



UNIVERSITÉ D'ORLÉANS



*ÉCOLE DOCTORALE : ÉNERGIE - MATÉRIAUX - SCIENCES DE
LA TERRE ET DE L'UNIVERS*

Institut de Combustion, Aérodynamique, Réactivité et Environnement



THÈSE présentée par :
Jérémy SABARD



Soutenue le 6 Septembre 2013

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

Discipline / Spécialité : Chimie / Cinétique chimique

**Étude de l'explosion de mélanges diphasiques :
hydrogène et poussières**

DIRECTION DE THÈSE :

Nabiha CHAUMEIX

Directrice de Recherche au CNRS d'Orléans / Directrice de thèse

Laurent CATOIRE

Professeur à l'ENSTA Paris-Tech / Co-directeur de thèse

JURY DE THÈSE :

Claude-Et. PAILLARD

Professeur émérite à l'université d'Orléans / Président du Jury

Marc BELLENOUE

Professeur à l'ENSMA / Rapporteur

Mikhail KUZNETSOV

Chercheur au Karlsruhe Research Center / Rapporteur

Nabiha CHAUMEIX

Directrice de Recherche au CNRS d'Orléans / Directrice de thèse

Laurent CATOIRE

Professeur à l'ENSTA Paris-Tech / Co-directeur de thèse

Ahmed BENTAIB

Chercheur à l'IRSN / Tuteur de thèse

REMERCIEMENTS

J'aimerais commencer ces quelques lignes en rendant hommage à mes différents encadrants, qui m'ont aidé, soutenu et fait progresser durant cette thèse. Je commencerai par ma directrice de thèse, Nabiha Chaumeix, pour tout ce qu'elle a et m'a apporté au cours de la thèse tant sur le plan scientifique que humain. Je remercie tout aussi chaleureusement mon co-directeur de thèse, Laurent Catoire, pour tous ses conseils et son soutien. Mille grands mercis très sincères également à Ahmed Bentaib pour m'avoir suivi et soutenu pendant près de 4 ans avec attention. Tes nombreux conseils et explications, concernant notamment le fonctionnement d'ITER, m'auront été très utiles tout au long de la thèse. Merci à vous trois pour tout ce que vous avez fait pour moi pendant la thèse. J'ai pour vous la plus grande admiration et le plus grand respect qui soient.

Je remercie également vivement M. Caroli, Nicolas et Alexandre de mon équipe à l'IRSN pour avoir suivi ce travail.

J'exprime mon immense gratitude à M Paillard, professeur émérite à l'université d'Orléans, qui m'a fait l'honneur d'accepter de diriger mon jury de thèse. Par la même, je remercie chaleureusement le Pr. Bellenoue, professeur à l'ENSMA et le Dr. Kuznetsov, chercheur au Karlsruhe Research Center, qui ont accepté de juger mon travail de thèse. Je vous remercie tous les trois pour avoir émis des critiques constructives sur la thèse qui me permettent d'améliorer la vision que j'ai de mon travail.

Je tiens également à remercier vivement toutes les personnes du laboratoire ICARE, son directeur M Gökalp, les permanents, et en particulier le personnel de l'administration qui m'ont permis de me dépatouiller des carcans administratifs. Un grand merci à Murielle, Corinne, Marine, Maryline et surtout mon camarade Vincent, connaisseur émérite du sport en général mais malheureusement supporter d'un club en bois. Je n'oublie pas également Géraldine à l'IRSN, pour son aide précieuse pendant trois ans et demi mais également pour sa sympathie et sa bonne humeur en toutes circonstances.

Une thèse expérimentale se passe bien lorsque de bons bricoleurs, experts en électronique, mécanique, informatique, etc. donnent des coups de mains et des conseils avisés. Par ces quelques mots, que soient remerciés ici Jacques, Fabrice, Nicolas, Alain, Anne, Benoît, Laurent, Stéphane et Eric (l'homme qui perce des trous). Merci à tous pour votre aide. Je fais également une grande dédicace à Mahmoud, l'homme-laser du laboratoire, pour son aide et pour m'avoir beaucoup appris sur les systèmes optiques et le fonctionnement des lasers.

Maintenant, j'aimerais adresser un méga BIG-UP à tous mes collègues de l'équipe OC. En commençant, par mes deux camarades de bureaux, qui se sont succédés l'un à l'autre en face de moi. Commençons par le plus ancien, Kodjo : « Mon ami ! Que de bons moments passés ensemble. Merci pour ton soutien du tout premier jusqu'au tout dernier jour de cette thèse. Cependant, malgré toute ta véhémence et sans faire preuve de pusillanimité, je pense

sincèrement que la transmission écrite des connaissances, malgré ses défauts j'en conviens, conduit à un maintien plus pérenne des savoirs que la transmission orale ». A Jules : « Merci pour tout, cher camarade à la mine patibulaire (tous ces termes sont choisis avec attention), de ton soutien à tes programmes Matlab en passant par ta geekitude à toute épreuve. Cette année passée avec toi dans le bureau A100 fut pleine de bons souvenirs ». Je remercie également mon pote Yao-Chung, venu de l'autre bout du monde, pour m'aider à faire exploser des poussières. Xiè Xiè, Wǒ De Péng Yǒu. I have learned a lot of things with you. Despite the long distance between us, I sincerely hope that we could meet and share good times together again. J'adresse un énorme merci à tous les autres membres qui ont composé l'équipe de choc pendant ma thèse : Joffrey, Damien, Florian, Andréa, Elisa, Marie-Michelle, Homan, Rémy, Thomas et Delphine. Merci à vous tous pour tout. Votre sympathie et camaraderie furent sans égales. Vos amitiés à tous feront partie des choses que j'ai vécues pendant la thèse que je n'oublierai pas.

A tous les membres du cortège de la tablée du midi, je vous adresse un merci des plus sincères. J'espère que nos nombreux débats sur tout et n'importe quoi vous auront autant fait marrer que moi. Que cela fait du bien de se requinquer à cette grande table tout le temps joyeuse et conviviale. Un merci tout particulier, à Julien, otaku qui a affronté maintes et maintes fois les plaines de Bordeciel, à Amir dit Brandao car comme tout le monde le sait, j'ai pas touchéao et à Yohann dit Prépré qui attend le retour de son idole avec impatience. Merci à Mathieu, Yann, Romain, Ludovic, Charles, Florent, Nazim, Alexis, Nicolas, Mehmet et à tous ceux que j'oublie en écrivant ces mots. J'ai une pensée particulière pour mes collègues doctorantes du laboratoire, en particulier Maria et Roya, qui ne furent pas très nombreuses mais qui furent toutes très sympathiques.

A tous mes amis avec qui j'ai affronté les multiples années de cours à la faculté de Bourges puis d'Orléans : Geoffrey, JB, Fabien, Davy. Merci à vous.

Les remerciements du cœur s'adressent à Céline, à mes parents et à mon frère qui m'ont supporté et apporté leur soutien sans faille jour après jour tout au long de la thèse et de mes études. Sans vous, je ne serais certainement pas là à vous remercier de tout ce que vous avez fait pour moi. Merci du fond du cœur pour tout.

Pour terminer, je paraphraserai un des scientifiques (aux oreilles pointues) les plus reconnus à travers le monde en vous souhaitant à tous : **LONGUE VIE ET PROSPÉRITÉ!**

SOMMAIRE

NOMENCLATURE	10
LISTE DES FIGURES	14
LISTE DES TABLEAUX	26
CONTEXTE ET OBJECTIFS DE L'ETUDE	30
CHAPITRE 1 : ÉTAT DE L'ART	36
1 Étude bibliographique	37
1.1 Rappels sur les flammes.....	37
1.1.1 Généralités sur les flammes	37
1.1.1.1 Définition	37
1.1.1.2 Différents types de flamme : prémélange et diffusion	37
1.1.1.3 Différents types d'écoulements.....	38
1.1.1.4 Modes de propagation.....	39
1.1.2 Conditions d'existence et de propagation d'une flamme	41
1.1.2.1 Les limites d'inflammabilité	41
1.1.2.1.1 Influence de la direction de propagation.....	42
1.1.2.1.2 Influence de la température et de la pression	43
1.1.2.1.3 Influence de la dilution	45
1.1.2.2 Energies minimales d'inflammation	47
1.1.2.3 Distances de coincement.....	48
1.1.3 Les vitesses fondamentales de flamme	49
1.1.3.1 La théorie de Mallard et le Châtelier.....	50
1.1.3.2 La théorie de Zel'dovich, Frank-Kamenetskii et Semenov.....	52
1.1.3.3 Energie d'activation et nombre de Zel'dovich.....	53
1.1.3.4 Epaisseur d'une flamme laminaire.....	54
1.2 Etudes des vitesses de flamme des mélanges gazeux à base d'hydrogène	56
1.2.1 Influence de la richesse	57
1.2.2 Influence de la température initiale	60
1.2.3 Influence de la pression initiale.....	64
1.2.4 Influence de la dilution.....	67
1.2.5 Paramètres d'explosivité de ces mélanges	70
1.2.6 Conclusion	73
1.3 Etudes sur les poussières et leurs explosions	74
1.3.1 Définitions.....	74
1.3.1.1 Poussières.....	74
1.3.1.2 Explosions de poussières	74
1.3.2 Pentagone de l'explosion de poussières	74
1.3.3 Classification des poussières.....	75
1.3.4 Différence entre les explosions de gaz et de poussières.....	77
1.3.5 Méthodes.....	78
1.3.5.1 Pression de combustion.....	78
1.3.5.2 Le tube de Hartmann.....	80
1.3.5.3 Les sphères de 20 L et de 1 m ³	81

1.3.5.3.1	La sphère de 20 L.....	82
1.3.5.3.2	L'enceinte de 1 m ³	85
1.3.5.4	Résultats expérimentaux	86
1.3.6	Paramètres influençant les explosions de poussières	90
1.3.6.1	La concentration en particules	90
1.3.6.2	La taille des particules.....	91
1.3.6.3	La composition de la particule	92
1.3.6.4	La concentration en oxydant	93
1.3.6.5	La température initiale	96
1.3.6.6	La pression initiale	97
1.3.6.7	La turbulence.....	99
1.3.6.8	L'ajout de gaz inflammables.....	100
1.3.6.9	L'ajout de poussières inertes.....	101
1.4	Etudes sur les mélanges H ₂ /C(graphite)/W/O ₂ /N ₂	103
1.4.1	Le graphite	103
1.4.1.1	Mélanges C(graphite)/O ₂ /N ₂	103
1.4.1.2	Mélanges H ₂ /C(graphite)/O ₂ /N ₂	105
1.4.2	Le tungstène	111
1.4.2.1	Mélanges W/O ₂ /N ₂	111
1.4.2.2	Mélanges H ₂ /W/O ₂ /N ₂	112
1.4.3	Mélanges C(graphite)/W/O ₂ /N ₂	115
1.4.4	Conclusion	117
1.5	Conclusion	117

CHAPITRE 2 : DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET METHODOLOGIE 119

2	Dispositifs expérimentaux et méthodologie.....	120
2.1	La bombe sphérique	120
2.1.1	Principe de la bombe sphérique	120
2.1.2	Description des enceintes utilisées.....	121
2.1.2.1	Enceinte de 8 L	121
2.1.2.2	Enceinte de 56 L	121
2.1.3	Préparation des mélanges.....	123
2.1.3.1	Méthode des pressions partielles.....	123
2.1.3.2	Méthode des débitmètres	124
2.1.3.2.1	Chromatographe Phase Gazeuse.....	124
2.1.3.2.2	Etalonnage du CPG.....	124
2.1.3.2.3	Mélanges étudiés en fonction des débits demandés	125
2.1.4	Inflammation des mélanges.....	126
2.1.4.1	Inflammation par étincelle électrique.....	126
2.1.4.2	Inflammation par claquage laser	127
2.1.5	Description des systèmes des diagnostics associés aux enceintes	129
2.1.5.1	Système d'imagerie rapide.....	129
2.1.5.1.1	Source lumineuse	129
2.1.5.1.2	Montage optique	130
2.1.5.2	Système de détection piézo-électrique	132
2.1.5.3	Système de mesure de l'énergie d'inflammation	133

2.2	Méthodologie	134
2.2.1	Détermination de la vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul.	134
2.2.1.1	Méthode linéaire	134
2.2.1.2	Méthode non-linéaire	139
2.2.2	Évaluation de l'erreur sur la détermination de la vitesse de flamme en bombe sphérique	140
2.2.3	Détermination des paramètres d'explosivité des mélanges diphasiques.....	142
2.2.3.1	Le temps de combustion (t_C).....	142
2.2.3.2	La pression maximale de combustion (P_{MAX})	143
2.2.3.3	L'indice de déflagration (K_G ou K_{ST}).....	143
2.2.4	Détermination de l'énergie d'activation et du nombre de Zel'dovich	144
2.3	Diagnostics associés à la caractérisation d'un spray de poussières	146
2.3.1	Les poussières étudiées	146
2.3.2	La granulométrie laser à diffraction.....	147
2.3.2.1	Principe	147
2.3.2.2	Description de la taille des particules.....	148
2.3.2.3	Dispositif expérimental	149
2.3.2.3.1	Description du granulomètre.....	149
2.3.2.3.2	Conditions expérimentales.....	150
2.3.2.4	Résultats.....	151
2.3.2.4.1	Caractérisation des particules de graphite.....	152
2.3.2.4.2	Caractérisation des particules de tungstène	153
2.3.3	Mesures des concentrations des poussières par extinction laser	154
2.3.3.1	Principe	154
2.3.3.2	Dispositif expérimental.....	155
2.3.3.2.1	Caractéristiques du laser	155
2.3.3.2.2	Protocole expérimental	156
2.3.3.3	Résultats.....	157
2.4	Conditions expérimentales.....	159
2.5	Modélisation	160
2.5.1	Logiciels de simulation	160
2.5.2	Choix des mécanismes cinétiques détaillés.....	161
2.6	Conclusion	161

CHAPITRE 3 : ETUDES DES MELANGES $H_2/O_2/N_2$ 162

3	Étude des mélanges monophasiques $H_2/O_2/N_2$.....	163
3.1	Régimes de flamme.....	163
3.1.1	Flammes ascendantes	163
3.1.2	Flammes sphériques lisses devenant cellulaires.....	164
3.1.3	Flammes sphériques lisses	166
3.2	Vitesses fondamentales de flamme laminaire.....	168
3.2.1	Comparaison méthode linéaire - méthode non-linéaire	168
3.2.1.1	Vitesses de flamme	169
3.2.1.2	Longueur de Markstein	171
3.2.1.3	Choix de la méthode	172
3.2.2	Vitesses de flamme : valeurs expérimentales.....	173
3.2.2.1	Pour une teneur en H_2 constante	173

3.2.2.2	Pour un rapport N_2/O_2 constant.....	175
3.2.3	Longueur de Markstein	177
3.2.3.1	Pour une teneur en H_2 constante	177
3.2.3.2	Pour un rapport N_2/O_2 constant.....	179
3.2.4	Comparaison expériences-simulations.....	180
3.2.4.1	Pour une teneur en H_2 constante	181
3.2.4.2	Pour un rapport N_2/O_2 constant.....	184
3.2.4.3	Choix du mécanisme cinétique et corrélation des vitesses de flamme ...	188
3.2.5	Evaluation des énergies d'activation et nombre de Zel'dovich	191
3.2.5.1	Énergies d'activation.....	191
3.2.5.1.1	Pour une teneur en H_2 constante	191
3.2.5.1.2	Corrélation des énergies d'activation.....	192
3.2.5.2	Nombre de Zel'dovich	194
3.2.5.2.1	Pour une teneur en H_2 constante	194
3.2.5.2.2	Corrélation des nombres de Zel'dovich.....	196
3.3	Détermination des paramètres d'explosivité.....	197
3.3.1	Le temps de combustion.....	197
3.3.1.1	Pour une teneur en H_2 constante	197
3.3.1.2	Pour un rapport N_2/O_2 constant.....	200
3.3.2	La pression maximale de combustion	202
3.3.2.1	Pour une teneur en H_2 constante	202
3.3.2.2	Pour un rapport N_2/O_2 constant.....	207
3.3.3	L'indice de déflagration	209
3.3.3.1	Pour une teneur en H_2 constante	209
3.3.3.2	Pour un rapport N_2/O_2 constant.....	212
3.4	Conclusion	214

CHAPITRE 4 : COMBUSTION DES MÉLANGES DIPHASIQUES 216

4	Combustion des mélanges diphasiques	217
4.1	Mélanges $H_2/C(\text{graphite})/O_2/N_2$	217
4.1.1	Caractérisation des produits de combustion.....	217
4.1.1.1	Composition théorique des produits de combustion	217
4.1.1.2	Analyse expérimentale des gaz de combustion et calcul de la masse de graphite brûlé	219
4.1.2	Évolution de la pression dans l'enceinte	225
4.1.3	Enregistrements vidéo	234
4.1.4	Pression maximale de combustion	237
4.1.5	Temps de combustion	242
4.1.6	Indice d'explosivité.....	246
4.2	Mélanges $H_2/\text{Tungstène}/O_2/N_2$	250
4.2.1	Caractérisation des produits de combustion.....	250
4.2.1.1	Composition théorique des produits de combustion	250
4.2.1.2	Analyse expérimentale des gaz de combustion.....	253
4.2.2	Évolution de la pression dans l'enceinte	255
4.2.3	Enregistrements vidéo	261
4.2.4	Analyse des particules.....	264
4.2.4.1	Caractéristiques des instruments utilisés :.....	264
4.2.4.2	Analyse des particules pour les mélanges ave 10 % mol de H_2	265

4.2.4.3	Analyse des particules pour les mélanges avec 30 % mol de H ₂	266
4.2.5	Pression maximale de combustion	268
4.2.6	Temps maximal de combustion	271
4.2.7	Indice d'explosivité.....	273
4.3	Conclusion	275
CONCLUSION.....		277
RÉFÉRENCES		281
ANNEXES.....		I
ANNEXE A : Caractéristiques thermocinétiques des mélanges H₂/O₂/N₂ étudiés au cours de ce travail		II
ANNEXE B : Comparaison entre les méthodes linéaires et non-linéaires de détermination de la vitesse de flamme.....		VII
ANNEXE C : Comparaison entre les vitesses de flamme obtenues expérimentalement et celles simulées		IX
ANNEXE D : Évaluation des énergies d'activation et des nombres de Zel'dovich des mélanges H₂/O₂/N₂ pour des rapports N₂/O₂ constants.....		XIV
ANNEXE E : Caractéristiques thermocinétiques des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite.....		XX
ANNEXE F : Paramètres d'explosivité des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite... 		XXII
ANNEXE G : Caractéristiques thermocinétiques des mélanges H₂/O₂/N₂/Tungstène.....		XXXIII

NOMENCLATURE

Les unités exprimées ici sont dans l'unité de référence, par exemple la seconde (s). Dans certains cas, les valeurs présentées ici, peuvent être exprimées par des multiples ou des sous-multiples, par exemple la milliseconde (ms).

ACRONYMES

CPG	Chromatographie en Phase Gazeuse
DEMO	DEMONstrating power plant
ITER	International Thermonuclear Experimental Reactor
LOCA	Loss-Of-Coolant-Accident
LOVA	Loss-Of-Vacuum-Accident
SF2	Spherical Flame Facility (Bombe sphérique de 56 L)
VV	Chambre à vide - Vacuum Vessel (en anglais)

NOMBRES ADIMENSIONNELS

β	Nombre de Zel'dovich
Le	Nombre de Lewis
Pr	Nombre de Prandtl
Re	Nombre de Reynolds
Sc	Nombre de Schmidt

LETTRES LATINES

A	Absorbance
A_f	Surface du front de flamme (m^2)
C	Concentration en oxygène dans le milieu (% vol)
[C]	Concentration molaire ($mol.m^{-3}$ ou $mol.L^{-1}$)
CLO	Concentration Limite en Oxygène (% mol)

CME	Concentration Minimale Explosible (g.m^{-3})
C_p	Capacité calorifique à pression constante ($\text{J.K}^{-1}.\text{mol}^{-1}$)
$\overline{C_v}$	Capacité calorifique à volume constant moyennée ($\text{J.K}^{-1}.\text{mol}^{-1}$)
d_c	Distance de coincement (mm)
D_i	Diamètre moyen de la classe i (m)
d_p	Diamètre d'une particule (m)
$(dP/dt)_{MAX}$	Taux maximal de montée en pression (en Pa.s^{-1})
d_q	Diamètre de coincement (mm)
E_A	Energie d'activation (J.mol^{-1})
EMI	Energie Minimale d'Inflammation (J)
h	Enthalpie massique (J.g^{-1})
$\Delta H_C :$	Variation d'enthalpie de la réaction de combustion (J.mol^{-1})
I	Intensité du faisceau (Volt)
K	Etirement (s^{-1})
K_G	Indice de déflagration pour des mélanges gazeux (en Pa.m.s^{-1})
K_{ST}	Indice de déflagration pour des mélanges diphasiques (en Pa.m.s^{-1})
l	Longueur d'un échantillon (m)
L_B	Longueur de Markstein (m)
L_i	Limite d'inflammabilité (inférieure ou supérieure) du composé i
LII	Limite Inférieure d'Inflammabilité (%mol)
LSI	Limite Supérieure d'Inflammabilité (%mol)
N_i	Nombre de particules de la taille i
P	Pression (Pa)
P_{AICC}	Pression Adiabatique de Combustion Complète (Pa)
P_{EX}	Maximum de pression obtenu expérimentalement (bar)
P_{INI}	Pression initiale (Pa)
P_m	Surpression maximale (Pa)
P_{MAX}	Pression maximale de combustion (Pa)

R	Constante des gaz parfaits ($J.K^{-1}.mol^{-1}$)
R_C	Rayon de courbure de la flamme (m)
R_E	Rayon de l'enceinte (m^3)
R_f	Rayon de la flamme (m)
S_L	Vitesse fondamentale de flamme ($m.s^{-1}$)
S_L°	Vitesse fondamentale de flamme à étirement nul ($m.s^{-1}$)
SMD	Sauter Mean Diameter (Diamètre moyen de Sauter) (m)
TAI	Température d'Auto-Inflammation (K)
T	Transmittance
t	Temps (s)
T_B	Température des gaz brûlés (K)
t_C	Temps de combustion (s)
T_i, T_{INI}	Température initiale (K)
T_{infl}	Température d'inflammation (K)
T_f	Température de flamme (K)
T_0	Température des gaz frais (K)
v	Vitesse moyenne d'un écoulement ($m.s^{-1}$)
V_E	Volume de l'enceinte (m^3)
V_f	Vitesse de flamme ($m.s^{-1}$)
V_S	Vitesse spatiale de combustion ($m.s^{-1}$)
x	Dimension caractéristique d'un écoulement (m)
X_i	Teneur molaire de l'espèce i (%mol)

LETTRES GRECQUES

α	Diffusivité thermique ($m^2.s^{-1}$)
δ	Epaisseur de flamme (m)
δ_p	Epaisseur de la zone réactionnelle (m)
ε	Coefficient d'extinction molaire ($L.mol^{-1}.cm^{-1}$) ou massique ($L.g^{-1}.cm^{-1}$)

Φ	Richesse
λ	Conductivité thermique ($J.s^{-1}.K^{-1}.m^{-1}$)
λ	Longueur d'onde (m)
ρ	Masse volumique ($kg.m^{-3}$)
σ	Rapport des masses volumiques des gaz frais par rapport aux gaz brûlés
μ	Viscosité dynamique d'un écoulement ($kg.m^{-1}.s^{-1}$)
τ_c	Temps de transit (s)
$\vec{\omega}$	Taux de réaction

INDICES

b	Indice relatif aux gaz brûlés
i	Indice de taille
u	Indice relatif aux gaz frais

LISTE DES FIGURES

Figure 1-1: Schémas représentant les différentes catégories de flammes : (a) flamme de prémélange ; (b) flamme de diffusion	38
Figure 1-2 : Représentation du front de flamme d'un mélange combustible placé dans un tube.....	40
Figure 1-3 : Courbe d'Hugoniot et droites de Rayleigh.....	41
Figure 1-4: Influence de la température initiale sur les limites d'inflammabilité de l'hydrogène dans l'air (propagation d'une flamme descendante) à pression atmosphérique [6]	43
Figure 1-5 : Limites d'inflammabilité des mélanges hydrogène / air en fonction de la température initiale. (a) A une pression initiale de 100 kPa ; (b) A une pression initiale de 250 kPa [7]. Légende : Rouge : Domaine d'inflammabilité totale ; Orange : Domaine de propagation ascendante ; Vert : Extérieur au domaine d'inflammabilité.....	44
Figure 1-6 : Influence de la pression initiale sur les limites d'inflammabilité des mélanges hydrogène-air à pression sub-atmosphérique et à $T = 293\text{ K}$ [10,11].....	45
Figure 1-7: Limites d'inflammabilité des mélanges hydrogène-air-vapeur d'eau [12].....	46
Figure 1-8 : Limites d'inflammabilité des mélanges $\text{H}_2/\text{air}/\text{H}_2\text{O}_{\text{vap}}$ initialement à 100 kPa et 100°C pour différents pourcentages de vapeur d'eau dans le mélange [7] Légende : Rouge : Domaine d'inflammabilité totale ; Orange : Domaine de propagation ascendante ; Vert : Extérieur au domaine d'inflammabilité.	47
Figure 1-9 : Comparaison des limites d'inflammabilité des mélanges $\text{H}_2/\text{air}/\text{H}_2\text{O}_{\text{vap}}$ de la littérature pour différentes conditions initiales.....	47
Figure 1-10 : Energie minimale d'inflammation de mélanges hydrogène-air en fonction de la teneur en hydrogène dans le milieu pour différentes pressions initiales et à température ambiante [13,14]	48
Figure 1-11 : Structure du front de flamme d'une flamme laminaire de prémélange. .	55
Figure 1-12 : Vitesse fondamentale de flamme (en m/s) en fonction du pourcentage volumique d'hydrogène dans l'air à pression atmosphérique et température ambiante [43]...	58
Figure 1-13 : Vitesses fondamentales de flamme (en m/s) en fonction du pourcentage d'hydrogène dans l'air à 100 kPa et à 298 K [51].....	59
Figure 1-14 : Vitesses fondamentales de flamme (en cm/s) en fonction de la richesse pour différents mélanges H_2/Air et comparaison avec la littérature à 100 kPa et à température ambiante [57].....	60
Figure 1-15 : Vitesses fondamentales de flamme en fonction de la quantité d'hydrogène dans l'air pour des mélanges H_2/Air à différentes températures initiales et à 1 bar [43]	60
Figure 1-16 : Vitesses de flamme laminaire à étirement nul en fonction de la richesse pour des mélanges H_2/Air à différentes pressions (notées P_U) et températures initiales [64]..	62
Figure 1-17 : Vitesses fondamentales de flamme en fonction de la richesse pour des mélanges H_2/Air à $T = 298\text{ K}$ pour différentes pressions initiales [54].	64

Figure 1-18 : Vitesses fondamentales de flamme de mélanges H ₂ /air en fonction de la richesse pour différentes pressions initiales et à 365 K [60].....	65
Figure 1-19 : Comparaison entre les vitesses fondamentales de flamme tirées de la littérature pour des pressions de 100 et 500 kPa pour deux températures initiales différentes (298 et 365-373 K).....	67
Figure 1-20 : Vitesses fondamentales de flamme en fonction de la fraction molaire en azote pour un mélange H ₂ /O ₂ /N ₂ stœchiométrique à différentes températures et à pression atmosphérique [47].....	68
Figure 1-21 : Vitesses fondamentales de flammes de mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ en fonction de la fraction en H ₂ (% vol) présente dans le mélange pour différents rapports O ₂ /(O ₂ +N ₂) à température ambiante et pression atmosphérique [49].....	69
Figure 1-22 : Vitesses fondamentales de flamme en fonction de la richesse pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ pour différents rapports O ₂ /(O ₂ +N ₂) à pression atmosphérique et température ambiante [54].	70
Figure 1-23 : Etude du rapport P _{MAX} /P _{initiale} (noté P _{MAX} /P _u), du temps de combustion t _c (ms), du taux maximal de montée en pression (dP/dt) _{MAX} (MPa.s ⁻¹) et du coefficient d'explosivité K _G (MPa.m.s ⁻¹) en fonction de la richesse (noté Φ) pour un mélange H ₂ /Air/N ₂ en fonction de la température initiale (noté T _u) [66].....	72
Figure 1-24 : Etude du rapport P _{MAX} /P _{initiale} (noté P _{MAX} /P _u), du temps de combustion t _c (ms), du taux maximal de montée en pression (dP/dt) _{MAX} (MPa.s ⁻¹) et du coefficient d'explosivité K _G (MPa.m.s ⁻¹) en fonction de la richesse (noté Φ) pour un mélange H ₂ /Air/N ₂ en fonction de la pression initiale (noté P _u) [66].....	72
Figure 1-25 : Etude du rapport P _{MAX} /P _{initiale} (noté P _{MAX} /P _u), du temps de combustion t _c (ms), du taux maximal de montée en pression (dP/dt) _{MAX} (MPa.s ⁻¹) et du coefficient d'explosivité K _G (MPa.m.s ⁻¹) en fonction de la richesse (noté Φ) pour un mélange H ₂ /Air/N ₂ en fonction de la fraction volumique de diluant (N ₂) dans le mélange (noté Φ _r) [66].....	73
Figure 1-26 : Pentagone de l'explosion de poussières	75
Figure 1-27 : Schéma d'un tube de Hartmann [67].....	81
Figure 1-28 : Coupe verticale de la sphère PRL 20 L [86]	83
Figure 1-29 : Schéma de l'injecteur anneau avec ses dimensions en mm [77].....	84
Figure 1-30 : Comportement général des paramètres d'explosivité et de l'énergie minimale d'inflammation des poussières en fonction de leurs concentrations [69].....	91
Figure 1-31 : Evolution de (a) P _{MAX} et (b) (dP/dt) _{MAX} en fonction de la concentration en particules d'aluminium dans l'air pour différentes tailles de particules à pression atmosphérique et à 288 K [106].....	92
Figure 1-32 : Influence de l'humidité de la particule sur les énergies minimales d'inflammation de différentes particules organiques dans l'air à pression atmosphérique et température ambiante [69]	93
Figure 1-33 : Etude de la CME du charbon en fonction de la concentration en oxygène dans l'air pour différents mélanges charbon-air à température ambiante et à 100 kPa [70,97]94	
Figure 1-34 : Influence de la concentration en oxygène sur les paramètres d'explosivité (P _{MAX} et (dP/dt) _{MAX}) de mélanges lignite - air pour différentes concentrations en charbon (conditions initiales : Sphère de 1 m ³ , Pression atmosphérique, T=150 °C) [107]....	95

Figure 1-35 : Influence de la température initiale sur les énergies minimales d'inflammation de mélanges à base de poussières organiques dans l'air à 100 kPa [69].....	96
Figure 1-36 : P_{MAX} en fonction de la concentration en lignite à différentes pressions initiales et température ambiante [69].....	98
Figure 1-37 : Évolution : (a) de la pression maximale P_{MAX} (en bar) et (b) du taux de montée en pression maximale $(dP/dt)_{MAX}$ (en bar/s) en fonction de la concentration en poussières pour différents mélanges poussière de liège - air à différentes pressions initiales et à température ambiante [101].....	98
Figure 1-38 : Influence de la turbulence initiale (ici caractérisée par le délai d'inflammation du milieu) sur l'énergie minimale d'inflammation de mélanges à base de différents types de poussières. Expériences réalisées dans une sphère de 20 L [108].....	100
Figure 1-39 : Évolution de l'énergie minimale d'inflammation (EMI en mJ) de différents mélanges poussières-air en fonction de la concentration en hexane (en % vol) dans ceux-ci, à 1 bar et température ambiante [80].....	101
Figure 1-40 : Rapport de la pression d'explosion par la pression initiale du charbon en fonction de sa concentration pour différents pourcentages en calcaire dans le milieu à température ambiante et pression atmosphérique [86].....	102
Figure 1-41 : (a) Surpression maximale (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) pour différents mélanges graphite-air en fonction de la concentration en particules de graphite à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [110,111] ..	104
Figure 1-42 : (a) Surpression maximale (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en particules de graphite pour différents mélanges 8 %vol H ₂ - graphite - air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [112].....	107
Figure 1-43 : Représentation (a) du signal de pression (en bar) et (b) de sa dérivée (en bar/s) en fonction du temps pour différentes concentrations en graphite pour des mélanges 10 %vol H ₂ - graphite - air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [112].....	108
Figure 1-44 : Représentation (a) du signal de pression (en bar) et (b) de sa dérivée (en bar/s) en fonction du temps pour différentes concentrations en graphite pour des mélanges 12 %vol H ₂ - graphite - air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [112].....	110
Figure 1-45 : (a) Surpression maximale (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en particules de graphite pour différents mélanges 18 %vol H ₂ - graphite - air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [112].....	110
Figure 1-46 : (a) Surpression maximale (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en particules de tungstène pour différents mélanges tungstène-air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [110,111]	112
Figure 1-47 : (a) Surpression maximale P_m (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en particules de tungstène pour des mélanges hydrogène - tungstène - air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [113].....	113
Figure 1-48 : (a) Surpression maximale P_m (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en O ₂ dans l'air pour différents mélanges	

7% vol H ₂ - air en présence ou non de tungstène (2 kg/m ³) à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [113]	114
Figure 1-49 : (a) Surpression maximale P _m (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en O ₂ dans l'air pour différents mélanges 14% vol H ₂ - air en présence ou non de tungstène (2 kg/m ³) à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [113]	115
Figure 1-50 : (a) Surpression maximale P _m (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en O ₂ dans l'air pour différents mélanges 18% vol H ₂ - air en présence ou non de tungstène (2 kg/m ³) à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [113]	115
Figure 1-51 : (a) Surpression maximale (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) pour différents mélanges graphite-tungstène-air, en fonction de la fraction molaire en tungstène dans le mélange tungstène-air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [110,111]	117
Figure 2-1 : Vue globale de la bombe sphérique de 8 L	121
Figure 2-2 : Schéma de la bombe sphérique SF2.	122
Figure 2-3 : Vue détaillée de SF2 et notamment de la seconde enveloppe	123
Figure 2-4 : Exemple de chromatogramme obtenu pour un mélange hydrogène-air. 125	
Figure 2-5 : Schéma du dispositif expérimental avec inflammation via le système d'électrodes.	127
Figure 2-6: Calibration de l'énergie délivrée par le laser (pour I=140 A) à l'intérieur de la bombe sphérique en fonction du maximum de signal enregistré par la photodiode.	128
Figure 2-7 : Schéma du dispositif expérimental d'inflammation par focalisation laser	129
Figure 2-8 : Schéma du dispositif de visualisation de la flamme par striescopie laser.	130
Figure 2-9 : Visualisation de la propagation de la flamme pour : (a) exemple d'une image ; (b) pour un mélange 20% H ₂ + 80 % (21% O ₂ + 79% N ₂) à 303 K et 50 kPa. Vitesse d'enregistrement: 15000 images/s ; (c) pour un mélange 40% H ₂ + 60 % (21% O ₂ + 79% N ₂) à 303 K et 50 kPa. Vitesse d'enregistrement: 48000 images/s	131
Figure 2-10 : Figures représentant (a) la tension et l'intensité mesurée et (b) l'énergie déposée dans le milieu lors de l'inflammation d'un mélange H ₂ /O ₂ /N ₂	134
Figure 2-11 : Evolution de la pression au cours du temps. Le mélange initialement à 303 K et 50 kPa est constitué de {0,199H ₂ +0,166O ₂ +0,635N ₂ }. (a) Signal Complet, (b) Zoom	137
Figure 2-12 : Détermination des paramètres d'explosivité (t _c , P _{MAX} et (dP/dt) _{MAX}) d'un mélange H ₂ /O ₂ /N ₂ à partir de son signal de pression	142
Figure 2-13 : Illustration de la détermination de la vitesse maximale de montée en pression pour un mélange H ₂ /O ₂ /N ₂	144
Figure 2-14 : Détermination de l'énergie d'activation d'un mélange H ₂ /O ₂ /N ₂ avec XH ₂ =0,2, N ₂ /O ₂ =1,5, P _{ini} =50 kPa et T _{ini} =303 K	145
Figure 2-15 : Photos de deux cyclones utilisés au cours de cette étude : (a) ouverture vers le bas et (b) ouverture vers le haut.....	151

Figure 2-16 : Schéma du dispositif expérimental pour les expériences de granulométrie.	151
Figure 2-17 : Variation de différents paramètres ($x(10)$, $x(50)$, $x(90)$ et $D(3.2)$ (ou SMD) associés à la taille des particules de tungstène au cours du temps pour les conditions suivantes : Débit d'air = 20000 sccm ; Temps d'injection = 10 s ; Masse de tungstène \approx 10 g (Rendement d'injection \approx 10 %).	154
Figure 2-18 : Enregistrements des différents signaux pour une expérience à $P_{ini}=50$ kPa et avec une masse de graphite de 0,07 g : (a) Signal complet ; (b) Zoom.	157
Figure 2-19 : $-\log(I_{plateau}/I_0)$ en fonction de la concentration en graphite injectée (en g/m^3) dans la bombe sphérique.	158
Figure 2-20 : $-\log(I_{plateau}/I_0)$ en fonction de la concentration en tungstène injectée (en g/m^3) dans la bombe sphérique.	159
Figure 3-1 : Evolution de la flamme pour un mélange $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en H_2 de 10 % mol, $N_2/O_2 = 2,33$, $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 303$ K (Vitesse d'enregistrement = 15000 image/s). Échelle : \varnothing hublot = 97 mm.	164
Figure 3-2 : Évolution de la flamme pour un mélange $H_2/O_2/N_2$; $H_2 = 20$ % mol, $N_2/O_2 = 1,5$, $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 303$ K (Vitesse d'enregistrement = 48000 image/s). Échelle : \varnothing hublot = 97 mm.	166
Figure 3-3 : Évolution de la flamme pour un mélange $H_2/O_2/N_2$; $H_2 = 40$ % mol, $N_2/O_2 = 3,76$, $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 343$ K (Vitesse d'enregistrement = 48000 image/s).	167
Figure 3-4 : Détermination de la vitesse de flamme à étirement nul pour les méthodes linéaire et non-linéaire dans le cas d'un mélange avec 40% mol H_2 , $N_2/O_2 = 3,76$, $P_{INI} = 100$ kPa, $T_{INI} = 343$ K.	168
Figure 3-5 : Détermination de la vitesse de flamme à étirement nul pour les méthodes linéaire et non-linéaire dans le cas d'un mélange avec 20% mol H_2 , $N_2/O_2 = 1$, $P_{INI} = 100$ kPa, $T_{INI} = 343$ K.	169
Figure 3-6 : Comparaison entre les vitesses expérimentales fondamentales de flamme laminaire à étirement nul, S_L° , en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures initiales et pour une pression initiale de 100 kPa, pour deux méthodes différentes : linéaire et non-linéaire.	170
Figure 3-7 : Comparaison entre les longueurs de Markstein, L_B , en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures initiales et pour une pression initiale de 100 kPa, pour deux méthodes différentes : linéaire et non-linéaire.	172
Figure 3-8 : Vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul, S_L° , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 % mol à différentes températures et différentes pressions initiales.	174
Figure 3-9 : Vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul, S_L° , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 % mol à différentes températures et différentes pressions initiales.	175
Figure 3-10 : Vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul, S_L° , en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour	

différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures initiales : (a) pour une pression initiale de 50 kPa ; (b) pour une pression initiale de 100 kPa.....	176
Figure 3-11 : Longueur de Markstein, L_B , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 % mol à différentes températures et pressions initiales	178
Figure 3-12 : Longueur de Markstein, L_B , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 % mol à différentes températures et pressions initiales	179
Figure 3-13 : Longueur de Markstein, L_B , en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures et pressions initiales.....	180
Figure 3-14 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 % mol pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K	181
Figure 3-15 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 % mol pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K	182
Figure 3-16 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 % mol pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K	183
Figure 3-17 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 % mol pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K	183
Figure 3-18 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=9$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K	184
Figure 3-19 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=9$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K	185
Figure 3-20 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=3,76$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K	186
Figure 3-21 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=3,76$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (bd) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K.....	186
Figure 3-22 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un	

rapport $N_2/O_2=2,33$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K	187
Figure 3-23 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=2,33$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K.....	187
Figure 3-24 : Énergies d'activation E_A , en fonction du rapport molaire N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$: (a) $X_{H_2} = 0,2$; (b) $X_{H_2} = 0,3$; (c) $X_{H_2} = 0,4$; (d) $X_{H_2} = 0,5$; (e) $X_{H_2} = 0,6$	192
Figure 3-25 : Comparaison des valeurs d'énergies d'activation des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec celles de la littérature pour des mélanges initialement à 100 kPa.....	194
Figure 3-26 : Nombres de Zel'dovich, β , en fonction du rapport molaire N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents conditions initiales et différentes fractions molaires en hydrogène X_{H_2} : (a) $X_{H_2} = 0,2$; (b) $X_{H_2} = 0,3$; (c) $X_{H_2} = 0,4$; (d) $X_{H_2} = 0,5$; (e) $X_{H_2} = 0,6$	195
Figure 3-27 : Comparaison des nombres de Zel'dovich des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec celles de la littérature pour des mélanges initialement à 100 kPa.....	197
Figure 3-28 : Temps de combustion en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 10 % mol à différentes températures et pressions initiales	198
Figure 3-29 : Temps de combustion en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 % mol à différentes températures et pressions initiales	199
Figure 3-30 : Temps de combustion en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 % mol à différentes températures et pressions initiales	200
Figure 3-31 : Temps de combustion en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures et pressions initiales.....	201
Figure 3-32 : Pression maximale de combustion, P_{MAX} , et P_{AICC} , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 10 % mol à différentes températures et différentes pressions initiales.....	203
Figure 3-33 : Écart entre la pression maximale de combustion P_{MAX} et la P_{AICC} en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 10 % mol à différentes températures initiales pour (a) : $P_{INI} = 50$ kPa et (b) : $P_{INI} = 100$ kPa	204
Figure 3-34 : Pression maximale de combustion, P_{MAX} , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 % mol à différentes températures et différentes pressions initiales.....	205
Figure 3-35 : Écart entre la pression maximale de combustion P_{MAX} et la P_{AICC} en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 % mol à différentes températures initiales pour (a) : $P_{INI} = 50$ kPa et (b) : $P_{INI} = 100$ kPa	205

Figure 3-36 : Pression maximale de combustion, P_{MAX} , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales.....	206
Figure 3-37 : Écart entre la pression maximale de combustion P_{MAX} et la P_{AICC} en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à différentes températures initiales pour (a) : $P_{INI} = 50$ kPa et (b) : $P_{INI} = 100$ kPa	207
Figure 3-38 : Pression maximale de combustion P_{MAX} en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures et pressions initiales.	208
Figure 3-39 : Indice de déflagration, K_G , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 10 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales	210
Figure 3-40 : Indice de déflagration, K_G , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales	211
Figure 3-41 : Indice de déflagration, K_G , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales	212
Figure 3-42 : Indice de déflagration, K_G , en fonction de la fraction molaire en hydrogène (X_{H_2}) pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures initiales : (a) pour une pression initiale de 50 kPa ; (b) pour une pression initiale de 100 kPa.....	213
Figure 4-1 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol et avec deux systèmes d'inflammation différents, pour un rapport $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 50$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	226
Figure 4-2 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol avec deux systèmes d'inflammation différents, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 50$ kPa et $T_{INI} = 298$ K	227
Figure 4-3 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 50$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	228
Figure 4-4 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite et différents rapports N_2/O_2 , à $P_{INI} = 50$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	228
Figure 4-5 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en H_2 de 20 %mol et avec deux systèmes d'inflammation différents, pour un rapport $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	229
Figure 4-6 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 20 %mol avec deux systèmes	

d'inflammation différents, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K	230
Figure 4-7 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	230
Figure 4-8 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 20 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite et différents rapports N_2/O_2 , à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	231
Figure 4-9 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en H_2 de 30 %mol et avec deux systèmes d'inflammation différents, pour un rapport $N_2/O_2 = 3,76$ à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	232
Figure 4-10 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 30 %mol avec deux systèmes d'inflammation différents, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport $N_2/O_2 = 3,76$ à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K	232
Figure 4-11 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport $N_2/O_2 = 3,76$ à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	234
Figure 4-12 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 30 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite et différents rapports N_2/O_2 , à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	234
Figure 4-13 : Évolution de la flamme au cours du temps pour un mélange $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en hydrogène de 10 %mol et une concentration en graphite de $17,1$ g/m ³ , avec $N_2/O_2 = 3,76$ à $P_{INI} = 50$ kPa et $T_{INI} = 298$ K (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s).....	235
Figure 4-14 : Évolutions du signal de pression et de la flamme au cours du temps pour un mélange $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol et une concentration en graphite de $24,45$ g/m ³ , avec $N_2/O_2 = 3,76$ à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s).....	236
Figure 4-15 : Évolution du signal de pression et de la flamme au cours du temps pour un mélange $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol et une concentration en graphite de $24,45$ g/m ³ , avec $N_2/O_2 = 3,76$ à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s).....	236
Figure 4-16 : Pression maximale d'explosion, P_{MAX} , et pressions adiabatiques de combustion des mélanges $H_2/O_2/N_2$ et $H_2/O_2/N_2/Graphite$, P_{AICC} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol, pour différents rapports N_2/O_2 à : (a) $P_{INI} = 50$ kPa et (b) $P_{INI} = 100$ kPa.....	238
Figure 4-17 ; Pression maximale d'explosion, P_{MAX} , et pressions adiabatiques de combustion des mélanges $H_2/O_2/N_2$ et $H_2/O_2/N_2/Graphite$, P_{AICC} , en fonction de la	

concentration en graphite pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /Graphite avec une teneur en H ₂ de 20 %mol, pour différents rapports N ₂ /O ₂ à : (a) P _{INI} = 50 kPa et (b) P _{INI} = 100 kPa	240
Figure 4-18 : Pression maximale d'explosion, P _{MAX} , et pressions adiabatiques de combustion des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ et H ₂ /O ₂ /N ₂ /Graphite, P _{AICC} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /Graphite avec une teneur en H ₂ de 30 %mol, pour différents rapports N ₂ /O ₂ à : (a) P _{INI} = 50 kPa et (b) P _{INI} = 100 kPa.....	242
Figure 4-19 : Temps de combustion, t _C , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /Graphite avec une teneur en H ₂ de 10 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N ₂ /O ₂ à : (a) P _{INI} = 50 kPa et (b) P _{INI} = 100 kPa	243
Figure 4-20 : Temps de combustion, t _C , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /Graphite avec une teneur en H ₂ de 20 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N ₂ /O ₂ à : (a) P _{INI} = 50 kPa et (b) P _{INI} = 100 kPa	244
Figure 4-21 : Temps de combustion, t _C , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /Graphite avec une teneur en H ₂ de 30 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N ₂ /O ₂ à : (a) P _{INI} = 50 kPa et (b) P _{INI} = 100 kPa	245
Figure 4-22 : Indice de déflagration, K _{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /Graphite avec une teneur en H ₂ de 10 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N ₂ /O ₂ à : (a) P _{INI} = 50 kPa et (b) P _{INI} = 100 kPa	247
Figure 4-23 : Indice de déflagration, K _{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /Graphite avec une teneur en H ₂ de 20 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N ₂ /O ₂ à : (a) P _{INI} = 50 kPa et (b) P _{INI} = 100 kPa	248
Figure 4-24 : Indice de déflagration, K _{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /Graphite avec une teneur en H ₂ de 30 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N ₂ /O ₂ à : (a) P _{INI} = 50 kPa et (b) P _{INI} = 100 kPa	249
Figure 4-25 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ avec une teneur en H ₂ de 10 %mol et un rapport N ₂ /O ₂ = 2,33 à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K.....	255
Figure 4-26 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /W avec une teneur en H ₂ de 10 %mol, pour différentes concentrations en tungstène, pour un rapport N ₂ /O ₂ = 2,33 à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K.....	256
Figure 4-27 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ / W avec une teneur en H ₂ de 10 %mol, pour différentes concentrations en tungstène et différents rapports N ₂ /O ₂ , à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K.....	257
Figure 4-28: Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ avec une teneur en H ₂ de 20 %mol et un rapport N ₂ /O ₂ = 3,76 à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K.....	257

Figure 4-29 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /W avec une teneur en H ₂ de 20 %mol, pour différentes concentrations en tungstène, pour un rapport N ₂ /O ₂ = 3,76 à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K.....	258
Figure 4-30 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ / W avec une teneur en H ₂ de 20 %mol, pour différentes concentrations en tungstène et différents rapports N ₂ /O ₂ , à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K.....	259
Figure 4-31 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ avec une teneur en H ₂ de 30 %mol et un rapport N ₂ /O ₂ = 3,76 à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K.....	259
Figure 4-32 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /W avec une teneur en H ₂ de 30 %mol, pour différentes concentrations en tungstène, pour un rapport N ₂ /O ₂ = 3,76 à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K.....	260
Figure 4-33 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ / W avec une teneur en H ₂ de 30 %mol, pour différentes concentrations en tungstène et différents rapports N ₂ /O ₂ , à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K.....	261
Figure 4-34 : Évolution de la flamme au cours du temps pour un mélange H ₂ /O ₂ /N ₂ /Tungstène avec [Tungstène] = 129,58 g/m ³ , N ₂ /O ₂ = 3,76 à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s).....	261
Figure 4-35 : Évolutions : (a) du signal de pression et (b) de la flamme au cours du temps pour un mélange H ₂ /O ₂ /N ₂ /Tungstène avec [Tungstène] = 119,8 g/m ³ , N ₂ /O ₂ = 2,33 à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s)	263
Figure 4-36 : Évolutions : (a) du signal de pression et (b) de la flamme au cours du temps pour un mélange H ₂ /O ₂ /N ₂ /Tungstène avec [Tungstène] = 99,0 g/m ³ , N ₂ /O ₂ = 2,33 à P _{INI} = 100 kPa et T _{INI} = 298 K (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s)	263
Figure 4-37 : Images observées via MET sur les particules prélevées lors du test 235 : (a) Observation de différents cristallites (b) Zoom sur la particule 32	265
Figure 4-38 : Analyse par XPS des particules de tungstène prélevées lors du test 235	266
Figure 4-39 : Images observées via MET sur les particules prélevées lors du test 231 : (a) Observation de différents cristallites (b) Zoom sur les particules 10 et 11	267
Figure 4-40 : Analyse par XPS des particules de tungstène prélevées lors du test 231	267
Figure 4-41 : (a) Pressions maximales de combustion, P _{MAX} , et (b) rapport P _{MAX} /P _{ini} en fonction de la concentration en particules de tungstène dans le milieu pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /W avec une teneur en hydrogène de 10 %mol pour différents rapports molaires N ₂ /O ₂	268
Figure 4-42 : (a) Pressions maximales de combustion, P _{MAX} , et (b) rapport P _{MAX} /P _{ini} en fonction de la concentration en particules de tungstène dans le milieu pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /W avec une teneur en hydrogène de 20 %mol pour différents rapports molaires N ₂ /O ₂	270
Figure 4-43 : (a) Pressions maximales de combustion, P _{MAX} , et (b) rapport P _{MAX} /P _{ini} en fonction de la concentration en particules de tungstène dans le milieu pour des mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /W avec une teneur en hydrogène de 30 %mol pour différents rapports molaires N ₂ /O ₂ à 100 kPa et 298 K.....	271

Figure 4-44 : Temps de combustion, t_C , des mélanges H_2 /Tungstène/ O_2 / N_2 avec 10 %mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N_2/O_2 à 100 kPa et 298 K	272
Figure 4-45 : Temps de combustion, t_C , des mélanges H_2 /Tungstène/ O_2 / N_2 avec 20 %mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N_2/O_2 à 100 kPa et 298 K	273
Figure 4-46 : Temps de combustion, t_C , des mélanges H_2 /Tungstène/ O_2 / N_2 avec 30 %mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N_2/O_2 à 100 kPa et 298 K	273
Figure 4-47 : Indice de déflagration, K_{ST} , des mélanges H_2 /Tungstène/ O_2 / N_2 avec 10 %mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N_2/O_2 à 100 kPa et 298 K	274
Figure 4-48 : Indice de déflagration, K_{ST} , des mélanges H_2 /Tungstène/ O_2 / N_2 avec 20 %mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N_2/O_2 à 100 kPa et 298 K	274
Figure 4-49 : Indice de déflagration, K_{ST} , des mélanges H_2 /Tungstène/ O_2 / N_2 avec 30 %mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N_2/O_2 à 100 kPa et 298 K	275

