'obstacles dans le cas où le rapport de blocage était fixé à 0,6.

L'observation des signaux de pression dans l'enceinte au cours de la combustion (Figure 3-6) ainsi que l'analyse des ballons prélevés après la combustion (Tableau 3-4) confirment l'extinction lorsque le rapport de blocage est fixé à 0,6 contrairement aux cas où celui-ci est fixé à 0,33 et 0,4.

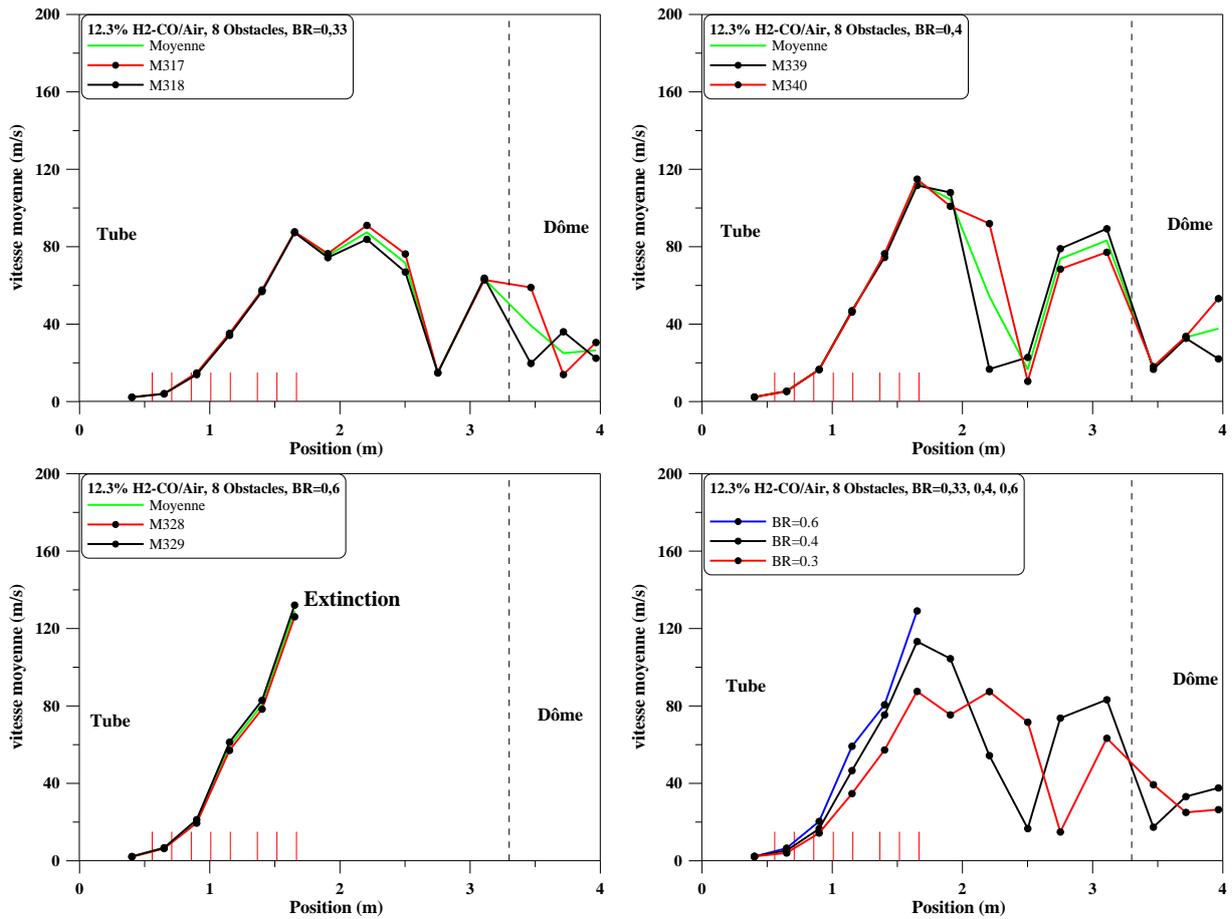


Figure 3-5 : Effet du rapport de blocage sur la propagation d'un mélange de 12,3% H₂-CO/Air, initialement à 298 K et 1 bar

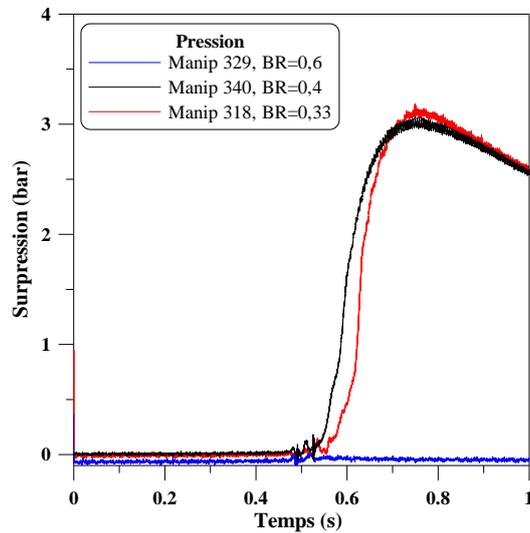


Figure 3-6 : Evolution de la surpression dans l'enceinte pour différents rapports de blocage pour un mélange 12,3% H₂/CO dans l'air, initialement à 298 K et 1 bar

Position /inflammation	0,277	3,341
% H2 BR=0,33	0	0
% H2 BR=0,4	0	0
s% H2 BR=0,6	1,6%	6,1%

Tableau 3-4 : Analyse chromatographique des prélèvements post combustion pour 12,3% H₂/CO dans l'air, initialement le mélange est composé de 6,15% de H₂

Par la suite, lorsque la composition initiale était portée à 12,6%, les mêmes observations ont pu être à nouveau être faites en ce qui concerne l'influence du rapport de blocage sur le profil de vitesse.

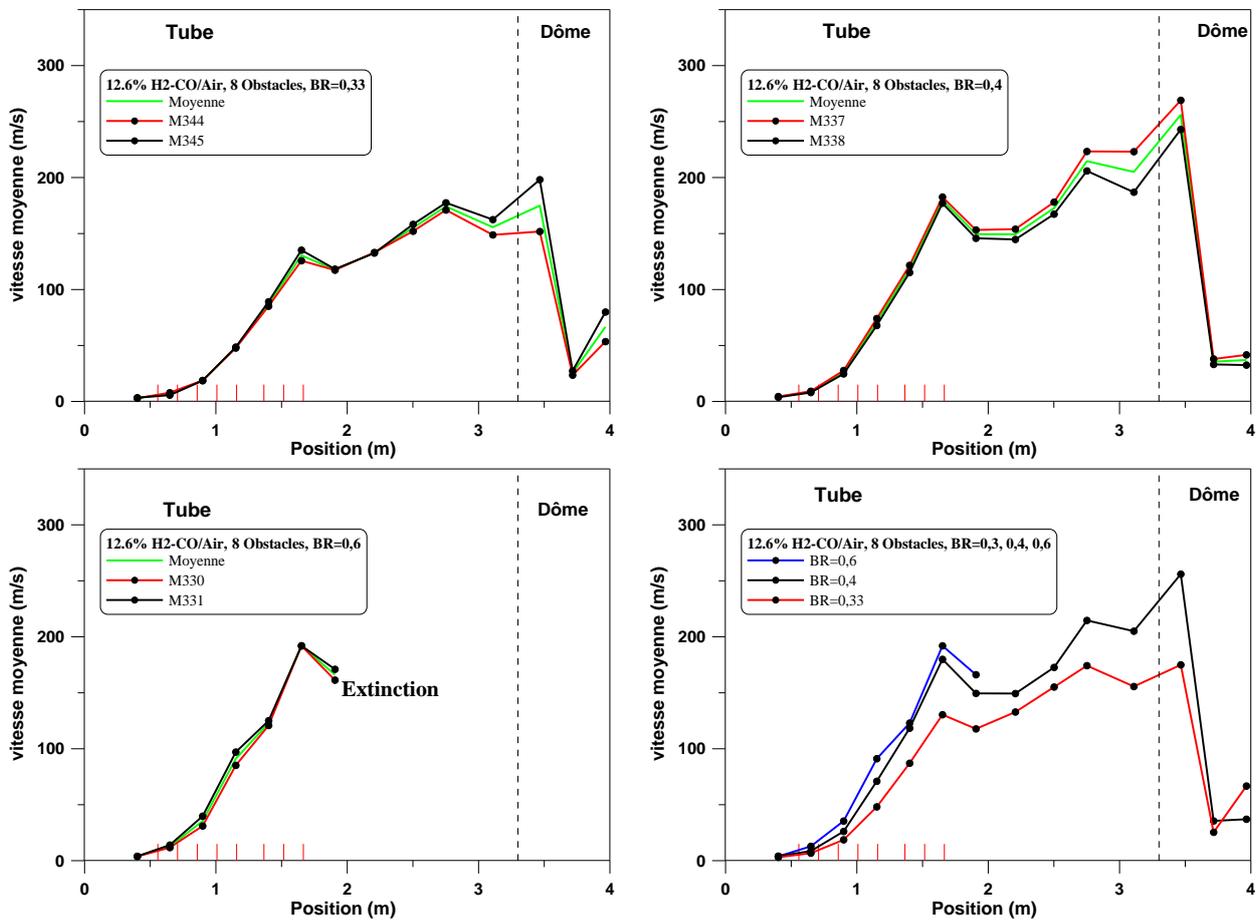


Figure 3-7 : Effet du rapport de blocage sur la propagation d'un mélange de 12,6% H₂-CO/Air, initialement à 298 K et 1 bar

Cependant, on observe en ce qui concerne le profil de vitesse, pour un rapport de blocage de 0,33, que l'augmentation de la concentration initiale atténue la forte décélération observée en fin réseau d'obstacle pour 12,3% et conduit à une vitesse maximale de 200 m/s observée dans le dôme. La même observation est faite lorsque le rapport de blocage est fixé à 0,4. Enfin, on note toujours l'extinction de la flamme pour un rapport de blocage de 0,6.