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1-1 : Distances de coincement (d_c) et diamètres de coincement (d_q) pour différents mélanges stœchiométriques combustible-comburant à température ambiante et pression atmosphérique [4]	49
Tableau 1-2 : Recensement d'études concernant les mélanges à base d'hydrogène et d'oxygène.	57
Tableau 1-3 : Coefficient a_T sur la température pour différentes fractions molaires en hydrogène dans le mélange [43].....	61
Tableau 1-4 : Coefficient a_T sur la température pour différentes richesses [64]	63
Tableau 1-5 : Influence de la température initiale sur la vitesse de flamme de mélanges H ₂ /Air à 100 kPa [58, 60].....	63
Tableau 1-6 : Coefficients a_2 sur la pression, tirés de l'Eq 1.27 [60].....	66
Tableau 1-7 : Classification des poussières en fonction de leur indice de déflagration K_{ST} [74].	77
Tableau 1-8 : Recensement d'études concernant les paramètres d'explosivité des mélanges à base de poussières. Légende : d_p : Diamètre des particules étudiées ; [O ₂] : Concentration en oxygène ; CLO : Concentration limite en oxygène ; CME : Concentration minimale d'explosivité des poussières ; TAI : Température d'auto-inflammation des poussières et EMI : Energie minimale d'inflammation du mélange	88
Tableau 1-9 : Concentrations minimales d'explosivité, CME (exprimées en g/m ³), pour différentes poussières en fonction de l'enceinte expérimentale et des énergies d'inflammation utilisées [100]	88
Tableau 1-10 : Caractérisation des paramètres d'explosivité de différentes poussières pour différentes enceintes expérimentales [105].....	90
Tableau 1-11 : Influence du pourcentage massique de matières volatiles d'une particule sur sa concentration minimale d'explosivité (CME) dans l'air à température ambiante et à 100 kPa [94].	92
Tableau 1-12 : CME du charbon dans l'air en fonction de la pression initiale, à température ambiante [70]	97
Tableau 1-13 : Concentration minimale d'inertage (en g/m ³) pour différentes poussières combustibles à température ambiante [99].....	103
Tableau 1-14 : Concentration minimale d'explosion, CME (en g/m ³) de particules de graphite pour différents diamètres de particules [110,111].....	104
Tableau 1-15 : Résumé des caractéristiques d'explosion des mélanges hydrogène - graphite – air. Les lettres représentent les explications des différents cas de figures possibles donnés ci-après. Les lettres majuscules correspondent aux cas étudiés et les lettres minuscules aux cas similaires.	106
Tableau 1-16 : Conditions initiales des mélanges graphite - tungstène - air étudiés à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [110,111]	116
Tableau 2-1: Composition de la partie gazeuse des mélanges étudiés pour les mélanges diphasiques (H ₂ /O ₂ /N ₂ /poussières) en fonction du débit total des débitmètres.	126

Tableau 2-2 : Caractéristiques du prototype laser utilisé au cours de cette étude.....	127
Tableau 2-3 : Incertitude sur la détermination du rayon de la flamme en fonction des conditions d'enregistrement de la caméra.....	131
Tableau 2-4 : Caractéristiques des différents capteurs de pression Kistler 601 A.....	132
Tableau 2-5: Incertitudes sur le signal de pression en fonction des conditions d'enregistrement du signal.....	133
Tableau 2-6 : Détermination de l'incertitude sur les vitesses de flamme et les longueurs de Markstein en fonction des conditions d'enregistrement de la propagation de la flamme.....	141
Tableau 2-7 : Caractéristiques des poussières utilisées au cours de l'étude (données fournisseurs).....	147
Tableau 2-8: Définitions et choix de la granulométrie appropriée d'après Lefebvre [125].....	148
Tableau 2-9 : Résultats de l'étude granulométrique sur les particules de graphite....	152
Tableau 2-10 : Résultats de l'étude granulométrique sur les particules de tungstène	153
Tableau 2-11 : Conditions d'injection des particules de graphite et de tungstène pour leur introduction dans la bombe sphérique.....	156
Tableau 2-12 : Composition des mélanges étudiés et conditions de pression et de température lors des expériences sur les mélanges $H_2/O_2/N_2$	159
Tableau 2-13 : Composition des mélanges étudiés et conditions de pression et de température lors des expériences sur les mélanges $H_2/O_2/N_2/poussières$	159
Tableau 3-1 : Nombre de Lewis pour l'oxygène et l'hydrogène en fonction des conditions initiales des mélanges où la flamme se propage préférentiellement de manière ascendante.....	164
Tableau 3-2 : Détermination des rayons de flamme, R_f pour lesquelles la cellularisation de la flamme apparaît en fonction des conditions initiales du mélange pour différentes teneurs en hydrogène dans le milieu.....	165
Tableau 3-3 : Nombre de Lewis pour l'oxygène et l'hydrogène en fonction des conditions initiales des mélanges où la flamme se propage de manière sphérique et lisse avant de devenir cellulaire pendant la durée d'observation de la flamme.....	166
Tableau 3-4 : Nombre de Lewis de O_2 et H_2 en fonction des conditions initiales des mélanges où la flamme se propage de manière sphérique et lisse sur toute la durée d'observation.....	167
Tableau 3-5 : Valeurs de V_S° et de L_B obtenues par les méthodes linéaire et non-linéaire dans le cas d'un mélange avec 40% mol de H_2 , $N_2/O_2 = 3,76$, $P_{INI} = 100$ kPa, $T_{INI} = 343$ K.....	169
Tableau 3-6 : Valeurs de V_S° et de L_B obtenues par les méthodes linéaire et non-linéaire dans le cas d'un mélange avec 20% mol de H_2 , $N_2/O_2 = 1$, $P_{INI} = 100$ kPa, $T_{INI} = 343$ K.....	169
Tableau 3-7 : Coefficients obtenus lors de la corrélation pour les vitesses de flamme expérimentales et tirées de la modélisation.....	189
Tableau 3-8 : Coefficients obtenus lors de la corrélation pour les vitesses de flamme expérimentales et tirées de la modélisation.....	190

Tableau 3-9 : Coefficients obtenus lors de la corrélation pour les énergies d'activation des mélanges $H_2/O_2/N_2$, avec une teneur en hydrogène constante.....	193
Tableau 3-10 : Coefficients obtenus lors de la corrélation pour les nombres de Zel'dovich des mélanges $H_2/O_2/N_2$, avec un XH_2 constant.	196
Tableau 4-1 : Composition molaire des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 10 % mol à $P_{INI} = 50$ kPa et $T_{INI} = 298$ K	218
Tableau 4-2 : Composition molaire des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 % mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K	219
Tableau 4-3 : Composition molaire des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 30 % mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K	219
Tableau 4-4 : Composition des gaz brûlés obtenues par CPG pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 10 % mol à $P_{INI} = 50$ kPa et $T_{INI} = 298$ K	220
Tableau 4-5 : Composition des gaz brûlés obtenues par CPG pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 % mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	221
Tableau 4-6 : Composition des gaz brûlés obtenues par CPG pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 30 % mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	221
Tableau 4-7 : Quantités de matières initiales, n (en moles), de chaque espèce présente dans le mélange test 1.....	222
Tableau 4-8 : Composition des gaz brûlés (hors vapeur d'eau condensée) du mélange test 1.	222
Tableau 4-9 : Composition des produits issus de la combustion, vapeur d'eau condensée comprise, du mélange test 1.	223
Tableau 4-10 : Composition des produits de combustion et mesure de la quantité de graphite transformé en CO et CO_2 pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 10 % mol à $P_{INI} = 50$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	224
Tableau 4-11 : Composition des produits de combustion et mesure de la quantité de graphite transformé en CO et CO_2 pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 % mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	224
Tableau 4-12 : Composition des produits de combustion et mesure de la quantité de graphite transformé en CO et CO_2 pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 30 % mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	225
Tableau 4-13 : Composition des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène avec une teneur en hydrogène de 10 % mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K	251
Tableau 4-14 : Composition des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène, $XH_2 = 20$ % mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	252

Tableau 4-15 : Composition des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène $XH_2 = 30$ %mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	252
Tableau 4-16 : Composition des produits de combustion pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène avec une teneur en hydrogène de 10 %mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	253
Tableau 4-17 : Composition des produits de combustion pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	254
Tableau 4-18 : Composition des produits de combustion pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K.....	254

CONTEXTE ET OBJECTIFS DE L'ETUDE

L'avènement de la révolution industrielle à la fin du XIX^{ème} siècle en Angleterre a entraîné la mécanisation de nombreux processus de fabrication et de transformation de biens. Cette mécanisation s'est accompagnée, cependant, de besoins énergétiques toujours plus importants. C'est à ce moment-là que les énergies fossiles ont fait leur apparition, avec notamment le charbon, ressource abondante et facile d'accès notamment en Europe, berceau de cette révolution industrielle. Ce modèle économique basé sur le charbon s'est transformé au début du XX^{ème} siècle avec l'avènement du pétrole. C'est ainsi que depuis plus de 200 ans, l'homme a basé son économie sur des ressources fossiles abondantes et peu chères.

Néanmoins, depuis quelques décennies, certains ont remarqué des inconvénients à cette dépendance. En effet, ces ressources qui ont mis des millions voire des milliards d'années à se créer naturellement sont en passe, à l'heure actuelle, d'être complètement exploitées et donc de disparaître (les réserves de pétrole conventionnel seraient limitées aujourd'hui à une cinquantaine d'années). De plus, l'utilisation sans limite et sans contrôle de ces énergies (charbon, pétrole et gaz naturel) a conduit à un phénomène de réchauffement climatique global entraînant des perturbations importantes sur Terre (trou dans la couche d'ozone, fonte des glaces au niveau des pôles,...).

Ces deux phénomènes ont conduit l'Homme à chercher de nouvelles énergies. Trois grandes voies se sont alors distinguées au cours de ces 50 dernières années.

La première voie concerne l'utilisation encore plus importante de ressources fossiles comme les pétroles non conventionnels (ex : les schistes bitumineux,...) et le gaz de schiste. Cependant à l'heure actuelle, les coûts sont encore très élevés et les techniques d'extraction ne sont pas encore totalement au point ce qui peut provoquer des dommages environnementaux importants. De plus, la dépendance en ressources fossiles ne serait pas abolie.

Une deuxième voie de recherche concerne les énergies renouvelables comme le solaire ou l'éolien. Cependant, ces techniques bien qu'au point techniquement et présentant l'énorme avantage de ne produire aucun gaz à effet de serre, ne donnent pas le même rendement que les autres sources d'énergies. De plus, le fait de dépendre des conditions climatiques ne permet pas à l'heure actuelle de résoudre les pics de consommation d'énergie qui peuvent exister notamment l'hiver.

La troisième voie est celle de la fission nucléaire présentant l'avantage de ne pas dépendre de ressources fossiles (mais dépendant quand même des ressources en Uranium, qui ne sont pas infinies non plus) et de produire de grandes quantités d'énergie. Néanmoins, les risques encourus en cas d'accident (Three Miles Island, Tchernobyl ou encore plus récemment Fukushima-Daichii) sont très importants et les conséquences très graves (dégâts humains et matériels très importants, effet sur l'environnement catastrophique même à long

terme). De plus, les déchets radioactifs à longue durée de vie produits par les centrales sont encore un problème non totalement résolu.

La fusion nucléaire est la prochaine étape dans cette troisième voie. Celle-ci permet à partir d'une rencontre entre un atome de tritium (3_1H) et un atome de deutérium (2_1H) de produire un noyau d'Hélium (4_2He), un neutron et une quantité d'énergie égale à 17,6 MeV. La maîtrise de ce processus, sur Terre, ouvrirait la voie à des ressources illimitées en énergie. Néanmoins, les difficultés techniques (la réaction de fusion nécessite une température de plusieurs millions de degrés, le confinement du plasma par champ magnétique,...) et matériels font qu'un pays ne peut mener à lui seul un projet dans cette voie. Il est donc nécessaire que plusieurs pays collaborent dans le but de réaliser des projets menant à la maîtrise de ce processus.

Le projet ITER, pour International Thermonuclear Experimental Reactor, est un projet international créé pour vérifier la viabilité de produire de l'énergie à partir de réactions de fusion nucléaire. Il est financé (budget de 16 milliards d'euros), conçu (les installations se situent à Cadarache dans le sud-est de la France) et exploité par sept pays ou organisations membres : l'Union Européenne, les États-Unis d'Amérique, la Russie, le Japon, la Chine, la Corée du Sud et le Japon.

Le but de ce projet est de produire de l'énergie avec un rendement (énergie produite par l'installation / énergie reçue par l'installation) supérieur à 10. Les premiers plasmas produits à l'intérieur du tokamak sont attendus pour 2020.

Suite au projet ITER, le projet DEMO (pour DEMONstrating power plant) a pour but de créer des quantités d'énergies quatre fois supérieures (de l'ordre de 2 à 4 GW) à celles d'ITER et de transformer cette énergie en électricité. Ce projet est la dernière étape vers la construction de centrales à fusion nucléaire commerciales. Le projet DEMO devrait être opérationnel aux environs de 2040 et la commercialisation de l'énergie produite par fusion nucléaire devrait intervenir entre 2060 et 2080.

Cependant, à l'heure actuelle, le projet ITER et l'utilisation de la fusion nucléaire conduisent à des problèmes de sécurité importants. En effet, en condition de fonctionnement normal de l'installation expérimentale ITER, quelques centaines de kilogrammes de poussières de béryllium (Be), de graphite (C) et de tungstène (W) sont produites suite à l'érosion des parois de la chambre à vide (VV) (parois internes et divertor) par le plasma. Lors d'un accident de perte de refroidissement, par exemple, l'écoulement généré par la fuite d'eau (vapeur) ou par l'entrée d'air peut entraîner les poussières déposées sur les parois et les mettre en suspension dans l'atmosphère de l'enceinte VV. Selon la quantité de poussières mise en suspension dans la chambre, l'atmosphère de la chambre à vide devient ou non inflammable. En outre, les poussières peuvent réagir avec la vapeur pour produire l'hydrogène ; ce qui accentue le caractère explosible de l'atmosphère diphasique contenue de l'enceinte.

L'étude actuellement menée par l'IRSN porte sur la caractérisation de l'explosion des mélanges diphasiques hydrogène et poussières métalliques dans le contexte d'évaluation du

risque hydrogène dans ITER. Les risques d'explosion interne dans ITER sont au nombre de trois :

- risque d'explosion de gaz inflammables, principalement associé à l'utilisation d'hydrogène et de ses isotopes (deutérium, tritium) ;
- risque d'explosion de poussières métalliques et combustibles dans la chambre à vide ;
- risque d'explosion lié à une décomposition brutale d'ozone en oxygène.

Seuls les deux premiers risques cités seront considérés.

L'hydrogène (et ses isotopes) est un gaz hautement inflammable et explosif lorsqu'il est mélangé à l'air et cela pour une grande gamme de concentration. Le risque d'explosion lié à son utilisation est identifié dans trois cas :

- rejet anormal d'hydrogène (et de ses isotopes) par des volumes dans des salles hébergeant l'équipement et contenant de l'air ;
- présence anormale d'oxygène dans le procédé de traitement de l'hydrogène ;
- entrée d'air et d'eau dans la chambre à vide.

Seul le troisième cas nous intéresse et sera développé ici. Il faut noter que ce type de scénario est également valable pour le risque d'explosion de poussières. L'entrée d'air et d'eau dans la chambre sont des accidents communément appelés respectivement LOVA (Loss-Of-Vacuum-Accident) et LOCA (Loss-Of-Coolant-Accident).

La détermination des scénarios accidentels de type LOCA ou LOVA dans ITER repose sur une démarche utilisant à la fois une approche « bottom-up » allant de la défaillance des composants pour définir l'événement et une approche « top-down » qui part des accidents redoutés pour identifier les causes de l'événement et notamment la défaillance des composants.

Cette démarche a permis de retenir comme référence deux types de scénarios accidentels :

- les accidents de dimensionnement qui correspondent aux scénarios enveloppes ayant conduit au dimensionnement de l'installation et notamment des composants importants pour la sûreté. Ces types d'accidents sont au nombre de 4 :
 - (1) la rupture multiple des tuyauteries de la première paroi ;
 - (2) la perte de vide au travers d'une ligne de pénétration cryostat/chambre à vide ;
 - (3) un événement de transfert de chaleur primaire à l'extérieur de la chambre à vide (par l'arrêt brutal d'une pompe dans une boucle du système primaire de refroidissement du divertor) ;
 - (4) une rupture importante d'une tuyauterie de refroidissement du divertor à l'extérieur de la chambre à vide.

- Les situations hors dimensionnement considérées comme hypothétiques dont l'étude permet de s'assurer d'une marge de sûreté suffisante au niveau de la conception et de vérifier l'absence d'effet falaise dans les conséquences. Ces situations sont établies à partir des accidents de dimensionnement auxquels on applique des facteurs aggravants supplémentaires indépendants de l'évènement initiateur, et considérés comme extrêmement improbables. Ces situations sont également au nombre de 4 :
 - (1) une rupture multiple de boucles de refroidissement de la première paroi à l'intérieur de la chambre à vide avec défaillance de deux fenêtres dans une conduite de chauffage par ondes hautes fréquences ;
 - (2) une rupture multiple de boucles de refroidissement de la première paroi à l'intérieur de la chambre à vide avec défaillance du système d'arrêt d'urgence de la combustion du plasma ;
 - (3) une perte de fluide de refroidissement de la première paroi à l'extérieur de la chambre à vide avec défaillance du système d'arrêt d'urgence de la combustion du plasma ;
 - (4) une explosion d'hydrogène et de poussières dans la chambre à vide.

Les études menées par l'exploitant ITER sur les scénarii de dimensionnement et hors dimensionnement relatifs à l'entrée d'air ou d'eau à l'intérieur de la chambre à vide montrent que la perte de l'intégrité de la chambre à vide par explosion d'hydrogène, concomitante ou non avec celle des poussières, est envisagée par l'exploitant ITER uniquement dans les scénarii 3 et 4.

Les explosions de poussières pures ne sont pas considérées dans les risques liés à l'installation ITER. En effet, les énergies minimales d'inflammation (EMI) liées à de tels mélanges sont de l'ordre de 1 à 2 kJ. Une telle source d'ignition semble peu probable en conditions accidentelles sur ITER. De façon plus probable, le nuage de poussières pourrait exploser en raison de la combustion accidentelle d'hydrogène. L'hydrogène peut être enflammé à l'aide d'une simple étincelle électrique et c'est l'énergie relâchée au cours de la combustion de l'hydrogène qui enflammerait le nuage de poussières.

Ce type de scénario relatif à l'entrée d'air ou d'eau à l'intérieur de la chambre à vide est considéré de deux façons dans l'installation par des accidents de type LOVA ou LOCA.

L'accident de type LOVA correspond à une entrée d'air dans la chambre à vide qui peut entraîner les poussières et les isotopes de l'hydrogène (deutérium et tritium) déposés initialement dans l'enceinte de confinement. Les isotopes de l'hydrogène peuvent alors brûler au contact de l'oxygène présent dans l'air et induire une explosion de poussières.

L'accident de type LOCA, en revanche, n'induit pas d'explosion dans la chambre à vide directement. L'eau, issue des circuits de refroidissement, introduite dans la chambre à vide peut alors (a) conduire à une augmentation de la pression à l'intérieur de la chambre à vide cause de sa vaporisation instantanée, (b) réagir avec les poussières présentes dans la chambre pour créer de l'hydrogène et (c) s'électrolyser pour former de l'oxygène. La présence très importante de vapeur d'eau dans la chambre maintient l'atmosphère inerte. Le maintien d'une

pression inférieure à 200 kPa à l'intérieur de la chambre à vide conduit à l'ouverture des lignes de décharge et au transfert des gaz et des poussières dans les réservoirs de décharge remplis partiellement d'eau froide. Dans cet environnement, la vapeur va se condenser et la fraction molaire en hydrogène va s'accroître dans le milieu. Enfin, après la vidange de l'eau, contenue dans les circuits de refroidissement, l'air va s'introduire dans la chambre à vide puis dans les réservoirs de décharge conduisant à la formation d'une atmosphère explosive.

Les objectifs liés à ce travail sont triples, il s'agit :

- de caractériser les régimes de combustion et les propriétés fondamentales des mélanges $H_2/O_2/N_2$ en tenant compte de l'impact de la température, de la pression et de la composition initiale ;

- de mettre en place un système d'introduction des poussières à l'intérieur de la bombe sphérique permettant de caractériser précisément les quantités injectées et la distribution en taille des particules à l'intérieur de la bombe ;

- d'étudier les paramètres fondamentaux (pression maximale de combustion, indice d'explosivité,...) des mélanges diphasiques à base d'hydrogène et de poussières de carbone ou de tungstène. Ceux-ci permettent de déterminer si des explosions de poussières concomitantes à une explosion d'hydrogène peuvent se produire et de mettre en avant les mélanges menaçant l'intégrité de l'installation ITER.

Pour ce faire, différentes installations expérimentales développées au laboratoire sont utilisées. Un travail de simulation numérique s'ajoute également au volet expérimental afin de pouvoir extraire des paramètres indispensables à l'analyse des résultats expérimentaux.

La présentation des différents travaux effectués au cours de la thèse sera effectuée selon le plan suivant.

Après un rappel concernant les conditions d'existence et de propagation d'une flamme, au début du premier chapitre, celui-ci sera consacré à l'état de l'art des mélanges hydrogène-air puis aux mélanges diphasiques à base de poussières, la dernière partie de ce chapitre étant consacrée à l'étude des mélanges à base de ces deux éléments.

La présentation des dispositifs expérimentaux est réalisée dans le deuxième chapitre de ce manuscrit. L'étude de la méthodologie liée aux expériences et les travaux préparatoires à l'étude des mélanges diphasiques seront également présentés dans ce chapitre.

La troisième partie de ce manuscrit correspondra à l'étude des mélanges $H_2/O_2/N_2$. Plusieurs paramètres fondamentaux (vitesse de flamme, longueur de Markstein, temps de combustion, pression maximale de combustion, indice d'explosivité) y seront présentés. Une modélisation cinétique à partir de mécanismes cinétiques détaillés de la littérature sera réalisée et le meilleur d'entre eux, sur l'ensemble du domaine de l'étude, sera choisi pour l'évaluation des énergies globales d'activation.

Enfin, le quatrième et dernier chapitre sera consacré à l'étude des mélanges diphasiques H_2 /poussières (carbone graphite ou tungstène)/ O_2/N_2 . Comme pour les mélanges du chapitre précédent, la présentation des paramètres fondamentaux liés à ces mélanges sera

faite et ceci dans le but de déterminer si pour un mélange donné, une explosion de poussières peut-être concomitante avec une explosion d'hydrogène.

Le mémoire s'achèvera par une synthèse résumant les principaux résultats acquis au cours de cette thèse.

CHAPITRE 1 : ÉTAT DE L'ART

1 Étude bibliographique

La première partie de ce mémoire de thèse sera consacrée aux flammes avec tout d'abord quelques généralités pour les définir. Ensuite, les conditions nécessaires à leur propagation seront explicitées. Enfin, pour le cas de flammes se propageant, la méthode de détermination de leurs vitesses sera donnée.

La suite de ce premier chapitre sera dédiée à l'état de l'art sur la combustion de mélanges contenant de l'hydrogène et/ou des poussières qu'ils soient monophasiques (hydrogène-air et hydrogène-oxygène-azote) ou diphasiques (poussières-air et hydrogène-oxygène-azote-poussières métalliques et/ou de graphite).

1.1 Rappels sur les flammes

1.1.1 Généralités sur les flammes

1.1.1.1 Définition

Une flamme est une zone réactionnelle où s'effectue la combustion. C'est un milieu réactionnel gazeux (les solides et les liquides doivent en général être gazéifiés avant de brûler), hautement énergétique et de volume limité, où se produisent et se soutiennent mutuellement des réactions chimiques, des phénomènes de diffusion d'espèces chimiques et de chaleur, ainsi que des émissions lumineuses.

1.1.1.2 Différents types de flamme : prémélange et diffusion

Deux grandes catégories de flammes, peuvent être distinguées : les flammes de diffusion et les flammes de prémélange.

Les flammes de prémélange sont des structures de combustion où le combustible et le comburant sont intimement mélangés avant que la réaction ne soit initiée (Figure 1-1). À l'inverse, les flammes de diffusion sont des structures où le combustible et le comburant sont initialement séparés et qui diffusent alors vers la zone de réaction pour réagir. La flamme est alors une zone frontière où d'un côté arrive le combustible et de l'autre le comburant, les produits de combustion étant diffusés de part et d'autre.

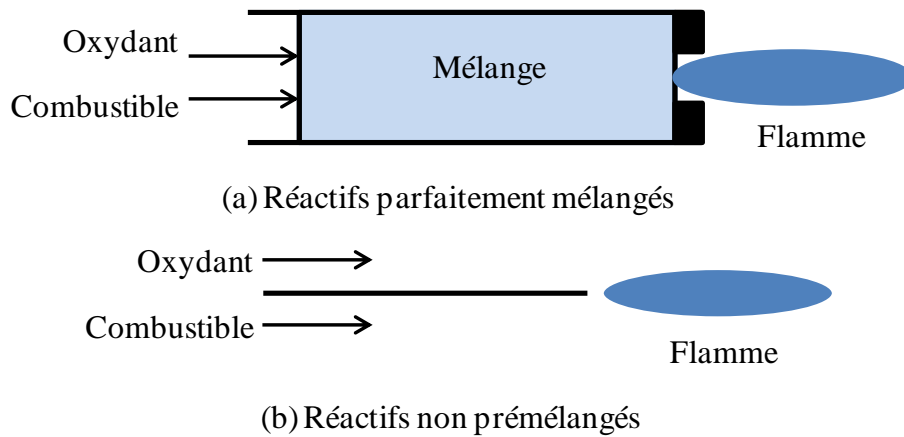


Figure 1-1: Schémas représentant les différentes catégories de flammes : (a) flamme de prémélange ; (b) flamme de diffusion [1].

1.1.1.3 Différents types d'écoulements

La combustion se déroulant dans un milieu gazeux, une deuxième distinction concernant les régimes de combustion des flammes peut se faire selon la nature de l'écoulement des gaz dans le milieu. En effet, deux types différents d'écoulements peuvent être identifiés, laminaire ou turbulent auquel s'ajoute un régime transitoire entre ces deux régimes.

Un écoulement laminaire peut être caractérisé par le fait qu'il soit organisé, prédictible et déterministe. En régime laminaire, les lignes de courant sont parallèles et les transferts de masse et d'énergie transversaux sont régis par des mécanismes diffusionnels à l'échelle moléculaire. Un écoulement turbulent, à l'inverse, présente un caractère désordonné caractérisé par des fluctuations de vitesse réparties le long du front de flamme. Cela signifie que deux « particules » proches l'une de l'autre à un moment t donné peuvent posséder des trajectoires très différentes et se retrouver très éloignées à un moment $t+dt$.

La turbulence est un phénomène qui apparaît assez brutalement lorsque la vitesse de l'écoulement augmente ou plutôt les gradients de vitesse dont il est le siège. Depuis la découverte de ce phénomène par Reynolds à la fin du XIX^{ème} siècle, on sait que la turbulence est due à l'instabilité de l'écoulement laminaire devant les petites perturbations expérimentales possibles, et que l'état turbulent est la situation non stationnaire vers laquelle tend l'écoulement instable [2].

Ces différents écoulements sont caractérisés par un nombre adimensionnel appelé le nombre de Reynolds (Re). Il est défini par la relation suivante :

$$Re = \frac{v \cdot x \cdot \rho}{\mu} \quad Eq 1.1$$

Avec : v : vitesse moyenne de l'écoulement ($m \cdot s^{-1}$) ; x : une dimension caractéristique (m) ; ρ : la masse volumique ($kg \cdot m^{-3}$) et μ : la viscosité dynamique ($kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$)

Pour un nombre de Reynolds inférieur à 2200, l'écoulement est dit laminaire. Supérieur à 3000, le régime est turbulent et pour des valeurs comprises entre 2200 et 3000, l'écoulement est dit transitoire [2].

1.1.1.4 Modes de propagation

Lorsqu'un mélange gazeux constitué d'un combustible et d'un comburant dans un milieu donné s'enflamme, on obtient une zone réactionnelle très étroite, appelée front de flamme, qui est le siège des réactions de combustion. Cette zone, selon les conditions initiales (composition du mélange, température et pression initiales, confinement,...), peut se propager à des vitesses très différentes. Deux modes de propagation peuvent être alors définis selon le niveau de la vitesse de la flamme : la déflagration et la détonation. Il est important de noter qu'une déflagration peut également transiter vers un régime de détonation dans certains cas. Ce phénomène s'appelle Transition Déflagration Détonation ou TDD (DDT en anglais).

La déflagration est un mode de propagation subsonique (vitesse du front de flamme/célérité du son < 1) pour laquelle la propagation de la flamme résulte à la fois de la diffusion de la chaleur ainsi que de la diffusion des espèces actives. 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 subsonique [3,4].

La détonation, elle, est un mode de propagation supersonique (vitesse du front de flamme / célérité du son > 1). Dans ce mode, la zone de réaction est couplée à une onde de choc et une discontinuité de la pression est observée de part et d'autre du front de flamme, qui se déplace de manière supersonique. Les gaz brûlés peuvent atteindre des températures avoisinant 4000°C et des pressions 50 fois supérieures à la pression initiale. L'onde de choc est entretenue par le dégagement d'énergie due à la combustion.

La détermination des conditions thermodynamiques dues à la combustion d'un mélange est réalisée à partir des équations d'Hugoniot et des droites de Rayleigh [4].

Considérons un long tube horizontal de section constante rempli d'un mélange combustible. Une flamme est initiée sur la gauche du tube et se propage le long du tube (Figure 1-2). Plaçons-nous dans le référentiel du front de flamme. L'onde de combustion se retrouve fixée à une position $x=0$ et c'est le mélange gazeux qui passe au travers. Les réactifs et les produits¹ sont considérés comme des mélanges uniformes, en écoulement sans frottements et respectant la loi des gaz parfaits. Les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie entre les gaz frais et les gaz brûlés s'écrivent :

Équation de conservation de la masse :

¹ Dans les calculs suivants, les paramètres relatifs aux gaz frais seront indicés u et ceux relatifs aux gaz brûlés indicés b .

$$\rho_u \cdot u_u = \rho_b \cdot u_b \quad \text{Eq 1.2}$$

Équation de conservation de la quantité de mouvement :

$$\rho_u \cdot u_u^2 + P_u = \rho_b \cdot u_b^2 + P_b \quad \text{Eq 1.3}$$

Équation de conservation de l'énergie :

$$\frac{u_u^2}{2} + h_u = \frac{u_b^2}{2} + h_b \quad \text{Eq 1.4}$$

avec : ρ : la masse volumique ; u : la vitesse ; P : la pression statique et h : l'enthalpie massique.

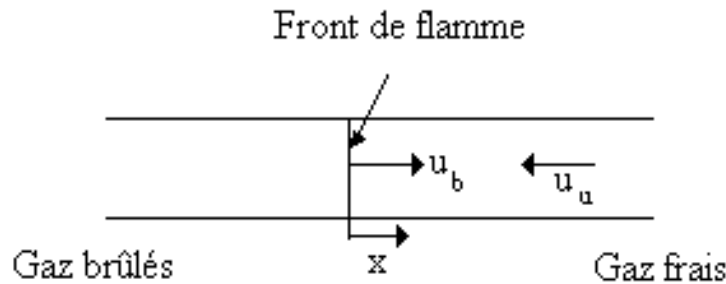


Figure 1-2 : Représentation du front de flamme d'un mélange combustible placé dans un tube.

L'équation d'Hugoniot est obtenue à partir de la combinaison de ces différentes équations :

$$h_b - h_u = \frac{P_b - P_u}{2} \cdot \left(\frac{1}{\rho_u} + \frac{1}{\rho_b} \right) \quad \text{Eq 1.5}$$

Soit :

$$\bar{C}_V \cdot (T_b - T_u) = \frac{P_b + P_u}{2} \cdot \left(\frac{1}{\rho_u} - \frac{1}{\rho_b} \right) + \Delta H_C \quad \text{Eq 1.6}$$

avec : \bar{C}_V : la capacité calorifique à volume constant moyennée entre T_b et T_u et ΔH_C : la variation d'enthalpie de la réaction de combustion.

Posons, ensuite : $\omega = \frac{P_b}{P_u}$ et $\sigma = \frac{\rho_u}{\rho_b}$.

La courbe d'Hugoniot des produits (ou adiabatique dynamique) représente les variations de \bar{C}_V et de ΔH_C selon les différentes conditions ω et σ et les droites de Rayleigh sont les droites qui passent par l'état initial des réactifs, état correspondant à $\sigma=1$ et $\omega=1$, et qui ont pour pente $\tan \alpha = \left(\frac{\omega - 1}{\sigma - 1} \right)$ avec $\tan \alpha < 0$ (Figure 1-3).

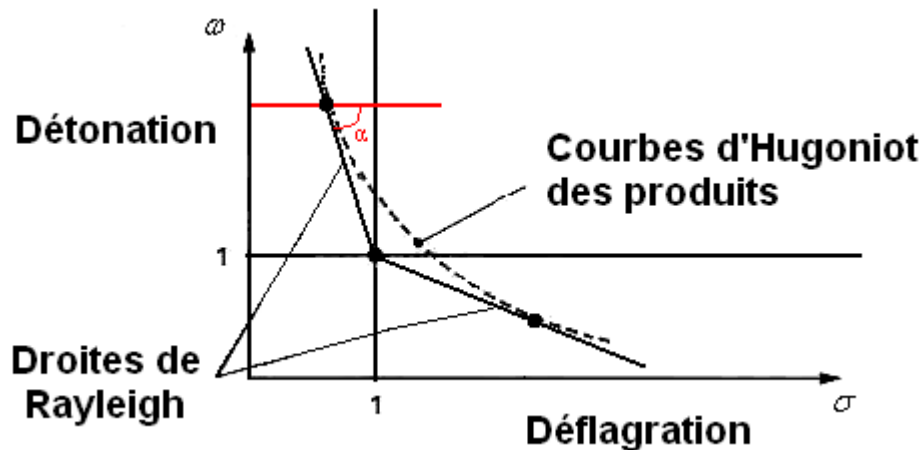


Figure 1-3 : Courbe d'Hugoniot et droites de Rayleigh

À partir de cette courbe et de ces droites, l'état des gaz brûlés peut être déterminé. Il est donné par le point de tangence de la droite de Rayleigh avec l'adiabatique dynamique des produits. Deux solutions sont alors possibles. Lorsque $\omega > 1$ et $\sigma < 1$, la propagation a lieu par onde de compression, c'est la **détonation**. Lorsque $\omega < 1$ et $\sigma > 1$, la propagation s'effectue par onde de détente, c'est la **déflagration**.

1.1.2 Conditions d'existence et de propagation d'une flamme

Après avoir vu comment définir les différents types de flammes et leurs modes de propagation, il est nécessaire de s'intéresser aux conditions d'existence et de propagation de ces dernières. En effet, pour avoir lieu, une combustion nécessite trois éléments : un combustible (par exemple : de l'hydrogène ou du méthane), un comburant (généralement l'oxygène de l'air) et une énergie d'inflammation. Cependant, la présence de ces trois paramètres ne crée pas systématiquement une combustion, d'autres phénomènes entrant en jeu.

1.1.2.1 Les limites d'inflammabilité

La combustion d'un mélange ne peut se faire que si le combustible et le comburant sont dans certaines proportions. Les limites d'inflammabilité sont définies comme étant les pourcentages molaires minimum (on parle de limite inférieure d'inflammabilité : LII) et maximum (on parle de limite supérieure d'inflammabilité : LSI) du combustible en mélange avec le comburant, et éventuellement un diluant, pour lesquels la propagation d'une flamme est autonome. Elles sont déterminées de façons expérimentales [3].

Le principal facteur de l'existence des limites d'inflammabilité est la compétition entre deux processus antagonistes : la création et la perte de chaleur. Dans le cas où la perte de

chaleur, contrôlée par les transferts thermiques est supérieure à la production de chaleur, contrôlée par la vitesse et la chaleur de réaction, alors la flamme ne peut se propager [3].

De manière générale, pour un combustible sont définies une limite inférieure et une limite supérieure. Cependant, certains combustibles tels que l'hydrazine peuvent, car se décomposant de manière exothermique, entretenir une flamme même dans un mélange pur. Ce composé ne possède donc pas de limite supérieure d'inflammabilité [5]

Il faut noter également qu'il n'est pas possible de définir des limites d'inflammabilité à des températures supérieures à la température d'auto-inflammation du mélange puisque, à cet instant, le mélange s'enflamme spontanément et que l'intervention d'une source d'inflammation est superflue. Il n'existe pas également de notion de flamme [5].

Dans le cas d'un mélange constitué de différents combustibles, Le Châtelier a proposé l'expression de la limite inférieure d'inflammabilité du mélange en fonction des limites inférieures d'inflammabilité de chaque composant et de la composition du mélange. Cette loi s'exprime sous la forme [6] :

$$L = \frac{100}{\sum_{i=1}^n \frac{x_i}{L_i}} \quad \text{Eq 1.7}$$

avec : L : la limite d'inflammabilité (inférieure ou supérieure) du mélange ; x_i : le pourcentage molaire de l'espèce i dans le mélange et L_i : la limite d'inflammabilité (inférieure ou supérieure) du composé i pur.

Cependant, bien que cette relation donne de bons résultats lorsque le mélange est composé de combustibles de natures voisines (par exemple un mélange d'hydrocarbures ou un mélange hydrogène, monoxyde de carbone, méthane), de grands écarts peuvent être observés avec l'expérience lorsque les composés sont de nature chimique différente les uns des autres [6].

Plusieurs paramètres peuvent influencer les limites d'inflammabilité d'un combustible donné. Ces paramètres sont la direction de propagation, la température initiale, la pression initiale et la présence d'un diluant.

1.1.2.1.1 Influence de la direction de propagation

La direction de propagation est un facteur important pour les limites d'inflammabilité. En effet, les mélanges hydrogène-air présentent une LII qui va de 4 %mol pour une propagation ascendante à 9 %mol pour une propagation descendante (un mélange hydrogène-air se propagera horizontalement à partir d'une teneur en hydrogène dans le milieu de 6 %mol).

Ceci est dû au fait qu'après l'inflammation, des courants gravitationnels de convection apparaissent et se superposent au mouvement propre de la flamme qui elle se propage dans toutes les directions. Dans le cas où ces courants de convection ont une vitesse supérieure à

celle du déplacement du front de flamme dans les gaz au repos, la flamme ne peut plus se propager vers le bas. Cependant, la propagation vers le haut reste toujours possible. Les domaines d'inflammabilité obtenus en propagation ascendante sont toujours plus larges que ceux obtenus en propagation descendante [5].

1.1.2.1.2 *Influence de la température et de la pression*

Les effets dus à la variation de la température initiale ou de la pression initiale d'un mélange donné sont différents l'un de l'autre.

Pour la température initiale, les effets sont très simples. Une augmentation de la température conduit à un accroissement du domaine d'inflammabilité en abaissant la limite inférieure et en augmentant la limite supérieure. Dans le cas de l'hydrogène, cet effet a été confirmé par l'étude de Coward et Jones qui ont regardé l'effet de l'augmentation de la température sur les limites d'inflammabilité de mélanges hydrogène-air en propagation descendante. Quand la température augmente de 17 °C à 400 °C, la LII décroît linéairement de 9,4 à 6,3 %mol et la LSI augmente de 71,5 à 81,5 %mol (Figure 1-4) [6]

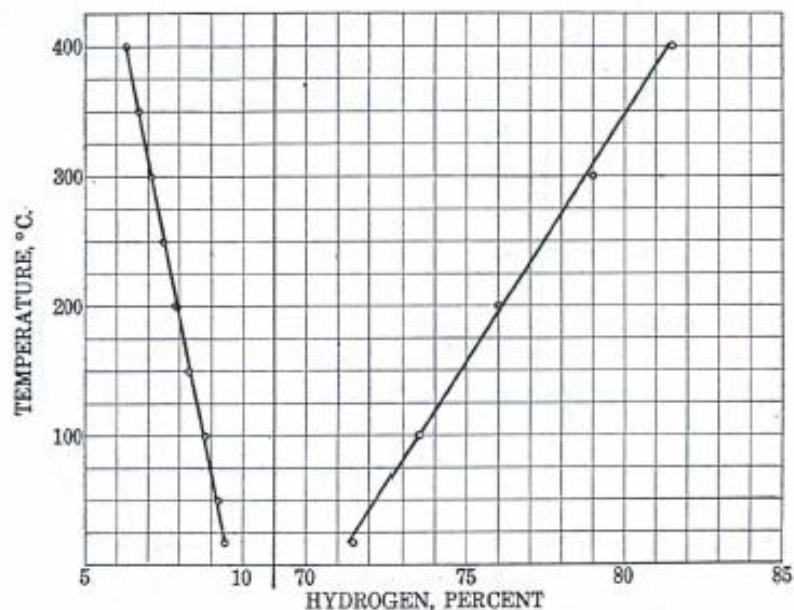


Figure 1-4: Influence de la température initiale sur les limites d'inflammabilité de l'hydrogène dans l'air (propagation d'une flamme descendante) à pression atmosphérique [6]

Cet effet est même confirmé pour des mélanges se trouvant à haute pression [7,8]. En effet, l'étude de Cheikhavat, pour des mélanges à 100 et 250 kPa, conduit aux mêmes conclusions, à savoir qu'une augmentation de la température initiale conduit à un accroissement du domaine d'inflammabilité (à une exception près quand la température initiale augmente de 25 à 85 °C, pour une pression initiale de 100 kPa, la LSI diminue de 74 à 72 %mol) (Figure 1-5).

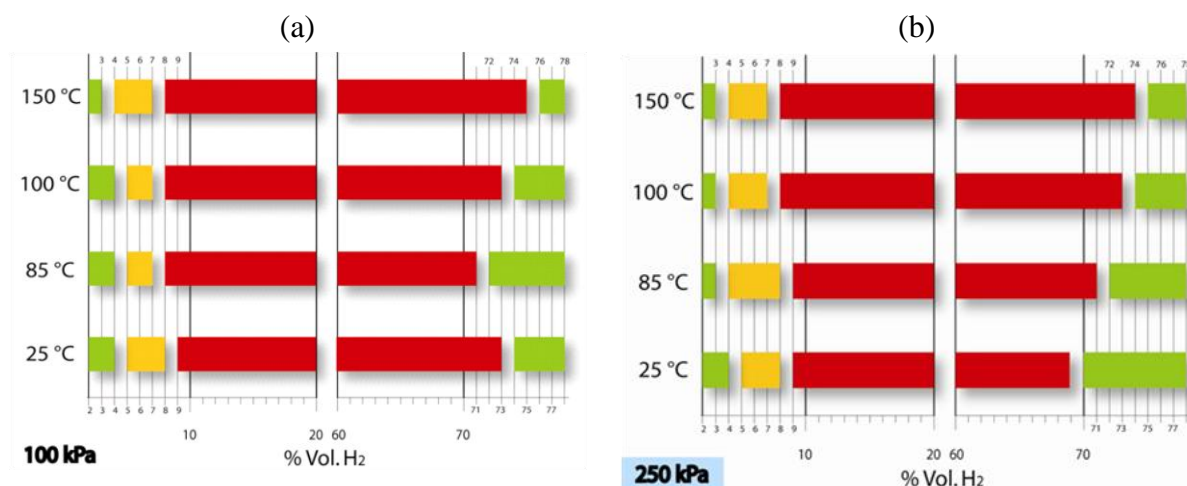


Figure 1-5 : Limites d'inflammabilité des mélanges hydrogène / air en fonction de la température initiale. (a) A une pression initiale de 100 kPa ; (b) A une pression initiale de 250 kPa [7]. **Légende** : Rouge : Domaine d'inflammabilité totale ; Orange : Domaine de propagation ascendante ; Vert : Extérieur au domaine d'inflammabilité.

L'impact de la pression initiale sur les limites d'inflammabilité est plus complexe. 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 LSI augmente ou diminue selon les gaz alors que la LII est peu affectée [5]. Glassman confirme ce comportement en précisant que pour les hydrocarbures simples (éthane, propane, ..., pentane), une augmentation de la pression conduit à une augmentation linéaire de la LSI, la LII étant peu ou pas affectée [3].

Pour l'hydrogène à des pressions supérieures à la pression atmosphérique, Cheikhavat montre qu'une augmentation de la pression de 100 à 250 kPa conduit à une diminution du domaine d'inflammabilité. En effet à une température initiale de 25 °C, quand la pression augmente de 100 à 250 kPa, la LII ne se trouve pas modifiée à l'inverse de la LSI qui, elle, diminue de 74 à 70 %mol. Ce constat est observé indépendamment de la température initiale (Figure 1-5) [7]. Coward et Jones prédisent également ce comportement [6].

Pour des pressions inférieures à la pression atmosphérique, tous les travaux concordent pour estimer qu'une diminution de la pression initiale conduit à une diminution du domaine d'inflammabilité et qu'il existe une pression en-deçà de laquelle aucune inflammation n'est plus possible.

Pour l'hydrogène, seuls Jones [9] et Kuznetsov et coll. [10,11] ont étudiés ce paramètre. En effet, Jones a déterminé la pression limite en dessous de laquelle aucune inflammation n'est possible. Il a ainsi montré que cette pression limite était de 20 kPa et ce quel que soit le système d'allumage utilisé (bougie ou fil chaud). Il a également montré que la diminution de la pression induisait un rétrécissement du domaine d'inflammabilité. Ces résultats sont présentés sous la référence 8 dans la Figure 1-6. Cependant, cette étude est loin d'être complète.

Kuznetsov et coll., à une température de 293 K, ont également testé différents systèmes d'inflammation (Figure 1-6). La figure montre qu'avec un système d'inflammation par étincelle électrique, Kuznetsov et coll. ont réussi à enflammer des mélanges jusqu'à 10 kPa et même jusqu'à 5 kPa pour le système d'inflammation du fil chaud. Concernant la LII, Kuznetsov montre qu'elle ne change pas avec la diminution de la pression (pour toute pression initiale supérieure à 5 kPa) à l'inverse de la LSI qui elle est très sensible à la pression initiale. En effet, la LSI augmente de 75 % vol, à 1 bar, à 80 % vol dans le domaine 20-50 kPa pour diminuer fortement jusqu'à 50 % vol pour une pression initiale de 5 kPa.

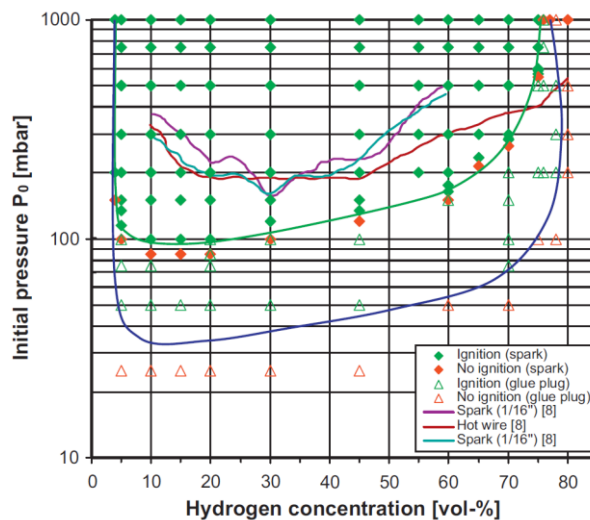


Figure 1-6 : Influence de la pression initiale sur les limites d'inflammabilité des mélanges hydrogène-air à pression sub-atmosphérique et à $T = 293 \text{ K}$ [10,11].

1.1.2.1.3 Influence de la dilution

La présence d'un diluant en plus du mélange combustible-comburant joue énormément sur les limites d'inflammabilité. En effet, même l'azote de l'air joue ce rôle. Ceci est prouvé en mesurant les limites d'inflammabilité, par exemple de l'hydrogène, non pas dans l'air mais dans l'oxygène pur. Dans ce cas, la limite supérieure d'inflammabilité augmente de 75 à 94 % mol. Pour les cas intermédiaires d'air avec de plus en plus d'oxygène, la LSI varie linéairement entre 75 et 94 % mol. La limite inférieure d'inflammabilité, elle, reste inchangée à 4 % mol. Cela est dû à l'oxygène qui en fort excès joue déjà le rôle de diluant. De plus, la capacité calorifique de l'azote est très proche de celle de l'oxygène, ce qui ne modifie pas la température locale atteinte lors de l'inflammation. Dans le cas de la limite supérieure, un abaissement est observé puisque la température dégagée lors de la combustion d'un mélange dilué dans l'azote est inférieure [3,5].

D'autres diluants ont été étudiés par Kumar dans un tube de 1,8 m de long et de 5 cm de diamètre [12]. Il a étudié l'impact de l'ajout de CO_2 et de vapeur d'eau sur les limites d'inflammabilité de propagation ascendante et descendante des mélanges $\text{H}_2\text{-O}_2$ et $\text{H}_2\text{-air}$ à trois températures initiales (22, 100 et 200 °C) et pour une pression initiale variant de 20 à 51 kPa.

La présence de ces diluants dans le milieu, soit H₂-O₂ soit H₂-Air, provoque une diminution du domaine d'inflammabilité. En effet, la présence de vapeur d'eau ou de CO₂ fait décroître le domaine d'inflammabilité du mélange H₂-O₂ jusqu'à une concentration en CO₂ (ou en vapeur d'eau) de 86 %vol dans le mélange pour laquelle aucune inflammation n'est possible. Pour les mélanges H₂-Air pour lesquels l'inflammation n'est plus possible à partir d'un pourcentage en vapeur d'eau de 63 %vol. Au-delà de ce pourcentage en vapeur d'eau, aucune inflammation n'a été obtenue quel que soit les conditions initiales (Figure 1-7) [12].

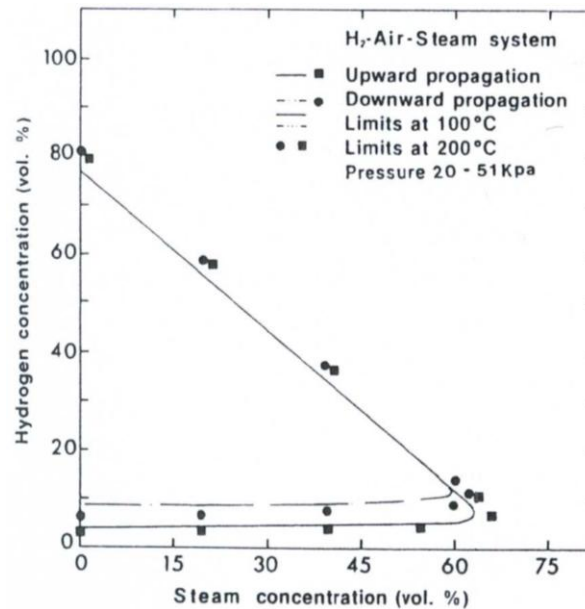


Figure 1-7: Limites d'inflammabilité des mélanges hydrogène-air-vapeur d'eau [12]

Cheikhvat a également étudié les mélanges H₂-Air-vapeur d'eau dans une enceinte sphérique de 56 L à une température initiale de 100 °C et à une pression de 100 kPa. Lui aussi conclut à une diminution du domaine d'inflammabilité de l'hydrogène en présence de vapeur d'eau. En augmentant, la fraction de H₂O_{vap} de 0 à 40 puis à 50 %vol, la LII s'accroît de 4 à 6 puis à 7 %vol alors que la LSI diminue fortement de 74 à 52 et à 20 %vol. Au-delà d'une teneur en eau supérieure à 54 %vol, aucune inflammation du mélange n'a été possible (Figure 1-8) [7].

Une différence peut être observée entre les valeurs de Cheikhvat (54 %vol de H₂O_{vap} à 100 kPa et 373 K : cf. Figure 1-9) et de Kumar (59 %vol de H₂O_{vap} à 20-51 kPa et 373 K : cf. Figure 1-9). Cette différence peut s'expliquer par la différence de pression initiale et par l'utilisation de deux systèmes expérimentaux très différents et par la présence ou non de turbulence dans le milieu. Kumar explique sa teneur en vapeur d'eau maximale de 59 %mol grâce à l'absence de turbulence dans son milieu initial. La turbulence qui, selon lui, perturberait physiquement la flamme et causerait des pertes d'énergies qui influencerait les limites d'inflammabilité [12].

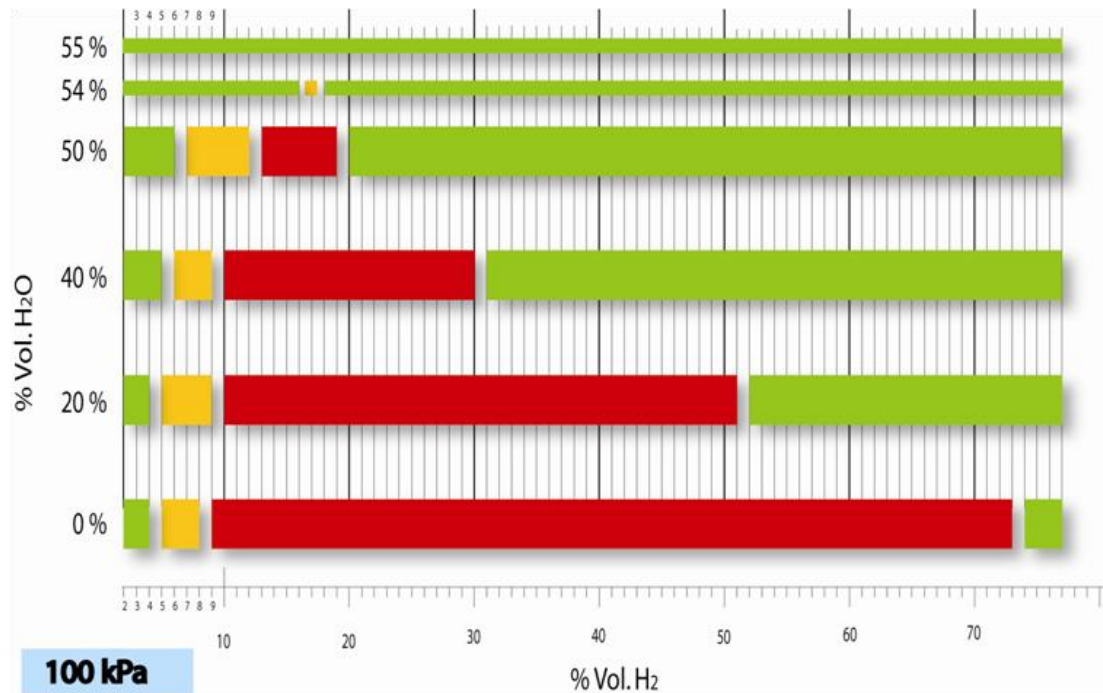


Figure 1-8 : Limites d'inflammabilité des mélanges H_2 /air/ H_2O_{vap} initialement à 100 kPa et $100^\circ C$ pour différents pourcentages de vapeur d'eau dans le mélange [7] Légende : Rouge : Domaine d'inflammabilité totale ; Orange : Domaine de propagation ascendante ; Vert : Extérieur au domaine d'inflammabilité.

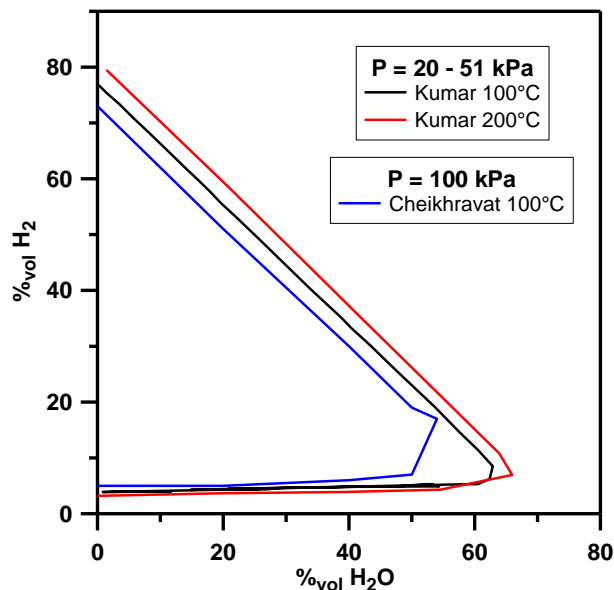


Figure 1-9 : Comparaison des limites d'inflammabilité des mélanges H_2 /air/ H_2O_{vap} de la littérature pour différentes conditions initiales

1.1.2.2 Energies minimales d'inflammation

Lorsque le mélange combustible se trouve à l'intérieur des limites d'inflammabilité, une énergie extérieure doit lui être apportée afin d'initier la combustion. Une valeur référence peut être alors définie : l'énergie minimale d'inflammation (ou EMI) qui correspond au

minimum d'énergie qu'il faut apporter au milieu pour qu'une inflammation se produise. Cette énergie minimale d'inflammation dépend de la nature du combustible, de la composition du mélange gazeux et des conditions de pression et de température initiales. D'autres paramètres rentrent également en compte comme le temps de libération de l'énergie et la taille du volume dans laquelle elle est libérée [5].

Pour un mélange stœchiométrique hydrogène-air, à une pression initiale de 101 kPa, l'énergie minimale d'inflammation vaut 0,02 mJ. Pour les mélanges qui s'éloignent de la stœchiométrie (qu'ils deviennent riches ou pauvres), la valeur de l'énergie minimale d'inflammation augmente. Par exemple, pour un mélange avec 10 % mol d'hydrogène, l'énergie minimale d'inflammation est très légèrement inférieure à 0,6 mJ (Figure 1-10). La pression joue également un effet sur l'EMI du mélange. En effet, lorsque la pression décroît de 101 à 20,2 kPa, l'énergie minimale d'inflammation du mélange à la stœchiométrie s'accroît de 0,02 à 0,6 mJ (Figure 1-10) [13,14].

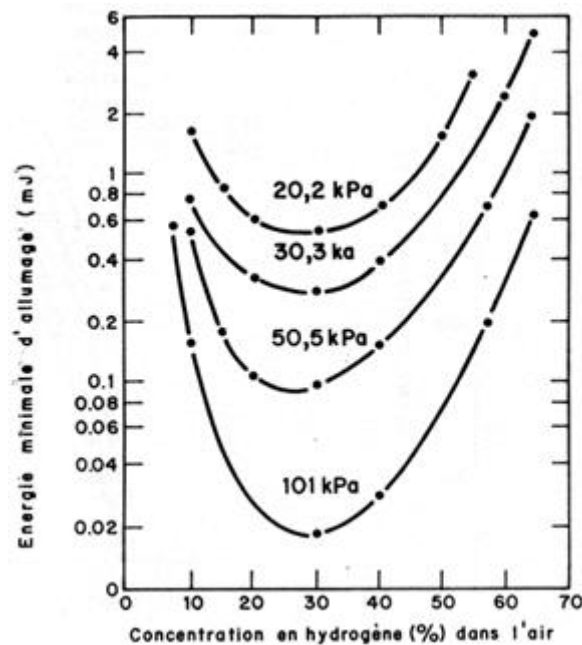


Figure 1-10 : Energie minimale d'inflammation de mélanges hydrogène-air en fonction de la teneur en hydrogène dans le milieu pour différentes pressions initiales et à température ambiante [13,14]

1.1.2.3 Distances de coïncement

Une fois les conditions d'inflammation et d'énergie d'inflammation réunies, la flamme ainsi initiée peut se propager dans le milieu. Néanmoins dans certains cas la présence de parois peut limiter cette propagation et même provoquer l'extinction de la flamme. 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 et ses propriétés (température, conductivité thermique,..) vont jouer un rôle important dans

l'extinction éventuelle de la réaction d'oxydation. De plus, la destruction des espèces actives, nommées également radicaux, sera plus efficace par collision sur une surface solide que par collision en phase gazeuse (recombinaisons tri-moléculaires). Ainsi, la compétition entre les réactions en phase gazeuse responsables 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 [3].

Deux distances critiques peuvent alors être définies : le diamètre de coincement (ou diamètre d'extinction) et la distance de coincement (ou distance d'extinction).

Le diamètre de coincement, d_q , représente le diamètre minimum d'un tube en-dessous duquel aucune flamme ne peut se propager à l'intérieur de celui-ci.

La distance de coincement, d_c , elle, est définie comme la distance minimale entre deux surfaces planes en dessous de laquelle aucune propagation de flamme ne peut être observée. Tout comme l'énergie minimale d'inflammation, ces deux distances dépendent de la nature du combustible, de la richesse du mélange et des conditions de pression et de température initiales. Ces deux grandeurs peuvent également être reliées par l'égalité : $d_q = 1,54 * d_c$ [2,4] (Tableau 1-1).

Combustible	Comburant	Distance de coincement d_c (mm)	Diamètre de coincement d_q (mm)
Hydrogène	Air	0,64	0,99
Hydrogène	Oxygène pur	0,25	0,39
Méthane	Air	2,55	3,93
Méthane	Oxygène pur	0,30	0,46
n-Pentane	Air	3,30	5,08
n-Décane	Air	2,06	3,17

Tableau 1-1 : Distances de coincement (d_c) et diamètres de coincement (d_q) pour différents mélanges stœchiométriques combustible-comburant à température ambiante et pression atmosphérique [4]

1.1.3 Les vitesses fondamentales de flamme

Lorsqu'une inflammation est réalisée en un point d'un milieu combustible initialement quiescent, une surface séparant les gaz non brûlés des gaz brûlés peut être observée. Cette surface, qui se propage dans tout l'espace libre, à une certaine vitesse, est une zone d'épaisseur finie appelée front de flamme. La vitesse de déplacement des gaz frais à travers ce front de flamme par rapport à la normale de ce même front de flamme est appelée vitesse fondamentale de flamme laminaire. C'est une grandeur intrinsèque au mélange considéré pour des conditions de pression et de température initiales données.

Diverses méthodes expérimentales existent pour déterminer les vitesses fondamentales de flamme, notamment les méthodes du tube ouvert (horizontal ou vertical), du bec Bunsen, du brûleur à flamme plate, de la bulle de savon et de la bombe sphérique. Bien que chaque technique possède ses avantages et ses inconvénients, c'est la méthode de la bombe sphérique qui est la plus adaptée à la détermination de la vitesse fondamentale de flamme [15,16].

C'est cette dernière, qui a été choisie, dans le cadre de ce travail, pour la détermination des vitesses fondamentales de flamme. Cette méthode consiste à enflammer un mélange gazeux au centre d'une enceinte sphérique fermée. Dans les premiers instants de la propagation de la flamme, cette dernière est considérée comme sphérique et la vitesse fondamentale de flamme, S_L , est reliée de manière très simple à la vitesse spatiale de combustion, V_s , et au coefficient d'expansion des gaz, σ par l'équation suivante [17] :

$$S_L = \frac{V_s}{\sigma} \quad \text{Eq 1.8}$$

avec : $\sigma = \rho_u/\rho_b$ où ρ est la masse volumique des gaz. L'indice u s'applique aux gaz frais et l'indice b aux gaz brûlés.

D'un point de vue théorique, deux approches différentes peuvent être distinguées pour la détermination de la vitesse fondamentale de flamme : les approches thermiques basées sur les phénomènes de transport et les approches diffusionnelles fondées sur la diffusion des atomes et radicaux libres dans le milieu.

Il existe donc trois grands types de théories liées à ses approches, classifiées selon Evans [18,19] :

- Les théories thermiques : Mallard et le Châtelier [20] ; Damköhler [21] ; Bartholomé [22] ; Emmons, Harr et Strong [23] ; Bechert [24] ;
- Les théories diffusionnelles : Tanford et Peese [25] ; Van Tiggelen [26] ; Manson [27] ; Gaydon et Wolfhard [28] ;
- Les théories complètes basées sur les deux approches simultanément : Zel'dovich, Frank-Kamenetskii et Semenov² [29,30] ; Lewis et von Elbe [31] ; Boys et Corner [32] ; Hirschfelder et Curtiss [33] ; von Karmann et Penner [34].

Ci-dessous, deux théories aux approches différentes seront présentées de manière succincte : la théorie de Mallard et le Châtelier et la théorie de Zel'dovich, Frank-Kamenetskii et Semenov.

1.1.3.1 La théorie de Mallard et le Châtelier

Cette théorie est la première historiquement qui décrit la propagation d'une flamme. Elle a été développée par Mallard et le Châtelier et date de 1883. Cette théorie suppose que la

² La présence de l'approche de la théorie de Zel'dovich, Frank-Kamenetskii et Semenov dans cette catégorie est explicitée dans le paragraphe la décrivant.

propagation de la flamme est contrôlée par les transferts thermiques, de proche en proche à travers les différentes couches de gaz, depuis la zone réactionnelle où elle est relâchée vers les gaz frais. Développée à partir de l'équation de l'énergie, cette théorie repose sur l'hypothèse que la flamme est composée de deux zones : une zone de préchauffage et une zone de réaction. Elles sont séparées par le point où la couche suivante s'enflamme [3,20].

Dans la zone de préchauffage, les gaz sont chauffés progressivement de la température initiale T_i à la température d'inflammation T_{infl} alors que dans la zone de réaction, la température varie de T_{infl} à T_f , la température de flamme.

En considérant une variation linéaire de la température dans la zone de préchauffage, une flamme unidimensionnelle et un écoulement des gaz frais à la normale du front de flamme, la vitesse fondamentale de flamme laminaire, S_L , s'exprime :

$$S_L = \frac{\lambda}{\rho \cdot C_p} \cdot \frac{(T_f - T_{infl})}{(T_{infl} - T_i)} \cdot \frac{1}{\delta_r} \quad Eq 1.9$$

avec : λ : la conductivité thermique, ρ : la masse volumique, C_p : la capacité calorifique à pression constante, T_f : la température de flamme, T_{infl} : la température d'inflammation, T_i : la température initiale et δ_r : l'épaisseur de la zone réactionnelle.

L'épaisseur de la zone réactionnelle étant proportionnelle à la vitesse de propagation et à la vitesse de réaction, cela permet une meilleure représentation de la grandeur δ_r qui n'est pas connue.

$$\delta_r = S_L \cdot \frac{dt}{d\varepsilon} \quad Eq 1.10$$

avec : t : le temps de réaction et ε : la variable d'avancement de la réaction chimique.

L'expression de la vitesse fondamentale de flamme laminaire s'écrit finalement :

$$S_L = \sqrt{\frac{\lambda}{\rho \cdot C_p} \cdot \frac{(T_f - T_{infl})}{(T_{infl} - T_i)} \cdot \frac{d\varepsilon}{dt}} \quad Eq 1.11$$

Cette expression montre que la vitesse fondamentale de flamme dépend de la diffusivité thermique et de la vitesse de réaction chimique comme exprimée dans l'équation suivante :

$$S_L \propto \sqrt{\alpha \cdot \frac{d\varepsilon}{dt}} \quad Eq 1.12$$

avec : α : la diffusivité thermique.

La dépendance de la variable d'avancement de la réaction chimique par rapport à la température et à la pression du milieu permet d'exprimer l'évolution de la vitesse fondamentale de flamme en fonction de ces deux paramètres [19].

Pour la pression :

$$S_L \propto \sqrt{P^{n-2}} \quad \text{Eq 1.13}$$

Pour la température :

$$S_L \propto \exp\left(\frac{-E_A}{2 \cdot R \cdot T_f}\right) \quad \text{Eq 1.14}$$

avec : E_A : l'énergie d'activation et R : la constante universelle des gaz parfaits.

Cette première théorie de la déflagration permet de prédire qualitativement les évolutions de la vitesse de flamme mais elle repose cependant sur un paramètre subjectif et difficilement estimable, la température d'inflammation.

1.1.3.2 La théorie de Zel'dovich, Frank-Kamenetskii et Semenov

Cette théorie, reposant sur celle de Le Châtelier, est identifiée par Evans [18] comme une théorie complète. Néanmoins, certains ne la considèrent pas ainsi, car bien qu'ajoutant la diffusion des espèces à la théorie thermique de Mallard et le Châtelier, elle ne fait pas intervenir la diffusion des radicaux. Ici, nous considérerons la classification d'Evans [19].

Cette théorie, basée sur celle de Mallard et le Châtelier, divise également la flamme en deux zones : une zone de préchauffage et une zone de réaction. Cependant au lieu de considérer l'équation de l'énergie seule, Zel'dovich, Frank-Kamenetskii et Semenov y ajoutent l'équation de conservation des espèces. La température d'inflammation nécessaire à l'établissement des équations disparaît des calculs, les auteurs la considérant comme toujours proche de la température de flamme.

D'autres hypothèses sont formulées en plus par les auteurs. La pression, le nombre de moles intervenant dans la réaction, la capacité calorifique à pression constante et la conductivité thermique sont considérés comme constants. Le nombre de Lewis, Le , égal au rapport des diffusivités massique et thermique, est pris égal à l'unité. Enfin la flamme est considérée comme unidimensionnelle et stationnaire [16,19].

La résolution des équations de conservation de la masse et de l'énergie permet d'obtenir une solution analytique dans le cas où les nombres de Schmidt³ et de Prandtl⁴ sont égaux à 1. En considérant une réaction d'ordre global n , la vitesse de flamme laminaire s'écrit [35] :

³ Le nombre de Schmidt représente le rapport entre la diffusion de quantité de mouvement et la diffusion de la matière et est égal à : $Sc = \mu / \rho D$ avec : D : le coefficient de diffusion.

⁴ Le nombre de Prandtl représente le rapport entre la diffusion de quantité de mouvement et la conduction de la chaleur et est égal à : $Pr = \mu C_p / \lambda$.

$$S_L = \left(\frac{2 \cdot \lambda \cdot \Delta h^\circ \cdot \bar{w}}{\rho^2 \cdot C_p^2 \cdot (T_f - T_i)} \right) \text{ avec } \bar{w} = \frac{1}{T_f - T_i} \int_{T_i}^{T_f} \dot{w} \cdot dT \quad \text{Eq 1.15}$$

avec : Δh° : l'enthalpie massique et \dot{w} : le taux de réaction.

Cette équation traduit bien la dépendance de la vitesse fondamentale de flamme vis-à-vis de la diffusivité thermique et de la vitesse de réaction, cependant les valeurs de vitesses de flamme obtenues avec cette expression ne sont pas suffisamment précises.

1.1.3.3 Energie d'activation et nombre de Zel'dovich

D'un point de vue historique, l'évaluation de l'énergie globale d'activation peut être fondée sur l'approche simple proposée par Mallard et Le Châtelier [20] pour l'expression de la vitesse de flamme elle-même basée sur sa dépendance vis-à-vis de la diffusivité thermique α et du taux de conversion chimique \dot{w} .

$$S_L \approx (\alpha \cdot \dot{w})^{1/2} \quad \text{Eq 1.16}$$

Ici, c'est l'analyse de Zel'dovich et coll. [36], qui pour une réaction se déroulant en une étape unique suivant la loi d'Arrhénus montre que la vitesse de flamme laminaire est proportionnelle à l'énergie d'activation, qui est utilisée :

$$S_L^0 \approx \left[\exp\left(\frac{E_A}{R \cdot T_f}\right) \right]^{1/2} \quad \text{Eq 1.17}$$

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

$$(S_L)^2 \approx A \cdot \exp\left(-\frac{E_A}{R \cdot T_f}\right) \quad \text{Eq 1.18}$$

avec : A : un coefficient pré-exponentiel, E_A : l'énergie d'activation globale de la réaction, R : la constante des gaz parfaits et T_f : la température des gaz brûlés. En réécrivant l'expression précédente, le logarithme de la vitesse de flamme se trouve défini comme étant fonction de l'inverse de la température des gaz brûlés.

$$2 \ln S_L \approx \ln A - \frac{E_A}{R} \cdot \frac{1}{T_f} \quad \text{Eq 1.19}$$

Le tracé de l'évolution de la quantité $2 \ln(S_L)$ en fonction de l'inverse de la température des gaz brûlés donne une pente dont le coefficient nous permet de déduire l'énergie d'activation.

Zel'dovich et Frank-Kamenetskii en considérant le comportement non-linéaire du taux de réaction et, en utilisant le formalisme de Mallard et Le Châtelier, ont introduit en 1938 un nombre sans dimension, β , appelé nombre de Zel'dovich représentant l'énergie d'activation normalisée [37]. Il est défini par la relation suivante :

$$\beta = \frac{E_a}{R \cdot T_f^2} (T_f - T_0) \quad \text{Eq 1.20}$$

avec : T_B la température des gaz brûlés et T_0 : la température des gaz frais.

Ainsi, ce nombre adimensionnel qui rend compte de la réactivité du mélange peut être estimé sur la base d'un modèle cinétique détaillé et des calculs à l'équilibre thermodynamique.

1.1.3.4 Epaisseur d'une flamme laminaire

Dans le cadre de la propagation d'une flamme en régime laminaire, Mallard et le Châtelier furent les premiers à décrire la structure de la flamme. Comme décrit précédemment (cf. 1.1.3.1), dans la 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. Cette zone est divisée en deux parties d'épaisseur très inégale (Figure 1-11) :

- Une zone de préchauffage, d'épaisseur δ_p , dans laquelle la conduction de chaleur et la diffusion de masse (qui est négligée par Mallard et Le Châtelier dans leur théorie) 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 passent la réaction de combustion et le dégagement de chaleur. Ainsi, selon Mallard et le Châtelier, cette zone est délimitée d'une part par la température d'inflammation et d'autre part par la température d'équilibre atteinte par la réaction de combustion.

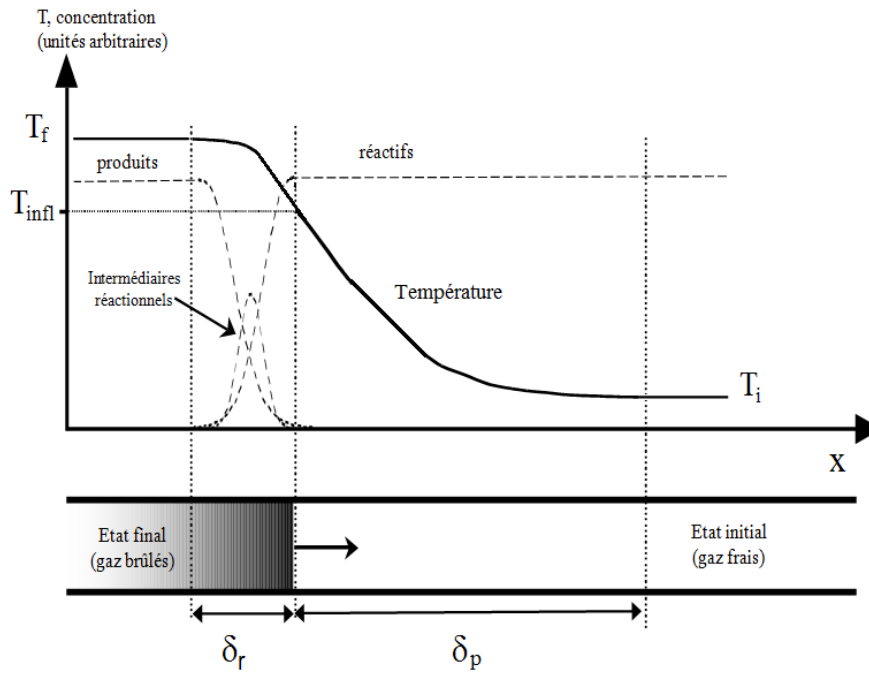


Figure 1-11 : Structure du front de flamme d'une flamme laminaire de prémélange.

La détermination de l'épaisseur de flamme ($\delta = \delta_p + \delta_r$) se fait généralement à partir de la diffusivité thermique du mélange normalisée par la vitesse de flamme laminaire [3].

$$\delta \approx \delta_p \approx \frac{\lambda}{\rho \cdot C_p \cdot S_L^0} \quad \text{Eq 1.21}$$

Avec : λ : la conductivité thermique ; ρ : la masse volumique ; C_p : la capacité calorifique à pression constante et S_L^0 : la vitesse de flamme laminaire du mélange.

Dans la dernière équation une approximation est réalisée et l'épaisseur de flamme totale, δ , est remplacée par l'épaisseur de la zone de préchauffage, δ_p , car la zone de réaction est considérée comme très petite par rapport à la zone de préchauffage.

Cette équation est celle qui est la plus généralement utilisée dans la littérature, même si d'autres formules peuvent être trouvées. Lamoureux et coll. calculent l'épaisseur de flamme à partir du coefficient de diffusion de l'espèce combustible dans le mélange (dans leurs cas, le combustible est de l'hydrogène) normalisé par la vitesse de flamme laminaire [38].

L'épaisseur de la zone réactionnelle est reliée à celle de la zone de préchauffage par le nombre de Zel'dovich, selon l'équation :

$$\delta_r = \frac{\delta_p}{\beta} \quad \text{Eq 1.22}$$

De manière générale β étant très grand devant 1, δ_r devient très petit devant δ_p , ce qui confirme l'hypothèse émise précédemment.

Un troisième paramètre peut alors être défini et correspond au temps de transit, τ_c , des gaz à travers la flamme. Ce paramètre est défini selon l'équation suivante :

$$\tau_c = \frac{\delta_p}{S_L^0} \quad \text{Eq 1.23}$$

Ces trois derniers paramètres permettent de dresser les caractéristiques d'une flamme laminaire de prémélange pour un système combustible donné.

1.2 Etudes des vitesses de flamme des mélanges gazeux à base d'hydrogène

La vitesse fondamentale de flamme est un paramètre important caractéristique d'un mélange donné pour des conditions initiales données. Le Tableau 1-2 recense les différentes études réalisées sur les vitesses de flamme et les paramètres d'explosivité de mélanges gazeux à base d'hydrogène.

Référence	Date	Dispositif expérimental	Mélanges étudiés	Conditions expérimentales (P en kPa, T en K)
39	1959	Bec Bunsen	H ₂ /Air	H ₂ = 25-70 % vol, P _{ATM} , T = 293
40	1971	Bec Bunsen	H ₂ /Air	H ₂ = 50-65 % vol, P _{ATM} , T = 295
41	1972	Brûleur à flamme plate	H ₂ /Air	H ₂ = 15-70 % vol, P _{ATM} , T = 298
42	1972	Méthode du double noyau	H ₂ /Air	H ₂ = 10-70 % vol, P _{ATM} , T = 298
43	1983	Brûleur avec une flamme conique lisse	H ₂ /Air ; H ₂ /H ₂ O _{vap} /Air	H ₂ = 18-65 % vol, P _{ATM} , T = 296-523
44	1984	Brûleur à flamme plate ; Bec Bunsen	H ₂ /Air	H ₂ = 22-70 % vol, P _{ATM} , T _{AMB}
45	1984	Bombe sphérique	H ₂ /Air	$\Phi = 1$, P = 51-709, T = 300-550
46	1986	Bombe sphérique	H ₂ /Air	$\Phi = 0,5-4$, P = 51-3040, T = 291-500
47	1986	Flamme conique stabilisée sur brûleur	H ₂ /O ₂ /Diluants (Ar, He, N ₂ , H ₂ O _{vap})	H ₂ = 20-65 % vol, P _{ATM} , T = 298-523
48	1990	Bombe sphérique	H ₂ /Air	H ₂ = 9-68 % vol, P = 101, T = 296
49	1990	Brûleurs à contre-courant	H ₂ /O ₂ /N ₂	$\Phi = 0,153-2,2$, P = 20-228, T _{AMB}

50	1992	Enceinte quasi-sphérique	H ₂ /O ₂ /N ₂	Φ = 1,00-4,83, P = 304, T = 298
51	1993	Technique du double noyau	H ₂ /Air ; H ₂ /H ₂ O _{vap} /Air	H ₂ = 7-70 % vol, P = 100, T = 298
52	1995	3 Enceintes : 1 cylindrique et 2 sphériques	H ₂ /O ₂ /Diluants (Ar, CO ₂ , He, N ₂ , H ₂ O _{vap})	H ₂ = 3-30 % vol, P = 100-4000, T = 293-523
53	1997	Bombe sphérique	H ₂ /Air	Φ = 0,3-5,0, P = 101, T = 298
54	1998	Bombe sphérique	H ₂ /O ₂ /N ₂	Φ = 0,45-4,00, P = 36-40, T = 298
55	2000	Flamme conique stabilisée sur brûleur	H ₂ /Air	Φ = 0,6-3,0, P = 100-500, T _{AMB}
56	2000	Chambre cylindrique	H ₂ /O ₂ /N ₂ ; H ₂ /O ₂ /He	Φ = 0,5-4,0, P = 101-608, T = 298
57	2003	Bombe sphérique	H ₂ /Air ; H ₂ /Air/He/CO ₂	Φ = 0,28-3,75, P = 100, T _{AMB}
58	2005	Bombe sphérique	H ₂ /O ₂ /Diluants (He, N ₂) ; H ₂ /Air/He/CO ₂	H ₂ = 10-65 % vol, P = 100-500, T = 298
59	2005	Bombe sphérique	H ₂ /O ₂ /Diluants (Ar, CO ₂ , He, N ₂)	Φ = 1,0 et 1,8, P = 51-101, T = 298
60	2005	Bombe sphérique	H ₂ /Air	Φ = 0,3-1, P = 100-1000, T = 300-430
61	2006	Chambre cylindrique	H ₂ /Air	Φ = 0,8-3,2, P = 101, T = 298
62	2007	Bombe sphérique	H ₂ /Air	Φ = 0,3-1,0, P = 100-1000, T = 300-365
63	2007	Bombe sphérique ; Tube de chute libre	H ₂ /O ₂ /Diluants (Ar, CO ₂ , He, N ₂)	Φ = 1,0 et 1,8, P = 51-101, T = 298, Microgravité
64	2009	Chambre cylindrique	H ₂ /O ₂ /N ₂	Φ = 0,4-5, P = 100-5000, T = 303-443
65	2009	Brûleur à flamme plate	H ₂ /O ₂ /Diluants (Ar, CO ₂ , N ₂)	Φ = 0,8-2,5, P _{ATM} , T = 300
66	2009	Chambre cylindrique	H ₂ /O ₂ /N ₂	Φ = 0,6-1,4, P = 100-500, T = 300-440

Tableau 1-2 : Recensement d'études concernant les mélanges à base d'hydrogène et d'oxygène.

1.2.1 Influence de la richesse

En 1983, Liu et Mac Farlane [43] ont mesuré les vitesses de flamme des mélanges H₂/Air et H₂/H₂O_{vap}/Air 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.

Le pourcentage volumique en hydrogène des mélanges H₂/Air est compris entre 18 et 65 %vol. La Figure 1-12 représente un ensemble de mesures de vitesses normales de combustion de mélanges hydrogène-air selon différents auteurs de la littérature. Les différentes études montrent une évolution de la vitesse de flamme en forme de cloche avec des maxima de vitesses obtenus pour des mélanges contenant 42 %vol d'hydrogène. Les maxima de vitesses sont obtenus avec une grande dispersion. Les vitesses sont comprises entre 2,65 et 3,5 m/s. Cette dispersion est due aux différentes approches expérimentales utilisées pour réaliser la mesure de la vitesse de flamme.

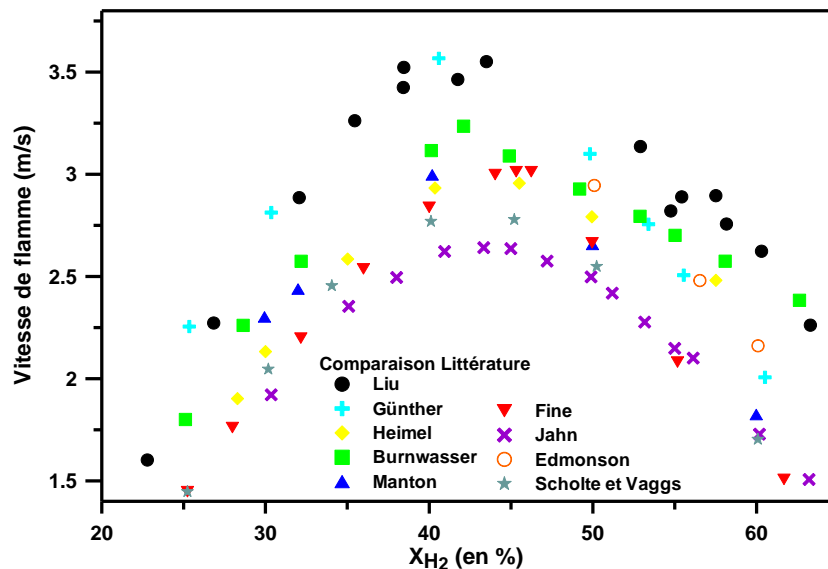


Figure 1-12 : Vitesse fondamentale de flamme (en m/s) en fonction du pourcentage volumique d'hydrogène dans l'air à pression atmosphérique et température ambiante [43]

En 1993, Koroll et coll. [51] ont évalué les vitesses de flamme de mélanges H₂/Air pour des pourcentages d'hydrogène dans l'air compris entre 7 et 70 %vol pour une pression initiale de 100 kPa et une température de 298 K. La méthode employée pour mesurer ces vitesses de flamme est celle des doubles noyaux. Cette méthode consiste en deux systèmes d'électrodes en série et distants de quelques centimètres qui enflamment de façon simultanée le mélange dans l'enceinte. La visualisation des fronts de flamme se fait à l'aide d'un système optique de type Schlieren couplé à de l'imagerie 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 fronts de flamme sont très proches l'un de l'autre. Pour cette étude, une enceinte sphérique de 17 L a été utilisée et la distance entre les deux systèmes d'électrodes était de 4 cm.

Les résultats de cette étude sont donnés sur la Figure 1-13. Ceux-ci montrent que pour les mélanges pauvres, un bon accord est obtenu entre leurs résultats et ceux de la littérature. Par contre, le maximum de vitesse est sous estimé par la méthode du double noyau, alors que

les vitesses obtenues dans le cas des flammes stabilisées sont en bon accord avec Liu et Mac Farlane ainsi qu'avec Günther. Pour les mélanges riches, une plus grande dispersion des données est observée. Pour des teneurs en hydrogène supérieures à 50 %vol, c'est la méthode du double noyau qui donne les valeurs de vitesses les plus faibles.

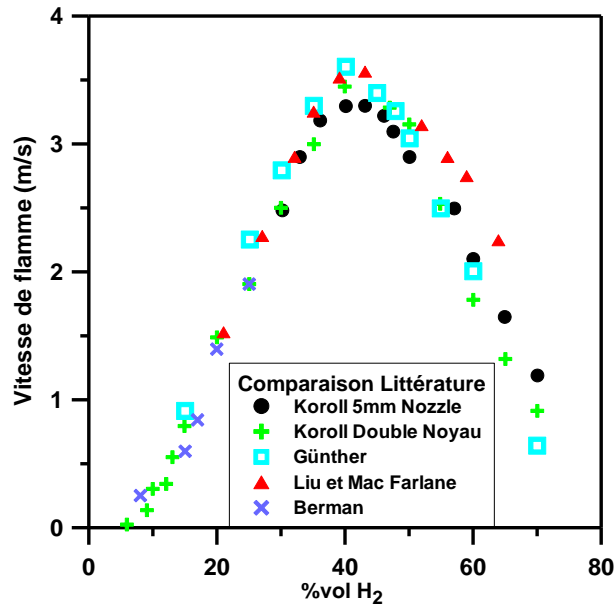


Figure 1-13 : Vitesses fondamentales de flamme (en m/s) en fonction du pourcentage d'hydrogène dans l'air à 100 kPa et à 298 K [51]

En 2003, une étude publiée par Lamoureux et coll. [57], et menée dans le cadre de leurs travaux sur la détermination des vitesses fondamentales de flamme à étirement nul de mélanges H₂/Air dilués ou non par un mélange mimique de la vapeur d'eau : Hélium/Dioxyde de carbone, a permis de déterminer les vitesses fondamentales des flammes hydrogène-air dans un large domaine de rapport d'équivalence. Dans cette étude, l'air est constitué de 20 % vol d'oxygène et de 80 % vol d'azote.

La Figure 1-14 représente les données expérimentales obtenues par Lamoureux et coll. avec une comparaison avec les valeurs de la littérature. La vitesse de flamme a un comportement en forme de cloche. Elle augmente jusqu'à atteindre son maximum pour une richesse de 1,8 ($S_{L^0} \approx 280$ cm/s) puis diminue. La comparaison avec la littérature montre qu'un bon accord est obtenu avec les différents auteurs à l'exception de Liu et Mac Farlane [43] et de Koroll et coll. [51]. En effet, les résultats acquis par ces deux auteurs ont été obtenus sans tenir compte de l'effet de l'étirement de la flamme sur la vitesse fondamentale de flamme. Ils obtiennent donc des valeurs supérieures à celles produites par la littérature plus récente.

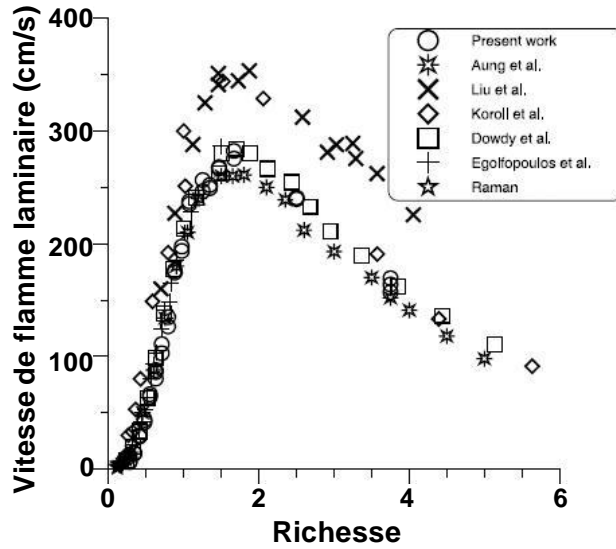


Figure 1-14 : Vitesses fondamentales de flamme (en cm/s) en fonction de la richesse pour différents mélanges H_2 /Air et comparaison avec la littérature à 100 kPa et à température ambiante [57]

1.2.2 Influence de la température initiale

Liu et Mac Farlane [43], en 1983, en plus d'étudier l'impact de la richesse sur les vitesses de flamme pour un mélange H_2 /Air, ont caractérisé l'influence de la température initiale sur cette dernière. Leurs travaux portent sur des températures initiales variant de 298 à 523 K. Les résultats sont présentés sur la Figure 1-15. Ils montrent que lorsque la température initiale augmente, la vitesse de flamme augmente. La valeur maximale de la vitesse de flamme augmente de 3,5 m/s à 8,5 m/s lorsque la température initiale varie de 298 à 523 K pour un pourcentage en hydrogène dans le milieu compris entre 42 et 44%.

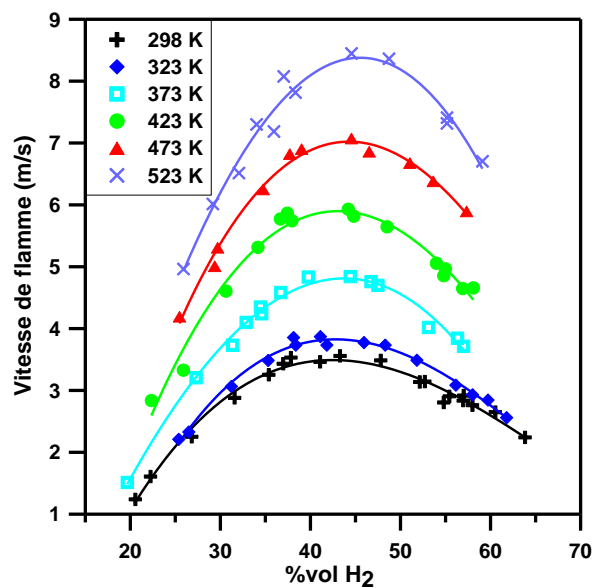


Figure 1-15 : Vitesses fondamentales de flamme en fonction de la quantité d'hydrogène dans l'air pour des mélanges H_2 /Air à différentes températures initiales et à 1 bar [43]

L'étude de ces résultats nous permet de proposer une corrélation de type :

$$V_f = (a_1 \cdot X(H_2)^2 + a_2 \cdot X(H_2) + a_3) \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}} \right)^{a_T} \quad \text{Eq 1.24}$$

où : V_f : la vitesse de flamme (en m/s) des mélanges $H_2/O_2/N_2$; $X(H_2)$: le pourcentage molaire en hydrogène dans le milieu ; T_{ini} : la température initiale du mélange (en K) ; T_{ref} : la température de référence (298 K) et a_1 , a_2 , a_3 et a_T : les différents coefficients de l'équation.

L'équation suivante est alors obtenue :

$$V_f = (-0,0038 \cdot X(H_2)^2 + 0,3419 \cdot X(H_2) + -4,2107) \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}} \right)^{1,5841} \quad \text{Eq 1.25}$$

Le coefficient de l'influence de la température initiale est de 1,5841, ce qui montre une forte dépendance positive à la température de la vitesse de flamme des mélanges $H_2/O_2/N_2$. On réalise cette corrélation sur l'ensemble du domaine pour simplifier la corrélation des résultats. Cependant, on remarque que le coefficient a_T varie en fonction de la teneur en hydrogène dans le milieu.

On utilise alors une autre équation (Eq 1.26) pour déterminer l'impact de la température initiale pour différentes teneurs en hydrogène :

$$\frac{V_f}{V_{f \text{ ref}}} = f \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}} \right)^{a_T} \quad \text{Eq 1.26}$$

où : V_f : la vitesse de flamme (en m/s) des mélanges $H_2/O_2/N_2$; T_{ini} : la température initiale du mélange (en K) ; l'indice ref s'appliquant aux données à la température de référence.

Le Tableau 1-3 montre les différents coefficients a_T sur la température en fonction de la fraction molaire en hydrogène dans le mélange. On remarque que l'impact de la température devient plus faible pour les mélanges où la vitesse de flamme, pour une température donnée, est la plus importante.

Fraction molaire en hydrogène dans le milieu	Coefficient a_T sur la température
Entre 25 et 26 % mol	1,6822
Entre 37 et 38 % mol	1,4938
Entre 43 et 44 % mol	1,5337
Entre 55 et 57 % mol	1,6884

Tableau 1-3 : Coefficient a_T sur la température pour différentes fractions molaires en hydrogène dans le mélange [43].

En 2009, Hu et coll. [64] ont également étudié les mélanges H_2/Air sur une large gamme de richesse ($\Phi = 0,4 - 5$) pour différentes températures ($T_{ini} = 303 - 443$ K) et pressions initiales ($P_{ini} = 100 - 500$ kPa). Ces expériences ont été réalisées dans une chambre de combustion de 5,5 L. La visualisation de la propagation de la flamme se fait à l'aide d'un système d'ombroscopie et d'une caméra rapide. Les données obtenues par Hu et coll. sont présentées sur la Figure 1-16. Les résultats montrent que, comme précédemment, le maximum de vitesse de flamme est obtenu pour une richesse égale à 1,8. De plus, une augmentation de la température initiale induit une augmentation de la vitesse de flamme du mélange. Une corrélation du même type que celle réalisée pour Liu et Mac Farlane (Eq 1.24) peut donc être calculée. Celle-ci nous donne un coefficient sur la température de 1,415 ce qui est en bon accord avec les résultats obtenus pour les données de Liu.

Comme précédemment, on observe que l'impact de la température est plus ou moins important selon la richesse du mélange. Les résultats de l'impact de la température sur la vitesse de flamme, tirés de l'Eq 1.26 sont donnés dans le Tableau 1-4. Ceux-ci montrent que l'impact de la température initiale suit une évolution inverse de la vitesse de flamme en fonction de la richesse. En effet, la vitesse de flamme augmente avec la richesse jusqu'à atteindre son maximum pour une richesse de 1,8. Au-delà, la vitesse de flamme diminue. L'impact de la température sur les vitesses de flamme, lui, diminue avec l'augmentation de la richesse jusqu'à atteindre son minimum pour une richesse de 1,8. Au-delà la valeur du coefficient n augmente. On remarque que les valeurs obtenues sont en bon accord, bien que plus faibles, avec celles Liu et Mac Farlane.

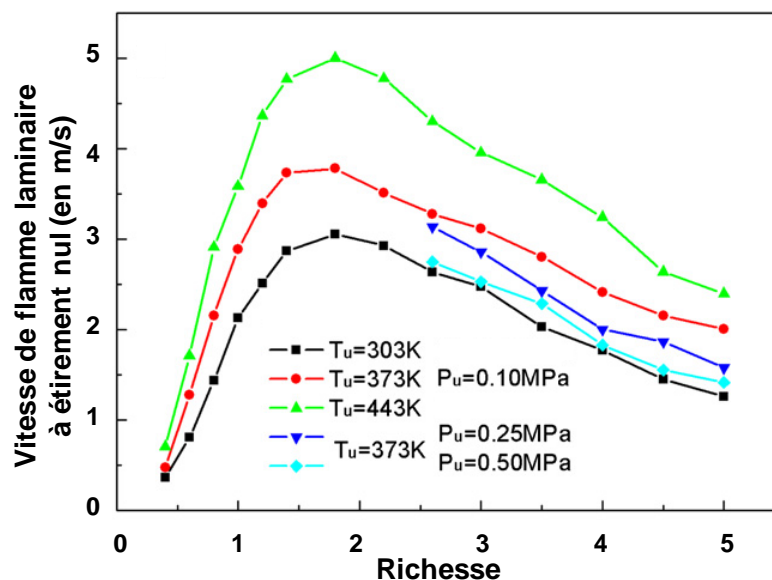


Figure 1-16 : Vitesses de flamme laminaire à étirement nul en fonction de la richesse pour des mélanges H_2/Air à différentes pressions (notées P_U) et températures initiales [64]

Richesse	Coefficient a_T sur la température
0,4	1,7158
1	1,3746
1,8	1,2756
3,5	1,5361

Tableau 1-4 : Coefficient a_T sur la température pour différentes richesses [64]

D'autres corrélations existent dans la littérature. Verhelst et coll., dans leur étude sur les mélanges H_2 /Air dans des conditions proches de celles des moteurs, les recensent. L'équation de Verhelst et coll. reliant la vitesse de flamme à la température et à la pression est la suivante [60] :

$$V_f = V_{f\ ref} \cdot \left(\frac{T}{T_{ref}} \right)^{a_T} \cdot \left(\frac{P}{P_{ref}} \right)^{a_P} \quad \text{Eq 1.27}$$

où : indice ref signifie les conditions choisies comme référence ; a_T et a_P : coefficients de l'équation dépendant de la richesse du mélange.

Les données recensées par Verhelst et coll., sont présentées dans le Tableau 1-5. Elles montrent un bon accord entre les différentes études, mis à part Malet qui trouve un coefficient bien supérieur (2,2). La plupart des différents travaux s'accorde, néanmoins, sur une influence de la température avec un coefficient compris entre 1,3 et 1,6, coefficient permettant de conclure à une influence positive de la température initiale sur la vitesse de flamme.

Référence	Auteurs	Domaine de richesse (Φ)	Coefficient a_T sur la température
60	Verhelst et coll.	0,5-1	1,57
43	Liu et Mac Farlane	0,5-1	1,64 ⁵
47	Koroll et coll.	0,5-1	1,64
46	Iijima et Takano	0,5-1	1,53
60	Verhelst et coll.	1	1,32
45	Milton et Keck	1	1,26
58	Malet (non référencé par Verhelst)	0,24-0,7	2,2

Tableau 1-5 : Influence de la température initiale sur la vitesse de flamme de mélanges H_2 /Air à 100 kPa [58, 60].

⁵ Le coefficient obtenu par Verhelst et coll. [60] est légèrement différent de celui obtenu pour l'Eq 1.25. Cette différence s'explique par le fait que les domaines de validité au niveau de la richesse sont très différents.

1.2.3 Influence de la pression initiale

En 1998, Aung et coll. [54] ont étudié l'effet de la pression initiale et de la dilution par l'azote sur les vitesses de flamme de mélanges $H_2/O_2/N_2$ 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. La richesse des mélanges était dans une gamme comprise entre 0,45 et 4, pour des pressions initiales entre 35 et 405 kPa et pour des rapports $O_2/(O_2+N_2)$ compris entre 0,125 et 0,21. Les résultats obtenus par Aung et coll. sont représentés sur la Figure 1-17.

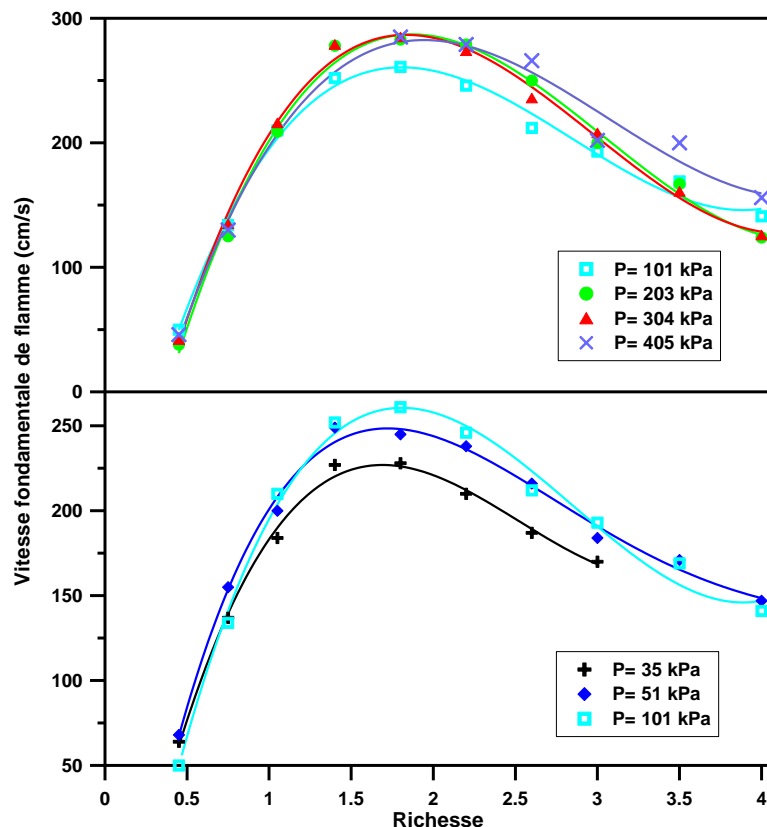


Figure 1-17 : Vitesses fondamentales de flamme en fonction de la richesse pour des mélanges H_2/Air à $T = 298 K$ pour différentes pressions initiales [54].

Les résultats d'Aung et coll. [54] montrent que l'impact de la pression initiale sur la vitesse de flamme dépend du domaine de pression et du domaine de richesse :

- pour des pressions inférieures ou égales à la pression atmosphérique (101 kPa), la pression ne semble avoir qu'un impact très limité pour les mélanges pauvres. Par contre pour des richesses supérieures ou égales à l'unité, l'augmentation de la pression a pour effet d'augmenter la vitesse de flamme. Le maximum de vitesse est observé à la même richesse pour les trois pressions initiales étudiées.

- pour des pressions supérieures à la pression atmosphérique, entre 203 et 405 kPa, l'effet de l'augmentation de la pression dépend aussi de la richesse. Pour des richesses

inférieures à 1,4, la vitesse de flamme est indépendante de la pression. Pour des richesses supérieures à 1,4, on note une disparité dans les résultats qui rend difficile toute conclusion.

Verhelst et coll., en plus d'avoir étudié l'effet de la température initiale (cf. 1.2.2) sur la vitesse de flamme, ont également caractérisé l'impact de la pression sur les mélanges H₂/Air. La Figure 1-18 représente la vitesse de flamme de mélanges H₂/Air en fonction de la richesse. À partir d'une richesse de 0,6, pour une T_{ini} = 365 K, une augmentation de la pression initiale entre 100 et 1000 kPa induit une augmentation de la vitesse de flamme. Le domaine de richesse entre 0,6 et 1 correspond, comme pour Aung et coll. à des vitesses de flamme supérieures à 150 cm/s. En deçà de ce domaine de richesse et donc pour des vitesses inférieures à 150 cm/s, aucune tendance sur l'impact de la pression ne se dégage [60].

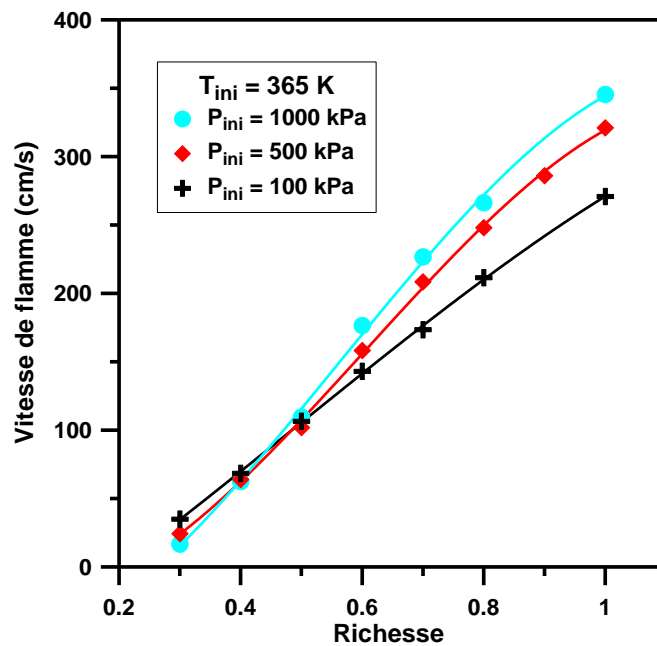


Figure 1-18 : Vitesses fondamentales de flamme de mélanges H₂/air en fonction de la richesse pour différentes pressions initiales et à 365 K [60]

Verhelst calcule pour chacune de ces conditions le coefficient d'impact sur la pression selon l'Eq 1.27. Les résultats sont rassemblés dans le Tableau 1-6. Ils confirment ce qui a été observée dans la figure précédente. En effet, on remarque, pour une température initiale de 365 K, qu'à partir d'une richesse de 0,6, le coefficient a_p sur l'impact de la pression initiale sur les vitesses de flamme est positif et est environ égal à 0,1. Pour des richesses inférieures à 0,6, le coefficient a_p devient négatif. Pour une température de 300 K, il est positif à partir d'une richesse de 0,4.