Dans le cas où la composition initiale en H_2/CO était fixée à 13,7% dans l'air (Figure 3-8) on note un profil de vitesse similaire quelque soit le rapport de blocage. Ce profil est caractérisé par une première phase d'accélération dans le tube lorsque la flamme se trouve dans le réseau d'obstacle. En sortie de ce réseau d'obstacles, on note une légère chute de la vitesse de flamme suivie d'une accélération jusqu'au dôme. Par ailleurs, on observe une augmentation globale de la vitesse lorsque le rapport de blocage augmentait.

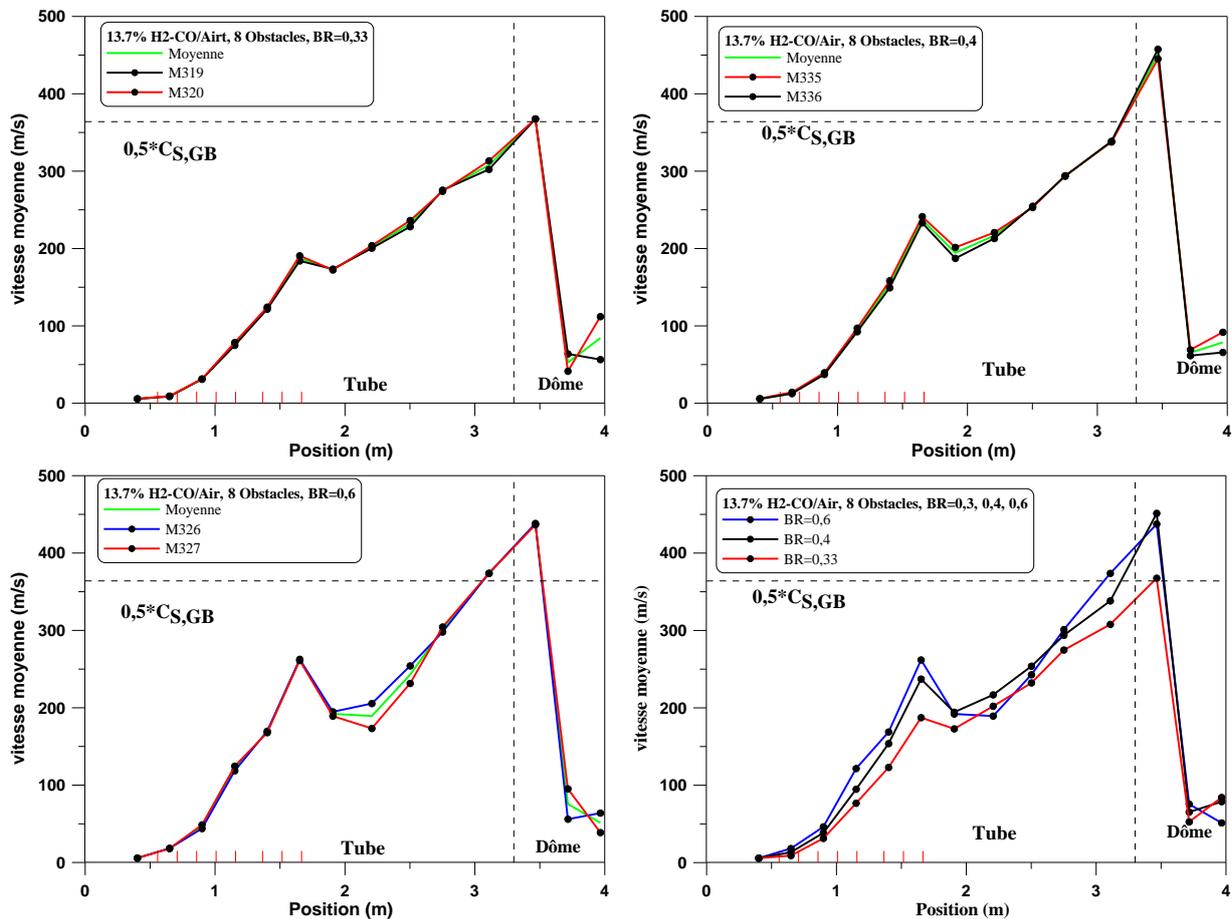


Figure 3-8 : Effet du rapport de blocage sur la propagation d'un mélange de 13,7% H_2-CO/Air , initialement à 298 K et 1 bar

Dans le tableau suivant, nous avons résumé l'influence du rapport de blocage sur le régime de propagation observé. On note pour un rapport de blocage de 0,6 un régime d'extinction de flamme pour 12,3% et 12,6% de H_2/CO dans l'air. Avec l'augmentation de la fraction de H_2/CO à 13,1%, on note une propagation totale d'une flamme lente et l'apparition du régime de flamme rapide pour 13,7% de H_2/CO .

Contrairement aux hydrocarbures, on ne note pas d'extinction lorsque le rapport de blocage est fixé à 0,4. Cela est dû à la plus grande réactivité du mélange H_2/CO qui permet au processus de combustion de se maintenir malgré une turbulence importante.

Enfin, on note que l'apparition du régime de flamme accéléré se fait ici, pour la même concentration de H_2/CO quelque soit le rapport de blocage.

Composition en H₂/CO	BR=0,6	BR=0,4	BR=0,33
10,5%	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)	-
12,3%	Extinction	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)
12,6%	Extinction	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)
13,1%	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)	Totale (Flamme lente)
13,7%	Totale (Flamme rapide)	Totale (Flamme rapide)	Totale (Flamme rapide)
14,1%	-	Totale (Flamme rapide)	Totale (Flamme rapide)
14,4%	-	-	Totale (Flamme rapide)

Tableau 3-5 : Tableau récapitulatif du type de propagation en fonction de la composition et de la configuration géométrique

4 Discussion générale de l'accélération de flamme des mélanges étudiés

4.1 Limites d'accélération des mélanges G27/Air

Le tableau ci-dessous résume les différentes compositions initiales ainsi que les propriétés fondamentales de la combustion des mélanges G27/Air. On y retrouve notamment le nombre de Zeldovich obtenu à partir de la modélisation, le coefficient d'expansion des gaz ainsi que le nombre de Lewis calculés en utilisant le code Equil de la librairie Chemkin II [110]

% G27	ϕ	σ	$C_{s,GF}$ (m/s)	$C_{s,GB}$ (m/s)	$Le_{CH_4,mél}$	β	Ea (kJ/mole)	L' (cm)	Vmax (m/s)	Régime de propagation
7,9%	0,66	5,8515	353	818	0,964	10,14	180,2	- 0,086	138	Flamme lente
8,2%	0,69	6,0023	353	828	0,964	9,69	175,8	- 0,042	387	Flamme lente
8,4%	0,71	6,1015	354	835	0,963	9,46	173,8	- 0,018	480	Flamme rapide
8,6%	0,73	6,1997	354	841	0,962	9,26	172,4	0,004	594	Flamme rapide
9,4%	0,80	6,5799	354	866	0,960	8,88	173,5	0,59	650	Flamme rapide
9,7%	0,83	6,7161	355	875	0,959	8,88	176,4	0,070	657	Flamme rapide
10,0%	0,86	6,8478	355	883	0,958	8,96	180,6	0,077	718	Flamme rapide

Tableau 4-1 : Régimes de propagation observés pour chacune des compositions initiales (ϕ : rapport d'équivalence, σ rapport d'expansion des gaz brûlés, $C_{s,GF}$: vitesse du son dans les gaz frais, $C_{s,GB}$: vitesse du son dans les gaz brûlés, Le/CH_4 : nombre de Lewis basé sur le méthane, β : nombre de Zeldovich, Ea : énergie d'activation globale, V_{max} : vitesse maximale expérimentale)

Dans le cas des flammes rapides, la longueur critique d'accélération a été évaluée et est comparée à celle des mélanges Méthane/Air (Figure 4-1) présents dans la littérature. Il apparaît, lorsque l'on représente L_{cr} en fonction de la teneur en méthane, que la baisse du diamètre du tube résulte en une baisse de la L_{cr} d'accélération. Par ailleurs, il faut noter la baisse de la longueur critique d'accélération des mélanges G27/Air avec l'augmentation du pourcentage initial de méthane. Enfin, on note que les résultats obtenus au cours de cette étude sont cohérents avec ceux de la littérature et nous permettent de conclure que le tube d'accélération était bien suffisant pour l'étude de l'accélération de flamme dans le cas du G27.

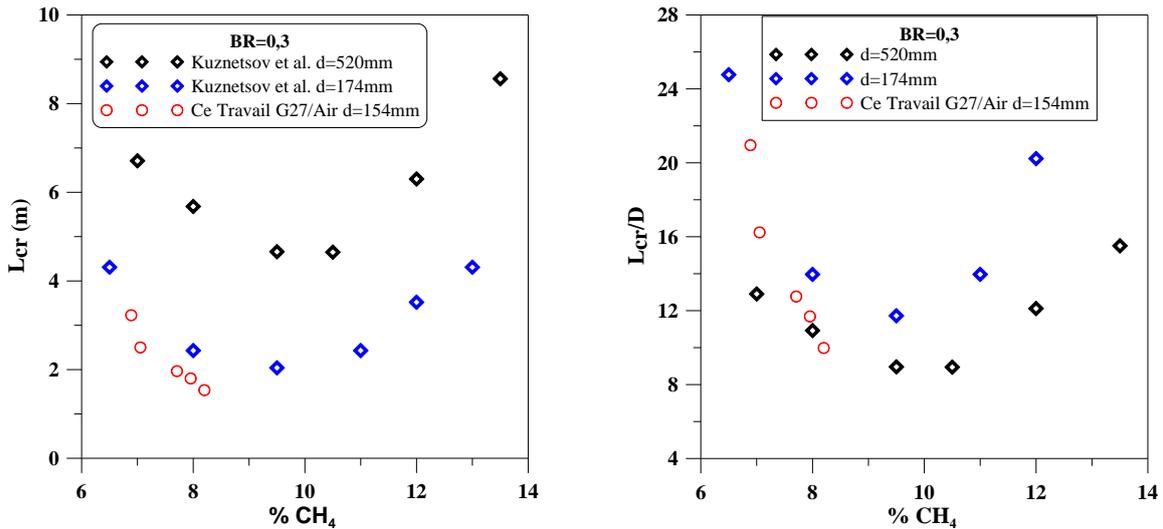


Figure 4-1 : Comparaison des distances critiques d'accélération du méthane (Kuznetsov et al.) avec celles du G27 mesurées au cours de cette étude.