T = 300 K		T = 365 K	
Richesse	Coefficient a_p sur la pression	Richesse	Coefficient a_p sur la pression
0,3	-0,083	0,3	-0,263
0,4	0,041	0,4	-0,028
0,5	0,075	0,5	-0,003
0,6	0,096	0,6	0,082
0,8	0,072	0,7	0,119
		0,8	0,102
		1	0,106

Tableau 1-6 : Coefficients a_p sur la pression, tirés de l'Eq 1.27 [60]

D'autres auteurs ont également déterminé un coefficient sur la pression dans des équations semblables à celles vues précédemment.

En 2005, Malet a étudié des mélanges H₂/Air (l'air est composé, dans cette étude, de 20 %vol d'O₂ et de 80 %vol de N₂) dans une bombe sphérique de 8 L, à 298 K, pour des pressions initiales allant de 100 à 500 kPa. Il réalise par la suite une corrélation pour un domaine de richesse compris entre 0,24 et 0,7 et trouve un coefficient d'impact de la pression sur les vitesses de flamme de -0,5. Cette valeur est largement inférieure à celles obtenues par les autres études [58].

En 2009, Hu et coll. [64] ont étudié les mélanges H₂/Air sur une large gamme de richesse ($\Phi = 0,4 - 5$) pour différentes températures ($T_{ini} = 303 - 443$ K) et pressions initiales ($P_{ini} = 100 - 500$ kPa). Le système expérimental a été décrit précédemment (cf. 1.2.2) et les résultats sont montrés sur la Figure 1-16.

Pour un domaine de richesse compris entre 2,6 et 5, pour une température initiale de 373 K et un domaine de pression allant de 100 à 500 kPa, la corrélation donne un facteur sur la pression pour l'équation de Hu égal à -0,1421. Dans le cas de ces expériences, même pour des vitesses de flamme supérieures à 150 cm/s, l'influence de la pression initiale sur les vitesses de flamme est négative.

De manière générale, on remarque que l'influence de la pression (les coefficients sont compris entre environ -0,5 et 0,1) est en valeur absolue très inférieure à celle que peut avoir la température (les coefficients sont généralement compris autour de 1,5).

La Figure 1-19 montre une comparaison des différentes valeurs de vitesse de flamme tirées de la littérature pour des pressions initiales de 100 et 500 kPa pour différentes températures initiales (298 et 365 - 373 K). On remarque qu'il existe un manque de données, dans la littérature, concernant les mélanges à 365 - 373 K pour des richesses comprises entre 1 et 2,5. Les valeurs de Malet [58] et d'Aung et coll. [54] se confondent pour les mélanges pauvres. Cependant, au-delà d'une richesse de 1, on note que les valeurs de Malet sont légèrement plus élevées que celles d'Aung et coll. sur tout le domaine.

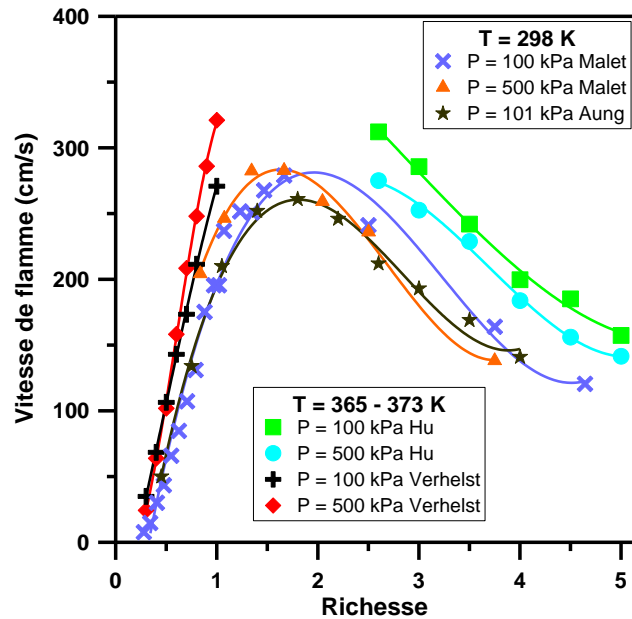


Figure 1-19 : Comparaison entre les vitesses fondamentales de flamme tirées de la littérature pour des pressions de 100 et 500 kPa pour deux températures initiales différentes (298 et 365-373 K).

1.2.4 Influence de la dilution

Différentes études portant sur l'impact de nombreux diluants sur les mélanges H_2/O_2 ou H_2/Air ont été réalisées. Celles-ci portent sur l'utilisation, comme diluants : la vapeur d'eau (études de Liu et Mac Farlane [43], Koroll et coll. [47,51], Shebeko et coll. [52]), le dioxyde de carbone (Shebeko et coll. [52], Qiao et coll. [59,63], Lamoureux et coll. en mélange avec l'hélium [57], Ratna Kishore [65]), l'argon (Koroll et coll. [47], Shebeko et coll. [52], Qiao et coll. [59,63], Ratna Kishore [65]) et l'azote (Koroll et coll. [47], Egolfopoulos et Law [49], Shebeko et coll. [52], Malet [58], Qiao et coll. [59,63], Ratna Kishore [65], Tang et coll. [66]). Dans ce paragraphe, nous ne nous intéresserons qu'à l'impact de l'azote sur les mélanges H_2/O_2 et H_2/Air .

En 1986, Koroll et Mulpuru [47] ont travaillé sur l'effet de la dilution par différents diluants (H_2O_{vapeur} , N_2 , He, CO_2) sur la vitesse de flamme et la structure de flammes de mélanges H_2/Air . Leur étude a été réalisée avec un brûleur équipé d'un convergent afin d'obtenir une flamme conique lisse. Le mélange étudié est le mélange H_2/O_2 avec un rapport de quantité de matière de 2 pour 1 en faveur de l'hydrogène afin d'obtenir un mélange stœchiométrique quel que soit la quantité et le type de diluant utilisé.

La Figure 1-20 représente la vitesse de flamme du mélange H_2/O_2 stœchiométrique pour différentes quantités de N_2 ajoutées dans le milieu à deux températures différentes (298 et 373 K). Pour les deux mélanges, un accroissement de la quantité d'azote dans le milieu conduit à une diminution de la vitesse de flamme du mélange. En effet, une présence dans le milieu d'un peu plus de 30 %mol d'azote conduit à une division de la vitesse par 2. De plus,

une quantité d'azote dans le milieu de l'ordre de 84-85% conduit à une non-inflammation du mélange.

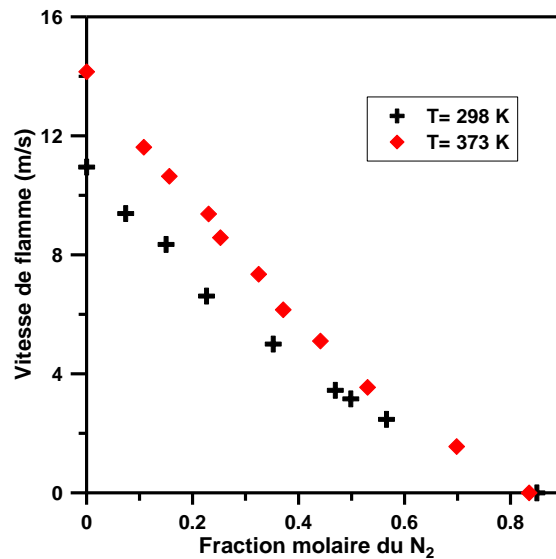


Figure 1-20 : Vitesses fondamentales de flamme en fonction de la fraction molaire en azote pour un mélange H₂/O₂/N₂ stœchiométrique à différentes températures et à pression atmosphérique [47]

En 1990, Egolfopoulos et Law [49] ont étudié l'impact de la dilution par l'azote sur les vitesses de flamme de mélanges H₂/Air. La méthode utilisée est celle des brûleurs à contre-courant. Les flammes sont observées par vélocimétrie laser à effet Doppler. La Figure 1-21 représente les vitesses de flamme de mélanges H₂/O₂/N₂ en fonction de la richesse pour différents rapports O₂/(O₂+N₂) (0,077, 0,107 et 0,3) dans le milieu à pression atmosphérique et température ambiante. Pour deux rapports (0,107 et 0,3), une augmentation de la concentration en hydrogène dans le mélange et par la même une diminution de la concentration en oxygène conduit à une augmentation de la vitesse de la flamme. Cependant, lorsque la concentration en oxygène devient trop faible dans le milieu, par exemple à partir de 18 % mol en H₂ pour un rapport O₂/(O₂+N₂) = 0,077 ce qui correspond à une richesse de 1,8, la vitesse de flamme diminue à nouveau.

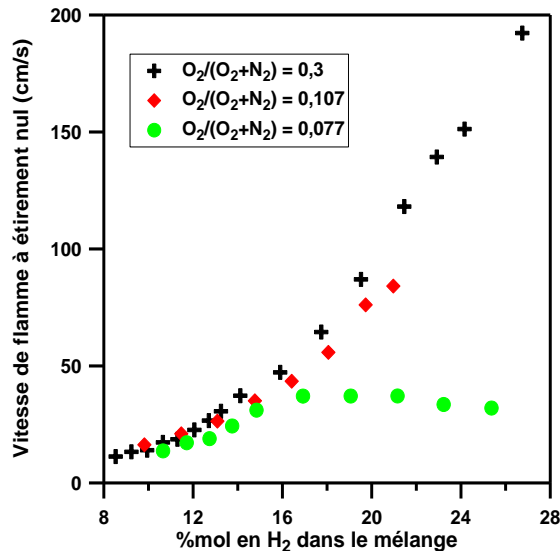


Figure 1-21 : Vitesses fondamentales de flammes de mélanges H₂/O₂/N₂ en fonction de la fraction en H₂ (%vol) présente dans le mélange pour différents rapports O₂/(O₂+N₂) à température ambiante et pression atmosphérique [49].

Le deuxième point représenté, ici, concerne l'effet de la présence supplémentaire d'oxygène dans le milieu sur les vitesses de flamme des mélanges H₂/O₂/N₂. On remarque qu'à partir de 12 %mol d'hydrogène dans le milieu, une augmentation de la concentration en oxygène dans le milieu induit une augmentation de la vitesse du mélange. En deçà de cette concentration aucune tendance ne se dégage, les mélanges étant très pauvres en hydrogène celui-ci devient le facteur limitant.

Aung et coll. [54], comme écrit précédemment, ont étudié l'impact de la pression initiale et de la dilution par l'azote sur les vitesses de flamme laminaires de mélanges H₂/O₂/N₂. Leurs expériences ont été réalisées dans une bombe sphérique de 24 L [cf. 1.2.3]. Pour ce travail, les mélanges étudiés ont des richesses variant de 0,45 à 4, des pressions initiales de 35 à 405 kPa et des concentrations en oxygène dans le gaz non combustible variant de 0,125 à 0,210.

La Figure 1-22 représente les vitesses fondamentales de flamme de mélanges H₂/O₂/N₂ en fonction de la richesse pour différents rapports O₂/(O₂+N₂). Les rapports étudiés sont au nombre de 4 : 0,125 ; 0,150 ; 0,175 et 0,210 (ce rapport correspond à l'air). Les résultats montrent que pour les 4 rapports étudiés, la vitesse de flamme suit une évolution en forme de cloche avec un maximum pour une richesse de 1,8. Pour un rapport O₂/(O₂+N₂) de 0,125, la vitesse maximale de flamme est de 116 cm/s et de 221 cm/s pour un rapport O₂/(O₂+N₂) égal à 0,175.

Une augmentation de la teneur en oxygène (pour se rapprocher de la valeur dans de l'air standard) induit une augmentation de la vitesse de flamme sur tout le domaine de richesse étudié. En effet, pour une richesse de 3, la vitesse de flamme augmente de 86 (O₂/(O₂+N₂)=0,125) à 193 cm/s (O₂/(O₂+N₂)=0,210). Cet effet est plus important autour du maximum de vitesse de flamme (pour des richesses comprises entre 1,5 et 2) et pour des faibles teneurs en oxygène dans le milieu. En effet, l'augmentation de la vitesse est plus importante lorsque la teneur en oxygène s'accroît de 0,125 à 0,15 que de 0,175 à 0,21.

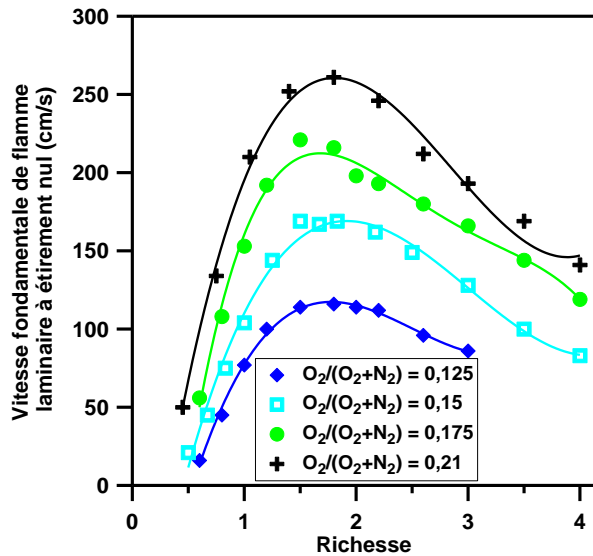


Figure 1-22 : Vitesses fondamentales de flamme en fonction de la richesse pour des mélanges H₂/O₂/N₂ pour différents rapports O₂/(O₂+N₂) à pression atmosphérique et température ambiante [54].

1.2.5 Paramètres d'explosivité de ces mélanges

Les paramètres d'explosivité correspondent à la mesure de la charge en pression et des paramètres qui y sont attachées après l'explosion d'un mélange combustible et ils permettent la définition de mesures de sécurité pour la protection des personnes et des biens. Ces paramètres sont la pression maximale de combustion (P_{MAX}), le temps de combustion (t_C), le taux maximal de montée en pression (dP/dt)_{MAX} auquel on associe l'indice de déflagration (K_G) selon l'équation suivante :

$$K_G = \left(\frac{dP}{dt} \right)_{MAX} \cdot V_E^{1/3} \quad \text{Eq 1.28}$$

Avec : K_G l'indice de déflagration du mélange testé (en bar.m.s⁻¹) ; (dP/dt)_{MAX} : le taux maximal de montée en pression du mélange (en bar.s⁻¹) et V_E : le volume de l'enceinte (en m³).

En 2009, Tang et coll. [66] ont réalisé une étude expérimentale sur les paramètres d'explosions des mélanges H₂/Air et H₂/Air/N₂ sur une large gamme de conditions expérimentales : richesse variant de 0,6 à 1,4 ; pression initiale variant de 100 à 500 kPa ; température initiale variant de 300 à 440 K et fraction molaire de diluant (N₂) dans le mélange variant de 0 à 0,3. Pour réaliser ces expériences, Tang et coll. ont utilisé une chambre fermée cylindrique de 180 mm de diamètre et 210 mm de long. Deux fenêtres en quartz sont disposées de part et d'autre du cylindre afin de visualiser la flamme.

La représentation de l'étude du rapport P_{MAX}/P_{initiale} (noté P_{MAX}/P_u), du temps de combustion t_C (en ms), du taux maximal de montée en pression (dP/dt)_{MAX} (en MPa.s⁻¹) et du coefficient d'explosivité K_G (en MPa.m.s⁻¹) en fonction de la richesse (Φ) pour un mélange H₂/Air/N₂ en fonction des conditions expérimentales : la température initiale (T_u), la pression

initiale (P_u) et la fraction volumique de diluant (N_2) dans le mélange (Φ_r) est réalisée de la Figure 1-23 à la Figure 1-25

La Figure 1-23 montre l'impact de la température initiale et de la richesse sur les mélanges $H_2/Air/N_2$. Une augmentation de T_u et de la richesse induisent une diminution du temps de combustion. En effet, à $\Phi = 0,6$ pour $T_u = 300$ K, le temps de combustion est égal à 16 s, celui-ci diminuant à 6 s pour un $\Phi = 1,4$. La baisse de t_C avec l'accroissement de la richesse s'explique par la prééminence de la vitesse de la propagation de la flamme sur l'évolution de la pression. Généralement, pour presque tous les types de combustibles, la température adiabatique de flamme et la vitesse de flamme sont maximales pour des valeurs très proches de la stœchiométrie. Cependant, due à la diffusivité très importante de l'hydrogène, la valeur maximale de vitesse de flamme tend à se déplacer vers des mélanges plus riches (observée précédemment aux alentours de $\Phi = 1,8$, cf. 1.2.1), ce qui explique la diminution de t_C avec l'augmentation de la richesse.

Le rapport $P_{MAX}/P_{initiale}$ évolue en forme de cloche en fonction de la richesse avec un maximum pour le mélange stœchiométrique. Pour une richesse de 1, la température adiabatique de flamme est plus élevée que celles des mélanges non stœchiométriques, dû au dégagement de chaleur plus intense, ceci conduisant à une valeur maximale pour P_{MAX} . Une augmentation de T_u conduit à une diminution du rapport $P_{MAX}/P_{initiale}$. Effectivement, en volume fermé, une élévation de la température initiale induit une diminution de la masse volumique du mélange (par la loi des gaz parfaits) et donc à une diminution de P_{MAX} . Cependant, cette diminution est plus importante quand la température du mélange augmente de 300 à 370 K que quand elle augmente de 370 K à 440 K.

Le taux maximal de montée en pression $(dP/dt)_{MAX}$ et l'indice de déflagration K_G augmentent avec la richesse même s'ils semblent se stabiliser pour des richesses de 1,2 et 1,4. Cette augmentation est le fruit de la compétition qui règne entre le temps de combustion et la pression maximale de combustion (P_{MAX}). Une augmentation de T_u mène à une diminution des valeurs de $(dP/dt)_{MAX}$ et de K_G . En effet, même si une élévation de T_u induit un accroissement de la vitesse de propagation du mélange et par la même une diminution du temps de combustion, cette même augmentation conduit à une diminution de la pression maximale de combustion. La résultante conduisant à une baisse des valeurs de $(dP/dt)_{MAX}$ et de K_G .

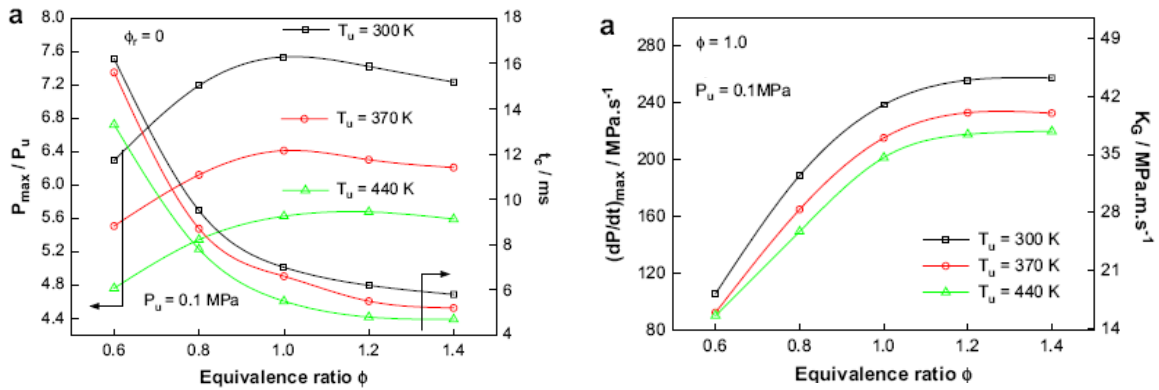


Figure 1-23 : Etude du rapport $P_{MAX}/P_{initiale}$ (noté P_{MAX}/P_u), du temps de combustion t_c (ms), du taux maximal de montée en pression $(dP/dt)_{MAX}$ ($MPa.s^{-1}$) et du coefficient d'explosivité K_G ($MPa.m.s^{-1}$) en fonction de la richesse (noté Φ) pour un mélange $H_2/Air/N_2$ en fonction de la température initiale (noté T_u) [66]

La Figure 1-24 montre l'impact de la pression initiale et de la richesse sur les mélanges $H_2/Air/N_2$. Une augmentation de la pression induit un accroissement du rapport $P_{MAX}/P_{initiale}$ expliqué par deux faits. Le premier correspond à l'augmentation de la masse volumique du mélange avec l'élévation de $P_{initiale}$, ce qui donne des charges en combustibles plus importantes et donc un $P_{MAX}/P_{initiale}$ plus élevé. De plus, avec des pressions initiales plus élevées, la flamme après inflammation a tendance à devenir turbulente plus facilement à cause de la promotion des instabilités du front de flamme avec l'augmentation de la pression. L'aire du front de flamme s'accroît alors et ceci conduit à une augmentation de la vitesse de flamme et donc à une diminution du temps de combustion.

Une augmentation de la pression initiale, induisant une augmentation du rapport $P_{MAX}/P_{initiale}$ et une diminution du temps de combustion, conduit inévitablement à une augmentation de $(dP/dt)_{MAX}$ et de l'indice de déflagration K_G .

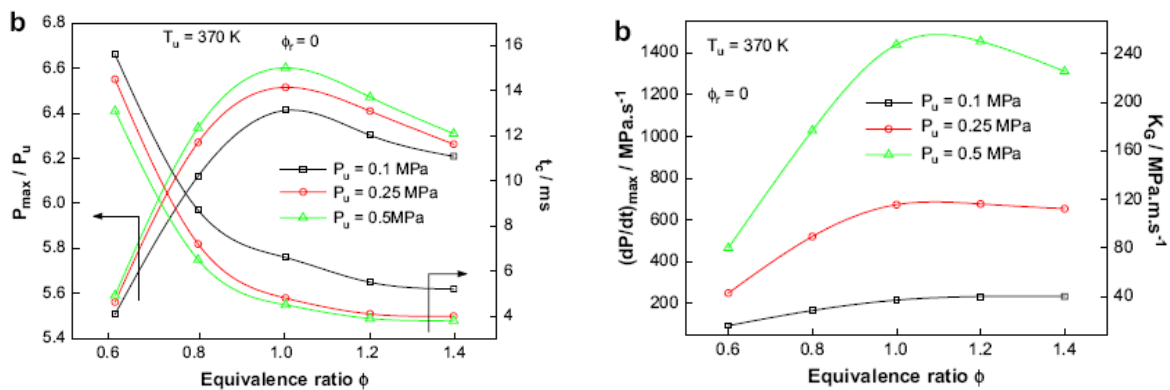


Figure 1-24 : Etude du rapport $P_{MAX}/P_{initiale}$ (noté P_{MAX}/P_u), du temps de combustion t_c (ms), du taux maximal de montée en pression $(dP/dt)_{MAX}$ ($MPa.s^{-1}$) et du coefficient d'explosivité K_G ($MPa.m.s^{-1}$) en fonction de la richesse (noté Φ) pour un mélange $H_2/Air/N_2$ en fonction de la pression initiale (noté P_u) [66]

La Figure 1-25 montre l'effet de la richesse (Φ) et de la dilution par l'azote (Φ_r) sur les mélanges $H_2/Air/N_2$. Une augmentation de la présence en azote dans le milieu conduit, pour une richesse donnée, à une diminution du rapport $P_{MAX}/P_{initiale}$, à une augmentation du temps de combustion et à une diminution du $(dP/dt)_{MAX}$ et par la même K_G . Par exemple, à $\Phi = 1,2$, pour un mélange non dilué par l'azote, le K_G vaut 40 MPa.m.s^{-1} . Celui diminue à moins de 30 (soit une réduction comprise entre 25 et 30 %) lorsque la dilution par l'azote vaut 0,1. La réduction est même de 75 % pour un $\Phi_r = 0,3$ (dans ce cas K_G vaut 10 MPa.m.s^{-1}).

L'addition d'azote dans le milieu conduit à une diminution de la sévérité de l'explosion. En effet, de par sa présence, la température adiabatique de flamme du mélange va diminuer tout comme sa vitesse de propagation de la flamme ceci s'expliquant par l'augmentation de la chaleur spécifique du mélange et par la diminution du dégagement de chaleur.

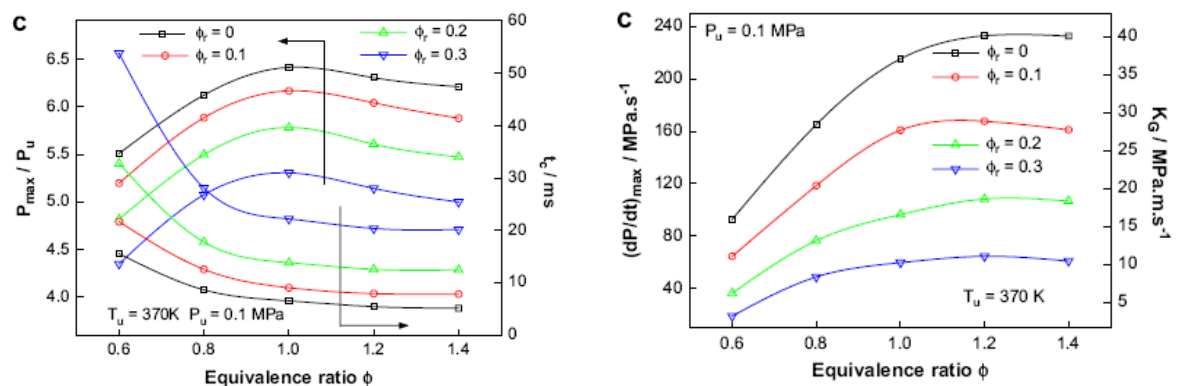


Figure 1-25 : Etude du rapport $P_{MAX}/P_{initiale}$ (noté P_{MAX}/P_u), du temps de combustion t_c (ms), du taux maximal de montée en pression $(dP/dt)_{MAX}$ (MPa.s^{-1}) et du coefficient d'explosivité K_G (MPa.m.s^{-1}) en fonction de la richesse (noté Φ) pour un mélange $H_2/Air/N_2$ en fonction de la fraction volumique de diluant (N_2) dans le mélange (noté Φ_r) [66]

1.2.6 Conclusion

L'étude de l'état de l'art des mélanges H_2/Air et $H_2/O_2/N_2$ a permis de mettre en exergue le manque de données concernant certains points particuliers. En effet, à l'inverse de l'impact de la richesse et de la température initiale sur les vitesses de flamme de ces mélanges, l'impact de l'enrichissement en oxygène dans le milieu (seuls Egolfopoulos et Law ont étudié un mélange avec de l'air enrichi en oxygène) ou la détermination des paramètres d'explosions (seuls Tang et coll. ont réalisé une étude sur ces paramètres) sont des phénomènes encore peu traités à l'heure actuelle. L'étude de ces paramètres sera l'objet du chapitre résultats des mélanges $H_2/O_2/N_2$ du présent manuscrit.

1.3 Etudes sur les poussières et leurs explosions

Après avoir étudié les paramètres pouvant influencer la combustion de différents mélanges à base d'hydrogène, passons maintenant, dans la troisième partie de ce chapitre, à l'étude des paramètres influant sur l'explosion de mélanges à base de poussières. Néanmoins, dans cette sous-partie, on s'attardera tout d'abord à définir et à caractériser précisément ce que sont la poussière et les explosions de poussières.

1.3.1 Définitions

1.3.1.1 Poussières

De manière très simpliste et généraliste, la poussière est constituée de particules solides de très petites tailles pouvant avoir des compositions très différentes. Elle est composée de fibres et de débris assez fins, assez légers pour être mis en suspension dans l'air.

De manière plus scientifique, la poussière est définie selon plusieurs normes [67]. La norme BS 2955, datant de 1958, définit les matériaux avec des tailles de particules inférieures à 1 mm comme des poudres et les poussières comme des matériaux avec des tailles de particules inférieures à 76 μm . La norme américaine NFPA 68 définit comme poussière tout solide finement divisé de taille de particule de 420 μm ou moins [68].

Dans ce document, le terme poussière est utilisé selon la première définition.

1.3.1.2 Explosions de poussières

Une explosion de poussières est définie, par Eckhoff, comme une combustion de solide dans l'air. La vitesse de combustion et la violence de l'explosion s'accroîtront avec l'augmentation du degré de subdivision de celui-ci [69].

Plus le degré de subdivision du solide sera important, plus l'explosion sera rapide et violente jusqu'à atteindre une taille de particules limite, pour laquelle les particules auront tendance à s'agglomérer entre elles.

Si le nuage de poussières enflammé est confiné, totalement ou même partiellement, la chaleur de combustion résultant de l'inflammation peut conduire à une augmentation de la pression liée à la propagation de la flamme à travers le nuage de poussières et à la formation de grandes quantités de chaleur et de produits de réaction. De ces différents événements résultent une explosion de poussières [67].

1.3.2 Pentagone de l'explosion de poussières

Pour qu'un feu se crée et se propage, trois conditions sont nécessaires : un combustible, un oxydant (généralement l'oxygène de l'air) et une source d'inflammation. Ces

trois conditions sont représentées sur chacun des côtés du triangle du feu. Pour arriver à une explosion de poussières, il existe des conditions supplémentaires. Elles sont au nombre de deux [70] :

- Les poussières doivent être mises en suspension dans l'air.
- Le nuage de poussières doit être confiné même de manière partielle.

Ce pentagone de l'explosion de poussières est représenté sur la Figure 1-26.

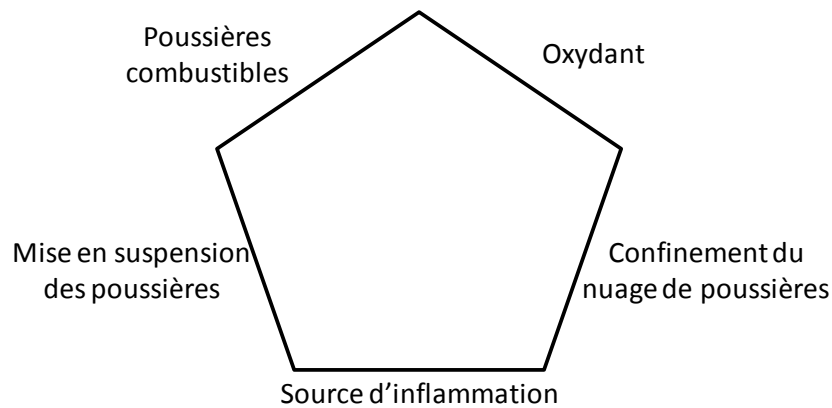


Figure 1-26 : Pentagone de l'explosion de poussières

Le pentagone peut se transformer en hexagone car une sixième condition peut-être ajoutée avec le domaine d'explosivité des poussières.

1.3.3 Classification des poussières

Une couche de poussières est définie comme combustible si elle peut être enflammée par une source d'inflammation extérieure et que la flamme ainsi générée se propage même après l'extinction de cette source [71].

À l'heure actuelle, aucune théorie suffisamment rigoureuse ne peut prédire si une poussière sera combustible ou non. Pour le déterminer, il est nécessaire d'avoir recours à l'expérimentation. Il existe trois classifications expérimentales des différents types de poussières en fonction de leur réactivité [67].

La première a été définie par le ministère du travail (Department of Employment) anglais. Les poussières sont classées en deux groupes (A et B) [72] :

- le groupe A correspond à des poussières qui, dans le cas d'une inflammation, produisent une flamme se propageant ;
- le groupe B qui regroupe celles qui ne produisent pas de flamme lors de leur inflammation, c'est-à-dire aux poussières non-explosives.

L'obtention de cette classification se déroule en plusieurs étapes :

- (1) les poussières sont testées à pression atmosphérique et à température ambiante pour une large gamme de concentrations. Si dans un des cas, une flamme se propage, la poussière est classée dans la catégorie A. Sinon, elle est classée dans la catégorie B ;

- (2) les poussières de la catégorie B sont testées à une température initiale supérieure à 110°C toujours avec une large gamme de concentrations. Si une flamme se propageant apparaît dans un cas, la poussière se retrouve classée en catégorie A, sinon elle reste en catégorie B ;

- (3) les poussières toujours dans la catégorie B sont testées avec différentes sources d'inflammation. En cas d'apparition d'une flamme, la poussière est classée en catégorie A, sinon elle reste en catégorie B [72].

La deuxième classification pour les poussières est appelée « Combustion Class » (CC) et est basée sur le comportement d'un tas de poussières bien défini lorsqu'il est soumis à une flamme ou à une surface chaude. Il existe six catégories allant de CC1 à CC6 [73] :

- CC1 : Pas d'inflammation, pas de combustion auto-entretenu ;
- CC2 : Inflammation avec extinction rapide, combustion locale de courte durée ;
- CC3 : Flamme locale ou incandescence sans propagation, combustion locale entretenue mais pas de propagation ;
- CC4 : Propagation d'une combustion sans flamme, lente et à faible température (smouldering combustion) ;
- CC5 : Propagation d'une flamme ouverte ;
- CC6 : Explosion.

La troisième et dernière classification des poussières est basée sur l'étude de l'indice de déflagration (ou coefficient d'explosivité), K_{ST} , qui correspond à la vitesse de montée en pression correspondant un volume de 1 m³ (avec une source d'inflammation de puissance 10 kJ). Ce concept a été introduit par Bartknecht qui a défini la relation suivante [69,72] :

$$K_{ST} = \left(\frac{dP}{dt} \right)_{MAX} \cdot V_E^{1/3} \quad Eq 1.29$$

Avec : K_{ST} ⁶ l'indice de déflagration du mélange testé (en bar.m.s⁻¹) ; $(dP/dt)_{MAX}$: le taux maximal de montée en pression du mélange (en bar.s⁻¹) et V_E : le volume de l'enceinte (en m³).

Les poussières, classées en quatre catégories, sont répertoriées dans le Tableau 1-7 [74].

⁶ L'abréviation 'st' provient du mot allemand « staub » qui signifie poussière

Classe	Intensité de l'explosion	Valeur du K_{ST} (bar.m.s ⁻¹)
St 0	Poussières non explosives	0
St 1	Explosion faible à modérée	$0 < K_{ST} \leq 200$
St 2	Explosion forte	$200 < K_{ST} \leq 300$
St 3	Explosion très forte	$300 > K_{ST}$

Tableau 1-7 : Classification des poussières en fonction de leur indice de déflagration K_{ST} [74].

Cependant, cette loi n'est valable que si certains critères sont remplis [69] :

- les enceintes doivent être de géométrie similaire (cylindriques, sphériques, ...)
- l'épaisseur de la flamme doit être négligeable devant le rayon de l'enceinte ;
- la vitesse de propagation de la flamme comme fonction du temps et de la pression doit être identique dans tous les volumes ;
- la surface de la flamme doit être également de forme similaire (par exemple sphérique).

Selon Bartknecht, cette relation est valable pour un grand nombre de poussières et des volumes d'enceintes supérieurs à 0,04 m³. Dans la réalité ce n'est pas le cas, la comparaison des différentes données de la littérature montre qu'il existe une grande disparité dans les valeurs obtenues selon le dispositif utilisé. Il convient alors de vérifier et d'utiliser dans des études de sûreté des données obtenues selon les normes standards ISO et de prendre la valeur maximale obtenue expérimentalement [67].

1.3.4 Différence entre les explosions de gaz et de poussières

Avant d'analyser les différences qui existent entre les explosions de gaz et les explosions de poussières, il est bon de montrer que ces deux types d'explosions présentent néanmoins certaines propriétés de combustion similaires. C'est à partir de ces similarités que certains principes de sécurité concernant les explosions de poussières ont été établis. Les paramètres utilisés pour la combustion des mélanges gazeux qui le sont également pour les poussières sont les suivants [75] :

- les limites d'inflammabilité et d'explosivité ;
- les vitesses fondamentales de flammes laminaires et les distances de coincement ;
- la réponse de la vitesse de flamme à la turbulence ;
- le phénomène de détonation ;
- les pressions obtenues pour des explosions adiabatiques à volume constant sont du même ordre que celles obtenues avec une explosion de gaz ;
- les énergies minimales d'inflammation ;

- les températures minimales d'inflammation pour des conditions expérimentales données.

Cependant, il existe deux différences fondamentales entre ces deux types de combustion qui sont d'une importance capitale pour la création de moyens de prévention et de sécurité. Tout d'abord, les poussières diffèrent énormément des gaz pour les mécanismes de fabrication, d'entretien et de migration des nuages explosifs si bien qu'une situation où un nuage de gaz (vapeur) provoquerait une explosion, il serait fort improbable qu'un nuage de poussières puisse également provoquer une explosion. Ceci est dû à la différence qu'il existe entre la dynamique des gaz et la dynamique des particules solides. En effet, quand un combustible gazeux est introduit de manière homogène dans l'air, le mélange obtenu, dans une grande majorité de cas, va rester homogène de par le mouvement brownien des molécules. A l'inverse, dans les nuages de poussières, la taille des poussières combustibles (1-100 μm) est supérieure à celle des molécules d'air et donc leur mouvement va être contrôlé par les forces inertielles y compris la gravité plutôt que par le mouvement brownien des particules. De plus, là où les collisions entre molécules de gaz sont élastiques, les collisions entre particules de poussières dans un nuage peuvent conduire à une agglomération de ces particules [75].

La deuxième différence fondamentale est le domaine de concentration de combustion du combustible. En effet, pour qu'un mélange de gaz s'enflamme, la quantité de combustible doit être comprise entre les LII et LSI (cf. 1.1.2.1) alors que pour la propagation d'une flamme dans un nuage de poussières, ce paramètre même existant n'est pas forcément limitant. Les couches stagnantes/dépôts constituent un régime de propagation supplémentaire à la flamme car contrairement aux combustibles gazeux et liquides, les poussières déposées au sol contiendront forcément de l'air dans les vides entre les particules. Ceci offre donc à la flamme une possibilité de se propager de manière extrêmement lente mais sans explosion de poussières (smouldering combustion) [75].

1.3.5 Méthodes

Les paramètres expérimentaux caractérisant la combustion des poussières dépendent de la méthode utilisée pour les obtenir. En effet, le comportement des particules est différent de celui des gaz et diffère selon la méthode d'injection de poussières employée. Des méthodes standards de mesure des paramètres expérimentaux ont alors été mises en place afin de pouvoir caractériser correctement les paramètres d'explosions des mélanges à base de poussières.

1.3.5.1 Pression de combustion

Dans un volume fermé, la combustion d'un mélange poussières-air est responsable d'une augmentation de la pression atteignant un maximum lorsque la flamme s'est propagée à tout le volume. À partir de l'évolution de la pression en fonction du temps, deux paramètres peuvent être ainsi déterminés :

- la pression maximale de combustion, notée P_{\max} ;
- la vitesse de montée de pression ramenée à un volume constant de 1 m^3 , notée K_{ST} .

Ce dernier paramètre représente une mesure de l'explosibilité de la poussière mais est également un critère important pour la sécurité industrielle sur lequel est basé la conception de systèmes de détection et de protection des effets des explosions (cf. 1.3.3). Il s'exprime selon la relation donnée par l'équation *Eq 1.29* [76] :

Conformément aux théories classiques de la combustion, dans un cas idéal, la pression absolue est fonction du temps, $P(t)$, à volume constant et pour une propagation sphérique est reliée au volume $V(t)$ occupé par la flamme durant le temps de propagation t suivant l'équation :

$$\frac{P(t) - P_0}{P_{MAX} - P_0} = k \cdot \frac{V(t)}{V_E} \quad \text{Eq 1.30}$$

avec : P_0 : la pression absolue initiale, V_E : le volume de l'enceinte de combustion et k : un facteur de correction relié à la différence de compressibilité entre les gaz brûlés et les gaz frais.

Pour une propagation sphérique à partir d'un point central :

$$\frac{V(t)}{V_E} = \left[\frac{R_f}{R_E} \right]^3 = \left[\frac{V_s \cdot t}{R_E} \right]^3 \quad \text{Eq 1.31}$$

avec : R_f : le rayon de la flamme, R_E : le rayon de l'enceinte et V_s : la vitesse spatiale de flamme et donnée par la relation :

$$V_s = \frac{dR_f}{dt} = \left(\frac{\rho_u}{\rho_b} \right) \cdot S_L \quad \text{Eq 1.32}$$

avec : S_L la vitesse laminaire de flamme et (ρ_u/ρ_b) est le rapport de densité des gaz frais sur celle des gaz brûlés (à pression constante).

Pour une propagation sphérique dans une enceinte sphérique, la pression maximale d'explosion est obtenue au moment où la flamme touche les parois de l'enceinte. A ce moment précis k est égal à 1.

En dérivant l'équation *Eq 1.30* en fonction du temps et en substituant les équations *Eq 1.31* et *Eq 1.32*, on aboutit à la relation suivante :

$$\frac{dP(t)}{dt} = 3 \cdot (P_{MAX} - P_0) \cdot \frac{R_f^2}{R_E^3} \cdot \frac{dR_f}{dt} = 3 \cdot (P_{MAX} - P_0) \cdot \left(\frac{\rho_u}{\rho_b} \right) \cdot S_L \cdot \frac{R_f^2}{R_E^3} \quad \text{Eq 1.33}$$

Sachant que :

$$R_f(t = t_{final}) = R_E = \left(\frac{3 \cdot V_E}{4 \cdot \pi} \right)^{1/3} \quad \text{Eq 1.34}$$

et en posant que (à partir de l'équation des gaz parfaits) :

$$\frac{\rho_u}{\rho_b} \approx \frac{T_b}{T_0} \approx \frac{P_{MAX}}{P_0} \quad Eq 1.35$$

nous obtenons ainsi pour K_{ST} , l'équation suivante [76] :

$$K_{ST} = \left(\frac{dP}{dt} \right)_{MAX} \cdot V_E^{1/3} = 4,84 \cdot \left(\frac{P_{MAX}}{P_0} - 1 \right) \cdot P_{MAX} \cdot S_L \quad Eq 1.36$$

La détermination de S_L par cette méthode est assujettie à des conditions strictes. En effet, la flamme doit être parfaitement sphérique et lisse lors de sa visualisation ; conditions qu'il est difficile d'obtenir pour des flammes de combustion de mélanges hybrides gaz - poussières. Des facteurs de correction doivent alors être pris en compte pour la détermination de vitesse laminaire de flamme à partir de cette formule. Sinon, il est plus simple de parler de détermination de vitesse de combustion V_c qui tient compte des différentes conditions citées précédemment.

La détermination de la pression de combustion et des autres paramètres d'explosivité des mélanges poussières-gaz est réalisée à partir de deux différents types d'enceintes : le tube de Hartmann et les sphères de 20 L et de 1 m³.

1.3.5.2 Le tube de Hartmann

Le tube vertical de Hartmann est l'outil expérimental le plus ancien utilisé pour l'étude des explosions des nuages de poussières.

Cet appareil consiste en un tube vertical de 1,2 L en verre dans lequel les poussières sont dispersées par un souffle d'air. La source d'inflammation consiste un en fil chaud ou en une étincelle électrique entre deux électrodes métalliques. La propagation de la flamme est observée en fonction de la taille des particules, de la concentration en poussières, de l'énergie d'inflammation, etc. (Figure 1-27).

Ce type d'appareil et ses variantes (le tube horizontal d'Hartmann,...) ont été utilisés pendant de nombreuses années, jusqu'au début des années 80, mais les scientifiques ont de plus en plus remarqué que ce type d'appareil n'est pas apte à donner des conditions uniformes de dispersion de la poussière dans le tube et de turbulence. De plus, le tube de Hartmann est sujet aux effets de parois, c'est-à-dire de perte de chaleur aux parois de l'appareil. En effet, après un début d'expansion sphérique, la propagation de la flamme se fait vers le haut et vers le bas du tube ce qui augmente son contact avec la paroi et favorise donc les pertes de chaleur [67].

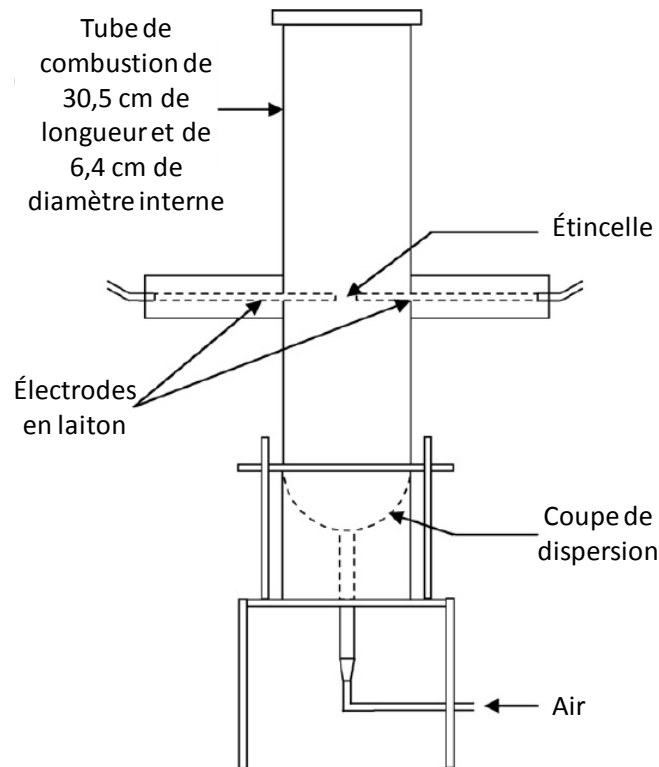


Figure 1-27 : Schéma d'un tube de Hartmann [67]

Ces trois conditions réunies (dispersion des poussières, turbulence et effets aux parois) font que le taux de combustion et la pression maximale d'explosion obtenue dans cet appareil sont inférieurs à ceux obtenus dans des appareils de conception plus récente. Cet appareil provoque également des faux négatifs pour des poussières qui sont difficiles à enflammer avec une étincelle électrique mais qui s'enflament avec des sources d'inflammation plus puissantes [70]. Un faux négatif consistant à considérer une poussière comme non explosive à cause de la difficulté qu'elle a à s'enflammer dans le tube de Hartmann alors que sa capacité à s'enflammer a été prouvée avec des sources d'inflammation d'énergies supérieures dans d'autres enceintes.

À l'heure actuelle, le tube de Hartmann n'est plus recommandé pour la détermination des paramètres d'explosivité (P_{MAX} et K_{ST}) [77]. Cependant, avec une conception modifiée, il peut être utilisé, pour la détermination des énergies minimales d'inflammation de mélanges à base de poussières. Néanmoins, les conditions d'utilisation du tube sont soumises à un règlement précis : système d'inflammation (diamètre des électrodes, espacement entre elles,...), calibration de l'énergie d'inflammation (énergie de référence, comparaison avec d'autres laboratoires,...) [78,79,80,81].

1.3.5.3 Les sphères de 20 L et de 1 m³

Les limitations dues au tube de Hartmann ont conduit à la conception de deux enceintes sphériques dans lesquelles le nuage de poussières est mieux simulé que dans les

appareils tubulaires. Les sphères de 20 L et de 1 m³ servent à l'heure actuelle à travers le monde, à caractériser les propriétés d'explosion (P_{MAX} , K_{ST} , concentrations minimales d'explosion,...) des mélanges à base de poussières.

Ces deux types d'enceintes fonctionnent sur le même principe et sont complémentaires. Sur le principe, l'injection des poussières est réalisée à partir d'un container sous pression séparé de l'enceinte principale et l'inflammation est centrale dans l'enceinte. Pour la complémentarité, la sphère de 1 m³ donne des résultats plus proche de la réalité que la sphère de 20 L mais les temps nécessaires pour réaliser les expériences et les quantités de poussières utilisées sont beaucoup plus importants [70]

Néanmoins, l'utilisation de ces appareils est soumise à des protocoles très stricts afin d'obtenir des données cohérentes d'une étude à une autre [82,83,84,85].

1.3.5.3.1 La sphère de 20 L

Il existe à l'heure actuelle, deux types de sphères de 20 L utilisés par les laboratoires de recherche. La première est la bombe PRL 20 L (PRL pour Pittsburg Research Laboratory) développée par Cashdollar et Hertzerg en 1985 dans le but de produire des données concernant la CME (Concentration Minimale Explosible) de poussières explosibles et de déterminer des niveaux d'inertants nécessaires à la prévention des explosions dans les mines de charbon [70, 86,87].

L'autre a été développée par Siwek, dès 1977, et est utilisée principalement pour la détermination des paramètres d'explosivité (P_{MAX} et K_{ST}) des poussières [70,71,87].

La PRL 20 L est une chambre en acier quasi sphérique avec une pression de service de 2,1 MPa. Elle est équipée de deux sondes optiques permettant de mesurer l'uniformité de la dispersion des poussières, de trois fenêtres permettant la visualisation de la flamme par des techniques optiques et d'un capteur de pression. Cette enceinte est représentée sur la Figure 1-28. Les poussières sont placées dans un réservoir situé au fond de l'enceinte. Une fois les poussières et l'allumeur (l'énergie de l'allumeur est comprise entre 2,5 et 10 kJ) en place, la sphère est partiellement vidée jusqu'à obtenir une pression de 14 kPa. Puis un souffle d'air très rapide, provenant d'un réservoir à 900 kPa, disperse les poussières et la pression dans l'enceinte atteint 100 kPa. Le délai d'inflammation entre le début de la dispersion des poussières et l'inflammation est de 0,4 s.

Ce délai est différent de celui utilisé pour la sphère de Siwek, avec un temps d'inflammation de 0,06 s après l'introduction des poussières. Le délai étant plus long pour la sphère PRL 20 L, la turbulence dans l'enceinte sera plus faible, par rapport à la sphère Siwek, ce qui est la raison pour laquelle au niveau de la sécurité industrielle, le dimensionnement des événements ne se fait généralement pas à partir des mesures de K_{ST} réalisées dans les enceintes de type PRL 20 L [70,71,77,82,87].

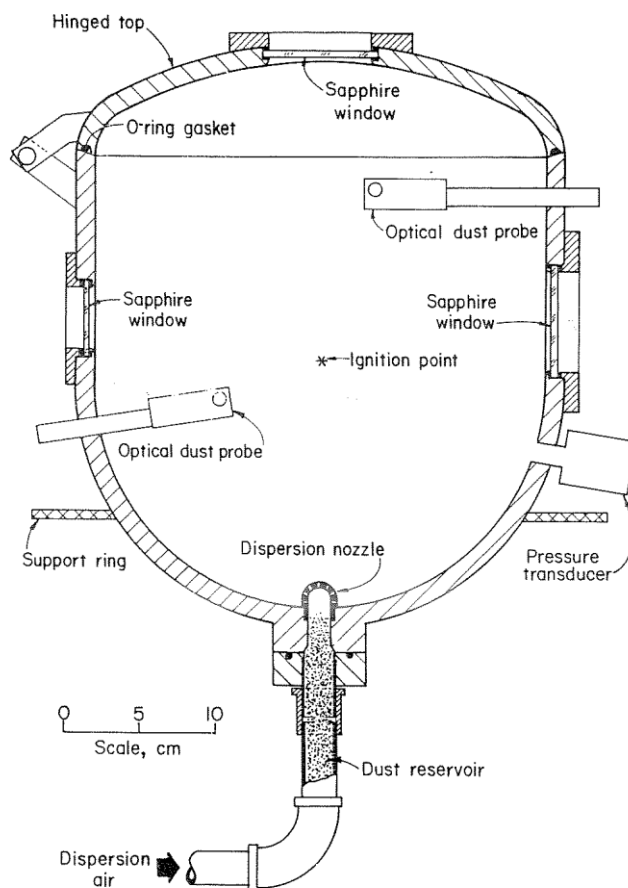


Figure 1-28 : Coupe verticale de la sphère PRL 20 L [86]

La sphère de Siwek est une chambre sphérique de 20 L avec une pression de service de 2 MPa. Elle est entourée d'un système de refroidissement par eau afin de contrôler la température de l'enceinte. A la base de la chambre se trouve une électrovanne à laquelle est relié un réservoir de 0,6 L à partir duquel les poussières sont introduites. Ce réservoir est rempli ensuite avec de l'air jusqu'à une pression de 2 MPa. A la sphère se trouve également attaché un capteur de pression et une fenêtre de visualisation de 30 mm de diamètre. Deux allumeurs avec chacun une énergie de 5 kJ sont utilisés pour enflammer les mélanges. Chacun pèse 1,2 g et est composé à 40 % de Zirconium, à 30 % de nitrate de Baryum et à 30% de peroxyde de Baryum [71,77,87].