Dans le cadre de l'établissement d'un critère d'accélération de flamme de mélanges CH₄/Air, Dorofeev et al. ont évalué une énergie globale d'activation que nous allons comparer à celle déterminée au cours de ce travail. La variation de l'énergie d'activation est donnée en fonction du rapport d'équivalence dans le Tableau 4-2. Une différence de près de 20% ($\phi=0,6$) et de 25% ($\phi=1,3$) est observée entre les deux valeurs d'énergie d'activation. Comme leur article ne donne pas de détail concernant l'évaluation de cette énergie globale, il n'a pas été possible d'identifier l'origine de cette différence. Les auteurs indiquent uniquement une erreur de l'ordre de 30%.

ϕ	E_a/RT_u (Dorofeev et al.)	E_a/RT_u (Cette étude)
0,6	61,8	75,0
0,7	64,1	70,5
0,8	66,2	70,7
0,9	68,1	76,3
1	69,8	79,3
1,1	71,4	72,2
1,2	72,9	76,7
1,3	74,5	100,6

Tableau 4-2 : Comparaison des énergies d'activations évaluées au cours de cette étude et de celles proposées par Dorofeev et al.

La limite d'accélération entre flammes lentes et flammes rapides a été évaluée par Dorofeev et al. en exprimant un sigma critique en fonction de E_a/RT_u selon la relation suivante (Figure 4-2):

$$\sigma^* = 0,9 \cdot 10^{-5} \left(\frac{E_a}{RT_u} \right)^3 - 0,0019 \left(\frac{E_a}{RT_u} \right)^2 + 0,1807 \frac{E_a}{RT_u} + 0,2314 \quad \text{Eq. 71}$$

Afin de vérifier l'applicabilité de cette limite aux mélanges G27/Air, les énergies d'activation ont été calculées en utilisant les valeurs préconisées par Dorofeev. Les flammes du mélange G27/Air sont ensuite reportées sur la Figure 4-2. On note un bon accord entre la limite déterminée par Dorofeev et al. celle que nous observons pour le G27.

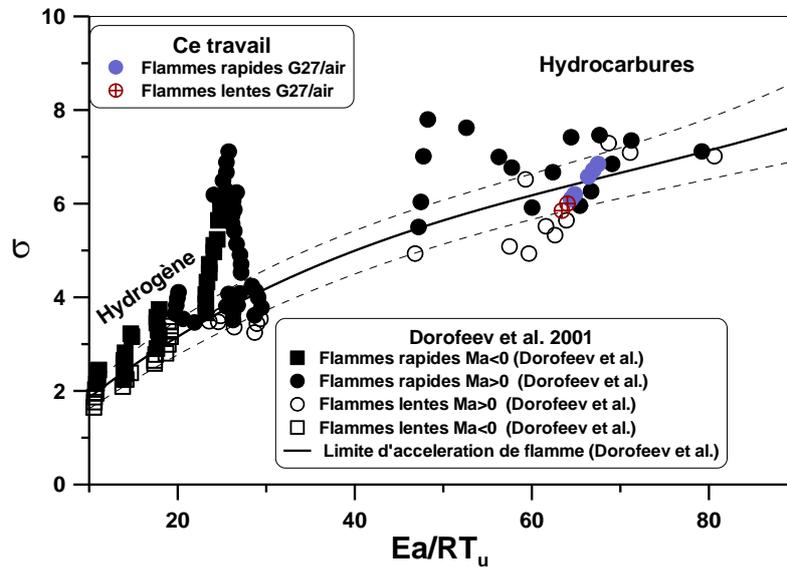


Figure 4-2 : Comparaison des données expérimentales du G27 avec la limite proposée par Dorofeev et al.[94].

L'analyse effectuée par Dorofeev s'appuie sur les essais réalisés par Peraldi et al. Cependant, étant donné que les énergies d'activation déterminées par Dorofeev et al. et par nous même diffèrent d'un facteur pouvant atteindre 20%, nous avons aussi reporté les expériences menées par Peraldi en tenant, cette fois ci, compte de l'énergie d'activation déterminée au cours de ce travail. Il semblerait que l'on ait un sigma critique qui varie linéairement avec $\frac{Ea}{RT_u}$:

$$\sigma^* = 0,0229 \left(\frac{Ea}{RT_u} \right) + 4,437 \quad \text{Eq. 72}$$

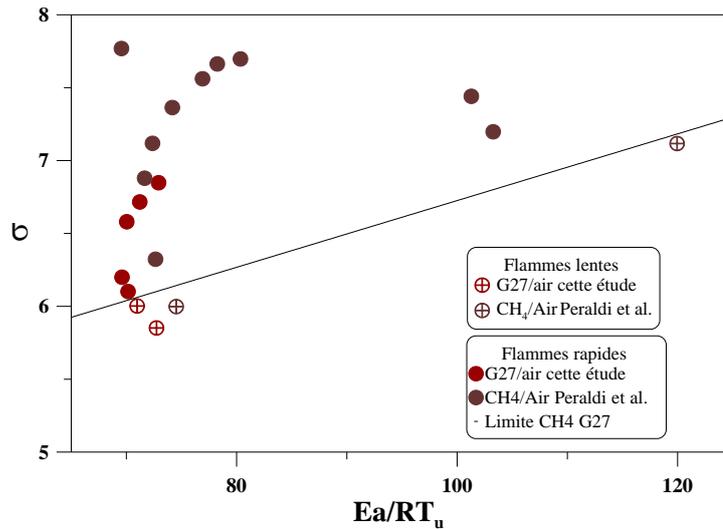


Figure 4-3 : Comparaison de la limite d'accélération du G27 avec les données de Peraldi et al. [84]

La limite d'accélération peut aussi être exprimée en reportant sigma en fonction de $\beta(Le - 1)$. Ainsi, comme dans le cas des études réalisées précédemment sur l'hydrogène, nous avons reporté les expériences menées dans le cas du G27 ainsi que celles de Peraldi et al. dans la Figure 4-4.

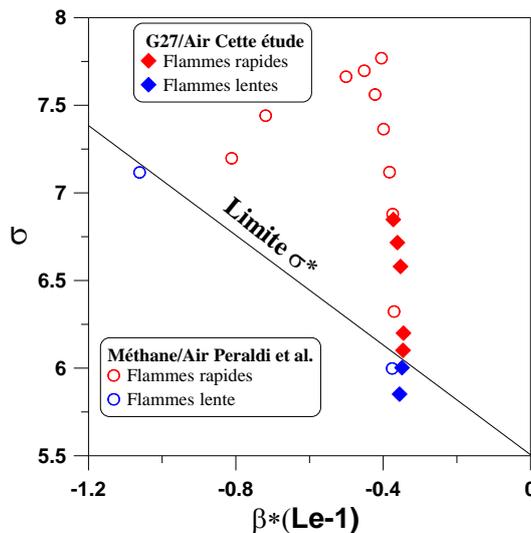


Figure 4-4 : Evolution du rapport d'expansion des gaz brûlés en fonction de $\beta(Le - 1)$ dans le cas des mélanges CH_4/Air et $G27/Air$

Ici encore, il semble apparaître une limite linéaire permettant de discriminer les flammes rapides des flammes lentes des mélanges $CH_4/O_2/N_2$ s'exprimant ainsi :

$$\sigma^* = -1,565\beta(Le - 1) + 5,50 \quad \text{Eq. 73}$$

4.2 Limite d'accélération des mélanges G222/Air

Les données expérimentales et estimées obtenues au cours de nos travaux sont rassemblées dans le Tableau 4-3. Celles-ci vont nous servir à proposer un critère d'accélération des flammes de mélanges G222/Air. On observe tout d'abord que lorsque le pourcentage de G222 dans l'air est inférieur à 7,2%, le régime de propagation observé est systématiquement le régime de flamme lente ou d'extinction quelque soit la configuration géométrique. De la même façon, lorsque ce pourcentage était supérieur ou égal à 7,2, pour un rapport de blocage de 0,33 et pour 8 obstacles, le régime de propagation était celui d'une flamme rapide.

% G222	ϕ	σ	$C_{s,GB}$ (m/s)	$Le_{H_2,mél}$	β	$\beta(Le-1)$	Ea	$L'(cm)$	V_{max} (m/s)	Régime de propagation	Lcr (m)
6,3%	0,53	5,08	768	0,289	12,52	-8,89	200,7	-0,43	147	Lent	-
6,5%	0,55	5,19	776	0,290	12,03	-8,54	196,0	-0,38	330	Lent	-
6,8%	0,57	5,35	788	0,291	11,38	-8,07	189,9	-0,31	393	Lent	-
7,2%	0,61	5,57	803	0,291	10,65	-7,55	183,4	-0,23	464	Rapide	3,2
7,6%	0,65	5,78	818	0,292	10,08	-7,14	178,7	-0,16	583	Rapide	2,8
8,1%	0,69	6,03	836	0,293	9,56	-6,76	175,4	-0,09	736	Rapide	1,9
8,6%	0,74	6,28	853	0,294	9,23	-6,52	175,1	-0,04	782	Rapide	1,3

Tableau 4-3 : Régimes de propagation observés pour chacune des compositions initiales (ϕ : rapport d'équivalence, σ rapport d'expansion des gaz brûlés, $C_{s,GF}$: vitesse du son dans les gaz frais, $C_{s,GB}$: vitesse du son dans les gaz brûlés, Le/CH_4 : nombre de lewis basé sur le méthane, β : nombre de Zeldovich, Ea : énergie d'activation globale, V_{max} : vitesse maximale expérimentale, Lcr : distance critique d'accélération)

Lorsque l'on identifie les différents régimes de propagation de flamme dans le cas des mélanges CH_4/Air , $CH_4/N_2/Air$ et $CH_4/H_2/Air$, en reportant pour chaque mélange le sigma en fonction de $\frac{Ea}{RT_u}$ (Figure 4-5), nous obtenons une limite entre flammes lentes et flammes rapides selon un sigma critique selon la relation suivante :

$$\sigma^* = 0,0315 \frac{Ea}{RT_u} + 3,485 \quad \text{Eq. 74}$$

Avec une incertitude de 7%.

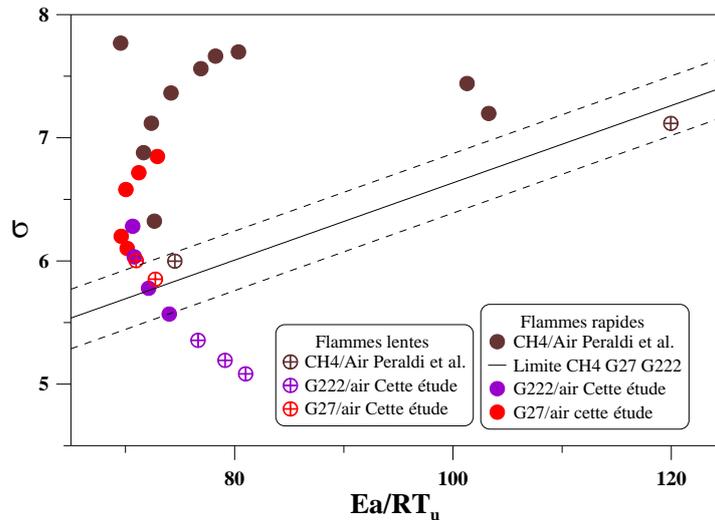


Figure 4-5 : Comparaison des données expérimentales du G222 et du G27 avec celles sur le méthane (Peraldi et al.[84])

Nous avons, comme précédemment, tracé le sigma des mélanges en fonction de $\beta(Le - 1)$ en identifiant les cas de flammes rapides et celles des flammes lentes. Nous pouvons voir que dans ce cas, il n'y a aucune limite qui se dessine. En effet, les mélanges G222/air est caractérisé par des $\beta(Le - 1)$ comparables a ceux de l'hydrogène mais avec des rapports d'expansion beaucoup plus élevés. En effet la définition du nombre de Lewis est basée sur l'espèce minoritaire dans le mélange. Dans le cas du G222 le nombre de Lewis est toujours calculé par rapport à l'hydrogène. Par contre, le coefficient d'expansion des gaz brûlés est, lui, dominé par le méthane.

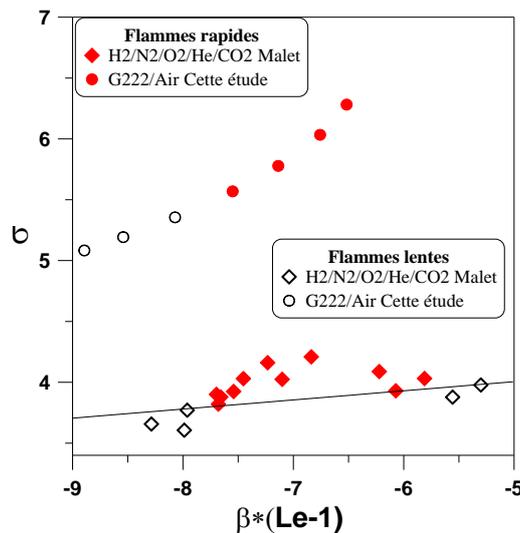


Figure 4-6 : Comparaison du régime de propagation de flamme du G222 avec le critère sigma.

Par contre, si l'on tient compte du nombre de Lewis basé sur le méthane et que l'on reporte les résultats dans le même diagramme que le G222 et le G27, alors une limite entre flamme lente et flamme rapide peut être définie selon la relation suivante (Figure 4-7) :

$$\sigma^* = -1,501\beta(Le - 1) + 5,51$$

Eq. 75

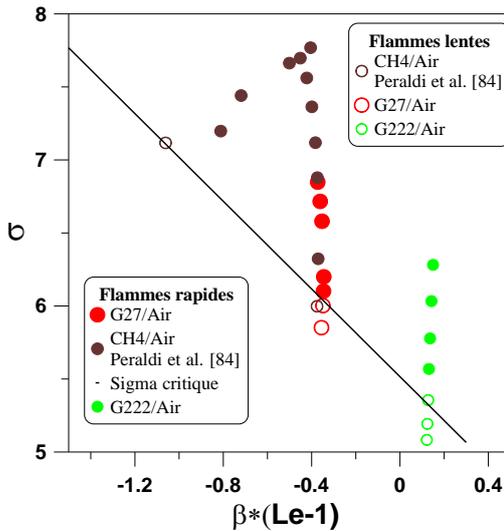


Figure 4-7 : Limite d'accélération des mélanges G27/air, G222/air, et méthane/air [84].

4.3 Limites d'accélération du H₂/CO

Le tableau ci-dessous récapitule les régimes de propagation observés au cours de l'étude sur les mélanges H₂/CO en fonction de la composition initiale mais aussi des différents paramètres fondamentaux nécessaires à la compréhension et à la prédiction du phénomène d'accélération de la flamme.

%H ₂ /CO	ϕ	σ	$C_{s,GB}$ (m/s)	$Le_{H_2,mél}$	β	$\beta(Le-1)$	E_a (kJ/mole)	V_{max} (m/s)	L' (cm)	Régime de propagation	L_{cr} (m)
10,5 %	0,28	3,72	667	0,313	9,62	-6,61	127	23	-0,018	Flamme lente	-
12,3 %	0,33	4,11	703	0,319	8,98	-6,11	128	115	-0,015	Flamme lente	-
12,6 %	0,34	4,18	708	0,322	9,20	-6,26	133	269	-0,015	Flamme lente	-
13,1 %	0,36	4,28	717	0,321	9,44	-6,41	139	323	-0,014	Flamme lente	-
13,7 %	0,38	4,41	728	0,323	9,48	-6,41	143	458	-0,013	Flamme rapide	3,19
14,1 %	0,39	4,49	735	0,324	9,36	-6,32	143	520	-0,012	Flamme rapide	2,97
14,4 %	0,40	4,56	740	0,325	9,25	-6,24	143	460	-0,012	Flamme rapide	2,5

Tableau 4-4 : Régimes de propagation observés pour chacune des compositions initiales (ϕ :rapport d'équivalence, σ rapport d'expansion des gaz brûlés, $C_{s,GB}$: vitesse du son dans les gaz brûlés, Le/CH_4 : nombre de lewis basé sur le méthane, β : nombre de Zeldovich, E_a : énergie d'activation globale, V_{max} : vitesse maximale expérimentale, L_{cr} : distance critique d'accélération)

Il met en évidence que le régime de flamme est rapide pour un pourcentage molaire de H₂/CO supérieur ou égal à 13,7% dans l'air.

Lorsque l'on reporte sur le même diagramme (Figure 4-8, Figure 4-9), l'ensemble des données de cette étude, on note bien que la limite identifiée pour les mélanges contenant du CH₄ ne permet pas de prédire le régime de propagation de la flamme pour le cas du H₂/CO (aussi bien dans l'espace $(\sigma, \frac{Ea}{RT_u})$ que dans l'espace $\sigma, \beta(Le - 1)$).

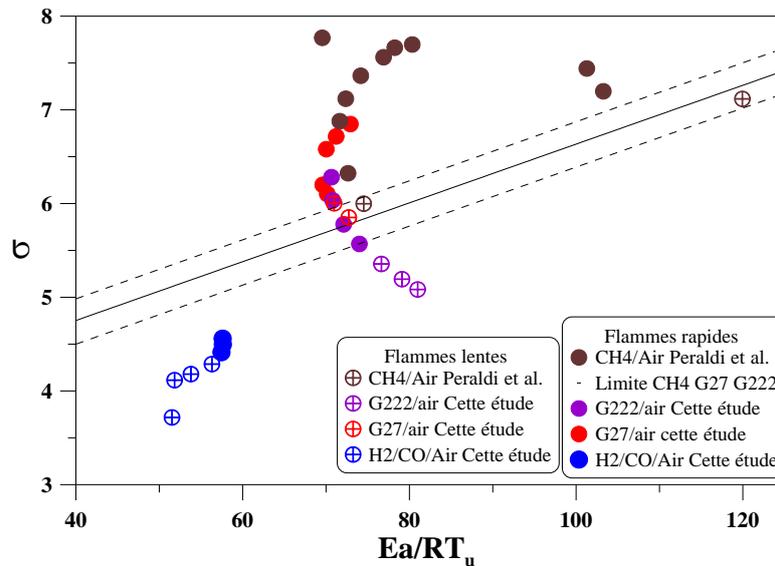


Figure 4-8 : Comparaison des données expérimentales du H₂/CO avec les données des différents mélanges étudiés et les données de Peraldi et al. [84], $\sigma = f\left(\frac{Ea}{RT_u}\right)$

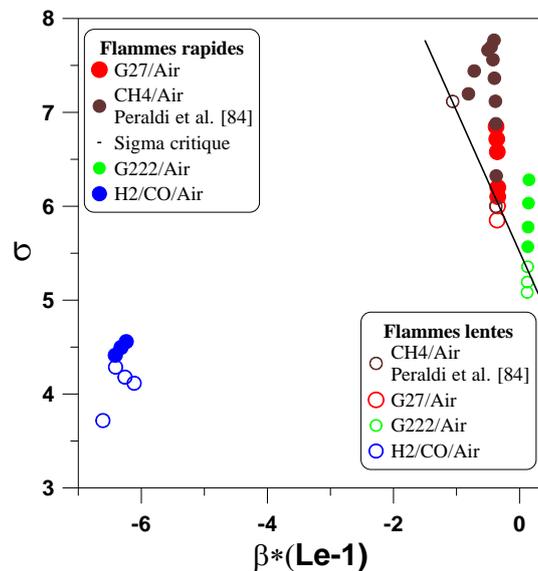


Figure 4-9 : Comparaison des données expérimentales du H₂/CO avec les données des différents mélanges étudiés et les données de Peraldi et al. [84], $\sigma = f(\beta(Le - 1))$