Une fois les poussières et les allumeurs mis en place, l'enceinte est vidée jusqu'à une pression de 40 kPa. La vanne solénoïde s'ouvre et les poussières sont injectées avec l'air contenu dans le réservoir de 0,6 L. La pression dans l'enceinte atteint alors 100 kPa. L'inflammation du mélange se produit 0,06 s après le début de l'injection des poussières. Deux systèmes différents peuvent être utilisés pour l'introduction des poussières dans la bombe. L'introduction peut se faire à l'aide d'un anneau (« annular nozzle ») situé tout autour de l'intérieur de la sphère comportant 112 trous de 3 mm de diamètre répartis équitablement sur tout l'anneau (Figure 1-29) ou alors à l'aide d'un plateau défecteur (« rebound nozzle ») avec une aire d'injection de 314 mm² [71,77,82,87].

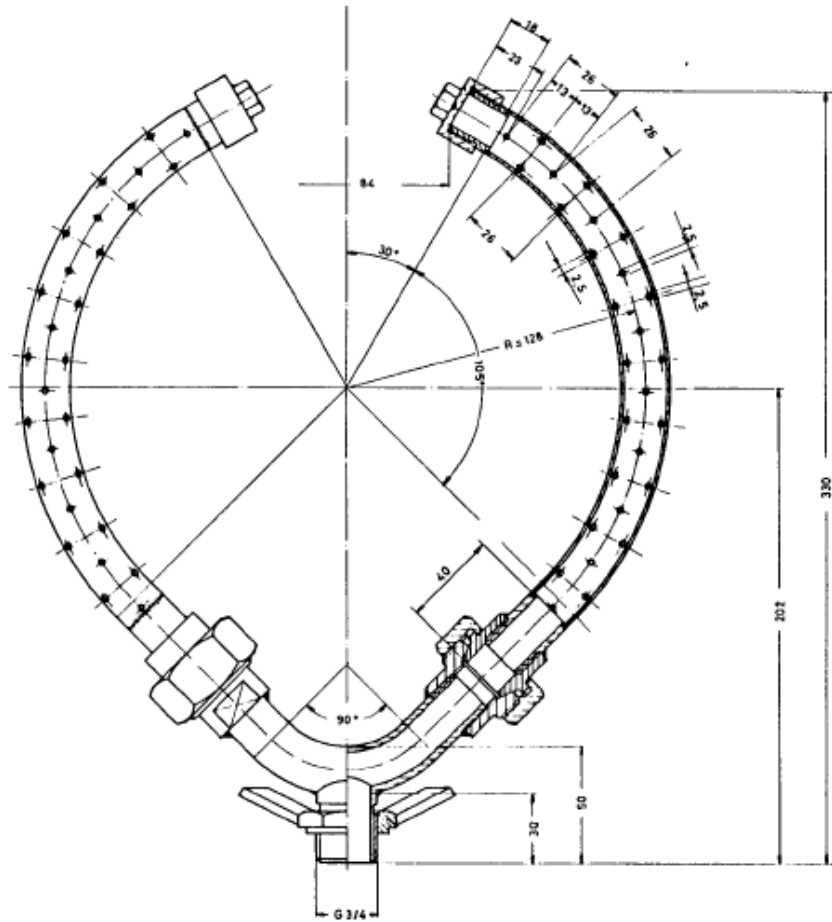


Figure 1-29 : Schéma de l'injecteur anneau avec ses dimensions en mm [77]

L'utilisation d'allumeurs avec une énergie totale d'inflammation de 10 kJ peut conduire à des phénomènes de surpoussée. En effet, ce phénomène conduit à une augmentation de la température du nuage de poussières rendant inflammable un mélange qui ne l'est pas forcément. Des particules se trouvant dans la flamme des allumeurs peuvent alors brûler alors qu'aucune propagation ne peut être observée [67]. Afin de compenser cet effet, lorsque la surpression observée lors d'une expérience est inférieure à 2 bar, on considère qu'aucune inflammation ne s'est produite [71].

Des facteurs de correction interviennent également en cas de combustion afin de compenser cet effet et de corréliser les pressions maximales obtenues dans la sphère de Siwek avec celles obtenues dans la sphère de 1 m³. Deux facteurs s'appliquent en fonction de la valeur de P_{EX} (P_{EX} désigne le maximum de pression obtenu expérimentalement) [77, 82] :

- P_{EX} > 5,5 bar (les valeurs obtenues dans la sphère de 1 m³ sont légèrement supérieures, les pertes thermiques aux parois étant plus faibles) :

$$P_m = 0,775 \cdot P_{EX}^{1,15} \quad \text{Eq 1.37}$$

où : P_m est la pression maximale de combustion corrigée (en bar) ;

- $P_{EX} < 5,5$ bar (Il faut corriger l'effet dû à l'énergie d'inflammation de 10 kJ) :

$$Pm = 5,5 \cdot \frac{(P_{EX} - P_{AC})}{(5,5 - P_{AC})} \quad Eq 1.38$$

$$P_{AC} = 1,6 \cdot \frac{EI}{10000} \quad Eq 1.39$$

où : P_{AC} est la pression obtenue due aux allumeurs seuls (en bar) et EI : l'énergie de l'allumeur (en J).

1.3.5.3.2 L'enceinte de 1 m³

Deux types d'enceintes de 1 m³ existent pour l'étude des explosions de poussières. La première a été créée par Bartknecht, en 1966. Elle est cylindrique, d'un diamètre interne d'environ 1 m et d'une longueur équivalente. Le système de dispersion associé est en forme de tube en U, de 19 mm de diamètre interne, avec un certain nombre de trous, de 4 à 6 mm de diamètre, permettant la dispersion des poussières dans l'enceinte. L'aire totale de ces trous doit permettre une surface totale de dispersion de 300 mm². Le container (de contenance 5 L) dans lequel sont situés les poussières est rempli jusqu'à une pression de 2 MPa et le délai d'inflammation des mélanges après le début de l'introduction des poussières est de 0,6 s. Les allumeurs utilisés sont les mêmes que ceux utilisés pour la sphère de Siwek de 20 L et donne une énergie de 10 kJ au total. La sphère de Bartknecht et son système de dispersion associé ont été adopté comme standard international ISO en 1985 [69,71,82,87].

Dans cette enceinte, le mélange est considéré comme enflammé si la surpression mesurée est supérieure à 20 kPa.

Le deuxième type d'enceinte de 1 m³ utilisé pour ce genre d'étude est celui conçu par Fike pour le bureau des mines américain dans les années 1980. Cette enceinte est composée de deux demi-sphères de 122 mm de diamètre avec une épaisseur de parois de 9,5 mm. La pression de service de la sphère est de 21 bar [88].

Le réservoir de dispersion est situé à côté de la sphère et est rempli de poussières et d'air et jusqu'à une pression de 32 bar. La dispersion des poussières dans l'enceinte se fait à l'aide d'un système tubulaire en U situé à l'intérieur de la chambre. Avant l'injection des poussières, la pression dans la sphère est abaissée jusqu'à une pression de 88 kPa. Le délai d'inflammation des allumeurs (avec une énergie de 10 kJ) est de 0,55 s après le début de l'injection des poussières [87,88].

Bien que les deux enceintes soient légèrement différentes dans leurs conceptions et dans le protocole d'injection des poussières, Cashdollar et coll. ont trouvé que les niveaux de turbulence générés dans les deux enceintes étaient comparables [87,88].

1.3.5.4 Résultats expérimentaux

De nombreuses études, dans des enceintes de 20 L ou de 1 m³, concernant les explosions de poussières ont été réalisées ces dernières années.

Une grande partie de ces travaux est recensée dans le Tableau 1-8.

Références	Systèmes	Enceinte	Conditions Initiales	Paramètres mesurés
70	Charbon, Fer, Polyéthylène	PRL 20 L	[poussières] = 50 - 4500 g/m ³ , d _p = 4 - 45 µm (Fe), [O ₂] = 10,5 - 21 %, T = jusqu'à 700 °C, P _{ini} = 0,5 - 2,5 bar, ajout de méthane (jusqu'à 4 %vol), ajout d'inertants	P _{MAX} , K _{ST} , CME, CLO, TAI
71	Cellulose, Lycopodium, Charbon, PVC, Pea Flour,...	S-20 L, Tube de Hartmann modifié, Four BAM	[poussières] = 25 - 1000 g/m ³ , [O ₂] = 10 - 21 % vol, énergie d'inflammation = 1 mJ - 10 kJ, Température = 20 - 100 °C, ajout de propane jusqu'à 6 %vol	P _{MAX} , (dP/dt) _{MAX} , CME, CLO, EMI, TAI
86	Charbon de Pittsburgh, Polyéthylène	PRL 20 L	[poussières] = 50 - 1000 g/m ³ , effet d'inhibiteurs, P _{ini} = 0,5 - 2,5 bar	P _{MAX} , K _{ST} , EMI, CME
88	Gilsonite, 2 types de charbons (bitumineux + Anthracite)	PRL 20 L, Fike 1 m ³	[poussières] = 25 - 1800 g/m ³ , énergie d'inflammation = 2,5-10 kJ	P _{MAX} , CME, (dP/dt) _{MAX} , EMI
89	Charbon Freyming	Chambre de 8 L	[poussières] = 500 - 2500 g/m ³ , d _p = 13 - 50 µm	P _{MAX} , (dP/dt) _{MAX}
90	Charbon (4 types), polyéthylène	Enceinte de 7,8 L	[poussières] = 100 - 800 g/m ³ , [O ₂] = 10 - 50 % vol, effets d'inertants	P _{MAX} , CLO, CME
91	2 charbons (Pittsburgh et Pocahontas), polyéthylène	Enceinte de 8 L	[poussières] = 100 - 700 g/m ³ , d _p = 2 - 400 µm	TAI, CME
92	Charbon de Pittsburgh, polyéthylène, schiste bitumineux	PRL 20 L, S-120 L	[poussières] = 50 - 1000 g/m ³ , énergie d'inflammation = 0.5 - 5 kJ, Pression = 0,5 - 3 bar	P _{MAX} , CME, (dP/dt) _{MAX}
93	14 Eléments (Mg, Ti, Zn, Al, W, Hf, Fe, Ta,...)	PRL 20 L	[poussières] = 50 - 1000 g/m ³ , énergie d'inflammation = 2,5 - 5 kJ	P _{MAX} , CME, (dP/dt) _{MAX}
94	2 charbons	S-26 L	[poussières] = 60 - 500 g/m ³ ,	P _{MAX} , CME,

	(Prince and Phalen)		énergie d'inflammation = 50 - 10000 J, ajout de méthane (de 0 à 2 % vol), $d_p = 19 - 30 \mu\text{m}$	$(dP/dt)_{MAX}$
95	Charbon, Polyéthylène, 19 éléments (B, C, Mg, Al,...)	PRL 20 L	[poussières] = 50 - 1600 g/m ³ , énergie d'inflammation = 2,5 - 5 kJ	P_{MAX} , CME, K_{ST}
96	Charbon, Lycopodium, cornstarch, Calcium Stearate	Fike 1 m ³	[poussières] = 30 - 1200 g/m ³ , Délai d'inflammation = 550 - 850 ms, ajout de propane (de 0 à 7,5 % vol)	P_{MAX} , $(dP/dt)_{MAX}$
97	2 charbons (Pittsburgh et Pocahontas), Polyéthylène	PRL 20 L	[poussières] = 50 - 1000 g/m ³ , - [O ₂] = 10,5 - 21 %, $d_p = 3 - 500 \mu\text{m}$ - P = 0,5 - 2,5 bar, effet d'inhibiteurs, ajout de CH ₄	P_{MAX} , CLO, K_{ST} , CME
98	Biomasse	S-1 m ³	[poussières] = 750 - 7500 g/m ³ , Pression = 0,1 - 1,5 MPa	P_{MAX} , $(dP/dt)_{MAX}$
99	Charbon de Pittsburgh, Cornstarch, Polyéthylène, Aluminium, Anthraquinone	Fike 1 m ³	[poussières] = 100 - 1500 g/m ³ , ajouts d'inertants = 0 - 2750 g/m ³ , ajout de propane (jusqu'à 4 %vol)	P_{MAX} , K_{ST}
100	Charbon de Pittsburgh, Gilsonite, Lycopodium, Aluminium, Fer	PRL 20 L, Fike 1 m ³	[poussières] = 20 - 2000 g/m ³ , [O ₂] = 8 - 21 % vol, énergie d'inflammation = 1 - 10 kJ	P_{MAX} , CME, $(dP/dt)_{MAX}$, CLO, Impact du volume
101	Liège	Enceinte de 22,7L	[poussières] = 60- 800 g/m ³ , Pression = 0,9 - 2,2 bar, $d_p = 71,3 - 222,1 \mu\text{m}$,	P_{MAX} , $(dP/dt)_{MAX}$
102	Charbon, cendres, carburant pulvérisé	S-20 L	[poussières] = 125 - 2000 g/m ³ , différents mélanges, charbon - carburant, énergies d'inflammation = 0.1 - 5000 J	P_{MAX} , $(dP/dt)_{MAX}$, EMI
103	Charbon (Pittsburgh), Cornstrach	Enceinte de 26 L	[poussières] = 100 - 1500 g/m ³ , ajouts d'inertants = 0 - 1500 g/m ³	P_{MAX} , $(dP/dt)_{MAX}$
104	19 éléments (B, C, Mg, Al, Si, S, Ti, Cr, Fe, Ni,...)	PRL 20 L	[poussières] = 50 - 1700 g/m ³ , $d_p = 1 - 40 \mu\text{m}$,	P_{MAX} , $(dP/dt)_{MAX}$
105	Lycopodium, charbon,... (au total 21 poussières)	S-20 L, S-1 m ³		P_{MAX} , K_{ST} , Impact du volume

106	Aluminium	S-20 L	[poussières] = 60 - 3000 g/m ³ , d _p = 7 - 42 μm, taux d'humidité des particules	P _{MAX} , (dP/dt) _{MAX} , t _C
-----	-----------	--------	--	--

Tableau 1-8 : Recensement d'études concernant les paramètres d'explosivité des mélanges à base de poussières. *Légende* : d_p : Diamètre des particules étudiées ; [O₂] : Concentration en oxygène ; CLO⁷ : Concentration limite en oxygène ; CME⁸ : Concentration minimale d'explosivité des poussières ; TAI : Température d'auto-inflammation des poussières et EMI : Energie minimale d'inflammation du mélange

Ces études concernent pour la plupart d'entre elles la détermination des paramètres d'explosivité des mélanges à partir de poussières. Seuls Going et coll. [100] et Proust et coll. [105] comparent les résultats obtenus dans les deux sphères.

L'étude de Going a porté sur la détermination des concentrations minimales d'explosivité des poussières (CME) et des concentrations limites en oxygène (CLO) en fonction des énergies d'inflammation utilisées dans les sphères de 20 L et de 1 m³. Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau 1-9.

Energies d'inflammation	Sphère de 20 L				Sphère de 1m ³		
	1 kJ	2,5 kJ	5 kJ	10 kJ	2,5 kJ	5 kJ	10 kJ
Gilsonite	50±5	35±5	30±5	30±4	39±3	41±3	36±3
Charbon de Pittsburgh	90±5	80±10	60±10	50±10	90±5	85±5	80±5
RoRo93	-	36±3	28±4	25±5	34±4	35±4	35±4
Lycopodium	-	45±4	30±5	-	41±2	42±2	42±2
Fer	-	250±30	≈200±40	-	210±10	195±5	195±5

Tableau 1-9 : Concentrations minimales d'explosivité, CME (exprimées en g/m³), pour différentes poussières en fonction de l'enceinte expérimentale et des énergies d'inflammation utilisées [100]

Les résultats montrent que le meilleur accord est obtenu pour des énergies d'inflammation de 2,5 kJ pour la sphère de 20 L et de 10 kJ pour la sphère de 1 m³. Dans la sphère de 20 L, des énergies d'inflammation trop importantes (5 et 10 kJ) peuvent conduire à des effets de surpoussée et donc à des mesures de CME inférieures aux valeurs réelles. Son étude sur les mesures de CLO pour ces mêmes poussières conduit à des résultats équivalents [100].

⁷ La CLO correspond à la Concentration Limite en Oxygène, c'est-à-dire la concentration minimale en oxygène à partir de laquelle un mélange peut s'enflammer.

⁸ CME signifie Concentration Minimale d'Explosivité des poussières. Elle correspond globalement à la LII, seulement exprimée en une autre unité (généralement g/m³)

À l'heure actuelle, les normes préconisent une utilisation de deux allumeurs ayant chacun une énergie de 5 kJ (l'énergie totale d'inflammation est alors de 10 kJ), pour l'inflammation de mélanges dans la sphère de 20 L, ce qui ne semble pas être la configuration optimale, mais qui d'un point de vue sûreté des installations mène à des valeurs conservatives.

L'étude de Proust et coll. concerne les paramètres d'explosivité (P_{MAX} et K_{ST}) des mélanges à base de poussières et l'impact de l'enceinte utilisée sur ces valeurs. Théoriquement, le K_{ST} est défini comme étant indépendant du volume (la valeur de $(dP/dt)_{MAX}$ est normalisée). Une énergie d'inflammation de 10 kJ a été utilisée pour chaque test dans les deux enceintes. Les résultats obtenus par Proust et coll. sont présentés dans le Tableau 1-10 [105].

Ces résultats montrent une dépendance des paramètres d'explosivité en fonction de l'enceinte utilisée. De plus, certaines poussières qui brûlent dans l'enceinte de 20 L n'explosent pas dans celle de 1 m³. Ceci s'explique, selon Proust et coll., par le possible « préchauffage » des poussières à cause de l'énergie apportée par les allumeurs (pour rappel : 10 kJ).

Proust détermine des corrélations entre les résultats obtenus pour la sphère de 20 L et celle de 1 m³. Pour la pression maximale d'explosion, celle-ci s'exprime sous la forme :

$$P_{MAX(1m^3)} = 1,3 \cdot P_{MAX(20L)} \quad \text{Eq 1.40}$$

Pour l'indice de déflagration K_{ST} , une relation n'est pas suffisante pour réaliser cette corrélation. Il en faut deux pour définir des limites basse et haute, et encadrer 95 % des valeurs obtenues par Proust et coll. [105] :

Limite basse :

$$K_{ST(1m^3)} = 0,8 \cdot (K_{ST(20L)} - 45) \quad \text{Eq 1.41}$$

Limite haute :

$$K_{ST(1m^3)} = 2,5 \cdot (K_{ST(20L)} - 45) \quad \text{Eq 1.42}$$

Reference	Nature	K_{st} 1 m ³ (bar m/s)	K_{st} 20l (bar m/s)	P_{max} 1 m ³ (bar)	P_{max} 20l (bar)
1	Lycopodium	177	120		
2	Saw dust (France)	80	140		
3	Wheat flour	80	45		
4	Chemical HOECHST 215.673	90	80		
5	Chemical HOECHST 215.674	130	180		
6	Chemical HOECHSTTAGV	170	160		
7	Calcium stearate	140	197	9.1	6.6
8	Saw dust (UK)	115	113	9	6.4
9	Coal dust (UK)	70	127	7	6.5
10	Lignite	138	113	7.3	6.2
11	Toner	120	172	8.1	6.3
12	Rhodine	152	226	8.1	6.4
13	Yellow pigment	156	170	8.6	6.5
14	Maltodextrine	205	147	9.5	6.8
15	Black pigment	170	196	8.9	7.1
16	Grinding dust	36	59	4.2	2.9
17	Sodium monochloroacetate	0	62	0	7.4
18	Lixival dust	0	9	0	3.3
19	Metco dust	0	13	0	4.5
20	Solid sewing residues	0	65	0	1.3
21	PVC dust	64	113	8.7	7.8

Tableau 1-10 : Caractérisation des paramètres d'explosivité de différentes poussières pour différentes enceintes expérimentales [105]

Ces travaux montrent qu'il existe encore à l'heure actuelle certains points à éclaircir concernant les explosions de poussières. Par exemple, l'indice de déflagration K_{ST} censé être indépendant du volume de l'enceinte utilisée ne l'est finalement pas. Une nouvelle standardisation de ce phénomène doit donc être définie en tenant compte d'autres paramètres comme par exemple, la turbulence initiale du mélange avant l'explosion.

La turbulence est un des nombreux paramètres ayant une influence sur les explosions de poussières, tout comme les caractéristiques des particules elles-mêmes ou les conditions thermodynamiques initiales du mélange.

1.3.6 Paramètres influençant les explosions de poussières

L'explosion des poussières dépend de nombreux facteurs qui seront présentés dans les paragraphes suivants.

1.3.6.1 La concentration en particules

Comme pour chaque combustible, une poussière donnée possède des limites d'inflammabilités inférieure et supérieure (celles-ci sont généralement exprimées en g/m³, les termes CME et LII peuvent alors se substituer l'un à l'autre). De manière générale, les limites d'inflammabilité pour les poussières sont comprises entre 50 et 100 g/m³ pour la limite inférieure et entre 2000 et 3000 g/m³ pour la limite supérieure [67].

Le comportement typique des paramètres d'explosivité et de l'énergie minimale d'inflammation en fonction de la concentration d'une poussière donnée est représenté sur la Figure 1-30 [69]. Les deux phénomènes suivent des évolutions inverses. Lorsqu'on augmente

la concentration en poussières jusqu'à une valeur caractéristique notée $C_{\text{worst case}}$, le taux d'explosion augmente tandis que l'énergie minimale d'inflammation diminue. Au-dessus de cette concentration limite, on note une évolution inverse : le taux d'explosion diminue alors que l'EMI augmente. Il existe aussi deux concentrations limites : la CME (ou LII) noté C_l et la LSI des poussières notée C_u .

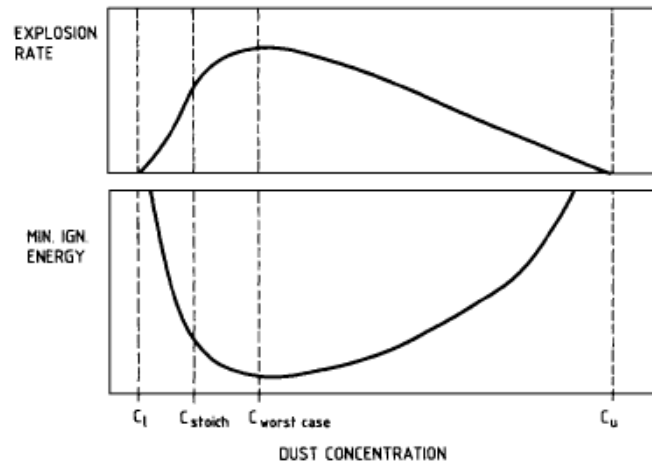


Figure 1-30 : Comportement général des paramètres d'explosivité et de l'énergie minimale d'inflammation des poussières en fonction de leurs concentrations [69]

Légende : - C_l : CME (ou LII) de la poussière considérée ; - C_{stoich} : la concentration stœchiométrique de la poussière ; - $C_{\text{worst case}}$: la concentration où les dégâts seront maximum ; - C_u : Limite supérieure d'inflammabilité de la poussière.

De nombreux travaux ont porté sur la détermination de ces limites et ont confirmé cette évolution du taux d'explosion et de l'énergie minimale d'inflammation (Tableau 1-8).

1.3.6.2 La taille des particules

La propagation de la flamme au sein d'un nuage de poussières se produit de deux façons : soit par une oxydation directe de la surface de la particule de poussière, soit par la combustion du gaz inflammable émis par la particule chauffée jusqu'à sa température de pyrolyse ou de vaporisation. Dans les deux cas, la taille de la particule est un paramètre important [67].

Des particules de petite taille participent plus activement à la combustion que des particules de grandes tailles (de la même espèce) car elles possèdent une surface spécifique plus importante, se dispersent dans l'air plus facilement et restent en suspension plus longtemps. Ce sont ces particules fines qui représentent le danger le plus important. Cependant, les particules de toute petite taille peuvent s'agglomérer entre elles. Si ce phénomène se produit, l'explosivité du nuage va décroître et peut même devenir nulle si la taille de l'amas devient trop importante. L'explosivité du nuage dépend donc de la taille des poussières mais ne varie pas linéairement avec cette dernière [67].

Dufaud et coll., en 2010, ont étudié les paramètres d'explosivité de particules d'aluminium pour différentes tailles de particules à pression atmosphérique et pour une température initiale de 288 K [106]. La Figure 1-31 représente P_{MAX} et $(dP/dt)_{MAX}$ en fonction de la concentration en particules pour 4 tailles de particules différentes. Les résultats montrent que, sur une grande gamme de concentration, pour une même concentration, la diminution de la taille des particules conduit à l'augmentation de P_{MAX} et de $(dP/dt)_{MAX}$, corroborant le fait que plus les particules sont petites et plus elles sont dangereuses.

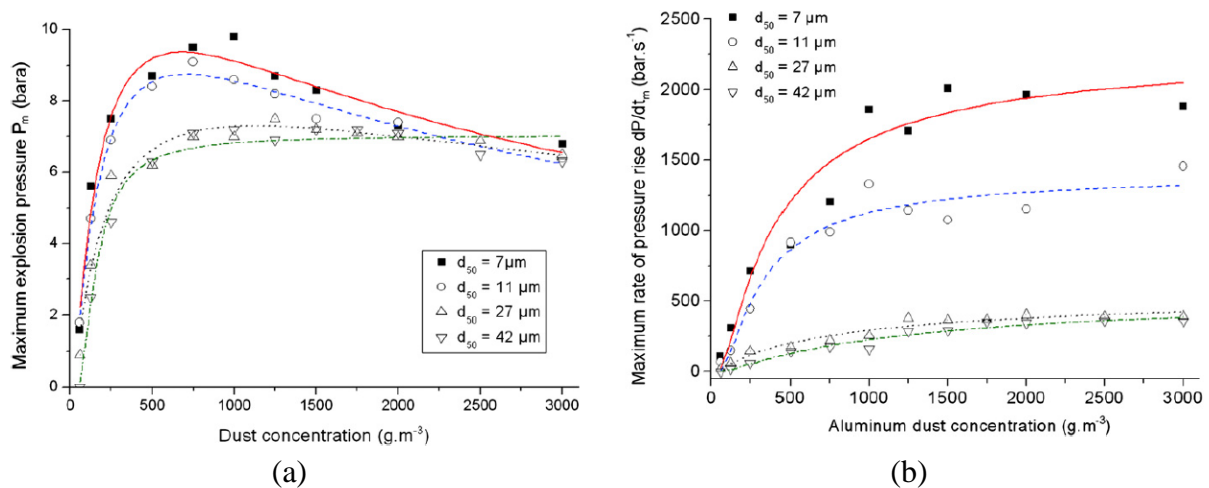


Figure 1-31 : Evolution de (a) P_{MAX} et (b) $(dP/dt)_{MAX}$ en fonction de la concentration en particules d'aluminium dans l'air pour différentes tailles de particules à pression atmosphérique et à 288 K [106]

1.3.6.3 La composition de la particule

Tout comme sa taille, la composition d'une particule va influencer sur sa sensibilité à l'inflammation et sur ses paramètres d'explosivité. En effet, deux types de poussières qui ne diffèrent que par quelques pourcents dans leur composition chimique ne donneront pas les mêmes résultats. En effet, le pourcentage de matière volatile d'une particule influe sur sa sensibilité à l'inflammation. Pour deux particules de même taille, celle qui contient le plus de matière volatile aura une concentration minimale d'explosivité plus faible (Tableau 1-11) [94].

Charbon	Taille des particules (μm)	%m de matière volatile dans le charbon	CME (g/m^3)
Prince 1	30	37,5	70
Phalen 1	30	31,0	90
Prince 2	19	36,5	60
Phalen 2	19	30,9	70

Tableau 1-11 : Influence du pourcentage massique de matières volatiles d'une particule sur sa concentration minimale d'explosivité (CME) dans l'air à température ambiante et à 100 kPa [94].

L'humidité de la particule est également un phénomène important qui joue sur les paramètres d'explosivité des poussières organiques. Une augmentation de l'humidité de la particule provoque une augmentation de l'énergie minimale d'inflammation et une diminution des paramètres d'explosivité. La Figure 1-32 montre que pour de la poussière de farine (flour), une augmentation de son taux d'humidité de 1 à 15 %m induit une augmentation de l'EMI de plus d'un facteur 10, Pour les poussières de Tapioca, un taux d'humidité augmentant de 1 à 10 %m entraîne même une augmentation de l'EMI d'un facteur supérieur à 1000 [69].

L'impact de l'humidité sur la sensibilité à l'inflammation et sur la violence des explosions de nuage de poussières organiques est complexe :

- l'évaporation et le chauffage des molécules d'eau constituent un puits de chaleur inerte ;
- la vapeur d'eau se mélange avec les gaz pyrolysés issus de la particule et rendent ce mélange moins réactif ;
- l'humidité augmente la cohésion inter-particules et prévient une dispersion des particules en particules plus fines [69].

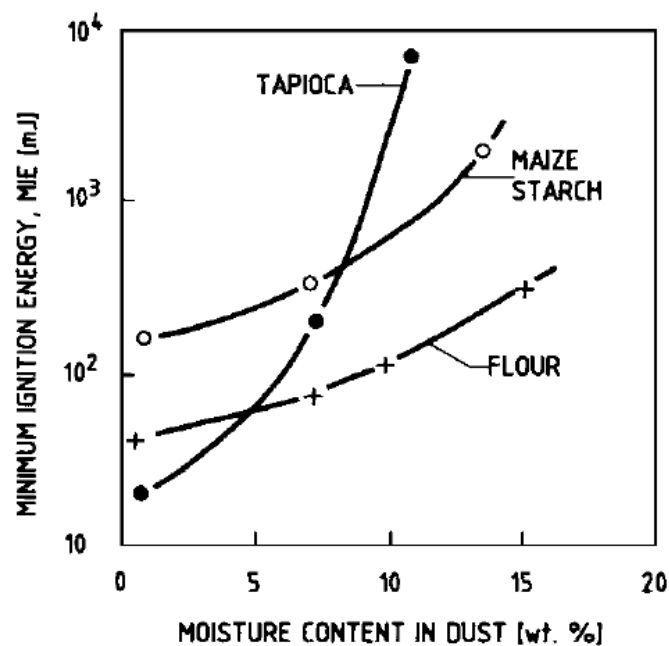


Figure 1-32 : Influence de l'humidité de la particule sur les énergies minimales d'inflammation de différentes particules organiques dans l'air à pression atmosphérique et température ambiante [69]

1.3.6.4 La concentration en oxydant

Cashdollar, en 1996 et en 2000, étudie l'impact de la concentration en oxygène sur la concentration minimale d'explosion (CME) de particules de charbon (charbon de Pittsburgh). Dans l'air, c'est-à-dire une teneur en O₂ de 20,9 % vol, la CME de charbon est de 80 g/m³. Une

diminution de cette dernière jusqu'à une valeur de 11 %vol conduit à une augmentation de la CME jusqu'à 200 g/m^3 , valeur minimale pour laquelle une explosion se produit. En deçà de cette teneur en O_2 , aucune explosion n'a été possible. La concentration limite en oxygène (CLO) est donc de $11 \pm 0,5 \text{ %vol}$ pour le charbon de Pittsburgh (Figure 1-33) [70,97].

En matière de sécurité, les recommandations concernant ce paramètre préconisent que pour éviter une explosion de poussières, que la teneur en oxygène dans le milieu doit être maintenue à un niveau de 2 %vol inférieur à la valeur minimale en oxygène pour laquelle une explosion peut avoir lieu. Dans le cas des poussières de charbon, afin d'éviter une explosion, une concentration en oxygène de 9 %vol dans le milieu est alors nécessaire [70].

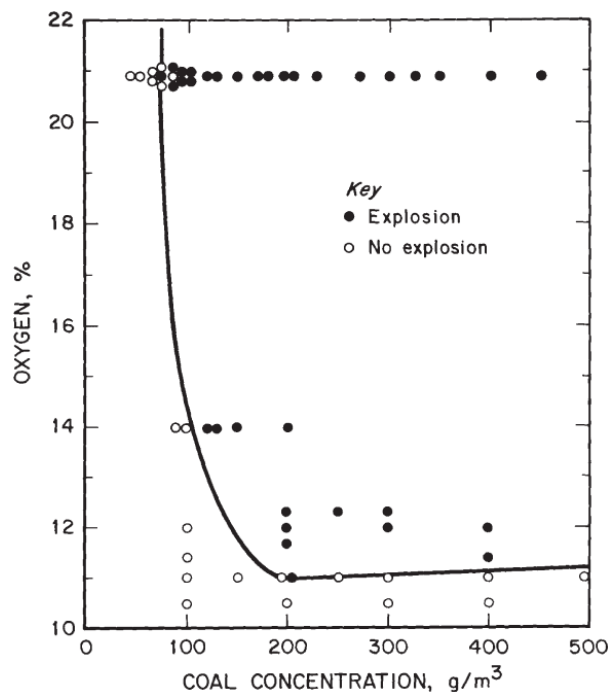


Figure 1-33 : Etude de la CME du charbon en fonction de la concentration en oxygène dans l'air pour différents mélanges charbon-air à température ambiante et à 100 kPa [70,97]

Eckhoff a étudié l'impact de la concentration en oxygène dans le milieu sur les paramètres d'explosivité (P_{MAX} et K_{ST}) des poussières. Une diminution de la concentration en oxygène dans l'air induit une diminution des paramètres d'explosivité mais également des limites d'inflammabilité des mélanges. Les résultats sont présentés sur la Figure 1-34. Par exemple, pour une concentration en charbon de 200 g/m^3 et un pourcentage molaire en O_2 de 21 %vol, la pression maximale de combustion obtenue est de près de 6 bar. Celle-ci diminue à 4 puis à 0,5 bar quand la concentration en oxygène dans le milieu décroît respectivement à 14 et 11,5 %vol. Pour un pourcentage molaire en O_2 de 11 %vol dans le milieu, aucune surpression n'est enregistrée sur tout le domaine de concentration testé [69,107].

Eckhoff a proposé des corrélations qui permettent de déduire P_{MAX} et K_{ST} lorsque la teneur en O_2 est différente de celle de l'air à partir de celles obtenues dans l'air. Les relations sont les suivantes [107].

- Pour la pression maximale de combustion P_{MAX} :

$$P_{MAX,C} = P_{MAX,21} \cdot \left(\frac{C}{21} \right) \quad Eq 1.43$$

où : $P_{MAX,C}$: la pression maximale de combustion du mélange à la concentration C dans un mélange différent de l'air ; $P_{MAX,21}$: la pression maximale de combustion du mélange dans l'air et C : la concentration en oxygène dans le milieu (en % vol).

- Pour l'indice d'explosivité K_{ST} :

$$K_{ST,C} = K_{ST,21} \left(\frac{C - CLO}{21 - CLO} \right) \quad Eq 1.44$$

où : $K_{ST,C}$: l'indice d'explosivité du mélange à la concentration C dans un mélange différent de l'air ; $K_{ST,21}$: l'indice d'explosivité du mélange dans l'air ; C est la concentration en oxygène dans le milieu (en % vol) et CLO : la concentration limite en oxygène de la poussière considérée (en % vol).

Ces deux équations ne s'appliquent que pour des concentrations C en oxygène supérieures à la CLO mais inférieures à 21 %vol dans l'air.

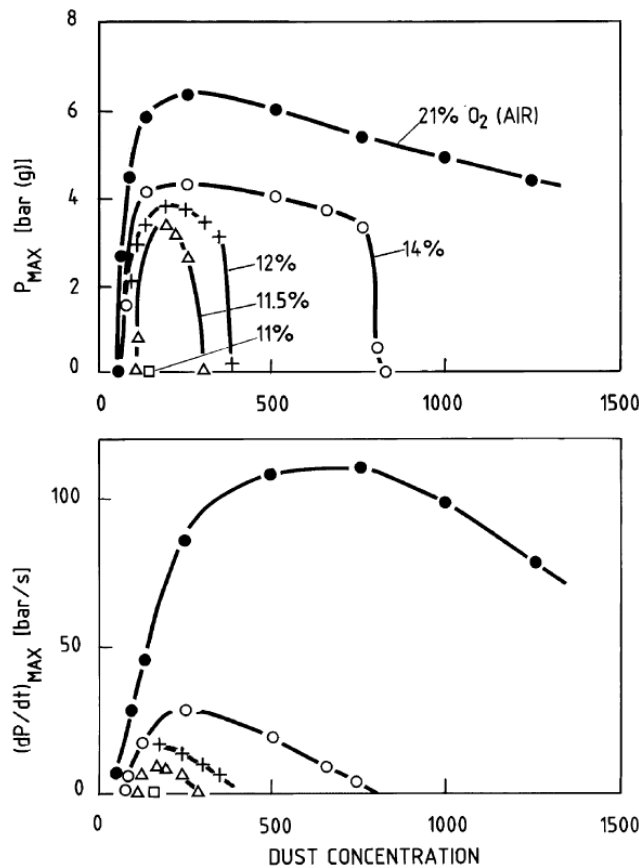


Figure 1-34 : Influence de la concentration en oxygène sur les paramètres d'explosivité (P_{MAX} et $(dP/dt)_{MAX}$) de mélanges lignite - air pour différentes concentrations en charbon (conditions initiales : Sphère de $1 m^3$, Pression atmosphérique, $T=150 ^\circ C$) [107].

1.3.6.5 La température initiale

La Figure 1-35 montre l'impact de la température initiale sur les énergies minimales d'inflammation (EMI), en mJ, de différents mélanges à base de poussières organiques. Une augmentation de la température provoque une diminution de l'EMI pouvant aller jusqu'à un facteur 1000. Par exemple, pour le polymère de mélamine, à température ambiante, une énergie minimale de 10 kJ est nécessaire à l'inflammation alors que quand la température initiale du nuage de poussières augmente jusqu'à 300°C, l'EMI devient égale à 10 mJ. On remarque également que toutes ces poussières convergent, pour une température initiale de 1000 °C vers une EMI de 0,088 mJ [69].

Siwek se sert de ce point de convergence pour calculer des EMI à une température donnée, T (en °C), si l'EMI de cette même poussière à une autre température, T₀ (en °C), est connue, selon l'équation [71] :

$$EMI(T) = 10 \cdot \exp(-4,056 + (1,873 - 0,624 \log T) \cdot (\log EMI(T_0) + 4,056)) \quad \text{Eq 1.45}$$

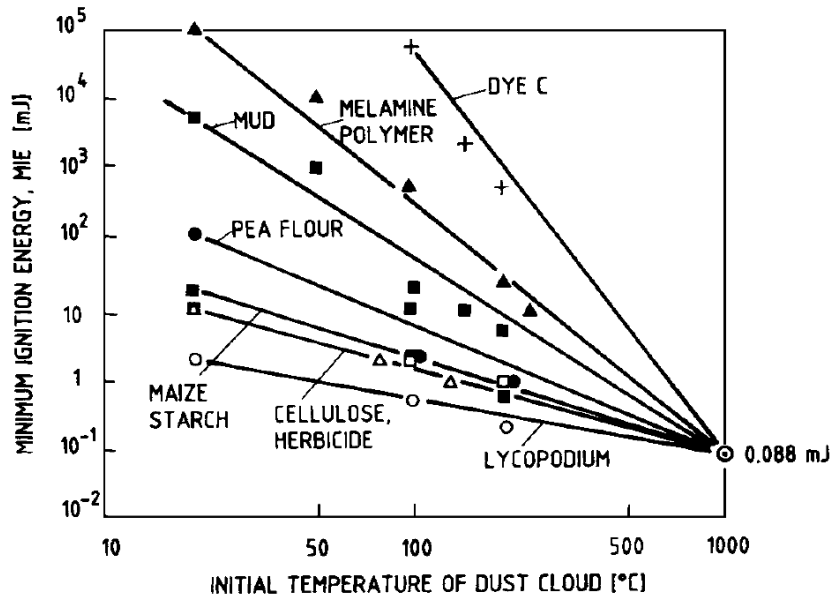


Figure 1-35 : Influence de la température initiale sur les énergies minimales d'inflammation de mélanges à base de poussières organiques dans l'air à 100 kPa [69]

D'autres paramètres ont aussi été corrélés par Siwek [71] et Cashdollar [70] :

- la concentration minimale d'explosivité, qui décroît avec l'augmentation de la température initiale [70].

$$C_T = C_{T_0} \cdot \left(\frac{273 + T_0}{273 + T} \right) [1 - 0,000721 \cdot (T - T_0)] \quad \text{Eq 1.46}$$

où : C_T est la CME de la poussière considérée à la température T souhaitée (en g/m³) ; C_{T₀} est la CME de la poussière considérée à la température T₀ connue (en g/m³) et T et T₀ les températures exprimées en °C.

- la pression maximale de combustion (P_{MAX}) qui diminue linéairement avec l'augmentation de température, à pression atmosphérique. (L'indice d'explosivité, K_{ST} , change de manière insignifiante avec la température) [71] :

$$P_{MAX}(T) = P_{MAX}(T_0) \cdot \left(0,88 \cdot \left(\frac{T_0 + 273}{T + 273} \right) + 0,12 \right) \quad Eq\ 1.47$$

où : P_{MAX} est la pression maximale de combustion du mélange considérée à la température T ou T_0 selon l'indice utilisé (en bar) et T et T_0 sont les températures exprimées en °C.

- La concentration limite en oxygène (CLO) diminue avec l'augmentation de la température initiale. Dans le cas de l'utilisation d'azote en tant que gaz inerte dans le mélange [71] :

$$CLO(T) = CLO(T_0) + 0,26 - 0,013 \cdot T \quad Eq\ 1.48$$

où : CLO exprime la concentration limite en oxygène du mélange pour différentes températures initiales selon l'indice utilisé et T et T_0 sont les températures exprimées en °C.

1.3.6.6 La pression initiale

Cashdollar [70] a étudié l'effet de la pression initiale sur la concentration minimale d'explosivité des particules de charbon. Il montre qu'une augmentation de la pression initiale conduit à une augmentation linéaire de la CME. Les résultats de son étude sont donnés dans le Tableau 1-12.

Pression initiale (bar)	CME (g/m ³)
0,45	55
1	85
1,75	130
2,50	170

Tableau 1-12 : CME du charbon dans l'air en fonction de la pression initiale, à température ambiante [70]

Wiemann et coll., cités par Eckhoff [69], ont étudié l'impact de la pression initiale sur P_{MAX} et K_{ST} sur des mélanges lignite - air dans une sphère de 1 m³. Leur étude montre qu'une augmentation de la pression initiale de 1 à 4 bar induit une augmentation linéaire de P_{MAX} et une augmentation de K_{ST} (Figure 1-36). On remarque également que le maximum de pression obtenu, pour chaque condition initiale, est également quasiment proportionnel à la concentration en charbon. Ce phénomène est représenté par la ligne droite sur la Figure 1-36.

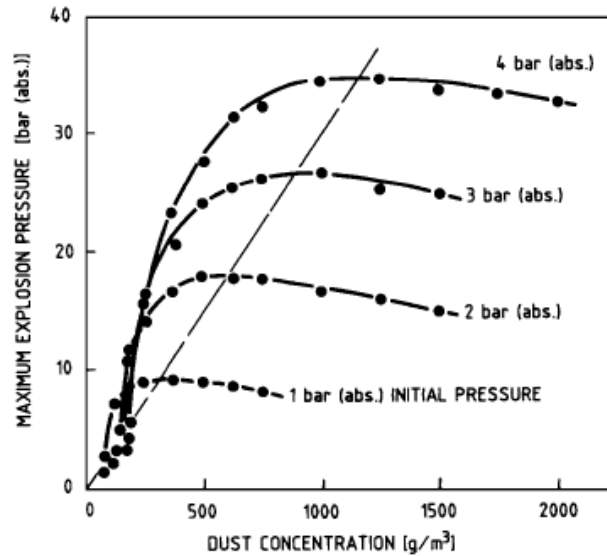


Figure 1-36 : P_{MAX} en fonction de la concentration en lignite à différentes pressions initiales et température ambiante [69]

Pilão, en 2004, a étudié l'impact de la pression initiale entre 0,9 et 2,1 bar sur des mélanges poussières de liège - air. Ces expériences ont été réalisées dans une chambre quasi-sphérique de 22,7 L. Les conclusions obtenues sur cette étude sont les mêmes que celles obtenues par Wiemann. En effet, une augmentation de P_{ini} induit une augmentation de P_{MAX} et de $(dP/dt)_{MAX}$. Les résultats obtenus lors de cette étude sont présentés sur la Figure 1-37. Pour les mélanges avec des concentrations en poussières de l'ordre de 500 g/m^3 , P_{MAX} augmente de 6 bar pour une $P_{ini} = 0,9 \text{ bar}$, à près de 16 bar pour une pression initiale de 2,1 bar, le taux de montée en pression maximale s'accroissant lui de 150 à près de 300 bar/s [101].

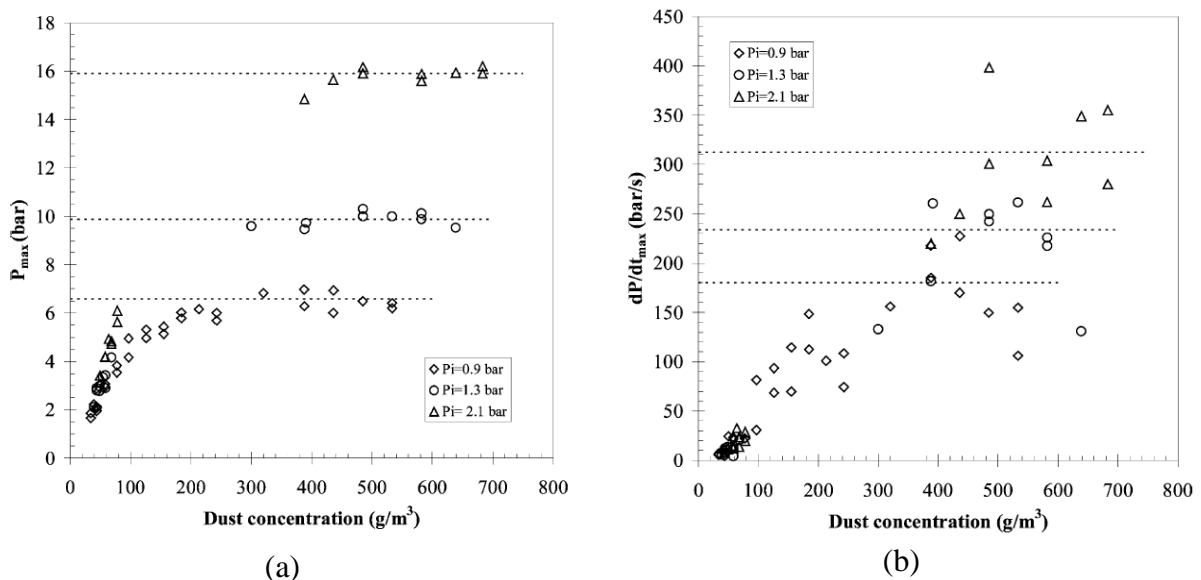


Figure 1-37 : Évolution : (a) de la pression maximale P_{MAX} (en bar) et (b) du taux de montée en pression maximale $(dP/dt)_{MAX}$ (en bar/s) en fonction de la concentration en poussières pour différents mélanges poussière de liège - air à différentes pressions initiales et à température ambiante [101]

1.3.6.7 La turbulence

Les mouvements plus ou moins rapides et aléatoires des éléments constituant le nuage de poussières génèrent de la turbulence dans tout l'espace. Un nuage de poussières avec une forte turbulence va posséder une composition équivalente en tout point. Quand ce nuage s'enflamme, la turbulence va créer un effet de moulin : les parties chaudes gaz brûlés / gaz brûlants du nuage vont se mélanger avec les parties gaz imbrûlés froides. Cela va donc générer un écoulement tridimensionnel alternant des zones gaz brûlés / gaz brûlants chaudes et des zones gaz imbrûlés froides permettant à la flamme de se propager plus facilement à travers le nuage de poussières [108].

Un nuage avec une turbulence plus faible émet, quand il s'enflamme, une quantité importante de chaleur localement concentrée, celle-ci se dissipant très faiblement. La propagation de la flamme qui s'en suit est alors entièrement due au degré de dispersion des poussières dans le nuage.

Il faut noter qu'il existe deux types de turbulence différents par leurs origines dans le cas d'une propagation d'une explosion de poussières. Le premier est généré par les processus industriels dans lesquels l'explosion se produit. Cela correspond à ce qui est plus communément appelé la turbulence initiale. Dans le cas d'expériences en laboratoire, elle correspond à la méthode de mise en suspension des poussières et dépend du délai entre le début de la dispersion des poussières dans l'enceinte et l'inflammation (un délai plus long induisant une turbulence dans le milieu plus faible). Le deuxième type de turbulence est dû au nuage de poussière lui-même et au flux induit par l'expansion du nuage de poussière non brûlé en amont de la flamme qui se propage [67,108].

Pour la turbulence initiale, une augmentation de celle-ci induit une augmentation des paramètres d'explosivité des poussières mais aussi une augmentation de l'énergie minimale d'inflammation (EMI) requise pour enflammer le mélange (Figure 1-38). Ceci est dû au fait qu'au moment de l'inflammation d'un mélange, la turbulence va dissiper la chaleur de la zone d'inflammation grâce à de la convection rapide [108]. La turbulence affecte plus la montée en pression de l'explosion que le pic de pression. Ceci s'explique par le fait qu'une augmentation de la turbulence induit une plus grande mobilité des particules, l'accès des molécules d'oxygène à la surface des particules est promu et le taux de réaction augmente significativement [98,109].

Ce facteur est considéré par certains auteurs comme le seul paramètre important (en plus des caractéristiques physico-chimiques du mélange considéré) dont les effets doivent être considérés dans les modèles d'explosion de nuages de poussières [109].

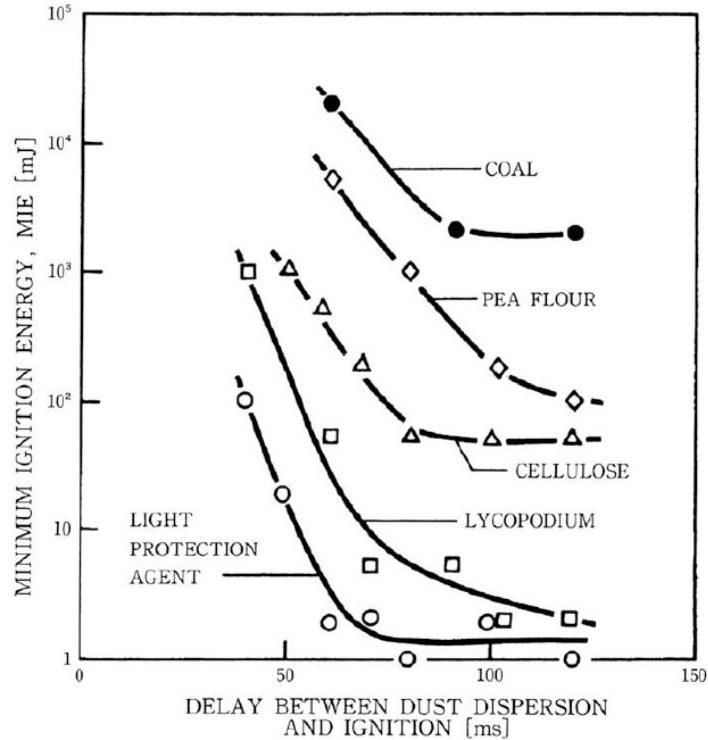


Figure 1-38 : Influence de la turbulence initiale (ici caractérisée par le délai d'inflammation du milieu) sur l'énergie minimale d'inflammation de mélanges à base de différents types de poussières. Expériences réalisées dans une sphère de 20 L [108]

1.3.6.8 L'ajout de gaz inflammables

L'ajout de gaz inflammables dans un nuage de poussières modifie radicalement ses propriétés. En effet avec cet ajout, la CME, la température minimale d'inflammation et l'EMI diminuent alors que le coefficient d'explosivité K_{ST} augmente. De plus, la présence d'un gaz combustible peut rendre un mélange gaz - poussières inflammable alors que les concentrations en poussières et en gaz sont inférieures à leurs limites inférieures d'inflammabilités respectives. L'énergie d'inflammation minimale d'un mélange gaz inflammable - poussières sera plus basse que celle de la poussière seule [71].

Khalili et coll., en 2012, ont étudié l'impact de la sensibilité de l'inflammation de mélanges hybrides gaz (ou vapeur) - poussières. Une présence d'hexane, sous forme vapeur, de près de 4 % ajouté à un mélange poussière d'amidon (ou poussières alimentaires) - air fait diminuer l'énergie minimale d'inflammation (EMI) du mélange de plus d'un facteur 200. Elle diminue d'une valeur comprise entre 50 et 70 mJ, pour les mélanges sans hexane, à une valeur de 0,3 mJ avec (Figure 1-39) [80].