Par contre, lorsque l'on reporte sur la même figure les résultats concernant les mélanges H₂/Air/diluant (Malet [95], Dorofeev [93]) avec cette étude concernant les mélanges H₂/CO, une limite peut être définie selon l'expression suivante :

$$\sigma^* = -2,38 + 0,231 \left(\frac{Ea}{RT_u} \right) - 0,002 \left(\frac{Ea}{RT_u} \right)^2 \quad \text{Eq. 76}$$

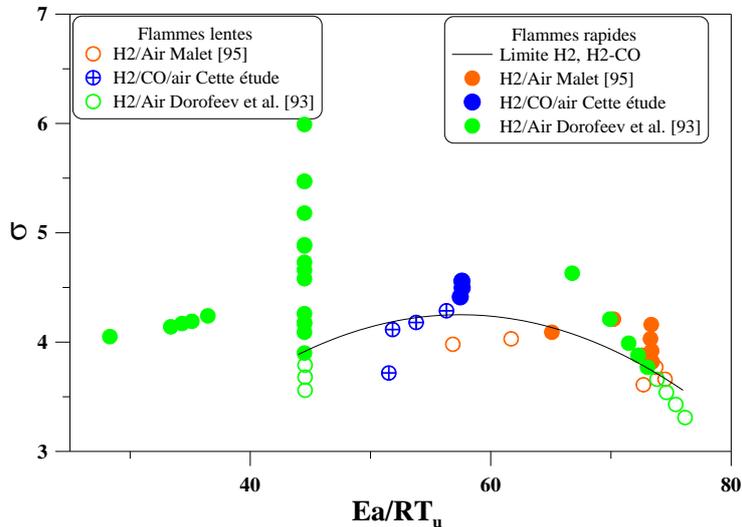


Figure 4-10 : Comparaison des données expérimentales du H₂/CO avec les données sur l'hydrogène issues de la littérature Malet [95], Dorofeev [93]

Conclusion

L'analyse des différents régimes de propagation dans le cas des trois mélanges étudiés a permis de mettre en évidence deux limites d'accélération de flamme selon la composition du mélange et donc selon leurs propriétés de transport (Le), de réactivité (β) et thermodynamique (σ). Ainsi, ces deux limites sont obtenues selon que la valeur du $\beta(Le - 1)$ soit supérieure à -2 (caractéristique des flammes stables) ou inférieures à -2 (caractéristique des flammes instables).

- Pour les cas où $\beta(Le - 1) < -2$ qui concernent les mélanges H₂/CO/air, H₂/air/diluants [93, 95], il est possible d'évaluer, à priori, le régime de propagation de flamme d'un mélange donné selon que le sigma de ce mélange soit supérieur ou inférieur à une valeur critique de sigma (σ^*) :

$$\sigma^* = -2,38 + 0,231 \left(\frac{Ea}{RT_u} \right) - 0,002 \left(\frac{Ea}{RT_u} \right)^2$$

Dans ce cas, il n'a pas été possible d'exprimer la limite en fonction de $\beta(Le - 1)$

- Pour les cas où $\beta(Le - 1) > -2$, qui concernent dans ce cas tous les mélanges contenant du méthane, la propension de la flamme d'un mélange donné à s'accélérer fortement peut être évaluée en comparant le sigma su mélange à un sigma critique donné par la relation suivante :

$$\sigma^* = -1,501\beta(Le - 1) + 5,51 \quad \text{ou}$$

$$\sigma^* = 0,0315 \frac{Ea}{RT_u} + 3,485$$

5 Conclusion

L'objectif de ce chapitre est l'étude de la propagation des flammes des mélanges G27/Air, G222/Air et H₂/CO/Air dans l'enceinte d'accélération de flamme.

Pour ce faire, une étude en tube lisse a été réalisée dans un premier temps, afin de caractériser la propagation des mélanges dans l'enceinte. Elle a permis de conforter les observations de Phylaktou et al. [36] sur les différentes phases de la propagation en tube lisse et notamment l'apparition d'un maximum local au début de la propagation. Ce maximum comme ils l'ont expliqué est relevé à une distance du point d'inflammation correspondant à 6 fois le diamètre.

Puis, nous avons étudié l'impact de la présence d'obstacles sur la propagation des flammes. Nos essais ont permis d'identifier deux types de propagation :

- Dans le premier cas, l'augmentation de la turbulence aboutit à l'extinction de la flamme. Les analyses des ballons prélevés après la combustion montrent que le mélange initial n'a pas été consommé en sortie du réseau d'obstacles. De plus la pression maximale mesurée est très largement en dessous de la P_{AICC}.
- Dans le second cas, la flamme se propage dans le dôme et les analyses des ballons post-combustion révèlent que le mélange initial a complètement brûlé. Les relevés de pression dans ce cas de figure montrent des pressions maximales de combustion proches de la P_{AICC}

Dans ce dernier cas, lorsque la vitesse maximale atteinte par la flamme au cours de sa propagation est inférieure à la moitié de la vitesse du son dans les gaz brûlés, le régime de propagation est dit lent. Si, au contraire, cette vitesse maximale est supérieure à la moitié de la vitesse du son dans les gaz brûlés, la propagation est dite rapide.

Dans le cas du mélange G27/air, le régime de flamme rapide est atteint lorsque le pourcentage molaire initial de G27 dans l'air est égal à 8,4%. Dans le cas du G222/Air, ce régime est atteint pour un pourcentage molaire de 7,2% de G222 dans l'air. Enfin, concernant

les mélanges H₂/CO/air, ce régime est atteint lorsque le mélange initial est composé de 13,7%_{molaire} de H₂/CO.

Enfin, l'analyse des résultats a permis de proposer deux critères d'accélération selon la valeur du $\beta(Le - 1)$. Ainsi :

- lorsque celle-ci était inférieure à -2 (flammes instables)

$$\sigma^* = -2,38 + 0,231 \left(\frac{Ea}{RT_u} \right) - 0,002 \left(\frac{Ea}{RT_u} \right)^2$$

- Lorsque celle-ci était supérieure à -2, (flammes stables) deux valeurs de sigma critique ont été proposées (la première est une fonction de $\beta(Le - 1)$, la seconde est une fonction de $\frac{Ea}{RT_u}$)

$$\sigma^* = -1,501\beta(Le - 1) + 5,51 \quad \text{ou}$$

$$\sigma^* = 0,0315 \frac{Ea}{RT_u} + 3,485$$

Conclusion générale

Le travail réalisé au cours de cette thèse s'inscrit dans le cadre de l'évaluation des risques industriels. Trois mélanges gazeux représentatifs d'une part du gaz naturel (pour les deux premiers, G27 :82%CH₄/18%N₂, G222 :77%CH₄/23H₂) et d'autre part du gaz de synthèse (pour le dernier, 0,5H₂/0,5CO) ont été choisis afin de mener une étude détaillée sur leurs risques d'explosion.

Une étude bibliographique a été effectuée et a permis de mettre en évidence le manque de données portant sur l'accélération de flamme des mélanges H₂/CO/Air, CH₄/H₂/Air et CH₄/N₂/O₂. Cependant les nombreuses études ayant porté sur l'accélération des flammes de mélanges H₂/O₂/N₂, notamment celle de Malet [95], ont permis l'établissement d'un critère dit d'accélération de flamme qui permet de discriminer entre les mélanges potentiellement dangereux en raison des chargements en pression trop importants et ceux qui ne présentent pas de risque car la combustion se produit à une vitesse très lente. L'objectif de ce travail était donc d'évaluer d'une part les paramètres de combustion et d'autre part de caractériser les différents régimes de combustion dans une enceinte fermée encombrées d'obstacles. Ces différentes caractéristiques ont permis d'évaluer les conditions d'inflammation ainsi que le risque d'obtention de flammes très rapides qui seraient responsables de chargements en pression trop importants.

Pour mener à bien ces travaux, différents dispositifs expérimentaux ont été. Ainsi, une première enceinte sphérique, disposant d'un dispositif d'inflammation par laser, a permis de mesurer les limites d'inflammabilité des mélanges choisis. A une composition donnée, un mélange est considéré comme inflammable dès lors que le dépôt d'énergie fait suite à la propagation d'une flamme dans l'enceinte. Dans le cas contraire, la perturbation initiale liée au dépôt d'énergie dans le milieu se dissipe très rapidement. Les limites déterminées ont fait l'objet d'une comparaison avec la littérature et ont révélé un assez bon accord avec ces dernières.

Une deuxième enceinte sphérique, de plus grand volume, a été utilisée dans le cadre de la mesure des vitesses de flammes des mélanges G27/Air, G222/Air et H₂/CO/Air à trois températures initiales (303 K, 333 K et 363 K) et deux pressions initiales. Une corrélation de la vitesse fondamentale de flamme en fonction de la richesse, de la température initiale et de la pression initiale a été proposée pour chacun de ces mélanges.

Pour les mélanges G27 / air, elle s'exprime selon :

$$S_L^0(\phi, T, P) = (-150,5\phi^2 + 314,9\phi - 130,8) \left(\frac{T}{T_{ref}} \right)^{1,61} \left(\frac{P}{P_{ref}} \right)^{-0,3}$$

Cette relation a été validée sur le domaine suivant :

$$\phi : 0,8 \text{ à } 1,25 \quad T : 303 \text{ à } 363 \text{ K} \quad P : 1 \text{ à } 2 \text{ bar}$$

Dans le cas du G222, une expression similaire permettant le calcul de la vitesse fondamentale de flamme a été proposée :

$$(\phi, T, P) = (-176,8\phi^2 + 380,9\phi - 159,8) \left(\frac{T}{T_{ref}} \right)^{1,64} \left(\frac{P}{P_{ref}} \right)^{-0,44}$$

Cette relation a été validée sur le domaine suivant :

$$\phi : 0,8 \text{ à } 1,3 \quad T : 303 \text{ à } 363 \text{ K} \quad P : 1 \text{ à } 2 \text{ bar}$$

Enfin, dans le cas du H₂/CO, la vitesse fondamentale s'écrit :

$$S_L^0(\phi, T) = (-23,3\phi^2 + 125,2\phi - 16,2) \left(\frac{T}{T_{ref}} \right)^{1,3}$$

Cette relation a été validée sur le domaine suivant :

$$\phi : 0,5 \text{ à } 4 \quad T : 303 \text{ à } 363 \text{ K} \quad P : 1 \text{ bar}$$

Les vitesses fondamentales de flamme ont été simulées sur la base de différents mécanismes cinétiques de la littérature. L'objectif de la modélisation était de choisir parmi les différents modèles disponibles celui qui aurait le meilleur accord avec les données expérimentales afin d'évaluer les énergies d'activations. Dans le cas du G27 et du G222 le modèle choisi était celui du GRI, tandis que dans le cas du H₂/CO, le modèle choisi était celui proposé par Li et al.

Pour finir, la propension des flammes des mélanges étudiés à s'accélérer fortement a été caractérisée dans l'enceinte d'accélération de flamme (ENACCEF). Pour chacun des mélanges, à la suite de l'étude en tube lisse, l'influence du rapport de blocage ainsi que celle du nombre d'obstacles a été investiguée. Il est apparu que la présence d'obstacles dans l'enceinte et l'augmentation du rapport de blocage de ceux-ci, contribuait à accélérer la propagation de la flamme. Une boucle de rétro-action est créée entre l'accélération de la flamme et l'augmentation de la turbulence. Lorsque la turbulence devient trop importante, la flamme s'éteint.

L'analyse des résultats de l'étude ayant porté sur les limites d'accélération de flamme a permis de mettre en évidence un comportement du sigma critique qui évoluait selon que le mélange était stable ou instable. Ainsi :

- Pour les flammes instables : hydrogène/air, hydrogène/ monoxyde de carbone/air

$$\sigma^* = -2,38 + 0,231 \left(\frac{Ea}{RT_u} \right) - 0,002 \left(\frac{Ea}{RT_u} \right)^2$$

- Pour les flammes stables : méthane/air, méthane/azote/air, hydrogène/méthane/air,

$$\sigma^* = -1,501\beta(Le - 1) + 5,51 \quad \text{ou}$$

$$\sigma^* = 0,0315 \frac{Ea}{RT_u} + 3,485$$

L'étude réalisée au cours de cette thèse ouvre des perspectives notables en ce qui concerne la prédiction de l'accélération de flamme. Ainsi, afin d'affiner les critères d'accélération proposés au cours de cette étude ainsi que leur limite d'applicabilité (flamme stable, flamme instable), l'étude d'un mélange présentant un $\beta(Le - 1)$ compris entre -6 et -2 pourrait être envisagé. Enfin, la mise en place de diagnostics appropriés pourrait permettre la caractérisation du niveau de turbulence des gaz frais en amont de la flamme. Ceci permettrait d'obtenir des données expérimentales concernant l'influence de la turbulence sur la propagation de flamme en vue d'améliorer les outils de simulation numérique utilisés dans la prédiction des accélérations de flamme.

Références Bibliographiques

1. Coward, H.F. et Jones, G.W., *Limits of flammability of gases and vapor*, 1952, Bureau of mines.
2. Le Chatelier, H., *Estimation of Firedamp by Flammability Limits*, 1891, Ann. Mines. p. 388-395.
3. Van Tiggelen, A., *Oxydations et Combustions* 1968: Institut Français du Pétrole
4. Belles, F.E. et Drell, I.L., *Survey of hydrogen combustion properties* L.F.P. Laboratory, Editor 1958, Lewis Flight Propulsion Laboratory: Cleveland
5. Berman, M. et Cummings, J.C., *Hydrogen behavior in light-water reactors* Nuclear Safety, 1984. **25**.
6. Coward, H.F. et Jones, G.W., *Limit of flammability of gases and vapors* Bureau of mines 1952. **Bulletin 503**.
7. Harris, M.E., Grumer, J., Von Elbe, G., et Lewis, B. *Burning velocities, quenching, and stability data on nonturbulent flames of methane and propane with oxygen and nitrogen: Application of theory of ignition, quenching, and stabilization to flames of propane and air.* in *Symposium on Combustion and Flame, and Explosion Phenomena*. 1949
8. Friedman, R. *The quenching of laminar oxyhydrogen flames by solid surfaces* in *Symposium on Combustion and Flame, and Explosion Phenomena*. 1949
9. Kanury, A.M., ed. *Introduction to Combustion phenomena*. Combustion Science and Technology Book Series, ed. I. Glassman 1994.
10. Van TIGGELEN, A., *Oxydations et Combustions* L'institut Français du pétrole. Vol. 1 1968.
11. STRAHLE, W.C., *An Introduction To Combustion* School of Aerospace Engineering 1993 Atlanta Georgia Institute of Technology
12. B. Lewis et G. Von Elbe, *Combustion, Flames and explosions of Gases* Combustion and Explosive Research 1987, Pittsburg, Pennsylvanie
13. H. Le chatelier et E. Mallard, *Sur la vitesse de propagation de l'inflammation dans les mélanges gazeux explosifs* 1881 impr. Gauthier-Villars
14. *Les Mots de la Combustion*: Groupement français de combustion
15. Zel'dovich, Y.B., *The theory of the propagation of detonation in gaseous systems*. Expt. Theor. Phys. S.S.S.R, 1942. **10** p. 542
16. Von Neumann, J., *Theory of detonation waves* in *Off. Sci Res. Develop* 1942.
17. Doering, W., *Über den detonationvorgang in gasen*. Ann. Phys. Dtsch., 1943. **43** (5): p. 421-436.
18. Zeldovich, B., Barenblatt, G.I., Librovich, V.B., et Makhviladze, G.M., *Mathematical theory of combustion and explosions* 1985. Medium: X; Size: Pages: 618.
19. Denisov, Y., Troshin, N., et Ya, K., *Structure of gaseous detonation in tubes*. Sov. Phys. Tech. Phys, 1960. **5**(4): p. 419-431.
20. Strehlow, R.A., *Transverse waves in detonations: II. structure and spacing in H₂-O₂, C₂H₂-O₂, C₂H₄-O₂ and CH₄-O₂ systems*. AIAA J., 1969. **7**(3): p. 492-496.
21. Westbrook, C.K. et Urtiew, P.A. *Chemical Kinetic prediction of critical parameter in gaseous detonations*. in *International Symposium of Combustion*. University of California.

22. Shepherd, J.E., *Detonation Waves and Propulsion* 1994, Pasadena: Graduate Aeronautical Laboratories California Institute of Technologie.
23. Bjerketvedt, D., Roar Bakke, J.E.V., et Wingerden, K., *Journal of Hazardous Materials*, 1997. **52** (Janvier).
24. Lee, J.H., Knystautas, R., et Chan, C.K., *Turbulent flame propagation in obstacle-filled tubes*. Symposium (International) on Combustion, 1985. **20**(1): p. 1663-1672.
25. Lee, J.H.S., Knystautas, R., Guirao, C., Beneick, W.B., et Shepherd, J.E. *Hydrogen – air detonations, Hydrogen and water reactor safety*. in *International Conference on the Impact of Hydrogen on Water Reactor Safety*. 1982. Albuquerque.
26. Lee, J.H.S., *Dynamic Parameters of Gaseous Detonations*. *Ann. Rev. of Fluid Mech*, 1984. **16**: p. 251 – 276.
27. Desbordes, D., *Aspects stationnaires et transitoires de la detonation dans les gaz : relation avec la structure cellulaire du front*, 1990, Université de Poitiers Poitiers
28. Dupré, G., Knystautas, R., et Lee, J.H.S., *Near-limit propagation of Detonations tubes*. *Prog. In Aeronautics and Astronautics*, 1985. **106**: p. 244-259.
29. Lee, J.H.S., Knystautas, R., et Chan, C.K., in *International Symposium on Combustion* 1984.
30. Berthelot, M. et Vielle, P., *L'onde explosive*. *Annales de Chimie et de Physique*, 1883. **28**: p. 289-332.
31. Mallard, E. et Le Chatelier, H.L., *Combustion des mélanges gazeux explosifs*. *Annales des Mines*, 1883. **8**: p. 274-568.
32. Chapman, W.R. et Wheeler, R.V., *The propagation of flame in mixtures of methane and air*. *Journal of the Chemical Society*, 1926: p. 2139-2147.
33. Ciccarelli, G. et Dorofeev, S., *Flame acceleration and transition to detonation in ducts*. *Progress in Energy and Combustion Science*, 2008. **34**(4): p. 499-550.
34. Tamanini, F. et Chaffee, J.L., *Turbulent vented gas explosions with and without acoustically-induced instabilities*. Symposium (International) on Combustion, 1992. **24**(1): p. 1845-1851.
35. Teodorczyk, A. et Lee, J.H.S., *Detonation attenuation by foams and wire meshes lining the walls*. *Shock Waves*, 1995. **4**(4): p. 225-236.
36. Phylaktou, H.N., Andrews, G.E., et Herath, P., *Fast flame speeds and rates of pressure rise in the initial period of gas explosions in large L/D cylindrical enclosures*. *Loss Prevention Ind.*, 1990. **3**: p. 355-364.
37. Schmidt, E.H.W., Steinicke, H., et Neubert, U., in *International Symposium on Combustion* 1953. p. 658-666.
38. Dunn-Rankine, D., Barr, P.K., et Sawyer, R.F., in *International Symposium on Combustion* 1986. p. 1291-1301.
39. Starke, R. et Roth, P., *An experimental investigation of flame behavior during explosions in cylindrical enclosures with obstacles*. *Combustion and Flame*, 1989. **75**(2): p. 111-121.
40. Leyer, J.C. et Manson, N. in *13rd International Symposium on Combustion*. 1970.
41. Lamoureux, N., *Propriétés explosives de mélanges à base d'hydrocarbures légers et de gaz naturel. Analyse de la propagation des flammes de ces mélanges en présence d'obstacles répétés*, 1995, Thèse de l'université d'Orléans: Orléans.
42. Moen, I.O., Donato, M., Knystautas, R., et Lee, J.H., *Flame acceleration due to turbulence produced by obstacles*. *Combustion and Flame*, 1980. **39**(1): p. 21-32.
43. van Wingerden, C.J.M. et Zeeuwen, J.P., *Flame propagation in the presence of repeated obstacles: Influence of gas reactivity and degree of confinement*. *Journal of Hazardous Materials*, 1983. **8**(2): p. 139-156.