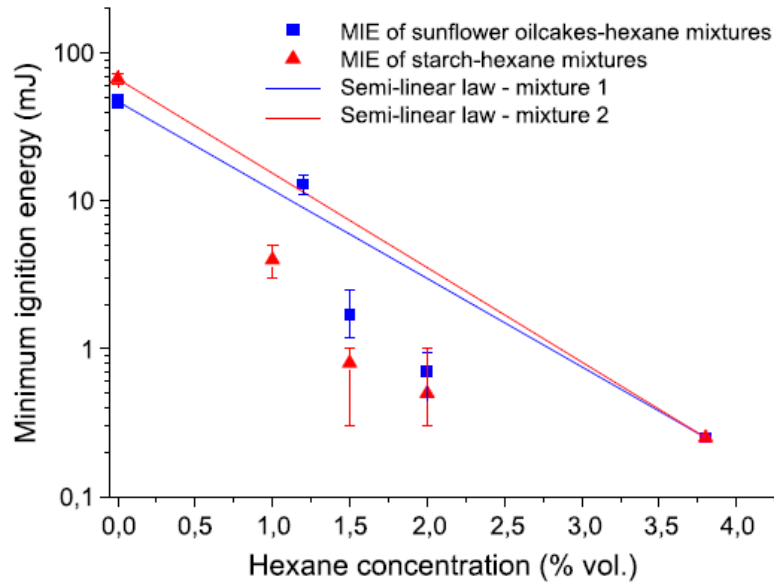


Figure 1-39 : Évolution de l'énergie minimale d'inflammation (EMI en mJ) de différents mélanges poussières-air en fonction de la concentration en hexane (en % vol) dans ceux-ci, à 1 bar et température ambiante [80]

Une poussière de grande taille ininflammable, de classe St0, peut devenir inflammable si elle est en présence d'un gaz combustible. Abbasi et coll. citent l'exemple d'une poussière de classe St0 qui passe en classe St1 puis St2 et enfin St3 si elle est mise en présence de méthane à des concentrations respectivement de 1, 5 et 7 % [67].

1.3.6.9 L'ajout de poussières inertes

Pour des raisons de sécurité, dans les mines de charbon, une poussière inerte est ajoutée aux murs et au sol de la mine là où s'est accumulée la poussière de charbon. En effet, l'addition de celle-ci permet de réduire l'explosivité de la poussière de charbon. En 1985, Cashdollar et Hertzberg ont étudié l'impact de la présence de poussières inertes de calcaire sur les paramètres d'explosivité des poussières de charbon. L'augmentation du pourcentage de calcaire mélangé au charbon, conduit à une diminution importante des paramètres d'explosivité du charbon jusqu'à le rendre lui aussi quasiment inerte pour une présence en calcaire de 70 % dans le mélange. La présence de calcaire conduit également à une augmentation de la CME du charbon. En effet, pour le charbon pur, la combustion débute pour une concentration en charbon égale à 50 g/m^3 , on note une augmentation du rapport de pression, alors qu'en présence de 40 % de calcaire, la CME est de 100 g/m^3 (Figure 1-40) [86].

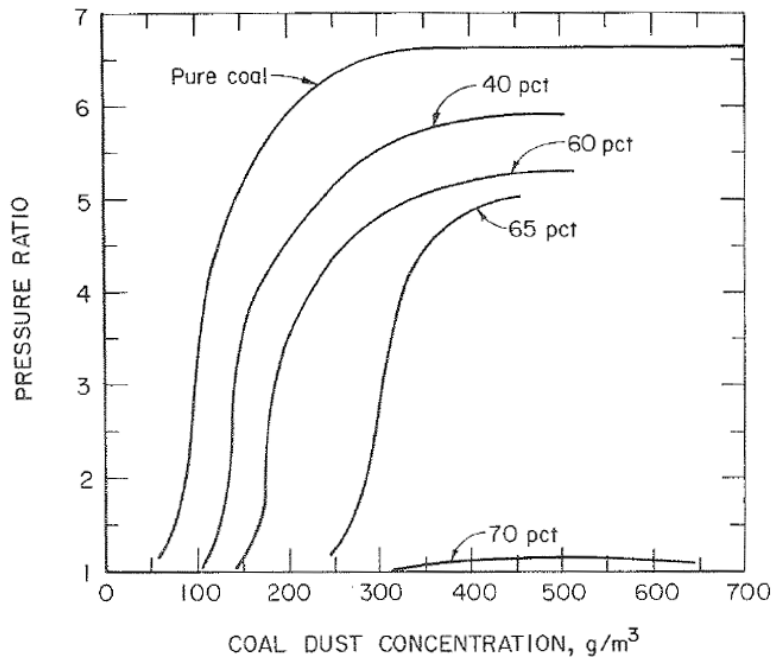


Figure 1-40 : Rapport de la pression d'explosion par la pression initiale du charbon en fonction de sa concentration pour différents pourcentages en calcaire dans le milieu à température ambiante et pression atmosphérique [86]

De nombreux travaux [70,99,103] ont aussi montrés que l'ajout de particules inertes rend l'explosion moins violente avec une diminution de P_{MAX} et de K_{ST} et une augmentation de la CME et de l'EMI.

Chatrathi et Going [99] ont étudié l'impact de différentes poussières inertantes sur des poussières combustibles. Ils ont montré que des courbes d'inflammation pour les mélanges poussières combustibles-poussières inertes peuvent être construites et qu'elles possèdent les mêmes propriétés que les courbes d'inflammation des gaz c'est-à-dire des limites inférieure et supérieure d'inflammabilité et une concentration minimale d'inertage en poussières inertes. Cette concentration correspond à la présence minimale nécessaire de la poussière inerte pour rendre celle combustible totalement ininflammable quel que soit sa concentration (Tableau 1-13). Les résultats de ces expériences ont montré que des explosions de poussières de métal ou des explosions avec un fort K_{ST} peuvent être éteintes et que la pression maximale d'explosion P_{MAX} peut être ramenée à un niveau acceptable. L'efficacité des particules inertes dépend de leurs compatibilités avec la poussière combustible. C'est ainsi que la chaleur spécifique, la conductivité thermique, l'absorptivité, la géométrie et la décomposition des particules inertes jouent des rôles importants dans leurs efficacités [99].

Poussières Inertes Poussières Combustibles	Bicarbonate de sodium	Phosphate de mono-ammonium	Poussières stériles de roche
Charbon de Pittsburgh	550	125	1125
Poussière de maïs	625	875	> 2750
Polyéthylène	1000	-	-
Anthraquinone	1750	> 1500	-
Aluminium	> 2750	> 2750	-

Tableau 1-13 : Concentration minimale d'inertage (en g/m^3) pour différentes poussières combustibles à température ambiante [99]

1.4 Etudes sur les mélanges $H_2/C(\text{graphite})/W/O_2/N_2$

Après nous être intéressés à l'étude des mélanges à base d'hydrogène et de ceux à base de poussières, cette dernière partie sera consacrée à l'étude des mélanges d'intérêts propres à l'installation ITER. Ces mélanges sont à base de particules de graphite et/ou de tungstène en présence ou non d'hydrogène.

1.4.1 Le graphite

1.4.1.1 Mélanges $C(\text{graphite})/O_2/N_2$

Les études des paramètres d'explosion de cette particule sont peu nombreuses. Seuls Denkevits et Dorofeev ont étudié les particules de graphite dans le cadre de l'analyse de sûreté de l'installation ITER [110,111].

Leurs études ont été réalisées dans des bombes sphériques de 20 L de type Siwek, décrites précédemment (cf. 1.3.5.3.1). Le graphite utilisé pour ces études est pur à plus de 99,8 %m et de trois tailles différentes (d_p) : 4 μm , un mélange 25-32 μm et un mélange 40-45 μm . L'énergie d'allumage est de 10 kJ. L'impact de la taille des particules sur les concentrations minimales d'explosivité (CME) (en g/m^3), la surpression maximale (P_m) (en bar) et le taux maximal de montée en pression ($(dP/dt)_{MAX}$) (en bar/s) est étudié.

L'impact de la taille des particules sur la CME est donné dans le Tableau 1-14. Pour réaliser ces mesures, les particules de graphite ont été introduites dans le mélange à hauteur d'une concentration de 50 g/m^3 puis la concentration a été augmentée par pas de 10 g/m^3 jusqu'à l'observation de l'inflammation du mélange. Celui-ci est reconnu comme explosible si la surpression obtenue en fin de combustion est supérieure à 0,4 bar. Le Tableau 1-14 montre que la taille des particules joue une grande influence sur la CME. En effet, les particules ayant une taille de 4 μm possède une CME de 70 g/m^3 , qui est de 100 g/m^3 pour une taille de particules de 25-32 μm et de près du double (120 g/m^3) pour les particules de taille 40-45 μm .

Diamètres des particules de graphite (μm)	CME (en g/m^3)
4	70
Fraction 25 - 32	100
Fraction 40 - 45	120

Tableau 1-14 : Concentration minimale d'explosion, CME (en g/m^3) de particules de graphite pour différents diamètres de particules [110,111]

Les paramètres d'explosivité des particules de graphite sont présentés sur la Figure 1-41. En ce qui concerne les surpressions maximales (P_m) observées, pour les 3 tailles de particules, la surpression augmente avec la concentration en graphite jusqu'à son maximum pour une concentration de $250 \text{ g}/\text{m}^3$ (pour les 3 tailles de particules) puis diminue ensuite légèrement. Les particules de $4 \mu\text{m}$, sur une grande partie du domaine testé, donnent des surpressions maximales plus élevées que les autres tailles. Les valeurs de P_m obtenues pour les particules de 25-32 et de 40-45 μm sont similaires sur tout le domaine de concentration testé.

Pour les trois tailles de particules, $(dP/dt)_{\text{MAX}}$ augmente avec la concentration en graphite jusqu'à son maximum pour une concentration de $250 \text{ g}/\text{m}^3$. Ensuite le comportement diffère avec la taille. En effet, pour les particules les plus fines ($4 \mu\text{m}$), $(dP/dt)_{\text{MAX}}$ diminue fortement (sa valeur est divisée par 5 pour une concentration de $750 \text{ g}/\text{m}^3$ par rapport à la valeur obtenue à $250 \text{ g}/\text{m}^3$) alors que pour les particules plus grosses (25-32 μm et 40-45 μm) sa valeur reste sensiblement la même. Lorsque la concentration en graphite est inférieure à $750 \text{ g}/\text{m}^3$, les valeurs obtenues par les particules de $4 \mu\text{m}$ sont beaucoup plus importantes que celles obtenues pour les autres tailles. Par exemple, pour une concentration en particules de graphite de $250 \text{ g}/\text{m}^3$, $(dP/dt)_{\text{MAX}}$ est légèrement supérieure à 250 bar/s pour les particules de taille $4 \mu\text{m}$ puis diminue à 90 puis 70 bar/s lorsque d_p augmente respectivement à 25-32 puis à 40-45 μm .

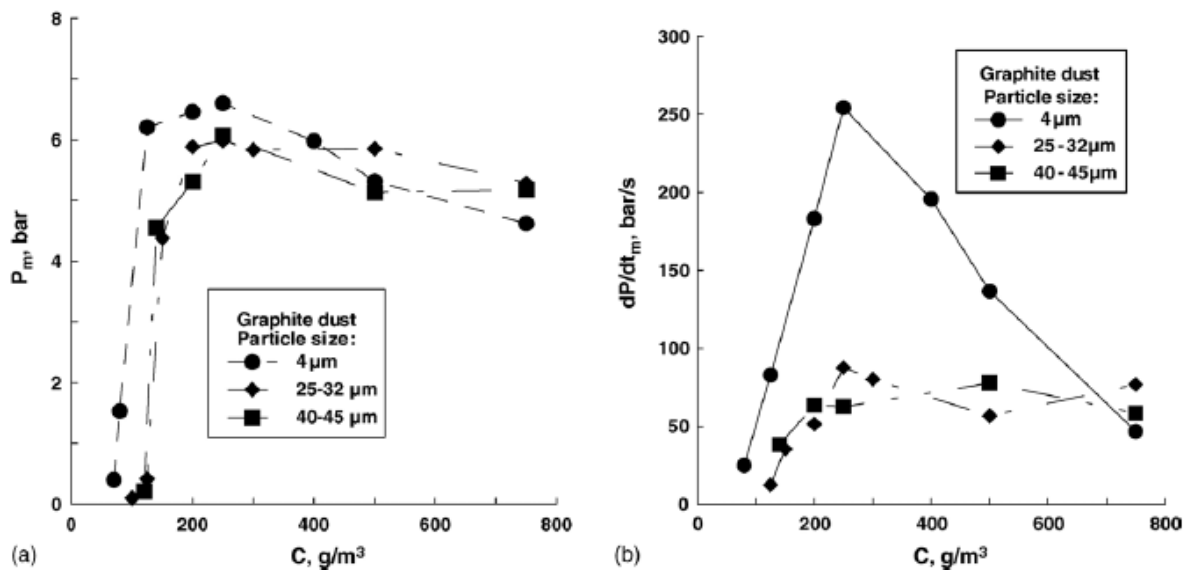


Figure 1-41 : (a) Surpression maximale (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) pour différents mélanges graphite-air en fonction de la concentration en particules de graphite à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [110,111]

Le graphite de 4 μm de diamètre, ayant les paramètres d'explosivité les plus importants et la CME la plus faible par rapport aux autres tailles testées, a été choisi lors des différentes études concernant d'autres mélanges, également étudiés par Denkevits, où le graphite est présent : les mélanges $\text{H}_2/\text{C}(\text{graphite})/\text{O}_2/\text{N}_2$ et les mélanges $\text{C}(\text{graphite})/\text{W}/\text{O}_2/\text{N}_2$.

1.4.1.2 Mélanges $\text{H}_2/\text{C}(\text{graphite})/\text{O}_2/\text{N}_2$

Les mélanges hybrides, mis à part les mélanges charbon - méthane - air pour les risques liés à l'industrie minière, sont étudiés au cas par cas pour des contextes très précis. Celui-ci ne déroge pas à la règle et seul Denkevits a réalisé une étude [112].

Les mélanges $\text{H}_2/\text{C}(\text{graphite})/\text{O}_2/\text{N}_2$ sont particulièrement dangereux car là où les mélanges graphite - air ne s'enflamment qu'avec des énergies d'inflammation de l'ordre du kJ, ces mélanges-ci peuvent s'enflammer avec des énergies d'inflammation beaucoup plus faibles. Dans l'étude de Denkevits, les énergies utilisées sont suffisantes pour enflammer l'hydrogène seul mais pas les particules seules, le but de l'étude étant de mesurer l'impact des poussières sur les mélanges hybrides [112]. L'énergie d'inflammation n'est pas donnée explicitement, seules les caractéristiques liées à l'inflammation le sont (amplitude de 5 à 7 kV, fréquence de 3 kHz, pulse de 20 ms).

Cette étude a été réalisée dans la sphère 20 L de Siwek avec des particules de graphite de 4 μm de diamètre à température ambiante et pour une pression initiale de 100 kPa. La présence d'hydrogène varie entre 8 et 18 %vol et celle en graphite entre 0 et 250 g/m^3 . Les produits de combustion (la phase gazeuse) ont été analysés par spectrométrie de masse. Les espèces analysées sont H_2 (pas d'analyse quantitative juste qualitative pour l'hydrogène), H_2O , O_2 , N_2/CO et CO_2 . Les concentrations en H_2O sur toutes les expériences conduisent à des valeurs inférieures à 0,5 %vol, ce qui signifie que la vapeur résultant de la combustion de l'hydrogène se condense à l'intérieur de la sphère. Les paramètres étudiés dans cette étude sont la surpression maximale (P_m) et le taux maximal de montée en pression $(dP/dt)_{\text{MAX}}$. Les données nécessaires à l'étude de ces mélanges sont résumées dans le Tableau 1-15.

Mélanges H ₂ - graphite - air	Inflammation des poussières	Concentrations testées	Nombre de phases dans l'explosion	Domaine de concentration	Concentration optimale en poussières
8% H ₂ - Graphite - Air	Non (A)	Entre 100 et 250 g/m ³	Pas d'explosion	-	-
10% H ₂ - Graphite - Air	Non (a)	< 75 et > 125 g/m ³	Pas d'explosion	-	125 g/m ³
	Oui (B)	Entre 75 et 125 g/m ³	2 (b)	Entre 75 et 125 g/m ³	
10,5% H ₂ - Graphite - Air	Non (a)	< 75 et > 150 g/m ³	Pas d'explosion	-	125 g/m ³
	Oui (b)	Entre 75 et 150 g/m ³	2 (b)	Entre 75 et 150 g/m ³	
11% H ₂ - Graphite - Air	Non (a)	< 50 g/m ³	Pas d'explosion	-	125 g/m ³
	Oui (b)	Entre 50 et 250 g/m ³	2 (b)	> 50 g/m ³	
12% H ₂ - Graphite - Air	Oui (C)	Entre 25 et 200 g/m ³	1 (D)	< 150 g/m ³	100 g/m ³
			2 (b)	≥ 150 g/m ³	
14% H ₂ - Graphite - Air	Oui (c)	Entre 25 et 200 g/m ³	1 (d)	< 150 g/m ³	100 g/m ³
			2 (b)	≥ 150 g/m ³	
16% H ₂ - Graphite - Air	Oui (c, e)	Entre 25 et 200 g/m ³	1 (d)	Entre 25 et 200 g/m ³	75 g/m ³
18% H ₂ - Graphite - Air	Oui (c, E)	Entre 25 et 200 g/m ³	1 (d)	Entre 25 et 200 g/m ³	50 g/m ³

Tableau 1-15 : Résumé des caractéristiques d'explosion des mélanges hydrogène - graphite - air. Les lettres représentent les explications des différents cas de figures possibles donnés ci-après. Les lettres majuscules correspondent aux cas étudiés et les lettres minuscules aux cas similaires.

Cas (A) :

Pour ce cas, le mélange étudié est le mélange 8 %vol H₂ - graphite - air. Les paramètres d'explosivité de ces mélanges sont représentés sur la Figure 1-42.

Les valeurs obtenues pour P_m et (dP/dt)_{MAX} dans le cas des mélanges hybrides sont inférieures à celles obtenues pour des mélanges homogènes hydrogène - air. Dans ces tests, seul l'hydrogène brûle. Ceci est confirmé par l'analyse des produits de combustion qui indique que les produits de combustion sont seulement constitués d'O₂ et de N₂. Ni le CO₂, ni

le H₂ ne sont présents. Dans ce cas les poussières jouent le rôle d'un puits de chaleur réduisant la surpression maximale et ralentissant plus ou moins rapidement l'explosion de l'hydrogène.

Ces explications sont aussi valables pour les mélanges avec 10, 10,5 et 11% d'hydrogène dans lesquels les poussières de graphite ne brûlent pas.

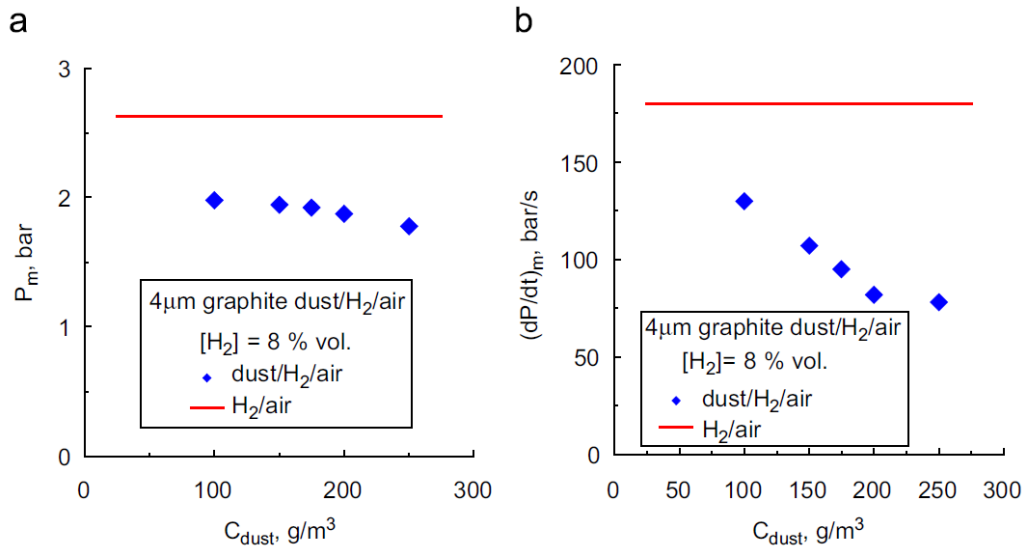


Figure 1-42 : (a) Surpression maximale (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en particules de graphite pour différents mélanges 8 %vol H₂ - graphite - air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [112]

Cas (B) :

Le mélange étudié est le mélange 10% H₂ - graphite - air pour lesquels les poussières brûlent. La Figure 1-43 représente l'enregistrement au cours du temps de la pression à l'intérieur de la sphère et de sa dérivée au cours du temps pour ces mélanges pour différentes concentrations en poussières de graphite.

L'observation de la partie (a) de la figure nous permet de distinguer que l'explosion de ces mélanges se fait en deux temps. Cette deuxième phase d'explosion commence juste après la fin de la première et rajoute jusqu'à 3 bar de pression supplémentaire à l'explosion.

La première phase est très rapide (environ 20 - 30 ms) et la deuxième plus lente (jusqu'à 100 ms). La caractérisation de ce phénomène se fait à partir de la partie (b) de la figure. Les résultats montrent que la dérivée de la pression au cours du temps lors de la deuxième phase est beaucoup plus lente (de 2 à 7 fois selon les cas) que lors de la première phase.

L'explication concernant l'explosion en deux phases est la suivante. Le premier pic de pression correspond à l'explosion de l'hydrogène et la deuxième à l'explosion des poussières de graphite. Les valeurs obtenues sur les deux graphiques concernant le premier pic de pression avec et sans les poussières sont sensiblement les mêmes ce qui confirme que ce pic correspond à l'explosion de l'hydrogène.

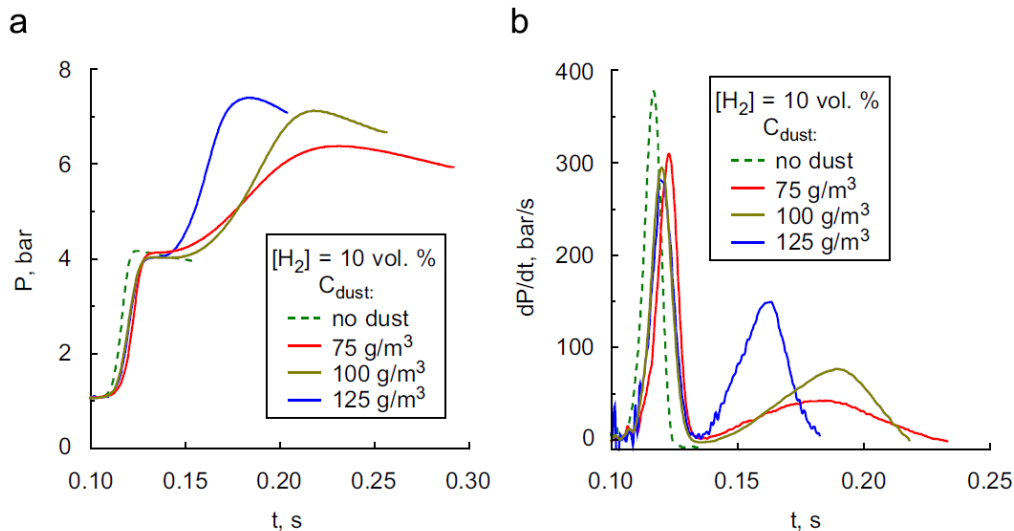


Figure 1-43 : Représentation (a) du signal de pression (en bar) et (b) de sa dérivée (en bar/s) en fonction du temps pour différentes concentrations en graphite pour des mélanges 10 %vol H₂ - graphite - air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [112]

Dans ces cas de figure, la combustion de l'hydrogène est préalablement nécessaire à l'explosion des poussières de graphite. En effet, la combustion de l'hydrogène entraîne dans le milieu une augmentation de la température et de la pression qui permettent l'explosion des particules de graphite.

Pour le deuxième pic de pression, c'est-à-dire la combustion du graphite, plus la quantité de poussières introduites dans le mélange est importante plus celui-ci augmente brutalement et donne des valeurs plus grandes. Pour les mélanges avec 10 %vol d'hydrogène, cette augmentation du deuxième pic de pression se fait jusqu'à une concentration en graphite de 125 g/m³, concentration à partir de laquelle on ne retrouve plus d'oxygène dans les produits de combustion. Cette concentration est appelée la concentration optimale en poussières du mélange.

Ces explications sont aussi valables pour les mélanges avec des teneurs en hydrogène de 10,5 et 11 % vol pour lesquels les poussières de graphite brûlent. Cependant concernant les caractéristiques du deuxième pic de pression (celui des poussières), il est nécessaire de modérer les propos tenus dans le paragraphe précédent. En effet, cette explosion se fera de manière plus rapide et intense lorsque plus de poussières seront présentes dans le mélange mais ceci n'est valable que jusqu'à la concentration optimale. Ensuite, avec l'ajout de poussières supplémentaires, l'oxygène étant en défaut, la vitesse et l'intensité de la combustion des poussières diminueront.

Ce dernier paragraphe s'applique aux mélanges avec 12 et 14% d'hydrogène pour les cas où les explosions se produisent en deux phases distinctes.

Cas (C) :

Les mélanges situés dans ce cas sont les mélanges pour lesquels, l'explosion des poussières se fait sur toute la gamme de concentration étudiée (jusqu'à 200 g/m³). Ces mélanges ont une teneur en hydrogène dans le milieu égale ou supérieure à 12 %vol.

Il faut noter que des concentrations en graphite supérieures à 200 g/m^3 ont été testées, notamment 250 g/m^3 , mais dans ces cas-là, aucune étincelle électrique n'a pu être produite.

Cas (D) :

Le mélange étudié dans ce cas est le mélange 12% H_2 - graphite - air pour lesquels les poussières brûlent dans un même intervalle de temps que l'hydrogène c'est-à-dire que l'explosion se fait en une seule phase. La Figure 1-44 représente l'enregistrement au cours du temps de la pression à l'intérieur de la sphère et de sa dérivée au cours du temps pour différents mélanges avec différentes concentrations en poussières de graphite.

Les deux parties de la Figure 1-44 permettent de montrer que pour les cas à 50 et 100 g/m^3 de poussières de graphite dans le milieu, l'explosion de l'hydrogène et du graphite est réalisée sur un même intervalle de temps, un seul pic de pression étant observé lors de son enregistrement sur toute la durée de l'expérience. Dans ce cas de figure, seule une partie de l'hydrogène a besoin de brûler afin de permettre l'explosion des particules. Tout comme pour les explosions en deux phases, une augmentation de la surpression maximale est observée par rapport au mélange hydrogène - air. Cependant, à la différence des mélanges précédents, dans certains cas (exemples : [graphite] = 50 g/m^3 pour le mélange 12% H_2 - graphite - air ; [graphite] = 50 et 100 g/m^3 pour le mélange 14% H_2 - graphite - air ; ...) sont observées des valeurs de $(dP/dt)_{\text{MAX}}$ supérieures à celle du mélange homogène sans graphite.

Pour les expériences dans ce cas, de l'hydrogène dans les produits de combustion est retrouvé. Ceci s'explique par la compétition qui s'installe entre l'hydrogène et les particules de graphite. En effet, dans les expériences où l'hydrogène et le graphite brûlent presque simultanément (seule une partie de l'hydrogène a besoin d'être brûlé avant que les poussières ne s'enflamment), une partie de l'hydrogène se retrouve en compétition avec les particules de graphite et peut donc se retrouver priver d'oxygène.

La concentration optimale en poussières dans le cas du mélange 12 % vol H_2 - graphite - air est de 100 g/m^3 ce qui montre une diminution par rapport au mélange précédent (mélange avec 10 % vol d'hydrogène). Cette diminution dans la concentration optimale est confirmée par les résultats des mélanges avec une concentration en hydrogène comprise entre 14 et 18 % vol en H_2 (Tableau 1-15). Ceci s'explique tout simplement par l'augmentation de la richesse dans le milieu lorsque que la concentration en hydrogène augmente, l'oxygène se retrouve alors plus rapidement en défaut en présence de particules de graphite.

Les explications concernant les explosions simultanées de l'hydrogène et des poussières de graphite sont également valables pour les mélanges contenant des teneurs en hydrogène de 14 à 18 % vol.

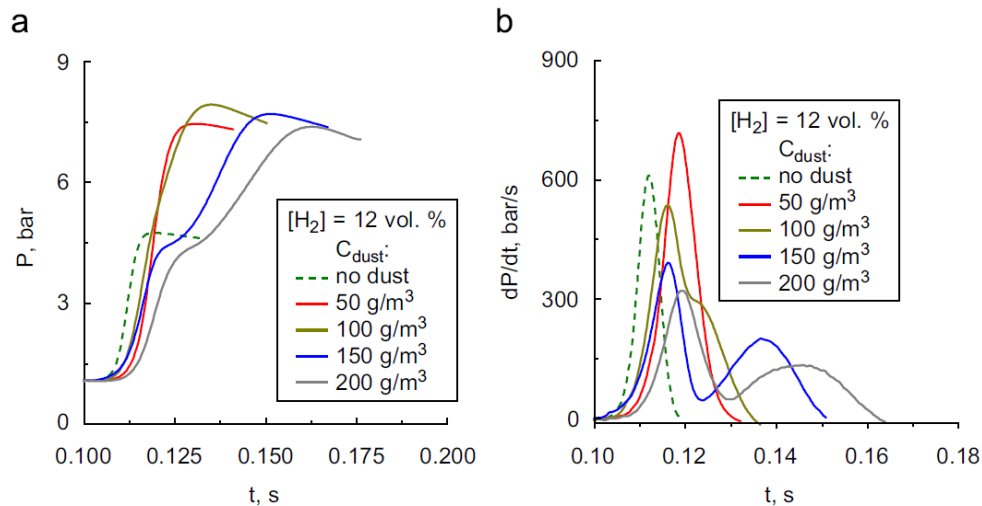


Figure 1-44 : Représentation (a) du signal de pression (en bar) et (b) de sa dérivée (en bar/s) en fonction du temps pour différentes concentrations en graphite pour des mélanges 12 %vol H_2 - graphite - air⁹ à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [112]

Cas (E) :

Ce dernier point concerne les mélanges contenant une teneur en hydrogène minimale de 16 %vol dans le milieu. Pour ces deux mélanges, sur tout le domaine de concentration étudié (de 25 à 200 g/m³), l'explosion des poussières de graphite se fait en simultanée avec celle de l'hydrogène. Ces mélanges sont particulièrement dangereux et donnent des valeurs de surpressions maximales (tous les cas) et de vitesses de montée en pression (une très grande majorité de cas, les exceptions provenant des mélanges où l'oxygène est très en défaut) très supérieures aux cas des mélanges homogènes hydrogène - air (Figure 1-45)

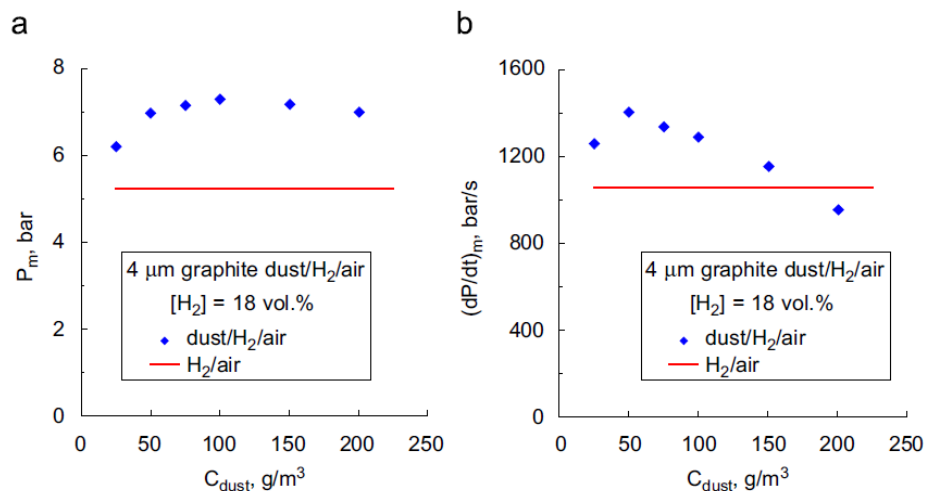


Figure 1-45 : (a) Surpression maximale (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en particules de graphite pour différents mélanges 18 %vol H_2 - graphite - air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [112]

⁹ Les cas correspondants aux concentrations en graphite de 150 et 200 g/m³ sont expliqués par le cas de figure (B).

1.4.2 Le tungstène

Tout comme le graphite, les paramètres d'explosivité des particules de tungstène (W) ont été très peu étudiés.

1.4.2.1 Mélanges W/O₂/N₂

Denkevits et Dorofeev ont réalisé deux études sur ces mélanges. Ces études ont été réalisées dans la sphère de 20 L de type Siwek avec des particules de tungstène de trois tailles différentes : une fraction 0,6-0,9 µm (référéncée après comme des particules de taille 1 µm), 5 et 12 µm [110,111].

L'impact de la taille et celui de la concentration des particules de tungstène sur les paramètres d'explosivité (P_m et $(dP/dt)_{MAX}$) et d'inflammabilité (CME) de la particule ont été étudiés. Des énergies d'inflammation de 10 kJ ont été utilisées pour l'explosion des mélanges.

Les particules de 5 et 12 µm ont été testées sur des larges gammes de concentration : de 350 à 7500 g/m³ pour les particules de 5 µm et de 250 à 6000 g/m³ pour les particules de 12 µm. Aucune inflammation n'a été observée pour ces particules sur leurs domaines respectifs. Seules les particules de 1 µm, sur le domaine de concentration testé : 250 - 7500 g/m³, s'enflamment. La CME de cette particule a été mesurée pour une concentration en tungstène égale à 450 g/m³ (la méthode de mesure est identique à celle présentée précédemment pour les mélanges graphite-air) [110,111].

La Figure 1-46 présente l'évolution des paramètres d'explosivité des mélanges tungstène - air en fonction de la concentration en particules de tungstène (de taille 1 µm). P_m et $(dP/dt)_{MAX}$ augmente de la CME jusqu'à atteindre leurs maxima respectifs (5,6 bar pour P_m corrigé et un peu plus de 300 bar/s pour $(dP/dt)_{MAX}$ corrigé) pour une concentration en particules de tungstène de 5000 g/m³. Au-delà de cette valeur (par exemple, à [Tungstène] = 7500 g/m³) les paramètres d'explosivité diminuent.

La correction de la pression initiale s'explique par le fait que, pour certaines expériences, près de 100 g de poussières de tungstène pouvait se retrouver dans le réservoir attaché à la sphère et lors de l'injection de ces poussières dans le milieu, une certaine quantité d'air (toutes les particules étant injectées) restait à l'intérieur du réservoir, la pression dans la sphère de 20 L se retrouvait alors inférieure à 1 bar. La méthode de la correction de la pression n'est pas expliquée dans les travaux de Denkevits et Dorofeev [110,111].

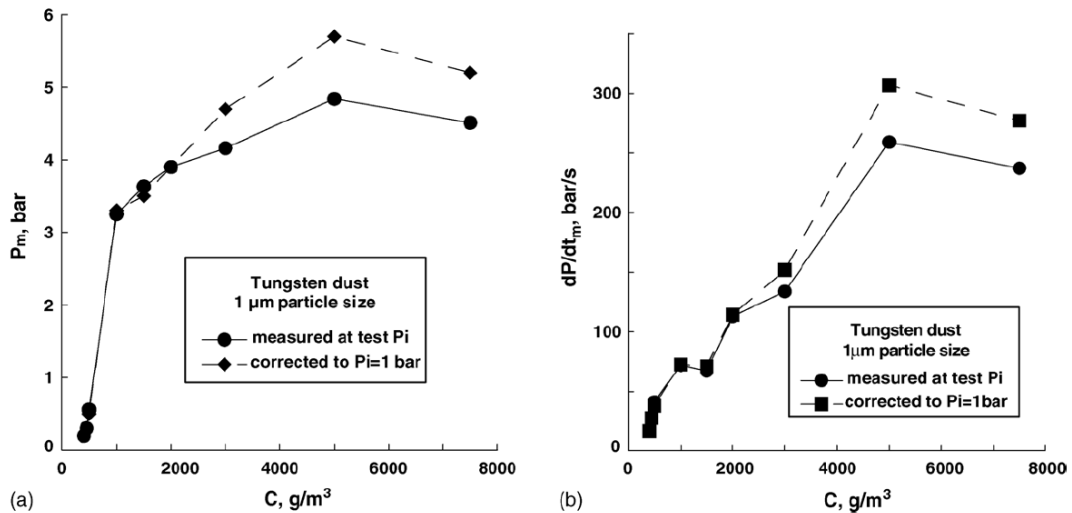


Figure 1-46 : (a) Surpression maximale (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en particules de tungstène pour différents mélanges tungstène-air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [110,111]

1.4.2.2 Mélanges $H_2/W/O_2/N_2$

Tout comme le mélange à base de graphite, le mélange $H_2/W/O_2/N_2$ a seulement été étudié par Denkevits dans le cadre de la sûreté d'ITER [113].

Ces expériences ont été réalisées dans une sphère 20 L de Siwek avec des tailles de particules de tungstène comprises entre 0,2 et 0,55 μm (la plupart font 0,3 μm de diamètre). Dans cette étude, les énergies d'inflammation utilisées sont suffisantes pour enflammer l'hydrogène seul mais pas les particules seules, le but de l'étude étant de mesurer l'impact des poussières sur les mélanges hybrides. Comme pour les mélanges à base d'hydrogène et de graphite, les énergies d'inflammation utilisées pour cette étude ne sont pas explicitées, seules les caractéristiques liées à l'inflammation électrique sont données (tension de 5 kV). La fraction molaire en hydrogène, dans le milieu, varie entre 7 et 18 % mol dans la phase gazeuse et la fraction molaire en oxygène dans le mélange gazeux non-combustible varie entre 10 et 21 % mol [113].

Les paramètres étudiés au cours de cette étude sont la surpression maximale (P_m) et le taux maximal de montée en pression $(dP/dt)_{MAX}$. Une analyse des produits de combustion qualitative est réalisée également à l'aide d'un spectromètre de masse.

L'évolution des paramètres d'explosivité de mélanges tungstène - hydrogène - air est tracée en fonction de la concentration en particules de tungstène pour différentes concentrations en hydrogène dans le milieu sur la Figure 1-47. Pour les 4 mélanges, P_m augmente de la concentration minimale testée (100 g/m^3) jusqu'à une concentration de 2000 g/m^3 (sauf pour le mélange à 7 % vol H_2 , pour lequel le maximum de P_m est atteint pour une concentration en particules de tungstène de 4000 g/m^3) puis diminue lentement jusqu'à la concentration maximale testée (7500 g/m^3). Une même évolution peut être observée pour les

taux maximum de montée en pression avec cependant différents maxima selon le pourcentage en hydrogène dans le milieu.

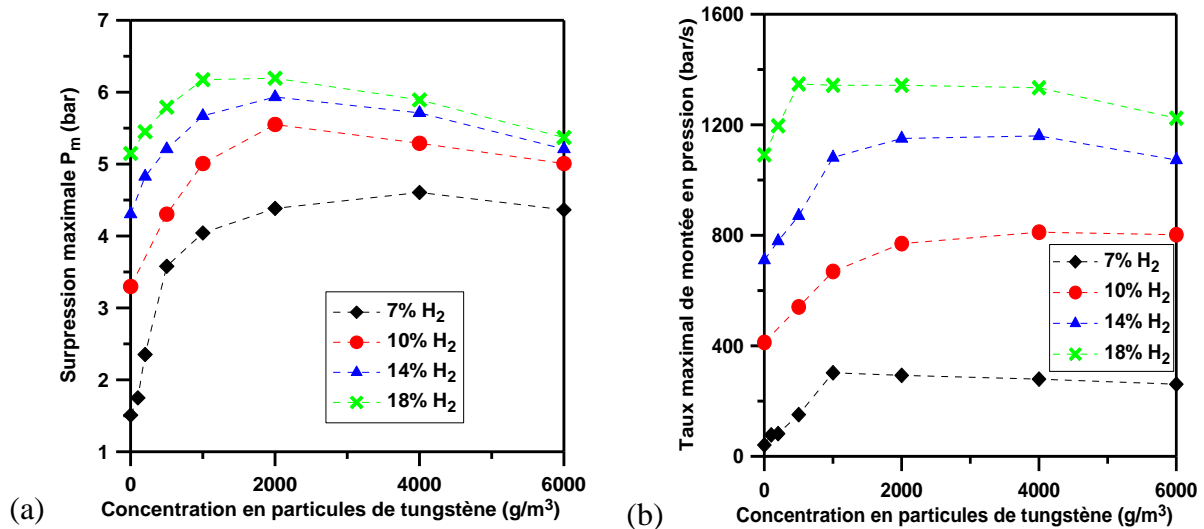


Figure 1-47 : (a) Surpression maximale P_m (en bar) et (b) Taux maximal de montée de pression (en bar/s) en fonction de la concentration en particules de tungstène pour des mélanges hydrogène - tungstène - air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [113]

Pour la partie de l'étude concernant l'impact de la concentration en oxygène sur le milieu, une concentration en particules de tungstène de 2000 g/m^3 a été choisie car c'est pour cette concentration que pour la plupart des mélanges (3 sur 4) que le maximum de surpression est atteint et c'est également la concentration qui se rapproche le plus des concentrations optimales des mélanges. Pour rappel, la concentration optimale d'un mélange hybride est définie, par Denkevits, comme le mélange avec la concentration en poussières la plus faible pour lequel l'oxygène n'est plus présent dans les produits de combustion [113].

La Figure 1-48 représente l'évolution des paramètres d'explosion des mélanges 7% vol H₂/O₂/N₂ et 7% vol H₂/W/O₂/N₂ en fonction du pourcentage en oxygène dans le milieu. Pour ces mélanges, l'impact des particules de tungstène est très important. Pour une teneur en oxygène de 21% vol, l'ajout des particules de tungstène conduit à une augmentation de P_m de 1,6 à 4,6 bar et une augmentation de $(dP/dt)_{MAX}$ de 40 à 400 bar/s. L'explosion de ce mélange peut être considérée comme une explosion de poussières pure initiée par une faible explosion d'hydrogène elle-même initiée par une faible étincelle électrique.

L'augmentation de la concentration initiale en hydrogène dans le milieu conduit à une diminution de l'impact des poussières (Figure 1-49 et Figure 1-50). Lorsque l'on augmente le pourcentage volumique en hydrogène dans le mélange à 14% vol, on note une valeur particulière correspondant aux mélanges avec une teneur en O₂ dans l'air de 12% vol ; pour une teneur en O₂ plus faible, P_m et $(dP/dt)_{MAX}$ en présence de tungstène sont plus faibles que ceux observés pour le mélange gazeux seul. Par contre, au dessus de cette valeur critique, les

deux paramètres P_m et $(dP/dt)_{MAX}$ augmentent non linéairement avec la teneur en O_2 dans le milieu. La même évolution est observée lorsque la teneur en H_2 dans le mélange est de 18 % vol. Le pourcentage critique en O_2 est dans ce cas de 14 % vol.

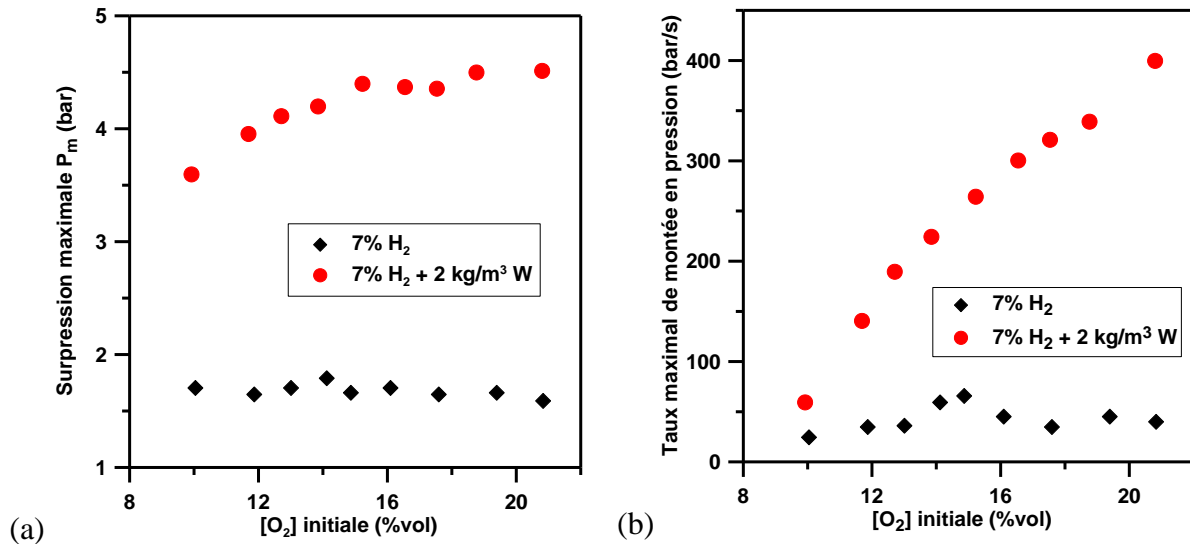


Figure 1-48 : (a) Surpression maximale P_m (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en O_2 dans l'air pour différents mélanges 7%vol H_2 - air en présence ou non de tungstène (2 kg/m^3 W) à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [113]

L'effet de la dilution par l'azote joue un rôle important sur les paramètres d'explosivité des mélanges $H_2/W/O_2/N_2$. Effectivement, pour les mélanges étudiés, ici, une diminution de la concentration initiale en oxygène conduit à une diminution des paramètres d'explosivité des mélanges. Il existe même des cas, pour des dilutions très importantes (moins de 16 % vol de O_2 dans le mélange), les paramètres d'explosivité des mélanges hybrides deviennent inférieurs à ceux obtenus pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ (Figure 1-49 et Figure 1-50). Ceci s'explique par le fait que quand la dilution devient trop importante, la quantité d'oxygène présente dans le milieu est trop faible par rapport à la quantité de combustible et la cinétique de combustion devient plus lente et plus faible [113].

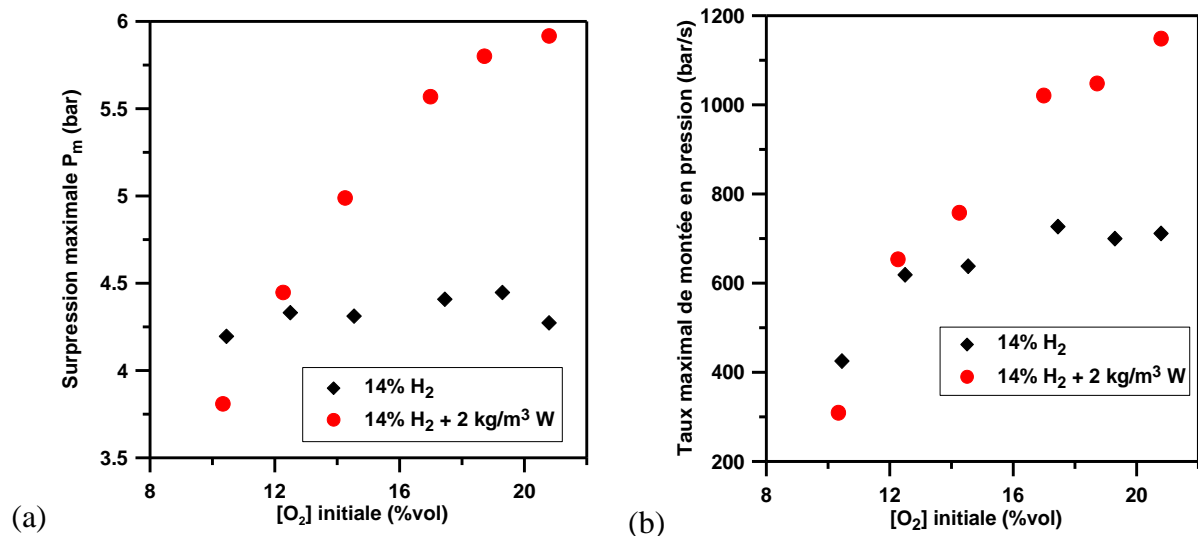


Figure 1-49 : (a) Surpression maximale P_m (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en O_2 dans l'air pour différents mélanges 14%vol H_2 - air en présence ou non de tungstène (2 kg/m^3) à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [113]

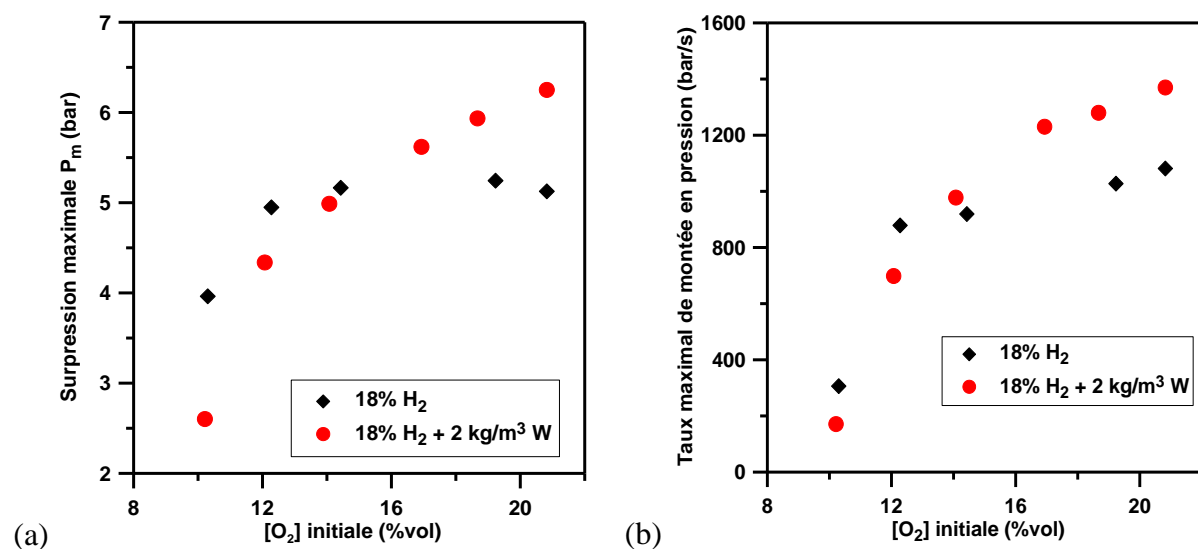


Figure 1-50 : (a) Surpression maximale P_m (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) en fonction de la concentration en O_2 dans l'air pour différents mélanges 18%vol H_2 - air en présence ou non de tungstène (2 kg/m^3) à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [113]

1.4.3 Mélanges C(graphite)/W/O₂/N₂

Ce mélange de plusieurs poussières combustibles (graphite et tungstène) a été étudié par Denkevits et Dorofeev dans la suite de leurs études sur les mélanges graphite-air et tungstène-air [110,111]. Les expériences concernant ces mélanges ont été réalisées dans une sphère de 20 L Siwek avec des énergies d'inflammation de 10 kJ.

Les poussières choisies pour ces mélanges sont le graphite avec une taille de 4 μm et le tungstène avec une taille de 1 μm . Ces particules ont été choisies par les auteurs car leurs études précédentes avaient montré leur capacité à brûler facilement.

Différents mélanges ont été étudiés, à température ambiante et à 100 kPa, chacun à une concentration propre choisie comme étant la concentration pour lequel le mélange considéré donne les paramètres d'explosivité (P_m et $(dP/dt)_{MAX}$) les plus importants. Le Tableau 1-16 résume les conditions initiales des différents mélanges étudiés.

Rapport molaire W/C	Carbone pur	1/30	1/4	1/1	3/1	Tungstène pur
Fraction molaire du tungstène, C_w	0	0,03	0,25	0,5	0,75	1
Rapport massique W/C	0	0,5	3,8	15,3	46	
Concentration totale en poussières du mélange testé (g/m^3)	250	410	1100	2300	3300	5000

Tableau 1-16 : Conditions initiales des mélanges graphite - tungstène - air étudiés à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [110,111]

La Figure 1-51 représente l'évolution des paramètres d'explosivité des mélanges graphite - tungstène - air en fonction de la fraction molaire en tungstène dans le milieu. Pour les surpressions maximales, figure (a), une augmentation de la quantité en tungstène dans le milieu conduit à une diminution non-linéaire de P_m , la chute de la surpression étant beaucoup plus forte lorsque la concentration en tungstène dans le milieu devient plus importante (Figure 1-51). Le maximum de $(dP/dt)_{MAX}$ est atteint pour le mélange où le rapport molaire W/C est de 1/1. Ce mélange avec un taux maximal de montée en pression de 360 bar/s brûle plus rapidement que les mélanges de poussières pures (pour le mélange où le graphite est pur, $(dP/dt)_{MAX} = 250$ bar/s et pour celui où le tungstène est pur, $(dP/dt)_{MAX} = 300$ bar/s) [110,111].