44. Hjertager, B.H., Fuhre, K., et BjÅ, Rkhaug, M., *Concentration Effects on Flame Acceleration by Obstacles in Large-Scale Methane-Air and Propane-Air Vented Explosions*. Combustion Science and Technology, 1988. **62**: p. 239-256.
45. Johansen, C.T. et Ciccarelli, G., *Visualization of the unburned gas flow field ahead of an accelerating flame in an obstructed square channel*. Combustion and Flame, 2009. **156**(2): p. 405-416.
46. Glassman, I., *Combustion* 1996: Academic press.
47. Aung, K.T., Hassan, M.I., et Faeth, G.M., *Effects of pressure and nitrogen dilution on flame/stretch interactions of laminar premixed H₂/O₂/N₂ flames*. Combustion and Flame, 1998. **112**(1-2): p. 1-15.
48. Kwon, S., Tseng, L.K., et Faeth, G.M., *Laminar burning velocities and transition to unstable flames in H₂/O₂/N₂ and C₃H₈/O₂/N₂ mixtures*. Combustion and Flame, 1992. **90**(3-4): p. 230-246.
49. Karpov, V.P., Lipatnikov, A.N., et Wolanski, P., *Finding the markstein number using the measurements of expanding spherical laminar flames*. Combustion and Flame, 1997. **109**(3): p. 436-448.
50. Lamoureux, N., Djebaili-Chaumeix, N., et Paillard, C.E., *Mesures de vitesses fondamentales de combustion par la méthode de la bombe sphérique. Mélanges H₂ – Air – CO₂ – He à température ambiante et H₂ – Air – vapeur d'eau à 80°C*, in *Rapport intermédiaire de contrat* 2001, CNRS.
51. Bradley, D., Cresswell, T.M., et Puttock, J.S., *Flame acceleration due to flame-induced instabilities in large-scale explosions*. Combustion and Flame, 2001. **124**(4): p. 551-559.
52. Lamoureux, N., Djebaili-Chaumeix, N., et Paillard, C.E., *Laminar flame velocity determination for H₂-air-He-CO₂ mixtures using the spherical bomb method*. Experimental Thermal and Fluid Science, 2003. **27**(4): p. 385-393.
53. Andrews, G.E. et D.Bradley, *Determination of Burning Velocities: A Critical Review*. Combustion and Flame, 1972. **18**: p. 133-153.
54. Tseng, L.K., Ismail, M.A., et Faeth, G.M., *Laminar burning velocities and Markstein numbers of hydrocarbon/air flames*. Combustion and Flame, 1993. **95**: p. 410-426.
55. Yamaoka, I. et Tsuji, H., *Determination of burning velocity using counterflow flames*. Symposium (International) on Combustion, 1985. **20**(1): p. 1883-1892.
56. Taylor, S.C. et Smith, D.B., *Comment on "laminar burning velocities and Markstein numbers of hydrocarbon/air flames" by L.-K. Tseng, M.A. Ismail, and G.M. Faeth*. Combustion and Flame, 1995. **102**(4): p. 523-525.
57. Aung, K.T., Tseng, L.K., Ismail, M.A., et Faeth, G.M., *Response to comment by S.C. Taylor and D.B. Smith on "laminar burning velocities and Markstein numbers of hydrocarbon/air flames"*. Combustion and Flame, 1995. **102**(4): p. 526-530.
58. Gu, X.J., Haq, M.Z., Lawes, M., et Woolley, R., *Laminar burning velocity and Markstein lengths of methane-air mixtures*. Combustion and Flame, 2000. **121**(1-2): p. 41-58.
59. Halter, F., Chauveau, C., Djebaili-Chaumeix, N., et Gökalp, I., *Characterization of the effects of pressure and hydrogen concentration on laminar burning velocities of methane-hydrogen-air mixtures*. Proceedings of the Combustion Institute, 2005. **30**(1): p. 201-208.
60. Bouvet, N. *Étude des Vitesses Fondamentales des Flamme Laminaires Prémélangées: Application aux Mélanges Méthane/Air et Syngas (H₂/CO)/Air*. 2009.
61. Elia, M., Ulinski, M., et Metghalchi, M., *Laminar Burning Velocity of Methane--Air--Diluent Mixtures*. Journal of Engineering for Gas Turbines and Power, 2001. **123**(1): p. 190-196.

62. Hassan, M.I., Aung, K.T., et Faeth, G.M., *Measured and predicted properties of laminar premixed methane/air flames at various pressures*. Combustion and Flame, 1998. **115**(4): p. 539-550.
63. Liao, S.Y., Jiang, D.M., et Cheng, Q., *Determination of laminar burning velocities for natural gas*. Fuel, 2004. **83**(9): p. 1247-1250.
64. Qin, X. et Ju, Y., *Measurements of burning velocities of dimethyl ether and air premixed flames at elevated pressures*. Proceedings of the Combustion Institute, 2005. **30**(1): p. 233-240.
65. Rozenchan, G., Zhu, D.L., Law, C.K., et Tse, S.D., *Outward propagation, burning velocities, and chemical effects of methane flames up to 60 ATM*. Proceedings of the Combustion Institute, 2002. **29**(2): p. 1461-1470.
66. Tanoue, K., Shimada, F., et Hamatake, T., *The Effects of Flame Stretch on Outwardly Propagating Flames*. JSME International Journal Series B Fluids and Thermal Engineering, 2003. **46**(3): p. 416-424.
67. Liu, D.D.S. et MacFarlane, R., *Laminar burning velocities of hydrogen-air and hydrogen-air steam flames*. Combustion and Flame, 1983. **49**: p. 59-71.
68. Koroll, G.W., Kumar, R.K., et Bowles, E.M., *Burning velocities of hydrogen-air mixtures*. Combustion and Flame, 1993. **94**(3): p. 330-340.
69. Aung, K.T., Hassan, M.I., et Faeth, G.M., *Flame stretch interactions of laminar premixed hydrogen/air flames at normal temperature and pressure*. Combustion and Flame, 1997. **109**(1-2): p. 1-24.
70. Scholte, T.G. et Vaags, P.B., *Burning velocities of mixtures of hydrogen, carbon monoxide and methane with air*. Combustion and Flame, 1959. **3**: p. 511-524.
71. Milton, B.E. et Keck, J.C., *Laminar burning velocities in stoichiometric hydrogen and hydrogen/hydrocarbon gas mixtures*. Combustion and Flame, 1984. **58**(1): p. 13-22.
72. Yu, G., Law, C.K., et Wu, C.K., *Laminar flame speeds of hydrocarbon + air mixtures with hydrogen addition*. Combustion and Flame, 1986. **63**(3): p. 339-347.
73. Law, C.K. et Kwon, O.C., *Effects of hydrocarbon substitution on atmospheric hydrogen/air flame propagation*. International Journal of Hydrogen Energy, 2004. **29**(8): p. 867-879.
74. Ilbas, M., Crayford, A.P., Yilmaz, Ã.Â., Bowen, P.J., et Syred, N., *Laminar-burning velocities of hydrogen/air and hydrogen/methane/air mixtures: An experimental study*. International Journal of Hydrogen Energy, 2006. **31**(12): p. 1768-1779.
75. McLean, I.C., Smith, D.B., et Taylor, S.C., *The use of carbon monoxide/hydrogen burning velocities to examine the rate of the CO+OH reaction*. Symposium (International) on Combustion, 1994. **25**(1): p. 749-757.
76. Hassan, M.I., Aung, K.T., et Faeth, G.M., *Properties of Laminar Premixed CO/H/Air Flames at Various Pressures*. Journal of Propulsion and Power, 1997. **13**(2): p. 239-245.
77. Sun, H., Yang, S.I., Jomaas, G., et Law, C.K., *High-pressure laminar flame speeds and kinetic modeling of carbon monoxide/hydrogen combustion*. Proceedings of the Combustion Institute, 2007. **31**(1): p. 439-446.
78. Burke, M.P., Quin, X., Ju, Y., et Dryer, F.L., *Measurements of Hydrogen Syngas Flame Speeds at Elevated Pressures*, in *5th US Combustion Meeting 2007*: University of California, San Diego.
79. Chaos, M. et Dryer, F.L., *Syngas Combustion Kinetics and Applications*. Combustion Science and Technology, 2008. **180**(6): p. 1053-1053.
80. Li, J., Zhao, Z., Kazakov, A., Chaos, M., Dryer, F.L., et Jr, J.J.S., *A comprehensive kinetic mechanism for CO, CH₂O, and CH₃OH combustion*. International Journal of Chemical Kinetics, 2007. **39**(3): p. 109-136.