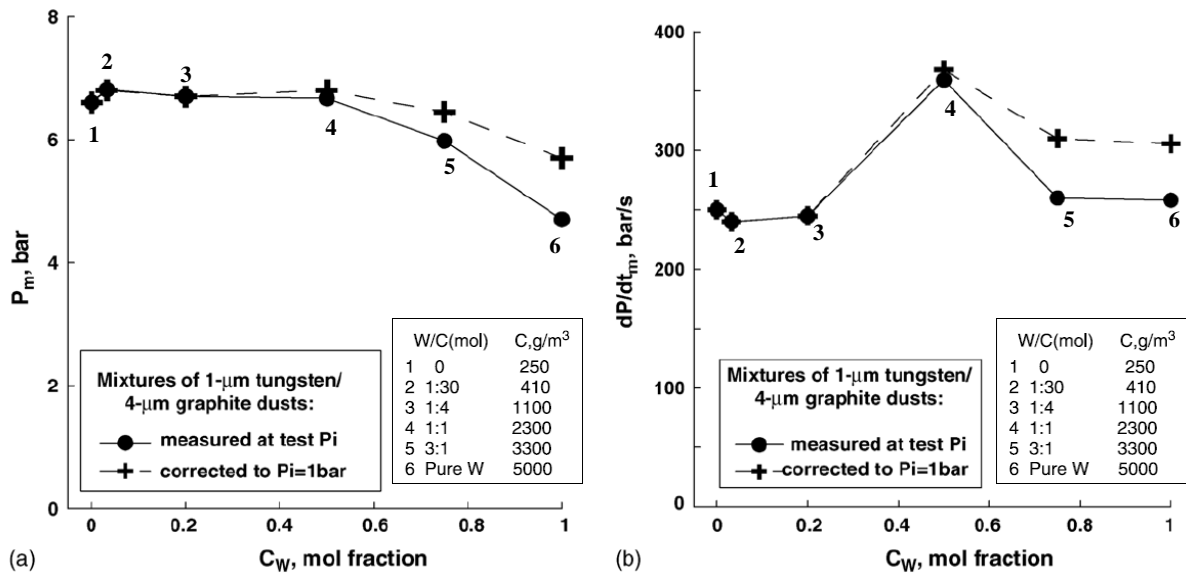


Figure 1-51 : (a) Surpression maximale (en bar) et (b) Taux maximal de montée en pression (en bar/s) pour différents mélanges graphite-tungstène-air, en fonction de la fraction molaire en tungstène dans le mélange tungstène-air à température ambiante et pour une pression de 100 kPa [110,111]

1.4.4 Conclusion

Denkevits et coll. au cours de ces différentes études ont caractérisé les paramètres d'explosivité des poussières de graphite et de tungstène en présence ou non d'hydrogène [110,111,112,113]. Cependant, de nombreuses conditions n'ont pas été étudiées. En effet, Denkevits, dans ses études, n'a pas considéré des quantités d'hydrogène supérieures à 18 %vol et des mélanges où l'air est enrichi en oxygène. Dans le cadre de ce travail, afin d'améliorer la base de données expérimentales, ces mélanges seront pris en compte.

De plus, la méthode d'introduction des poussières via la méthode de la bombe 20 L de Siwek ne permet pas de savoir quelle est la quantité de poussières exacte à l'intérieur de la bombe. En effet, l'injection de quantités importantes de poussières dans un délai si court (moins de 0,06 s) fait qu'une partie des poussières peut ne pas se retrouver en suspension et peut se coller directement aux parois ce qui donne des concentrations en poussières dans le milieu inférieures à celles attendues. Une tentative nouvelle de protocole expérimental qui décrit au mieux la quantité de poussières introduite dans le milieu est décrite dans le prochain chapitre.

1.5 Conclusion

Ce premier chapitre présente les rappels théoriques nécessaires à la compréhension de cette étude et l'état de l'art sur la combustion des mélanges $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2$ et $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2$ /poussières. Cet état de l'art a permis de mettre en exergue un nombre de données importants concernant l'étude générale des mélanges à base d'hydrogène et/ou de poussières. Cependant, de

nombreux points restent à éclaircir. Le premier concerne l'impact de l'enrichissement en oxygène dans le milieu, c'est-à-dire une concentration dans l'air supérieure à 21 %mol, a été très peu étudié quelque soit le mélange concerné. Le deuxième porte sur la détermination des paramètres d'explosivité des mélanges H₂/Air et H₂/O₂/N₂ qui n'ont été étudiés que par Tang et coll. [66]. Le troisième et dernier point où de nouvelles données expérimentales sont nécessaires concerne l'étude des mélanges diphasiques hydrogène et poussières de carbone ou de tungstène. Ces mélanges ont seulement été étudiés par Denkevits et Dorofeev [110,111,112,113] et ce pour des conditions expérimentales très limitées. Une base de données expérimentale plus large est donc nécessaire afin de caractériser au mieux les risques d'accidents provoqués par les poussières dans l'installation ITER.

**CHAPITRE 2 : DISPOSITIFS
EXPERIMENTAUX ET
METHODOLOGIE**

2 Dispositifs expérimentaux et méthodologie

La détermination des paramètres d'explosivité (t_C , P_{MAX} , K_G (ou ST), S_L°) des mélanges $H_2/O_2/N_2$ et $H_2/O_2/N_2$ /poussières dans une gamme de conditions expérimentales proches de celles susceptibles d'être rencontrées dans l'installation ITER, objet de ce travail, nécessite l'utilisation de différents dispositifs expérimentaux attachés à des protocoles opératoires très particuliers. Les deux dispositifs employés au cours de cette étude (les bombes sphériques de 8 et 56 L) sont complémentaires. En effet de par leur différence de volume (facteur 7) et de conception, elles permettent l'étude de l'impact de différents paramètres expérimentaux sur un même phénomène. La description de ces deux dispositifs expérimentaux sera le premier point abordé dans ce chapitre. S'en suivra, une présentation de la méthodologie utilisée pour la caractérisation des paramètres d'explosivité des différents mélanges étudiés.

De nombreuses études portant sur différents mélanges gazeux ont été réalisées au laboratoire [7,16,58,114]. Néanmoins, c'est la première fois qu'une étude portant sur des mélanges diphasiques poussières-gaz est réalisée. Un nouveau protocole expérimental nécessaire à cette étude (étude de la taille des poussières, de leur injection à l'intérieur de la bombe) a donc été mis en place et est présenté dans la partie 3 de ce chapitre.

Ce chapitre se termine par la présentation des conditions expérimentales des mélanges réalisés au cours de ce travail ainsi que des différents outils de modélisation utilisés.

2.1 La bombe sphérique

2.1.1 Principe de la bombe sphérique

Dans cette méthode, le mélange combustible est au repos dans une enceinte sphérique et rigide. Ensuite, une étincelle électrique est produite au centre de l'enceinte sphérique. Une flamme se propage alors avec une symétrie sphérique depuis le centre jusqu'aux parois de l'enceinte [58].

Lors de la propagation, le dégagement de chaleur dû à la combustion du mélange gazeux engendre l'expansion du front de flamme. La pression augmente alors dans l'enceinte et les gaz frais sont comprimés de manière adiabatique, ce qui provoque l'augmentation de la température de part et d'autre du front de flamme. Les valeurs de température et de pression obtenues deviennent alors fortement supérieures aux valeurs initiales. Cependant pour un rayon de flamme r très inférieur au diamètre de l'enceinte, la propagation du front de flamme s'effectue à température et pression constantes car le volume des gaz brûlés est petit devant le volume des gaz frais. Des relations permettent alors la détermination de la vitesse fondamentale de flamme laminaire (S_L°) du mélange à partir de la simple mesure du rayon de la flamme au cours du temps.

La présence d'un capteur de pression, monté affleurant à la paroi interne de l'enceinte permet ainsi de suivre l'évolution de la pression au sein de l'enceinte. Lorsque la flamme atteint la paroi de l'enceinte, tout le volume de gaz frais est brûlé. La pression atteint alors son

maximum. À partir de l'enregistrement de ce signal, on peut déduire : la pression maximale de combustion, le taux maximal de montée en pression ainsi que le temps de combustion.

2.1.2 Description des enceintes utilisées

2.1.2.1 Enceinte de 8 L

L'étude expérimentale concernant les mélanges $H_2/O_2/N_2$ /poussières a été réalisée dans une enceinte sphérique en acier inoxydable d'un volume de 8,18 L et de 250 mm de diamètre interne. Elle est équipée de deux hublots en quartz, diamétralement opposés, de 97 mm de diamètre et de 40 mm d'épaisseur permettant un passage optique de 70 mm à travers la bombe. La paroi interne a été noircie par un traitement EBONOL© afin de limiter au maximum les réflexions multiples d'émission lumineuse à l'intérieur de l'installation. L'enceinte de 8 L est équipée de nombreux bossages permettant le montage d'un capteur de pression, d'un thermocouple, des systèmes d'introduction et d'évacuation des gaz et d'un système d'électrodes pour l'inflammation des mélanges (Figure 2-1).

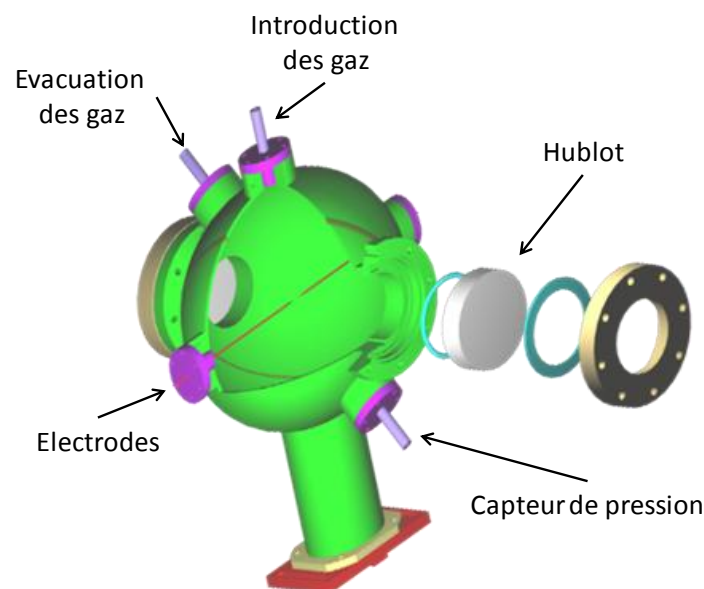


Figure 2-1 : Vue globale de la bombe sphérique de 8 L

2.1.2.2 Enceinte de 56 L

La bombe sphérique utilisée au cours de l'étude concernant les mélanges $H_2/O_2/N_2$ est une enceinte en acier inoxydable constituée de deux sphères concentriques et porte le nom de SF2 pour « Spherical Flame Facility ». La sphère interne, au sein de laquelle se développe la flamme, a un diamètre interne de 476 mm. Sa pression de service est de 50 bar. La paroi interne a été noircie par un traitement EBONOL© afin de limiter au maximum les réflexions multiples d'émission lumineuse à l'intérieur de l'installation. La seconde enveloppe possède un diamètre externe de 500 mm pour une pression de service de 3 bars. Elle sert de volume

interstitiel pour la circulation d'un fluide caloporteur (huile thermique) pouvant être chauffé jusqu'à 250°C. La première enceinte sphérique est munie de nombreux bossages permettant (Figure 2-2) [7] :

- la visualisation de la propagation de la flamme (H_1 à H_4) à l'aide de quatre hublots de 120 mm de diamètre (97 mm de passage optique) et de 30 mm d'épaisseur diamétralement opposés deux à deux ;
- le montage des électrodes (E_1 et E_2) ;
- le montage d'un capteur de pression (C_1) ;
- le montage d'un thermocouple (T_1 ou T_2) ;
- l'introduction des gaz (G_1) ;
- la circulation du fluide caloporteur (FC_1 et FC_2) ;
- l'installation de ventilateurs afin de permettre la création d'une turbulence homogène et isotrope contrôlée (V_1 à V_4).

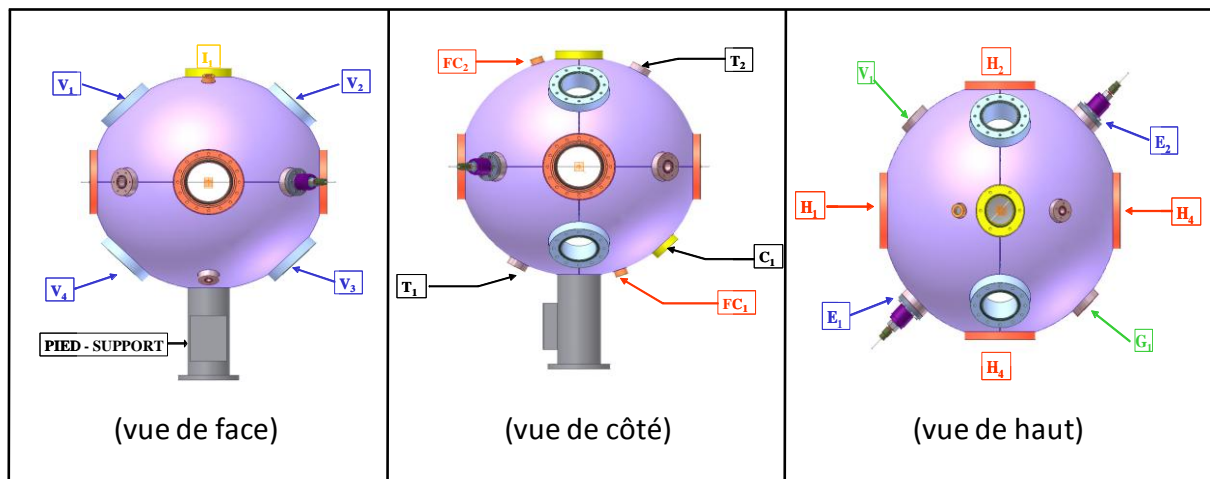


Figure 2-2 : Schéma de la bombe sphérique SF2.

La Figure 2-3 représente une vue plus détaillée de la seconde enveloppe.

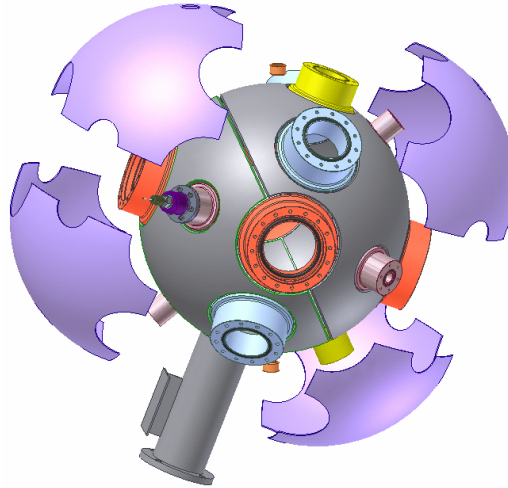


Figure 2-3 : Vue détaillée de SF2 et notamment de la seconde enveloppe

2.1.3 Préparation des mélanges

La préparation des mélanges combustibles gazeux et diphasiques (mélanges gaz-solide) peut être réalisée à partir de deux différentes méthodes : la méthode des pressions partielles (utilisée pour les mélanges gazeux dans l'enceinte de 56 L) et la méthode des débitmètres massiques (utilisée pour les mélanges diphasiques dans l'enceinte de 8 L).

2.1.3.1 Méthode des pressions partielles

L'ensemble de l'installation (enceinte de 56 L) est relié à deux pompes à vide primaire de $20 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ chacune. Ces pompes sont équipées de moteurs antidéflagrants et permettent d'atteindre un vide dans l'installation de l'ordre de 20 Pa avant le remplissage de l'enceinte. Le mélange 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. Les composants sont introduits en fonction de leur pression partielle par ordre croissant à l'exception de l'hydrogène qui, lui, est ajouté toujours en dernier en raison de sa diffusivité très importante. La mesure de chaque pression partielle se fait au moyen de deux manomètres capacitifs MKS® Baratron Type 631. Ces deux manomètres permettent de disposer de deux gammes de mesure : la première entre 0 et 13 kPa et la deuxième entre 0 et 133 kPa.

Les gaz utilisés au cours de cette étude ont été fournis par Air Liquide avec une pureté standard supérieure à 99,9%.

Les incertitudes sur la composition des mélanges $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2$ ainsi introduits sont déterminées à partir des pressions partielles des gaz et des erreurs de lecture sur les manomètres. Ainsi, elles peuvent être exprimées en fonction des fractions molaires des composants des mélanges soit en fonction de la richesse du mélange. Pour les fractions molaires des mélanges : $\text{Erreur}(X_{\text{composé}}) = X_{\text{composé}} * 1,3 \cdot 10^{-3}$. La valeur $1,3 \cdot 10^{-3}$ est calculée à partir du mélange où les pressions partielles des composés, par rapport à l'utilisation des

manomètres, sont les plus défavorables à la détermination exacte des fractions molaires. Pour une fraction molaire en hydrogène de 0,6, l'erreur vaut donc $X_{H_2} = 0,6000 \pm 0,0008$. L'erreur sur la richesse Φ se détermine de la même façon et est égale à $\text{Erreur}(\Phi) = \Phi * 0,002$. Pour un mélange avec une richesse de 2,5, l'erreur vaut $\Phi = 2,500 \pm 0,005$.

2.1.3.2 Méthode des débitmètres

Pour les expériences concernant les mélanges diphasiques, le remplissage de l'enceinte se fait à l'aide de débitmètres massiques MKS®, avec une gamme de débits allant de 0 à 20000 sccm (Standard Cubic Centimeter per Minute) soit jusqu'à 20 L par minute, associés à un lecteur MKS® type 247D. La mesure de la pression à l'intérieur de l'enceinte est réalisée à partir d'un manomètre piézorésistif de marque Kistler® avec une gamme de mesure allant de 0 à 1 MPa et un capteur capacitif de marque Edwards® 600AB avec une gamme de 0 à 100 kPa. L'enceinte de 8 L est dotée d'une pompe à vide primaire de $20 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$, équipée d'un moteur antidéflagrant, et permettant d'atteindre un vide dans l'installation de l'ordre de 20 Pa avant le remplissage de l'enceinte.

L'hydrogène et les différents mélanges oxygène-azote sont injectés simultanément selon différents débits en fonction des conditions initiales souhaitées. Cependant, afin d'être sûr de la composition obtenue lors du remplissage de l'enceinte par les débitmètres, des prélèvements gazeux ont été réalisés afin de déterminer la composition exacte du mélange utilisé. Les prélèvements sont ensuite analysés en chromatographie en phase gazeuse (CPG).

2.1.3.2.1 Chromatographe Phase Gazeuse

Le chromatographe utilisé pour l'étalonnage des débitmètres est de type HP 5890 Série II®. Il est équipé d'une colonne remplie (tamis moléculaire) qui permet la séparation des différents composés du mélange. La détection des composés se fait à l'aide d'un catharomètre (Détecteur TCD) et est réalisée par la différence de conductibilité thermique entre les composés et le gaz vecteur. Dans notre cas, le gaz vecteur était de l'argon. L'introduction des différents mélanges dans le chromatographe se fait à l'aide d'un système d'injection propre au laboratoire et équipé d'un piston et d'un manomètre qui permettent l'injection du mélange gazeux à la pression désirée. Pour les différents étalonnages réalisés à l'aide de la CPG, la pression d'injection était de 33 kPa afin d'éviter une saturation au niveau de la détection.

2.1.3.2.2 Etalonnage du CPG

L'étalonnage du chromatographe est une étape primordiale dans l'analyse. Elle consiste à la préparation de ballons dits « étalons » à la composition connue exactement auxquels vont être associés des surfaces de pics de détection des composés. Ces mélanges sont préparés sur un banc de préparation dédié aux mélanges étalons équipé d'un manomètre Keller® Leo 1 avec une gamme de mesure entre 0 et 400 kPa et d'une pompe à vide primaire

permettant d'obtenir un vide de l'ordre de quelques dizaines de Pascal dans l'installation. Ces mélanges sont réalisés par la méthode des pressions partielles dans des ballons étalons de 10 L et sont injectés plusieurs fois dans le chromatographe afin de déterminer des surfaces de pics de détection avec le moins d'incertitude possible. Une fois tous les ballons d'étalonnage analysés par chromatographie, une droite d'étalonnage des composés en fonction de l'aire mesurée au cours de l'analyse chromatographique est tracée. Un ballon étalon est préparé et testé régulièrement dans le chromatographe afin de vérifier la validité de l'étalonnage. Un exemple de chromatogramme obtenu par CPG est donné en Figure 2-4.

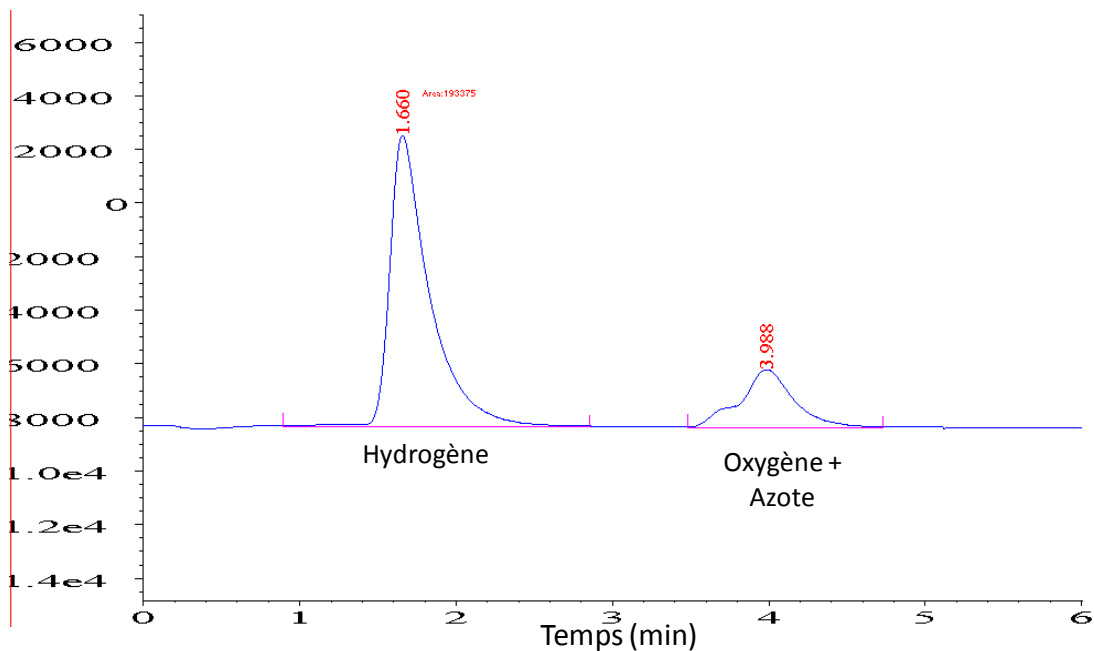


Figure 2-4 : Exemple de chromatogramme obtenu pour un mélange hydrogène-air

2.1.3.2.3 Mélanges étudiés en fonction des débits demandés

Les mélanges étudiés par la suite pour les explosions de mélanges hydrogène-poussières (de graphite ou de tungstène) le sont pour trois différents pourcentages molaires d'hydrogène dans le milieu (10, 20 et 30%mol d'hydrogène). Différents débits (en sccm : débit en centimètre cube par minute dans les conditions standards), ont été testés par l'intermédiaire des débitmètres et les résultats obtenus pour la composition en hydrogène des mélanges sont donnés dans le Tableau 2-1.

Ces mélanges seront décrits ultérieurement comme des mélanges avec une composition respectivement de 10, 20 et 30 % mol en hydrogène.

Débit total des débitmètres (sccm)	%mol d'hydrogène souhaité	%mol d'hydrogène	Incertitude relative sur le %mol d'hydrogène
3750	10%	10,36%	0,28%
3750	20%	20,33%	0,44%
3750	30%	29,10%	0,32%
7500	10%	10,24%	0,13%
7500	20%	20,62%	0,21%
7500	30%	29,88%	0,46%
15000	10%	10,80%	0,24%
15000	20%	20,82%	0,49%
15000	30%	29,76%	0,37%

Tableau 2-1: Composition de la partie gazeuse des mélanges étudiés pour les mélanges diphasiques ($H_2/O_2/N_2$ /poussières) en fonction du débit total des débitmètres.

2.1.4 Inflammation des mélanges

Le lieu d'inflammation des mélanges est très important pour l'étude des paramètres d'explosion des mélanges combustibles. En effet, dans notre cas, elle se doit d'être centrale afin de pouvoir étudier de façon optimale la propagation sphérique de la flamme.

2.1.4.1 Inflammation par étincelle électrique

L'inflammation électrique est obtenue au moyen de deux électrodes métalliques (en tungstène ou en molybdène) reliées à une source permettant de produire une décharge haute tension (environ une dizaine de kV) entre celles-ci. La position des électrodes à l'intérieur de la bombe et leur écartement est ajustable. Un schéma représentant le système d'inflammation est donné en Figure 2-5. La description de la mesure de l'énergie d'inflammation apportée par l'étincelle électrique est donnée dans le paragraphe 2.1.5.3.

Deux différents systèmes d'inflammation électriques ont été utilisés au cours de cette étude. Le premier a été dédié à l'étude des mélanges monophasiques hydrogène-oxygène-azote. Il consiste délivrer une énergie d'inflammation de l'ordre de quelques mJ, énergie largement suffisante pour enflammer le mélange combustible. Le deuxième système, se différenciant uniquement du premier par la source haute tension, délivre une énergie d'inflammation plus importante, de l'ordre de 20 mJ, et a été utilisé dans l'étude des mélanges diphasiques.

Cependant dans les expériences où la concentration en poussières devient trop importante (environ 100 g/m^3), une couche de poussière se forme le long des électrodes ainsi que sur leurs parties isolées. Ceci provoque l'apparition d'un court-circuit électrique et empêche l'inflammation correcte du mélange à l'intérieur de la bombe. Il a donc été nécessaire d'utiliser une autre technique ne nécessitant pas obligatoirement la présence d'une électrode métallique à l'intérieur de la bombe : l'inflammation par claquage laser.

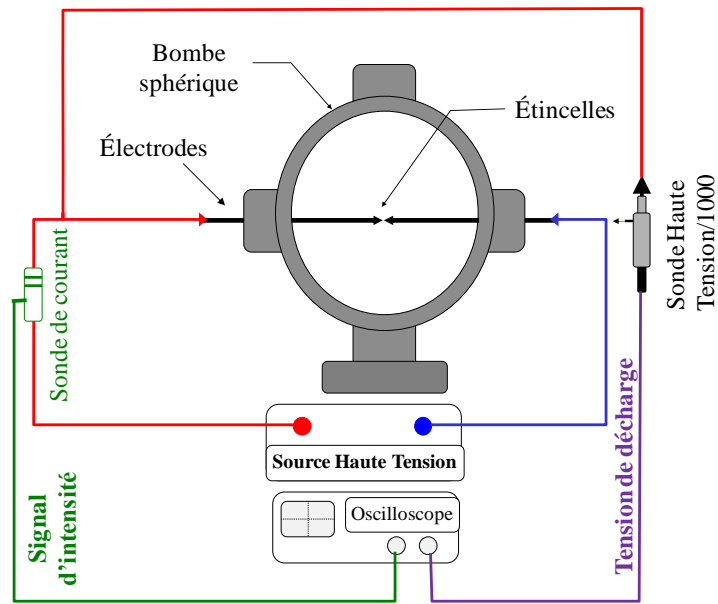


Figure 2-5 : Schéma du dispositif expérimental avec inflammation via le système d'électrodes.

2.1.4.2 Inflammation par claquage laser

L'inflammation par laser peut se faire de deux différentes méthodes : avec ou sans électrodes. Si une électrode est utilisée, le laser est focalisé sur l'extrémité de la pointe de celle-ci et l'inflammation part de ce point. Dans le cas sans électrodes, le claquage se fait dans un volume plus grand centré à l'intérieur de la bombe.

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

	LASER
Energie (mJ) à 150 A	90
Longueur d'onde (nm)	1064
Durée de l'impulsion (ns)	20
Fréquence des tirs (Hz)	1 à 20
Mode d'impulsion	TEM ₀₀
Diamètre du faisceau (mm)	3,2
Divergence (mrad)	0,7
M ²	1,6

Tableau 2-2 : Caractéristiques du prototype laser utilisé au cours de cette étude.

L'énergie laser délivrée pour chaque impulsion peut être ajustée via 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'ajuster 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 (Melles Griot®, HEB-4.0-10X) dont le facteur de grandissement est de 10. À 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. L'énergie délivrée par le laser a été mesurée pour chaque test en utilisant une photodiode (THORLABS®, DET10A/M) qui reçoit une petite partie du rayon incident avant qu'il n'entre dans la bombe sphérique. Ces mesures ont été ensuite réévaluées en tenant compte de la transmission liée aux optiques qui ne sont pas traitées antireflet à 1064 nm (les deux hublots de la bombe). Une calibration précise de l'énergie délivrée par le laser a été réalisée à l'aide d'un joulemètre (GENTEC®, QE12SP) et d'une photodiode (THORLABS®, DET10A/M). Cet étalonnage permet de déduire l'énergie déposée dans le milieu en fonction du maximum de signal délivré par la photodiode. La Figure 2-6 représente cette courbe d'étalonnage.

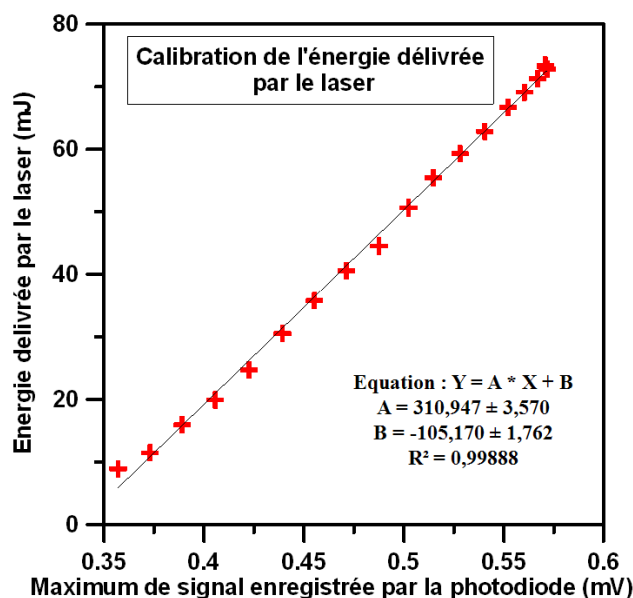


Figure 2-6: Calibration de l'énergie délivrée par le laser (pour $I=140$ A) à l'intérieur de la bombe sphérique en fonction du maximum de signal enregistré par la photodiode.

Un générateur de délai (BNC®, 575) est utilisé pour déclencher simultanément l'ensemble du dispositif d'inflammation et d'acquisition des signaux (signal de la photodiode, signal de pression et enregistrements vidéo) avec un temps de résolution de 250 ps.

Ce dispositif est représenté sur la Figure 2-7.

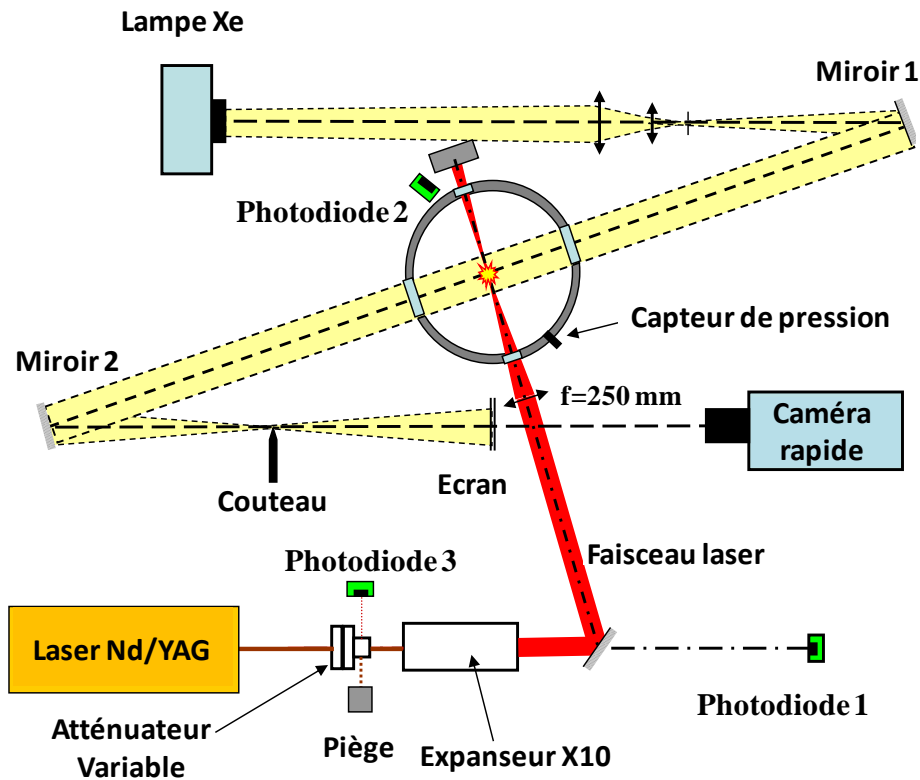


Figure 2-7 : Schéma du dispositif expérimental d'inflammation par focalisation laser

2.1.5 Description des systèmes des diagnostics associés aux enceintes

2.1.5.1 Système d'imagerie rapide¹⁰

Le principal diagnostic associé à ces installations est un montage Schlieren (méthode de strioscopie) qui permet de visualiser la propagation de la flamme afin d'évaluer la vitesse spatiale de propagation de la flamme. Cette méthode met en image la déviation de la lumière due à une variation de l'indice de réfraction, qui est due elle-même 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. Cette technique nécessite l'utilisation d'une source de lumière ponctuelle associée à une caméra rapide. La mise en œuvre est décrite ci-après.

2.1.5.1.1 Source lumineuse

La source de lumière utilisée est une lampe Xénon de 150 W montée dans un boîtier équipé d'un réflecteur arrière et d'un condenseur dont l'ouverture est de 1,5. Ce dernier permet d'obtenir un faisceau collimaté en sortie. L'ensemble est commercialisé par Lot-Oriel®.

¹⁰ La description du système de visualisation optique est celui attaché à la bombe sphérique de 56 L. Un système au principe identique, existe également pour la bombe de 8 L et ne sera pas décrit ici.

2.1.5.1.2 Montage optique

Le montage optique est un montage de type Z (Figure 2-8) avec deux miroirs hémisphériques de 1 m de focale placés de part et d'autre de la bombe sphérique de 56 L. La source lumineuse est une lampe à arc décrite précédemment. Une première lentille bi-convergente (200 mm de focale) permet d'obtenir un faisceau parallèle. Ce dernier est focalisé par une seconde lentille bi-convergente (22 mm de focale) au point focal objet du miroir hémisphérique. Le faisceau de lumière parallèle traverse la bombe sphérique avant d'être focalisé par un second miroir hémisphérique de même focale que le premier miroir. 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.

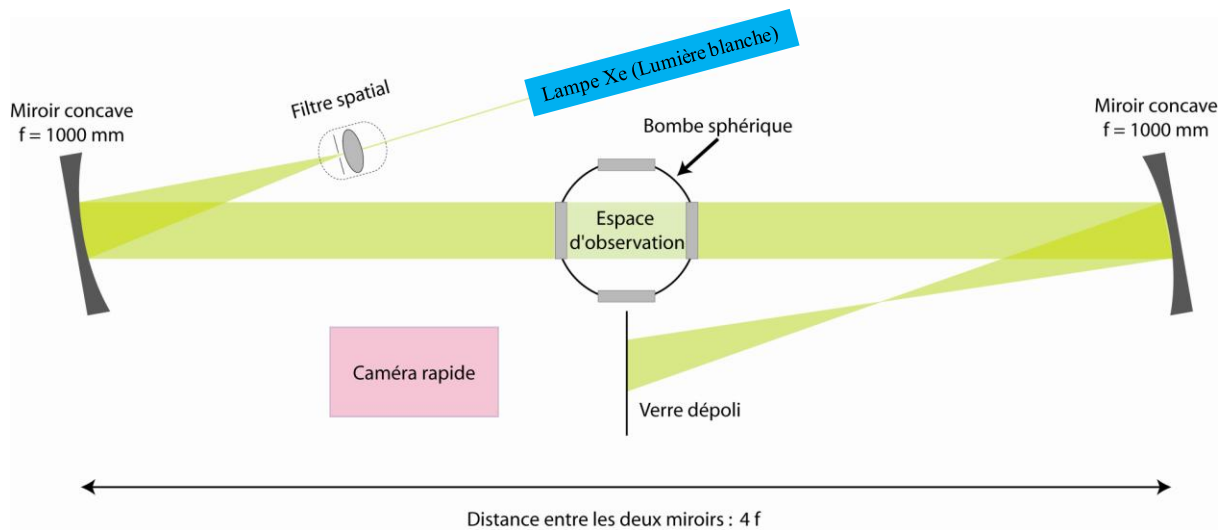


Figure 2-8 : Schéma du dispositif de visualisation de la flamme par strioscopie laser.

Deux caméras rapides ont été utilisées au cours de cette étude. La première est de marque PHOTRON APX® et elle permet une acquisition d'images pouvant aller jusqu'à 120 000 images par seconde. En format plein, elle permet l'enregistrement de 2000 images par seconde pour une résolution de 1024 par 1024 pixels. La deuxième caméra est de marque PHANTOM V1210® et permet d'atteindre des vitesses d'acquisition de 571 000 images par seconde pour un petit format de résolution. En résolution maximale, soit 1200 par 800 pixels, elle peut enregistrer jusqu'à 12 000 images par seconde. La vitesse d'acquisition est choisie en fonction de la vitesse spatiale de propagation de la flamme attendue. Elle fait l'objet d'un compromis entre le nombre d'images exploitables et la résolution de ces dernières.

Des exemples de séquences d'images (pour une flamme perturbée (partie b) et une flamme lisse (partie c)) enregistrées lors de la combustion d'un mélange $H_2/O_2/N_2$ sont donnés sur la figure 2-9.

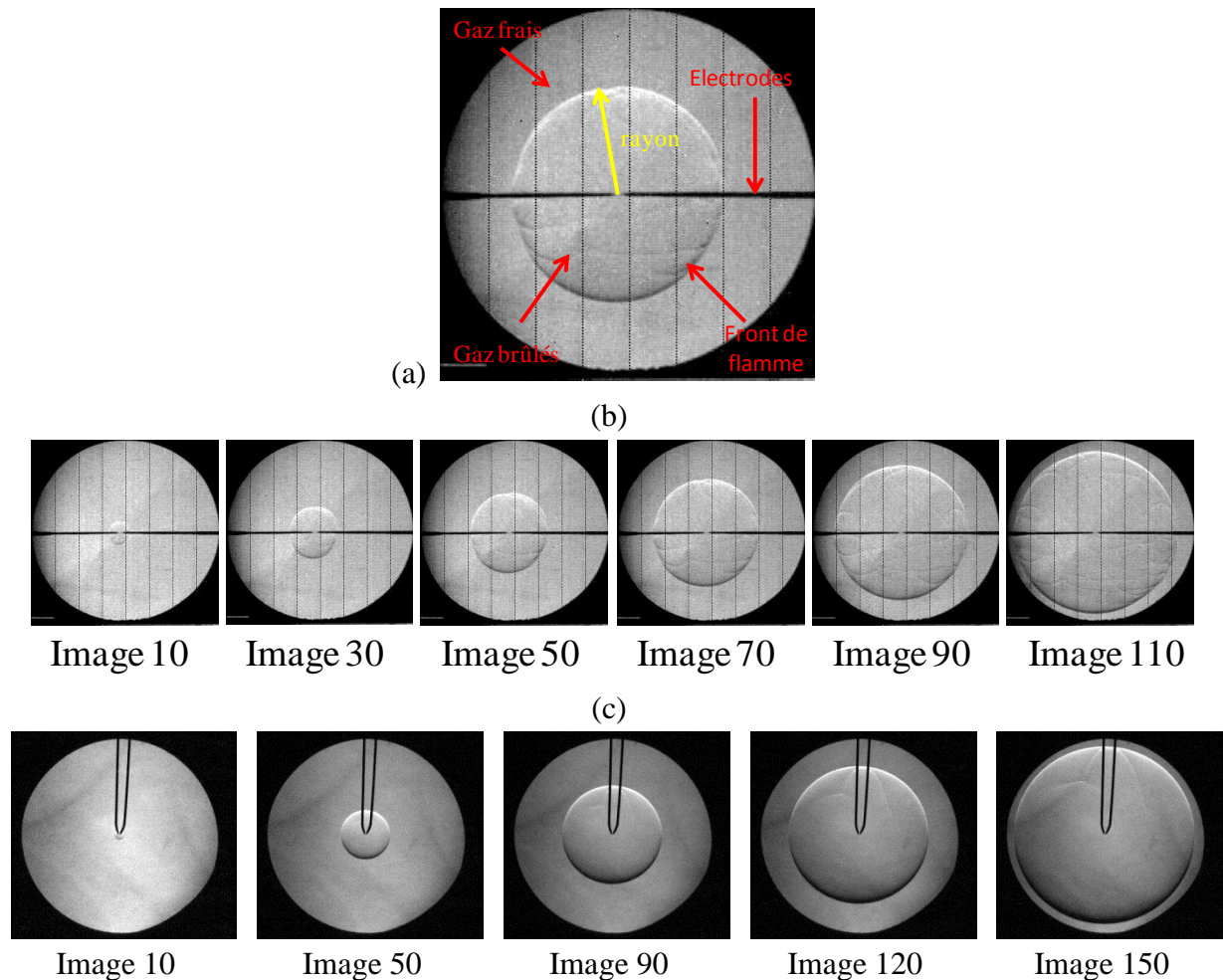


Figure 2-9 : Visualisation de la propagation de la flamme pour : (a) exemple d'une image ; (b) pour un mélange 20% H_2 + 80 % (21% O_2 + 79% N_2) à 303 K et 50 kPa. Vitesse d'enregistrement: 15000 images/s ; (c) pour un mélange 40% H_2 + 60 % (21% O_2 + 79% N_2) à 303 K et 50 kPa. Vitesse d'enregistrement: 48000 images/s

L'incertitude sur le rayon de la flamme se détermine alors par rapport à la résolution des images obtenues avec la caméra. L'incertitude sur le rayon de la flamme est fixée à plus ou moins un pixel. L'erreur sur la mesure du rayon de la flamme est donnée sur le Tableau 2-3.

Caméra	Vitesse d'acquisition des images (image/s)	Résolution de l'image (pixels ²)	Incertitude sur le rayon (± mm)
Photron APX	15000	256*256	0,38
Photron APX	30000	128*256	0,38
Phantom V1210	48000	384*352	0,28

Tableau 2-3 : Incertitude sur la détermination du rayon de la flamme en fonction des conditions d'enregistrement de la caméra

2.1.5.2 Système de détection piézo-électrique

Un capteur piézo-électrique, de marque KISTLER® est monté affleurant à la paroi interne de la bombe afin d'enregistrer l'évolution de la pression en fonction du temps au cours de la propagation de la flamme. Ce capteur est équipé d'un adaptateur pare-flamme (type 6505) qui permet d'isoler la surface sensible du capteur de pression et la flamme proprement dite. Les caractéristiques sont données dans le Tableau 2-4.

Deux capteurs de pressions ont été utilisés lors de l'étude. Les caractéristiques données dans le Tableau 2-4 sont les mêmes pour les deux capteurs. La seule différence entre les deux capteurs est que le deuxième est composé d'un pare-flamme plus petit par rapport au premier. Celui-ci est donc moins sensible au moment où la flamme touche le capteur (en fin de combustion). Il permet donc d'obtenir un signal où l'erreur due à l'effet FTN (pour température flash négative) est moins importante. L'erreur attachée à cet effet est liée au capteur lui-même. En effet, à l'instant précis où la flamme arrive au niveau du capteur de pression, la température du capteur augmente brutalement et celui-ci délivre un signal de tension biaisé à l'oscilloscope qui enregistre la pression mesurée. Cet effet réduit donc de manière artificielle, au niveau du capteur, le signal de pression obtenu.

	KISTLER 601A
Plage Dynamique	0 - 250 bars
Fréquence propre	≈ 150 kHz
Sensibilité	≈ 16 pC/bar
Polarité de sortie	Positive
Elément sensible	Quartz
Linéarité	≤ ±0,5 % FSO
Diaphragme	Acier Inoxydable

Tableau 2-4 : Caractéristiques des différents capteurs de pression Kistler 601 A

L'incertitude sur la mesure de pression se fait à partir de l'enregistrement du signal de pression sur l'oscilloscope. L'oscilloscope enregistre le signal de pression sur un total de 8 divisions et 256 points. En fonction du voltage d'enregistrement du signal de pression, l'incertitude sur la mesure de pression est différente. Pour un enregistrement à 1 V = 1 bar sur l'oscilloscope, on mesure 8 V sur 256 points. L'incertitude entre deux points vaut donc 8/256 soit 0,0313 bar. Pour un enregistrement à 0,5 V = 1 bar, l'incertitude vaut 4/256 soit 0,0156 bar.

Lorsque le signal de pression est enregistré, il oscille et est donc décomposé sur un certain nombre de points, généralement 4 ou 5 au niveau du maximum, là où se situe la pression maximale de combustion (P_{MAX}). La mesure du signal de pression se faisant sur un signal lissé, l'incertitude se mesure sur le signal brut. Les résultats obtenus sur l'incertitude du signal de pression sont donnés dans le Tableau 2-5.

Voltage d'enregistrement	Oscillations au niveau du pic de pression	Incertitudes sur le signal de pression
1 V = 1 bar	5	0,0783 bar \approx 8 kPa
1 V = 0,5 bar	5	0,0468 bar \approx 5 kPa
1 V = 2 bar	5	0,1563 bar \approx 16 kPa

Tableau 2-5: Incertitudes sur le signal de pression en fonction des conditions d'enregistrement du signal

2.1.5.3 Système de mesure de l'énergie d'inflammation

L'inflammation du mélange se fait, dans le cadre de nos expériences soit par inflammation électrique à l'aide d'un système d'électrodes soit par focalisation d'un faisceau laser. Dans le cas d'une inflammation par système électrique, les électrodes sont reliées à une source permettant de produire une décharge haute tension (environ une dizaine de kV). Une sonde de courant (Bergoz® CT-D1.0-B) et une sonde de haute tension (Tektronix® P6015A) reliées à un oscilloscope permettent la mesure de la tension de claquage ainsi que le courant électrique généré entre les deux électrodes. La mesure de ces deux grandeurs, à chaque essai, permet ainsi de connaître l'énergie déposée dans le milieu (Figure 2-10). Pour les expériences concernant les mélanges monophasiques, elle est de l'ordre de quelques mJ. Pour les mélanges H₂/O₂/N₂/poussières, deux systèmes différents ont été utilisés. Le premier est identique à celui utilisé pour les mélanges monophasiques et il délivre une énergie d'inflammation de l'ordre de quelques (1 à 2) mJ. Le deuxième système, est plus puissant. La source haute tension (TECHNIX®, SR80-N-300SP, caractéristiques de l'inflammation : HT=30 kV, I=2 mA, distance inter-électrodes=2 mm) délivre, elle, une énergie d'inflammation de l'ordre de 20 mJ.

Les sources d'incertitudes de cette mesure de l'énergie d'inflammation sont liées à deux phénomènes : tout d'abord, à la résolution des signaux d'intensité et de tension mesurés et ensuite à la définition des bornes d'intégration lors du calcul de l'énergie d'inflammation. Pour ces différentes raisons, l'incertitude, déterminée à partir de l'étude réalisée au cours de ce travail, sur cette même énergie, est estimée à 20 %.

Pour le système d'inflammation par focalisation laser, l'énergie d'inflammation est mesurée indirectement par les photodiodes attachées au système d'inflammation. La mesure du maximum du signal obtenu par la photodiode nous permet de remonter à l'énergie d'inflammation via la calibration montrée en Figure 2-6. Sur l'ensemble des expériences de cette étude, l'énergie moyenne d'inflammation est de 59,7 mJ pour une énergie variant généralement, pour une expérience, entre 50 et 70 mJ.

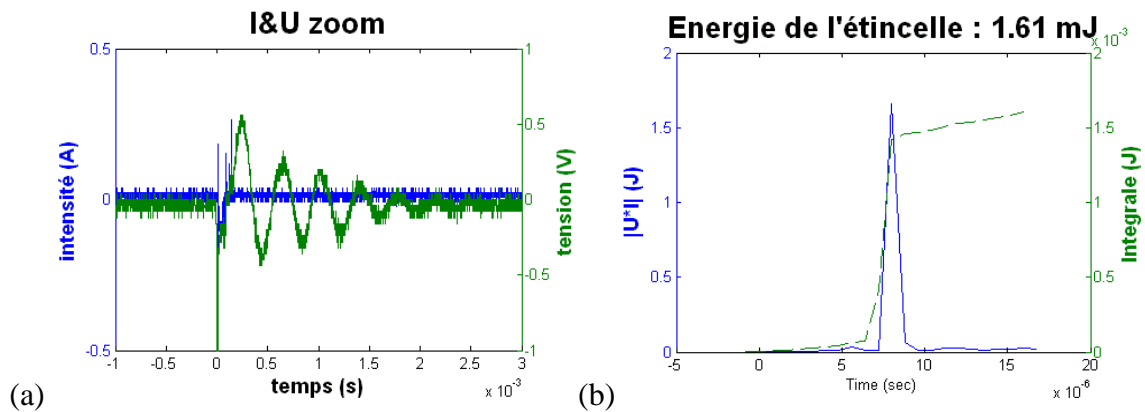


Figure 2-10 : Figures représentant (a) la tension et l'intensité mesurée et (b) l'énergie déposée dans le milieu lors de l'inflammation d'un mélange $H_2/O_2/N_2$

L'incertitude liée à la détermination de cette énergie est très faible. Elle est liée principalement à la calibration de la photodiode. La résolution du signal obtenu par la photodiode étant très bonne (la base de temps pour l'enregistrement des signaux des photodiodes sur l'oscilloscope est de 40 ns/div). L'incertitude liée à l'énergie délivrée par le laser est estimée à 3%.

2.2 Méthodologie

La deuxième partie de ce chapitre est consacrée aux méthodes de détermination des paramètres de combustion des mélanges.

2.2.1 Détermination de la vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul

2.2.1.1 Méthode linéaire

La vitesse fondamentale de flamme à étirement nul S_L° (qui est une caractéristique intrinsèque d'un mélange) correspond à la vitesse de déplacement des gaz frais à travers le front de flamme dans une direction normale à ce dernier. Cette définition implique que le front de flamme admette une surface parfaitement plane et infiniment mince.

La vitesse de combustion s'écrit, d'après Rallis et Garforth [115] (mais déjà proposée par Mallard et le Châtelier), comme l'ont rappelé Bradley et coll. [116] :

$$S_L = -\frac{1}{\rho_u \cdot A_f} \cdot \frac{dm_u}{dt} \quad \text{Eq 2.1}$$

Où ρ_u est la masse volumique des gaz frais, A_f ($A_f = 4 \cdot \pi \cdot R_f^2$) la surface du front de flamme et (dm_u/dt) le débit des gaz frais à travers le front de flamme.

Suite à l'inflammation centrale du mélange combustible dans la bombe (2.1.4), la flamme se propage de manière parfaitement sphérique dans cette même enceinte (Figure 2-9). Le rayon de la flamme au cours du temps, $R_f = f(t)$, est mesuré à l'aide d'un système d'enregistrement rapide. La vitesse de propagation de la flamme par rapport à l'observateur, appelée vitesse spatiale de flamme (V_s) est déduite à l'aide d'une relation très simple :

$$V_s = \frac{dR_f}{dt} \quad \text{Eq 2.2}$$

où R_f est le rayon de la flamme.

En introduisant la conservation de masse pour une enceinte sphérique à volume constant, une relation s'instaure :

$$m_u = \rho_u \cdot V_u = \rho_u \cdot (V_E - V_b) = \rho_u \cdot \left(\frac{4}{3} \cdot \pi \cdot R_E^3 - \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot R_f^3 \right) \quad \text{Eq 2.3}$$

où m_u : la masse des gaz frais ; V_E : le volume de l'enceinte (les indices u et b s'appliquant aux volumes occupés respectivement par les gaz frais et brûlés) et R_E le rayon de l'enceinte.