81. Rumminger, M.D., Reinelt, D., Babushok, V., et Linteris, G.T., *Numerical study of the inhibition of premixed and diffusion flames by iron pentacarbonyl*. Combustion and Flame, 1999. **116**(1-2): p. 207-219.
82. Dong, C., Zhou, Q., Zhao, Q., Zhang, Y., Xu, T., et Hui, S., *Experimental study on the laminar flame speed of hydrogen/carbon monoxide/air mixtures*. Fuel, 2009. **88**(10): p. 1858-1863
83. Natarajan, J., Kochar, Y., Lieuwen, T., et Seitzman, J., *Pressure and preheat dependence of laminar flame speeds of H₂/CO/CO₂/O₂/He mixtures*. Proceedings of the Combustion Institute, 2009. **32**(1): p. 1261-1268.
84. Peraldi, O., Knystaustas, R., et Lee, J.H.S., *Criteria for transition to detonation in tubes*. Twenty-first symposium (International) on combustion, 1986: p. 1629-1637.
85. Kuznetsov, M., Alekseev, V., Yankin, Y., et Dorofeev, S., *Slow and fast deflagrations in Hydrocarbon-air mixtures*. Combustion Science and Technology, 2002. **174**: p. 157-172.
86. Kuznetsov, M., Ciccarelli, G., Dorofeev, S., Alekseev, V., Yankin, Y., et Kim, T.H., *DDT in methane-air mixtures*. Shock Waves, 2002. **12**(3): p. 215-220
87. Kuznetsov, M., Alekseev, V., Yankin, Y., et Dorofeev, S., *Slow and fast deflagrations in Hydrocarbon-air mixtures*. Combustion Science and Technology, 2002. **174**(5): p. 157-172.
88. Knystaustas, R., Lee, J.H.S., Shepherd, J.E., et Teodorczyk, A., *Flame acceleration and transition to detonation in benzene-air mixtures*. Combustion and Flame, 1998. **115**(3): p. 424-436.
89. Ciccarelli, G., Fowler, C., et Bardon, M., *Effect of obstacle size and spacing on the initial stage of flame acceleration in a rough tube*. Shock Waves, 2005. **14**(3): p. 161-166.
90. Kuznetsov, M., Alekseev, V., Matsukov, I., Rohatgi, U., Jo, J., et Kim, T., *Effect of pressure and temperature on flame acceleration and DDT limits for methane-air mixtures*. 2005.
91. Beauvais, R., Mayinger, F., et Strube, G., *Turbulent flame acceleration-Mechanism and significance for safety considerations*. International Journal of Hydrogen Energy, 1994. **19**: p. 701-708.
92. Ciccarelli, G., Boccio, J.L., Ginsberg, T., Finfrock, C., Gerlach, L., Tagawa, H., et Malliakos, A., *The effect of initial temperature on flame acceleration and deflagration to detonation transition phenomenon*, 1998, U.S. Nuclear Regulatory Commission and Nuclear Power Engineering Corporation NUREG/CR-6509 BNL-NUREG-52515.
93. Dorofeev, S.B., Kuznetsov, M.S., Alekseev, V.I., Efimenko, A.A., Bezmelnitsyn, A.V., Yankin, Y.G., et Breitung, W., *Effect of scale and mixture properties on behavior of turbulent flames in obstructed areas*, 1999, Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA-6268.
94. Dorofeev, S.B., Kuznetsov, M.S., Alekseev, V.I., Efimenko, A.A., et Breitung, W., *Evaluation of limits for effective flame acceleration in hydrogen mixtures*. Journal of Loss Prevention in the Process Industries, 2001. **14**(6): p. 583-589.
95. Malet, F., *Étude expérimentale et numérique de la propagation de flamme prémélangées turbulentes dans une atmosphère pauvre en hydrogène et humide*, 2005, Université d'Orléans.
96. Bradley, Gaskell, P.H., et Gu, X.J., *Burning velocities, markstein lengths, and flame quenching for spherical methane-air flames: A computational study*. Combustion and Flame, 1996. **104**(1-2): p. 176-198.
97. Chen, Z. et Y.Ju. *The effect of flow compression on the determination of flame speeds using propagating spherical flames at normal and high pressures*. 2007.

98. Landau, L., *On the theory of slow combustion*. Acta physicochimica, 1944. **19**: p. 77-85.
99. Markstein, *Nonsteady Flame Propagation*, ed. P. Press 1964.
100. Van den Schoor, F., Hermanns, R.T.E., van Oijen, J.A., Verplaetsen, F., et de Goey, L.P.H., *Comparison and evaluation of methods for the determination of flammability limits, applied to methane/hydrogen/air mixtures*. Journal of Hazardous Materials, 2008. **150**(3): p. 573-581.
101. Wierzba, I. et Ale, B.B., *Rich flammability limits of fuel mixtures involving hydrogen at elevated temperatures*. International Journal of Hydrogen Energy, 2000. **25**(1): p. 75-80.
102. Wierzba, I. et Kilchyk, V., *Flammability limits of hydrogen-carbon monoxide mixtures at moderately elevated temperatures*. International Journal of Hydrogen Energy, 2001. **26**(6): p. 639-643.
103. Tahtouh, T., Halter, F., et Mounaïm-Rousselle, C., *Measurement of laminar burning speeds and Markstein lengths using a novel methodology*. Combustion and Flame, 2009. **156**(9): p. 1735-1743.
104. Coppens, F.H.V., De Ruyck, J., et Konnov, A.A., *Effects of hydrogen enrichment on adiabatic burning velocity and NO formation in methane + air flames*. Experimental Thermal and Fluid Science, 2007. **31**(5): p. 437-444.
105. G. P. Smith, David M. Golden, Michael Frenklach, Nigel W. Moriarty, Boris Eiteneer, Mikhail Goldenberg, C. Thomas Bowman, Ronald K. Hanson, Soonho Song, William C. Gardiner, Jr. V. Lissianski, et Zhiwei Qin, *GRI 3.0*. http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/.
106. Hai Wang, X.Y., Ameya V. Joshi, Scott G. Davis, Alexander Laskin, Fokion Egolfopoulos and Chung K. Law, *USC Mech Version II. High-Temperature Combustion Reaction Model of H₂/CO/C₁-C₄ Compounds* http://ignis.usc.edu/USC_Mech_II.htm, May 2007.
107. Petersen, E.L., Kalitan, D.M., Simmons, S., Bourque, G., Curran, H.J., et Simmie, J.M., *Methane/propane oxidation at high pressures: Experimental and detailed chemical kinetic modeling*. Proceedings of the Combustion Institute, 2007. **31**(1): p. 447-454.
108. Mallard, E. et Le Chatelier, H., Archive des mines, 1883. **4**: p. 379.
109. Brown, M.J., McLean, I.C., Smith, D.B., et Taylor, S.C., *Markstein lengths of CO/H₂/air flames, using expanding spherical flames*. Symposium (International) on Combustion, 1996. **26**(1): p. 875-881.
110. R. J; Kee, F.M Rupley, J.A. Miller, Chemkin-II: A Fortran Chemical Kinetics Package for the Analysis of Gas Phase Chemical Kinetics, SAND89-8009B

Kodjo COUDORO

Etude expérimentale et modélisation de la propagation de flamme en milieu confiné ou semi confiné

Cette étude s'inscrit dans le cadre de l'évaluation du risque d'accélération de flamme en situation accidentelle. La méthodologie développée dans le cadre de l'évaluation du risque hydrogène dans l'industrie nucléaire a permis de proposer un critère permettant d'évaluer le risque d'accélération des flammes de prémélange hydrogène/air/diluants, sur la base des propriétés du mélange. L'objectif de cette étude est l'acquisition de données fondamentales relatives aux mélanges gaz naturel/air et gaz de synthèse/air puis l'extension de la méthodologie appliquée aux mélanges hydrogène/air à ces mélanges. Ainsi, trois mélanges gazeux ont été choisis et ont fait l'objet de cette étude. Il s'agit du G27 (82%CH₄/18%N₂), du G222 (77%CH₄/23%H₂), et du H₂/CO (50%H₂/50%CO). Au cours de ce travail les limites d'inflammabilités des mélanges ont été déterminées pour une température initiale de 300 K et une pression de 1 et 2 bar. Les vitesses fondamentales de flamme et les longueurs de Markstein ont été mesurées à différentes températures initiales (300, 330 et 360 K) et à deux pressions initiales (1 et 2 bar) pour chacun des mélanges. Une modélisation cinétique de la vitesse de flamme a été réalisée et a permis l'évaluation de l'énergie d'activation globale sur la base du modèle cinétique présentant le meilleur accord avec l'expérience. La propension des mélanges à s'accélérer fortement en présence d'obstacles a ensuite été caractérisée au cours de l'étude de l'accélération de flamme. Cette étude de l'accélération de flamme a permis de mettre en évidence que différents critères d'accélération s'appliquent selon que la flamme soit stable ou pas. Un critère permettant de prédire l'accélération de flamme a été proposé dans les deux cas.

Mots clés : combustion, sûreté industrielle, accélération de flamme, vitesse fondamentale de flamme, limite d'inflammabilité

Experimental study and modeling of flame propagation in confined or semi confined areas

The context of the current study is the assessment of the occurrence of flame acceleration in accidental situations. The methodology developed for the assessment of hydrogen hazard in the nuclear industry led to the definition of a criterion for the prediction of the acceleration potential of a hydrogen/air/dilutant mixture based on its properties. This study aims to extend this methodology to gaseous mixtures that can be encountered in the classical industry. Therefore, three mixtures were chosen: the first two are representatives of a natural gas/air mixture: G27 (82%CH₄/18%N₂) and G222 (77%CH₄/23%H₂). The third one is a H₂/CO (50%H₂/50%CO) mixture and represents the Syngas. During this work, flammability limits were measured at 300 K and two initial pressures (1 and 2 bar) for each mixture. Fundamental flame speeds and Markstein lengths were also measured at three initial temperatures (300, 330, 360 K) and 2 initial pressures (1 and 2 bar) for each mixtures. A kinetic modeling was performed based on three detailed kinetic models and allowed the calculation of the global activation energy on the basis of the kinetic model which showed the best agreement with the experimental data. The acceleration potential for each mixture in presence of obstacles has then been investigated. It was found that different criteria were to be applied depending on whether the flame is stable or not. A predicting criterion was proposed in both case.

Keywords: combustion, industrial safety, flame acceleration, fundamental flame speed, flammability limits