On dérive l'équation précédente en fonction du temps, en considérant le rayon de l'enceinte R_E comme constant, afin d'obtenir une nouvelle relation impliquant dm_u/dt

$$\frac{dm_u}{dt} = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot \frac{d[\rho_u (R_E^3 - R_f^3)]}{dt} \quad \text{Eq 2.4}$$

Une nouvelle égalité est alors obtenue :

$$\frac{d[\rho_u (R_E^3 - R_f^3)]}{dt} = -3R_f^2 \cdot \rho_u \cdot S_L \quad \text{Eq 2.5}$$

Dans le cas où la flamme est adiabatique :

$$P \cdot \rho_u^{-\gamma_u} = Cte \quad \text{Eq 2.6}$$

où P est la pression et $\gamma_u = C_p/C_v$ des gaz frais.

Ceci permet d'écrire :

$$\frac{d\rho_u}{dt} = \frac{dP^{1/\gamma_u}}{dt} = \frac{1}{\gamma_u} \cdot P^{1-\frac{1}{\gamma_u}} \cdot \frac{dP}{dt} \quad \text{Eq 2.7}$$

En combinant cette équation avec l'Eq 2.5, S_L peut se réécrire :

$$S_L = \frac{dR_f}{dt} - \frac{R_E^3 - R_f^3}{3 \cdot R_f^2 \cdot \gamma_u \cdot P} \cdot \frac{dP}{dt} \quad \text{Eq 2.8}$$

En appliquant la loi de compressibilité aux gaz brûlés en plus des gaz frais, l'expression de la vitesse de flamme devient :

$$S_L = \frac{\rho_b}{\rho_u} \left(\frac{dR_f}{dt} + \frac{R_f}{3 \cdot \gamma_B \cdot P} \cdot \frac{dP}{dt} \right) \quad \text{Eq 2.9}$$

Où ρ_b est la masse volumique des gaz brûlés.

Cette expression, qui est la plus couramment trouvée dans la littérature, est néanmoins moins satisfaisante, selon Andrews et Bradley [15], que l'expression qui applique la loi de compressibilité aux gaz frais du fait de la loi de compression utilisée qui, selon les auteurs, ne semble pas appropriée pour décrire les gaz brûlés.

Le terme dR_f/dt est obtenu à l'aide de l'enregistrement du rayon de la flamme en fonction du temps. En effet, le rayon du front de flamme peut être considéré comme équivalent au rayon du volume des gaz brûlés et l'épaisseur du front de flamme (de l'ordre du mm) peut être négligée car elle devient très vite petite devant le rayon des gaz brûlés dans le cas de la striescopie ou de l'ombroscopie [114].

Le terme $\frac{R_f}{3 \cdot \gamma_B \cdot P} \cdot \frac{dP}{dt}$, qui est la partie de la vitesse de flamme induite par la compression adiabatique peut être négligée. En effet, pour mesurer la vitesse de flamme dans les conditions initiales, la visualisation du rayon de la flamme est limitée à une fenêtre d'observation suffisamment petite par rapport au volume total afin de s'assurer que la pression reste constante. Dans ce cas, la mesure de la vitesse de flamme se réduit à une expression très simple :

$$S_L = \frac{\rho_b}{\rho_u} \cdot \frac{dR_f}{dt} = \frac{V_s}{\sigma} \quad \text{Eq 2.10}$$

Où la vitesse de flamme dépend exclusivement de l'évolution spatiale de la flamme et du coefficient ρ_b/ρ_u qui est l'inverse du coefficient d'expansion des gaz brûlés σ ($\sigma = \rho_u/\rho_b$).

La Figure 2-11 nous montre l'évolution de la pression de combustion au cours du temps. Il faut noter qu'au cours de l'enregistrement de la propagation de la flamme, la pression reste constante. De plus, comme cité précédemment (cf. 2.1.2.2), le passage optique étant de 97 mm et le rayon de l'enceinte de 476 mm, le volume du mélange ayant brûlé lorsque la flamme atteint les bords de la fenêtre d'observation ne représente que 0,85% du volume total. Cette hypothèse est confirmée par l'observation des courbes de pression (Figure 2-11). Le front montant du signal TTL (signal noir) indique la création de l'étincelle électrique au centre de la sphère et donc l'initiation de la combustion ($t = 0$).

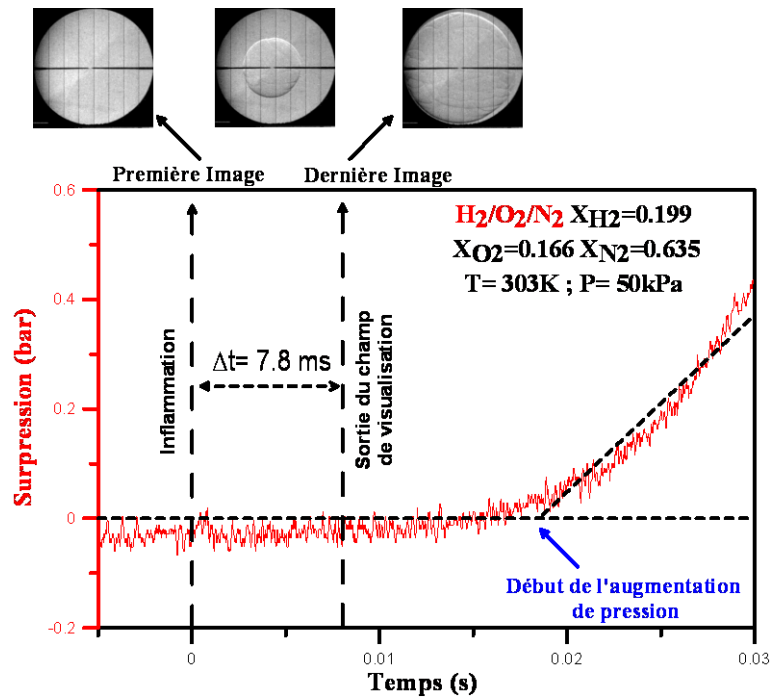
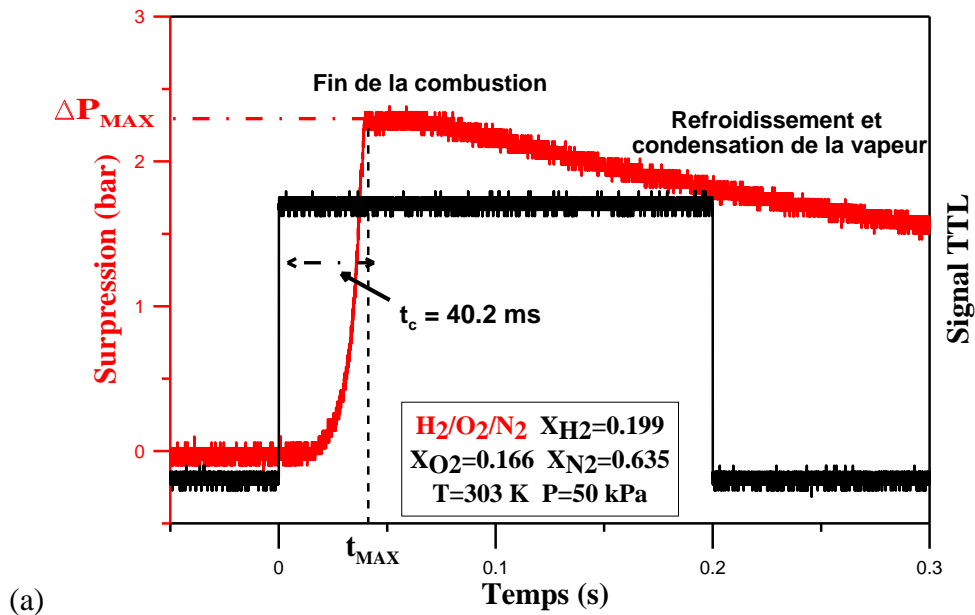


Figure 2-11 : Evolution de la pression au cours du temps. Le mélange initialement à 303 K et 50 kPa est constitué de $\{0,199\text{H}_2+0,166\text{O}_2+0,635\text{N}_2\}$. (a) Signal Complet, (b) Zoom

La définition, citée plus haut, de la vitesse de flamme suppose que le front de flamme est une surface parfaitement plane. La présence de rayon de courbure dans les flammes sphériques conduit d'une part à des modifications des profils de température et de concentration des espèces en amont du front de flamme et d'autre part à l'expansion des gaz au fur et à mesure qu'ils passent à travers le front de flamme. Les lignes d'écoulement sont alors défectées ce qui provoque une modification des caractéristiques de l'écoulement en amont et donc une réponse de la flamme à cette modification.

Markstein [117] est le premier à avoir introduit les effets de courbure du front de flamme sur la structure de cette dernière. Il a ainsi montré que la vitesse normale de combustion, S_L , varie linéairement avec l'inverse du rayon de courbure de la zone réactionnelle :

$$S_L - S_L^0 = S_L^0 \cdot \frac{L'}{R_C} \quad \text{Eq 2.11}$$

Où R_C représente le rayon de courbure de la flamme, L' est une grandeur caractéristique de l'ordre de l'épaisseur du front de flamme (et généralement associée à la longueur de Markstein L_B) et S_L^0 est la vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul et correspondant au cas idéal (front de flamme parfaitement plat et d'épaisseur infiniment mince).

La notion d'étirement a été introduite par Karlovitz [118] et correspond à l'évolution temporelle de la surface élémentaire du front de flamme et représente les effets de la géométrie du front et de la non-uniformité de la structure de la flamme.

$$K = \frac{1}{A} \cdot \frac{dA}{dt} \quad \text{Eq 2.12}$$

Où K (en s^{-1}) représente l'étirement auquel est soumise la flamme et A est un élément de la surface de cette dernière. L'allongement (respectivement la contraction) de la surface de la flamme se traduit ainsi par K positif (respectivement négatif).

Ainsi, selon Markstein et Karlovitz, pour des étirements faibles devant les limites d'extinction, la vitesse de flamme varie linéairement lorsqu'elle est soumise à un étirement.

$$S_L^0 - S_L = K \cdot L_B \quad \text{Eq 2.13}$$

Ainsi à chaque instant, la vitesse spatiale peut être déduite de la mesure du rayon de la flamme ainsi que de l'étirement auquel elle est soumise. On a alors :

$$V_S = \frac{dR_f}{dt} = V_S^0 - K \cdot L_B \quad \text{Eq 2.14}$$

Où V_S^0 est la vitesse spatiale de flamme à étirement nul et L_B est la longueur de Markstein. La longueur de Markstein caractérise la réponse de la flamme à un étirement donnée. Celle-ci pouvant réagir par une accélération ou au contraire par une décélération.

Pour des flammes à expansion sphérique, K est bien connu et est donné par la relation :

$$K = \frac{2 \cdot V_S}{R_f} \quad \text{Eq 2.15}$$

La combinaison de ces deux dernières équations nous permet d'obtenir après intégration, la vitesse spatiale de flamme à étirement nul en fonction du temps et du rayon de la flamme.

$$V_s^0 \cdot t = R_f + 2 \cdot L_B \cdot \ln(R_f) + Cte \quad Eq 2.16$$

Une régression sur la base de la méthode des moindres carrés permet de déterminer V_s^0 et L_B à partir de $R_f=f(t)$.

La détermination de la vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul s'écrit sur la base de l'Eq 2.10 et donne :

$$S_L^0 = \frac{V_s^0}{\sigma} \quad Eq 2.17$$

2.2.1.2 Méthode non-linéaire

La méthode d'extraction de la vitesse de flamme V_s par une méthode linéaire comporte certains défauts selon Kelley et Law [119,120]. En effet, la méthode d'extraction linéaire se doit d'être utilisée pour un ensemble de données suffisamment important pendant que l'étirement reste à des valeurs très faibles pour que l'écart entre la vitesse de flamme mesurée par rapport à la valeur non étirée soit très faible.

Néanmoins, il existe des situations pour lesquelles cet écart peut être très important à cause de valeurs d'étirement élevées et/ou des phénomènes de non-equidiffusivité dans certains mélanges. Dans ces situations une extraction linéaire de la vitesse de flamme n'est pas seulement inexacte mais de plus, le fait de la réaliser peut conduire, pour des flammes possédant une courbure importante, à des incertitudes importantes sur les valeurs de vitesses de flamme extrapolées [119,120].

Ronney et Sivashinsky [121] ont dérivé une équation de l'évolution de la vitesse pour une flamme se propageant en expansion, flamme qui n'est pas assujetti aux hypothèses concernant les faibles étirements et qui tient compte des variations de densité. Si cette analyse est restreinte à des flammes qui sont adiabatiques et dont la propagation se fait de manière quasi-régulière, l'équation de l'évolution de la vitesse spatiale de flamme est donnée par la relation :

$$\left(\frac{V_s}{V_s^0}\right)^2 \cdot \ln\left(\frac{V_s}{V_s^0}\right) = -2 \cdot \frac{L_B \cdot K}{V_s^0} \quad Eq 2.18$$

Avec : V_s : la vitesse spatiale de la flamme ; l'exposant 0 caractérise une donnée pour un étirement nul ; L_B est la longueur de Markstein ; K : l'étirement auquel est soumis la flamme.

La détermination de la vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul se faisant par l'intermédiaire de l'Eq 2.17.

2.2.2 Évaluation de l'erreur sur la détermination de la vitesse de flamme en bombe sphérique

La méthode donnée correspond à la détermination des erreurs expérimentales sur les vitesses fondamentales de flamme à étirement nul (S_L^0) et les longueurs de Markstein (L_B) à partir de la méthode d'extraction linéaire de la vitesse de flamme. Les pourcentages d'erreur obtenus sont considérés comme identiques pour les valeurs obtenues pour la méthode d'extraction non-linéaire.

Le traitement des données se fait à l'aide d'un script Matlab® développé au laboratoire [16,114]. Ce script évalue le rayon de la flamme en différents points autour de celle-ci 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 0,38 mm pour une configuration où la résolution d'une image est de 256*256 pixels² (le diamètre du passage optique étant de 97 mm). L'incertitude sur le temps correspond à la fréquence d'échantillonnage de la caméra (67 μ s pour une configuration à 15000 images/seconde).

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

$$V_S^0 \cdot t = R_f + 2 \cdot L_B \cdot \ln(R_f) + Cte \quad Eq 2.19$$

Pour chaque expérience réalisée en bombe sphérique, l'évolution du rayon de la flamme en fonction du temps est mesurée. Ces données expérimentales constituent un échantillon de N couples de valeurs auquel est appliquée la méthode des moindres carrés. Il s'agit ainsi de minimiser l'erreur entre le modèle mathématique et les expériences avec :

$$J(V_S^0, L_B, Cte) = \sum_{i=1}^N ((V_S^0 \cdot t - R_f - 2 \cdot L_B \cdot \ln(R_f) + Cte)^2) \quad Eq 2.20$$

avec J, le Jacobien de l'expression de la dérivée de la vitesse de flamme.

La minimisation de l'erreur entre le modèle et les expériences revient à annuler le système d'équation suivant.

$$\begin{cases} \frac{\partial J}{\partial V_S^0} = \sum_{i=1}^N 2t(V_S^0 \cdot t - R_f - 2 \cdot L_B \cdot \ln(R_f) + Cte) = 0 \\ \frac{\partial J}{\partial L_B} = \sum_{i=1}^N -4 \ln(R_f) \cdot (V_S^0 \cdot t - R_f - 2 \cdot L_B \cdot \ln(R_f) + Cte) = 0 \\ \frac{\partial J}{\partial Cte} = \sum_{i=1}^N 2(V_S^0 \cdot t - R_f - 2 \cdot L_B \cdot \ln(R_f) + Cte) = 0 \end{cases} \quad Eq 2.21$$

La résolution de ce système d'équations est plus simple, si la forme matricielle est utilisée. De plus, en divisant par N, des valeurs moyennes sont obtenues à la place des sommes. Les valeurs moyennes sont indiquées par $\langle \rangle$.

$$\begin{pmatrix} \langle t^2 \rangle & \langle -2t \cdot \ln(R_f) \rangle & \langle t \rangle \\ \langle -2t \cdot \ln(R_f) \rangle & \langle 4 \ln^2(R_f) \rangle & \langle -2 \ln(R_f) \rangle \\ \langle t \rangle & \langle -2 \ln(R_f) \rangle & \langle 1 \rangle \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_s^0 \\ L_B \\ Cte \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \langle R_f \cdot t \rangle \\ \langle -2R_f \cdot \ln(R_f) \rangle \\ \langle R_f \rangle \end{pmatrix} \quad Eq 2.22$$

Pour résoudre ce système, la méthode de Cramer sera employée avec le déterminant de matrice Δ ainsi que les déterminants secondaires δ_1 , δ_2 et δ_3 .

Les solutions de ce système d'équations obtenues sont :

$$V_s^0 = \frac{\delta_1}{\Delta} \quad L_B = \frac{\delta_2}{\Delta} \quad Cte = \frac{\delta_3}{\Delta} \quad Eq 2.23$$

La formule de propagation d'erreur est appliquée dans le cas de V_s^0 et de L_B , l'incertitude sur la vitesse spatiale de flamme, βV_s^0 , donne l'expression qui suit :

$$\beta V_s^0 = \sqrt{\left(\frac{\Delta \cdot \frac{\partial \delta_1}{\partial R_f} - \delta_1 \cdot \frac{\partial \Delta}{\partial R_f}}{\Delta^2} \cdot \beta R_f \right)^2 + \left(\frac{\Delta \cdot \frac{\partial \delta_1}{\partial t} - \delta_1 \cdot \frac{\partial \Delta}{\partial t}}{\Delta^2} \cdot \beta t \right)^2} \quad Eq 2.24$$

L'incertitude sur les longueurs de Markstein, βL_B , est donnée par :

$$\beta L_B = \sqrt{\left(\frac{\Delta \cdot \frac{\partial \delta_2}{\partial R_f} - \delta_2 \cdot \frac{\partial \Delta}{\partial R_f}}{\Delta^2} \cdot \beta R_f \right)^2 + \left(\frac{\Delta \cdot \frac{\partial \delta_2}{\partial t} - \delta_2 \cdot \frac{\partial \Delta}{\partial t}}{\Delta^2} \cdot \beta t \right)^2} \quad Eq 2.25$$

En considérant que l'incertitude sur le facteur d'expansion est nulle, l'application de cette expression sur un ensemble de données $H_2/O_2/N_2$ a permis d'évaluer les incertitudes maximales sur la mesure des vitesses de flamme laminaire à étirement nul et sur les longueurs de Markstein en fonction des conditions d'enregistrement de la propagation de la flamme. Les résultats obtenus sont donnés dans le Tableau 2-6.

Vitesse d'acquisition des images (image/s)	Incrtitude sur le temps (μ s)	Résolution de l'image (pixels ²)	Incrtitude sur le rayon (mm)	Incrtitude sur S_L°	Incrtitude sur L_B
15000	67	256*256	0,38	4 %	15 %
30000	33	128*256	0,38	4 %	15 %
48000	21	384*352	0,28	3 %	12 %

Tableau 2-6 : Détermination de l'incertitude sur les vitesses de flamme et les longueurs de Markstein en fonction des conditions d'enregistrement de la propagation de la flamme.

2.2.3 Détermination des paramètres d'explosivité des mélanges diphasiques

Les paramètres d'explosivité des mélanges tels que le temps de combustion t_c , la pression maximale de combustion P_{MAX} et l'indice de déflagration (K_G ou K_{ST}) sont des paramètres importants qui permettent de définir les normes de sécurité des installations. Dans un volume fermé, la combustion des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /poussières seront responsables d'une augmentation de la pression atteignant un maximum lorsque la flamme s'est propagée à tout le volume. C'est à partir de l'évolution de la pression en fonction du temps que ces trois paramètres peuvent être déterminés.

2.2.3.1 Le temps de combustion (t_c)

Le temps de combustion (t_c) est l'intervalle de temps entre le moment où l'inflammation a lieu et le moment où la pression indique son maximum, c'est-à-dire le moment où la flamme touche les parois de l'enceinte. La détermination de t_c est explicitée sur la Figure 2-12. L'initiation de la combustion ($t = 0$) au centre de la sphère correspond au front montant du signal TTL (signal noir) représenté sur cette même figure.

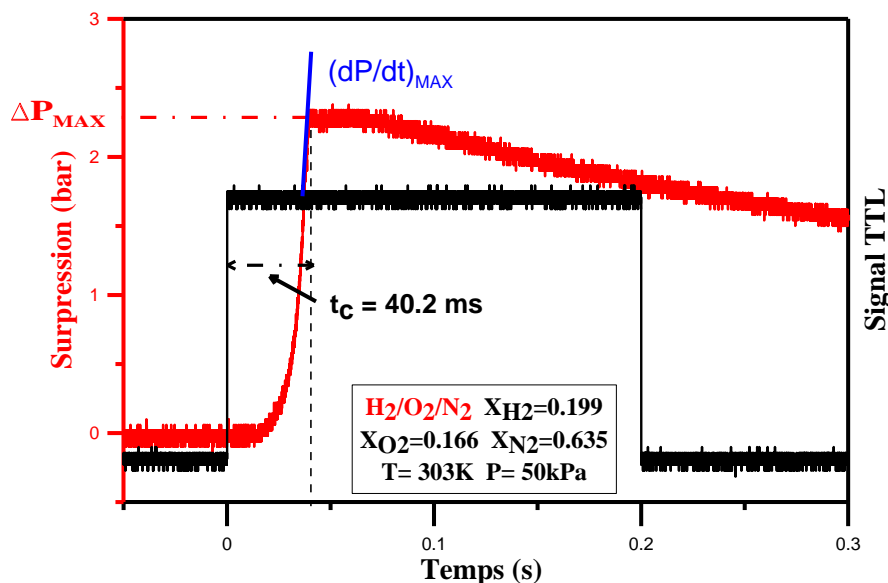


Figure 2-12 : Détermination des paramètres d'explosivité (t_c , P_{MAX} et $(dP/dt)_{MAX}$) d'un mélange $H_2/O_2/N_2$ à partir de son signal de pression

L'incertitude sur le temps de combustion se mesure à partir de plusieurs paramètres :

- L'écart entre deux points consécutifs sur le signal de pression. Cet écart ne dépend que de la définition choisie lors de l'enregistrement du signal sur l'oscilloscope (en ms/div). Dans le pire des cas, pour un choix d'enregistrement de 200 ms/div, l'écart entre deux points est de 0,02 ms. Dans le meilleur des cas, cet écart est de $4 \cdot 10^{-4}$ ms (pour un enregistrement à 4 ms/div).

- Le paramètre le plus important pour la détermination de l'incertitude est la définition du temps de combustion en lui-même. En effet, au niveau du maximum de pression, à cause des oscillations, le maximum est obtenu sur une plage de temps et non sur un temps précis. Dans le pire des cas, l'erreur due à cette plage de temps est de 3 %¹¹.

2.2.3.2 La pression maximale de combustion (P_{MAX})

La pression maximale de combustion (P_{MAX}) est obtenue en mesurant la surpression obtenue lors de la combustion à laquelle se rajoute la pression initiale. Un exemple de détermination de surpression est donné sur la Figure 2-12. L'erreur sur la détermination de la pression maximale de combustion est donnée dans le paragraphe 2.1.5.2.

2.2.3.3 L'indice de déflagration (K_G ou K_{ST})

L'indice de déflagration K_G (pour les mélanges gazeux) ou K_{ST} (pour les mélanges avec des poussières) est déterminé à partir de la normalisation par rapport au volume de la vitesse maximale de montée en pression, $(dP/dt)_{MAX}$, selon l'équation ci après.

$$K_G \text{ (ou } K_{ST}) = (dP/dt)_{MAX} * V^{1/3} \quad \text{Eq 2.26}$$

Le taux maximal de montée en pression $(dP/dt)_{MAX}$ 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 [114].

La première approche consiste à faire correspondre un polynôme du troisième degré avec la zone de montée de pression que l'on peut observer sur la Figure 2-12. Cette approche, bien que satisfaisante pour ce qui est des ordres de grandeurs de $(dP/dt)_{MAX}$ 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 $\Delta P/\Delta t$. Si Δt est suffisamment petit alors le rapport $\Delta P/\Delta t$ 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 2-13. 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 se faire, il faut effectuer une transformation de Fourier discrète de la courbe puis une transformée de Fourier

¹¹ La détermination de cette erreur a été faite à partir de l'étude des signaux de pression obtenus au cours de ce travail.

inverse en gardant 2000 points au lieu des 100 000 points du signal brut. Cette opération se fait à l'aide du logiciel MATLAB® et s'est révélée plus efficace qu'un simple lissage. C'est cette approche qui a été choisie au cours de ce travail.

La détermination du taux maximal de montée en pression est réalisée avec une erreur, déterminée à partir des résultats obtenus lors de l'étude de ce paramètre, de 25%. Cette détermination est dépendante de nombreux paramètres (capteur de pression, forme du signal de pression,...) pour être plus précise.

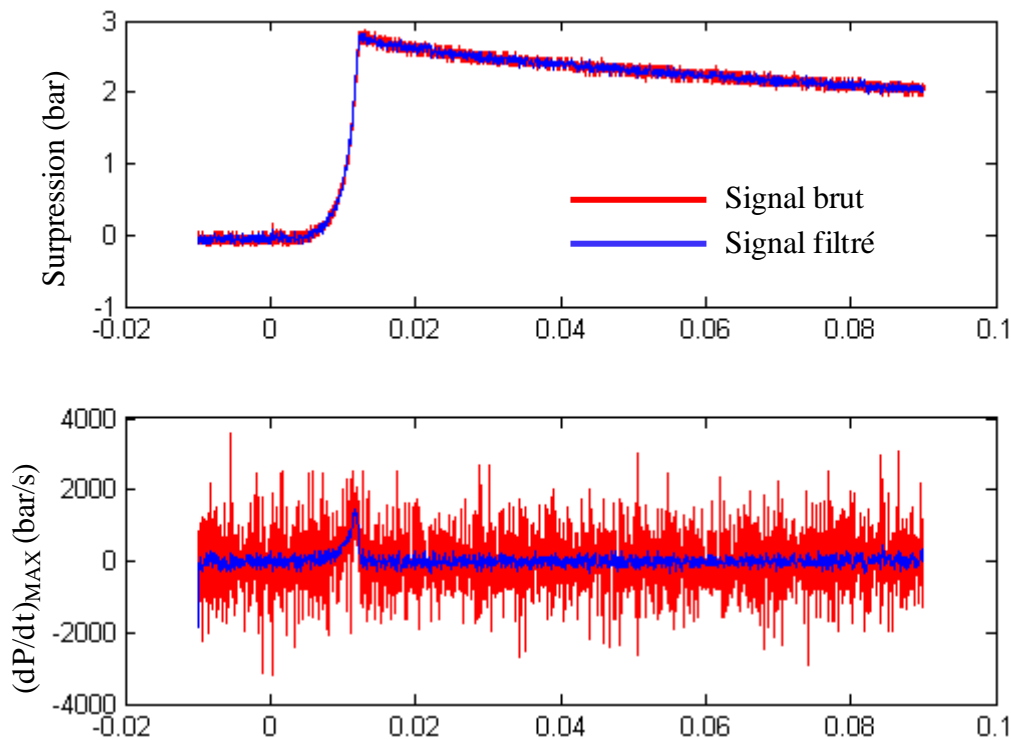


Figure 2-13 : Illustration de la détermination de la vitesse maximale de montée en pression pour un mélange $H_2/O_2/N_2$.

2.2.4 Détermination de l'énergie d'activation et du nombre de Zel'dovich

D'un point de vue historique, l'évaluation de l'énergie globale d'activation peut être basée sur l'approche simple proposée par Mallard et Le Châtelier [20] quant à l'expression de la vitesse de flamme qui peut être basée sur sa dépendance à la diffusivité thermique α et au taux de conversion chimique ω .

$$S_L \approx (\alpha \cdot \omega)^{1/2} \quad \text{Eq 2.27}$$

Ici, c'est l'analyse de Zel'dovich et coll. [36], qui pour une réaction se déroulant en une étape unique suivant la loi d'Arrhénius, montre que la vitesse de flamme laminaire est proportionnelle à l'énergie d'activation, qui est utilisée :

$$S_L^0 \approx \left[\exp\left(\frac{-E_A}{R \cdot T_B}\right) \right]^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq 2.28}$$

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

$$(S_L^0)^2 \approx A \cdot \exp\left(-\frac{E_A}{R \cdot T_B}\right) \quad \text{Eq 2.29}$$

Où A se trouve être un coefficient pré-exponentiel, E_A l'énergie d'activation globale de la réaction, R la constante des gaz parfaits et T_B la température des gaz brûlés.

En réécrivant l'expression précédente, le logarithme de la vitesse de flamme se trouve défini comme étant fonction de l'inverse de la température des gaz brûlés.

$$2 \ln S_L^0 \approx \ln A - \frac{E_A}{R} \cdot \frac{1}{T_B} \quad \text{Eq 2.30}$$

Les énergies sont par la suite évaluées par la modélisation des vitesses de flamme laminaire pour une richesse fixée en faisant varier la fraction molaire d'azote du mélange de + et - 3%. Des variations de la vitesse de flamme et de la température des gaz brûlés sont alors observées. La pente de la courbe de la vitesse de flamme en fonction de la température ainsi obtenue correspond au rapport $-E_A/R$.

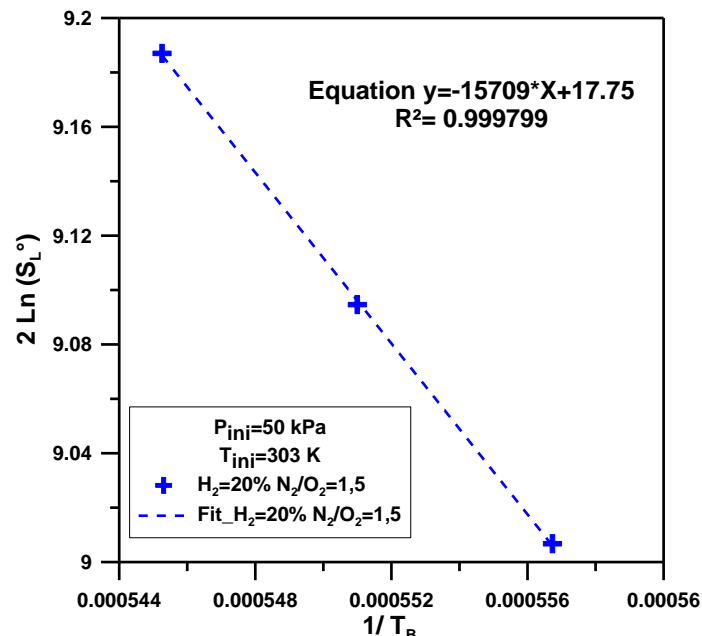


Figure 2-14 : Détermination de l'énergie d'activation d'un mélange $H_2/O_2/N_2$ avec $X_{H_2}=0,2$, $N_2/O_2=1,5$, $P_{ini}=50$ kPa et $T_{ini}=303$ K

La Figure 2-14 montre un exemple de détermination de l'énergie d'activation. Dans ce cas, la pente a une valeur de -15709 ± 222 K. On obtient donc :

$$-(E_a/R) = -15709 \text{ K}; \text{ On détermine alors } E_a = 130,6 \pm 1,8 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}.$$

Zel'dovich et Frank-Kamenetskii, en considérant le comportement non-linéaire du taux de réaction et en utilisant le formalisme de Mallard et Le Châtelier, ont introduit en 1938 un nombre sans dimension, β , appelé nombre de Zel'dovich représentant l'énergie d'activation normalisée [37]. Il est défini par la relation suivante :

$$\beta = \frac{E_a}{R \cdot T_B^2} (T_B - T_0) \quad \text{Eq 2.31}$$

Où T_B est la température des gaz brûlés et T_0 est la température des gaz frais.

Ainsi, ce nombre adimensionnel qui rend compte de la réactivité du mélange peut être estimé sur la base d'un modèle cinétique détaillé et des calculs à l'équilibre thermodynamique.

2.3 Diagnostics associés à la caractérisation d'un spray de poussières

Différentes techniques expérimentales permettent de définir les caractéristiques, le comportement et l'écoulement d'un spray de poussières (ou de liquides). Des techniques mécaniques, électriques ou basées sur la visualisation existent.

À l'heure actuelle, ce sont les méthodes basées sur la visualisation qui sont les plus utilisées, bien qu'étant le type de méthode le plus ancien (par exemple, un objet tombant dans une rivière permet une caractérisation de l'écoulement de celle-ci). Ces techniques basées sur l'analyse d'un signal lumineux en interaction avec l'espace d'étude ne sont pas intrusives, ne modifient pas les caractéristiques du spray analysé et sont répétables.

Ces divers procédés sont décrits dans la littérature [122,123,124] et il est important d'en définir les principaux intérêts, les différents types d'informations qu'ils peuvent fournir mais également leurs limitations.

La troisième partie de ce chapitre correspond à l'étude de la caractérisation des poussières et à leur injection dans la bombe sphérique de manière à pouvoir caractériser le plus fidèlement possible la taille et la quantité de poussières injectées dans le milieu.

2.3.1 Les poussières étudiées

Les poussières présentes dans l'installation ITER qui représente un risque de sûreté sont le béryllium (Be), le tungstène (W) et le carbone sous forme graphite (C_{GR}). Le béryllium étant hautement toxique sous forme de poussières, il n'a pas été considéré dans le cadre de cette étude.

Les poussières étudiées au cours de cette étude sont donc le tungstène et le graphite. Elles ont été fournies par Alfa Aesar® avec les caractéristiques suivantes :

Poussières	Taille donnée par le fournisseur	Pureté	Impuretés
Tungstène (W)	< 1 μm	99,95 %	Total : < 140 ppm
Carbone graphite (C_{GR})	2 - 15 μm (mesurée par APS)	99,9995 %	Principales impuretés Si = 0.170 ppm Ca = 0.050 ppm Fe = 0.024 ppm

Tableau 2-7 : Caractéristiques des poussières utilisées au cours de l'étude (données fournisseurs)

2.3.2 La granulométrie laser à diffraction

La granulométrie a pour objet la mesure de répartition des tailles de grains d'un échantillon d'une poudre. La connaissance de cette répartition permet de qualifier l'échantillon. Cette méthode est basée sur l'analyse de la tâche de diffraction d'un faisceau laser passant au travers d'une poudre mise en suspension. Elle est depuis l'apparition du laser dans les années 1960 devenue rapide, fiable et totalement automatisée [123].

2.3.2.1 Principe

La diffraction de la lumière résulte de l'interaction entre un faisceau lumineux et une particule fine. La théorie de Fraunhofer nous dit qu'une particule illuminée par un faisceau parallèle monochromatique génère une figure de diffraction à l'infini qui se superpose avec l'image géométrique de la source. Le phénomène est observé au foyer d'une lentille, dans le plan de Fourier, ce qui permet de ne considérer que les répartitions angulaires. Lorsque les particules sont disposées de façon aléatoire et suffisamment espacées, on considère dans ce cas que la figure de diffraction obtenue est formée de la somme des figures de diffraction élémentaire de chaque particule. L'analyse de la forme de cette figure et la mesure de la distance entre cette figure et la tâche centrale (partie du signal laser qui n'a pas été diffracté) nous donne des informations sur la forme et la taille des particules [7,123].

Cependant, cette théorie se rapproche de ses limites lorsque la taille des particules étudiées se rapproche de la longueur d'onde du faisceau laser utilisé. En effet, la théorie de Fraunhofer suppose que la lumière est totalement occultée par la particule. Or, dans le cas où la taille des particules se rapproche de la longueur d'onde du faisceau, l'onde lumineuse traverse la particule. L'utilisation de la théorie de Mie, qui est basée sur les équations de Maxwell et prend en compte tous les phénomènes optiques de diffusion, réfraction et transmission, devient alors nécessaire. Cette théorie, bien plus complexe, nécessite de connaître les indices de réfraction réel et imaginaires des particules à tester [123].

Il existe cependant plusieurs limitations à cette technique. La première concerne les sprays très denses. En effet, dans ce cas de figure, les photons peuvent être diffractés plusieurs

fois avant d'atteindre le récepteur, ce qui fausse le résultat obtenu. La deuxième limitation concerne l'absence d'informations concernant le nombre de particules mesurées.

2.3.2.2 Description de la taille des particules

La taille des particules étant un paramètre important pour les propriétés d'explosion des mélanges gaz-poussières, il est nécessaire de déterminer celle-ci avec précision et de disposer d'outils mathématiques permettant de le faire.

De façon mathématique, un spray de poussières peut être défini comme un ensemble de N particules, chacune ayant un diamètre D_i (i s'applique à la particule i considérée). Ces N particules peuvent alors être classées en une somme de N_i particules de diamètre D_i , correspondant au diamètre d'une classe de particules et, par conséquent, fixe. Cette façon de discrétiser la distribution permet d'aboutir à une définition générale de la granulométrie de la forme [125] :

$$D_{ab} = \left(\frac{\sum_{i=1}^N N_i \cdot D_i^a}{\sum_{i=1}^N N_i \cdot D_i^b} \right)^{\frac{1}{(a-b)}} \quad \text{Eq 2.32}$$

Où i correspond à l'indice de taille, N_i représente le nombre de particules de la taille i , D_i représente le diamètre moyen de la classe i et les entiers a et b représentant différents nombres entiers pouvant varier selon l'application souhaitée. Les différents types d'applications sont détaillés dans le Tableau 2-8.

Symbole	Nom d'usage	Application / domaine
D_{10}	Linéaire ou Géométrique	Comparaisons entre sprays
D_{20}	Surface	Contrôle de la surface
D_{30}	Volume	Contrôle du volume
D_{21}	Surface - Longueur	Absorption
D_{31}	Volume - Longueur	Evaporation, diffusion moléculaire
D_{32}	Volume - Surface Sauter Mean Diameter (SMD)	Transfert de masse, réactions catalytiques
D_{43}	De Brouckere ou Herdan	Equilibres réactifs

Tableau 2-8: Définitions et choix de la granulométrie appropriée d'après Lefebvre [125]

Si l'on choisit des intervalles fixes D_i assez petits, D_{10} peut être considéré comme la moyenne arithmétique de la distribution numérique, D_{20} comme le diamètre de la particule dont la surface est la moyenne des surfaces des particules et D_{30} comme le diamètre d'une particule dont le volume est égal à la moyenne du volume des particules. D_{32} (ou SMD) correspond au diamètre d'une particule qui montre le même rapport volume/surface que la

moyenne sur l'intégralité du spray. Cette dernière application est particulièrement utilisée dans la littérature car elle permet de caractériser la variation de masse par rapport au temps d'une particule, dans le cas des échanges thermiques entre solide et gaz [7].

Toutefois, cette définition de la granulométrie par D_{ab} seul ne suffit pas à décrire totalement le spray de poussières. L'introduction d'un diamètre représentatif est adoptée de façon à caractériser la répartition volumique des particules. Cette grandeur D_λ est définie telle que le volume représenté par l'ensemble des particules d'un diamètre inférieur à D_λ représente $100.\lambda$ % du volume total du solide, sur l'ensemble du spray. Par exemple :

- « $D_{0,1}$ » est le diamètre tel que 10 % du volume total du solide est constitué par des particules de diamètre inférieur à $D_{0,1}$

- « $D_{0,5}$ » est le diamètre tel que 50 % du volume total du solide est constitué par des particules de diamètre inférieur à $D_{0,5}$, également appelé Mass Median Diameter

- « $D_{0,999}$ » est le diamètre tel que 99,9 % du volume total du solide est constitué par des gouttes de diamètre inférieur à $D_{0,999}$

Il est également intéressant de préciser que par définition mathématique, $D_{30} = D_{0,5}$ mais qu'ils ne représentent pas la même chose [7].

Dans le cas de notre étude, les notations $D_{0,1}$, $D_{0,5}$ et $D_{0,999}$ correspondent respectivement aux notations $x(10)$, $x(50)$ et $x(99.9)$. La notation $x(90)$ (ou $D_{0,9}$) signifie alors un diamètre tel que 90 % du volume total du solide est constitué par des particules de diamètre inférieur à $x(90)$ (ou $D_{0,9}$).

2.3.2.3 Dispositif expérimental

2.3.2.3.1 Description du granulomètre

Le granulomètre utilisé au cours de cette étude est de marque Helos-VARIO/KF-MAGIC® et est composé de deux parties : l'émetteur et le récepteur. L'émetteur est composé d'un laser He/Ne qui envoie un faisceau laser à $\lambda=632,8$ nm, d'une puissance de 5mW, et également de différentes optiques qui permettent la variation du diamètre de celui-ci. Ce diamètre varie entre 2.2 et 35 mm en fonction de la lentille utilisée pour la réception du faisceau laser. Dans le récepteur se trouve le détecteur composé de 31 différentes parties et de 8 différentes lentilles nommées R1 à R8 qui permettent la détection, selon différentes gammes, de la taille des particules.

La lentille choisie dans le cas de notre étude est la lentille R5 qui permet une détection en taille entre 0,5 et 875 μm . Il faut noter que pour cette lentille, la gamme entre 0,5 et 4,5 μm n'est pas mesurée directement mais est calculée, les particules de cette taille se réfléchissant sur la zone centrale du signal (là où arrive également le faisceau non diffracté). Cette lentille a été choisie car un autre paramètre rentre en compte : la zone de travail. En effet, cette lentille a une zone de travail inférieure à 478 mm (qui correspond à la distance jusqu'à laquelle elle peut mesurer la taille des particules ; la distance zéro étant la lentille au niveau du récepteur)

distance qui convenait parfaitement pour obtenir une injection qui n'était pas perturbée par les parois de l'enceinte dans laquelle cette étude a été réalisée.

L'enceinte utilisée est une boîte en plexiglas composée d'une ouverture dans le haut permettant une extraction des poussières une fois le test terminé, et de deux ouvertures en verre sur le côté permettant le passage du faisceau laser sans le dévier.

D'autres lentilles ont été testées notamment la R2 (0,25-87,5 μm , la gamme 0,25-0,45 μm étant calculée) et la R4 (0,5-350 μm , la gamme 0,5-1,8 μm étant calculée) mais celles-ci, avec des distances de travail respectivement de 19 ± 1 mm et inférieure à 130 mm, ne permettaient une mesure avec une injection non perturbée.

Une bonne utilisation de cet appareil nécessite un alignement optique très précis entre l'émetteur et le récepteur ainsi qu'un nettoyage de l'intérieur de la boîte entre chaque expérience afin d'éviter au maximum le dépôt de particules sur les fenêtres en verre et ainsi l'obturation du signal.

2.3.2.3.2 *Conditions expérimentales*

La détermination de la taille des particules a été réalisée dans les conditions les plus proches possibles de celles à l'intérieur de la bombe sphérique afin de caractériser au mieux certains effets qui pourraient apparaître tel l'agglomération des particules lors de l'injection.

Pour ce faire, deux cyclones ont été testés. Leurs caractéristiques sont identiques (hauteur = 100 mm, diamètre = 25 mm), leur seule différence provient de l'ouverture nécessaire au passage à l'introduction des gaz en amont (diamètre du tube utilisé : 1/8 po soit 1,59 mm). Pour le premier, l'ouverture se situe en bas du cyclone, à l'horizontale. Pour le second, l'ouverture se situe environ à mi-hauteur avec une inclinaison de 45°. Il est important de noter que ces ouvertures ont été réalisées de manière à optimiser au maximum la vitesse tangentielle des gaz au moment de leur entrée au niveau du cyclone. Les deux cyclones testés sont représentés sur la Figure 2-15.

L'introduction des gaz (dans le cas de ces expériences : de l'air comprimé) se fait au moyen de débitmètres présentés précédemment (cf. 2.1.3.2), avec différents débits (10000, 15000 et 20000 sccm). L'injecteur utilisé est le bossage de la bombe sphérique de 8-L par lequel se réalise l'introduction des mélanges. La mesure de la granulométrie des poussières se fait pendant 3 minutes après que le granulomètre détecte les premières poussières dans l'enceinte (démarrage automatique de l'enregistrement des données à l'aide de la concentration optique).

Le schéma de ce dispositif expérimental est présenté sur la Figure 2-16.

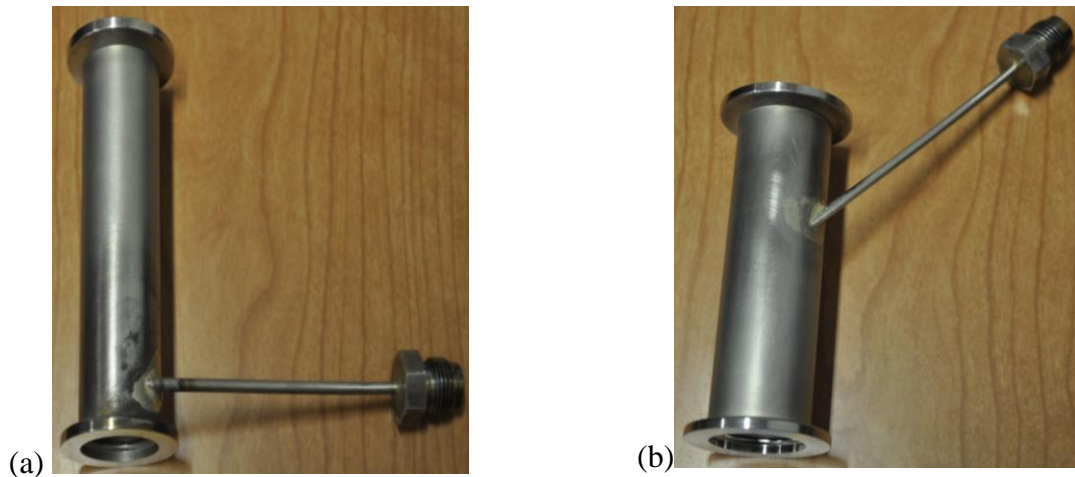


Figure 2-15 : Photos de deux cyclones utilisés au cours de cette étude : (a) ouverture vers le bas et (b) ouverture vers le haut.

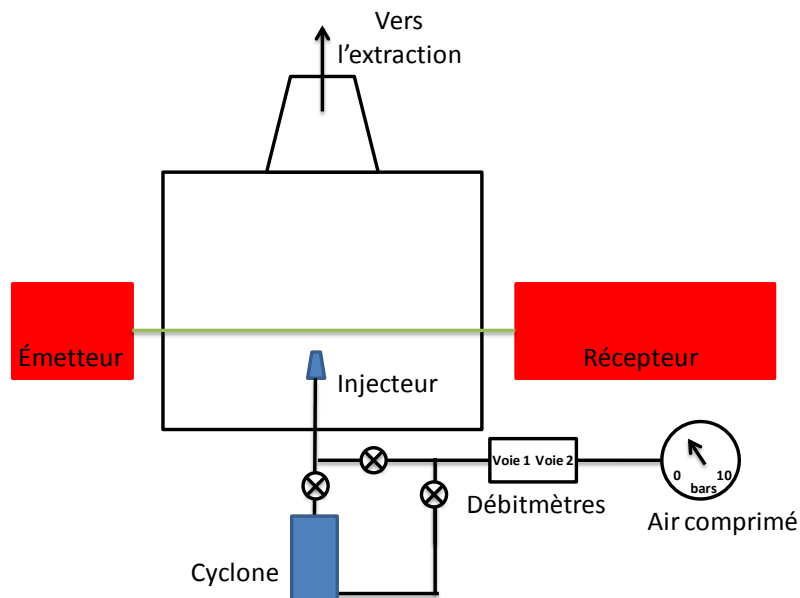


Figure 2-16 : Schéma du dispositif expérimental pour les expériences de granulométrie.

2.3.2.4 Résultats

La caractérisation des particules s'est faite pour différentes conditions expérimentales : 2 cyclones, différents débits d'air, différents temps d'injection, différentes masses de poussières mais également différents intervalles de temps. En effet, la mesure de la granulométrie se fait pendant 3 minutes pour les particules de graphite et de tungstène. Cependant, durant les premières secondes, l'écoulement est perturbé par le fait que de nouvelles particules et de l'air sont encore injectés à l'intérieur de la boîte. Le flux est alors plus puissant au niveau de l'injecteur et des phénomènes de multi-réflexion des photons peuvent alors apparaître ce qui provoque des incertitudes sur les mesures beaucoup plus importantes. À l'inverse, après quelques minutes, les particules commencent à retomber au fond de la boîte et l'on observe des fractions qui ne correspondent pas à la totalité de

l'échantillon. Il est donc nécessaire de mesurer la taille des particules pendant un intervalle de temps durant lequel les particules seront le moins soumis à ces différentes perturbations

2.3.2.4.1 *Caractérisation des particules de graphite*

Le graphite a été testé pour des temps d'injection de 5 et 10 s avec des débits d'air de 15000 et 20000 sccm pour différentes masses allant de 1 à 14 g. Le rendement moyen d'injection des particules, sur tous les tests effectués, est de près de 98%. Le rendement est calculée par le rapport entre la masse de poussières injectée durant le test (différence entre la masse du cyclone plus celui des poussières avant et après le test) et la masse de poussières introduite dans le cyclone (différence entre la masse du cyclone et des poussières avant le test et la masse du cyclone vide).

La mesure de la taille des particules se fait sur un intervalle de temps compris entre 20 et 40 secondes après le départ de la mesure. Cet intervalle de temps a été choisi car l'influence de l'injection est minimale (elle est terminée depuis au minimum 10 secondes), le dépôt des particules sur les parois est encore faible et cet intervalle correspond au paramètre temps qui sera utilisé pour les explosions de poussières ultérieures.

Une partie des tests réalisés pour cette étude est présentée sur le Tableau 2-9.

Masse graphite (g)	Temps d'injection (s)	Débit d'air (sccm)	Entrée cyclone	Entre 20 et 40 s		
				SMD (μm)	x(50) (μm)	x(90) (μm)
3	10	15000	Haut	15,2	28,4	124,7
1	10	15000	Haut	17,6	33,6	159,2
1	10	15000	Haut	19,0	37,7	167,4
3	5	20000	Bas	18,6	43,5	221,8
3	10	15000	Bas	17,9	32,6	133,5
3	10	15000	Bas	17,7	36,0	163,4
3	10	15000	Haut	18,5	37,5	167,7
5	10	15000	Bas	18,1	33,9	165,5
5	10	20000	Bas	17,2	31,0	145,2

Tableau 2-9 : Résultats de l'étude granulométrique sur les particules de graphite

Quelque soit les conditions utilisées, les résultats obtenus restent dans les mêmes ordres de grandeur en ce qui concerne le SMD et le x(50). Pour le x(90), l'écartement des valeurs est plus important mais reste toutefois acceptable. L'analyse des résultats pour l'étude granulométrique montre que les particules de graphite ont un SMD moyen compris entre 15 et 19 μm , un x(50) moyen d'environ 35 μm et un x(90) moyen aux alentours de 160 μm .

Les tailles de particules de graphite obtenues sont bien plus importantes que celles données par le fournisseur (pour rappel : Fraction 2-15 μm) mais nos valeurs sont obtenues dans des conditions réelles d'injection et des phénomènes importants d'agglomération peuvent exister.

2.3.2.4.2 *Caractérisation des particules de tungstène*

Les particules de tungstène ont été testées pour différentes conditions initiales : deux temps d'injection (10 et 20 s), deux débits d'air (15000 et 20000 sccm) et différentes masses (de 5 à 75 g). Un tel écart entre les masses testées se justifie par le très faible rendement obtenu lors de l'injection des particules de tungstène (55 % dans le meilleur des cas) à cause de la masse volumique élevée du tungstène ($19,3 \text{ g.cm}^{-3}$). Cette caractéristique des particules de tungstène a conduit à la seule utilisation du cyclone « entrée bas » pour les tests, celui-ci donnant un meilleur rendement que le cyclone « entrée haut ».

Dans le cas des particules de tungstène, le choix de la durée est moins important que pour celles de graphite car dans la plupart des cas testés dans cette étude, les valeurs de $x(10)$, $x(50)$, $x(90)$ et $D(3.2)$ (ou SMD) restent très stables (mises à part les premières secondes, les variations étant dues à l'injection) tout au long du test (cf. Figure 2-17). Cependant, pour des raisons de cohérences avec les particules de graphite, les valeurs de taille ont été déterminées sur un intervalle de temps compris entre 30 et 45 s après l'injection. Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau 2-10.

Masse de tungstène dans le cyclone (g)	Rendement d'injection (%)	Temps d'injection (s)	Débit d'air (sccm)	Entre 30 et 45 s		
				SMD (μm)	$x(50)$ (μm)	$x(90)$ (μm)
10,25	6,93	10	20000	3,7	4,5	10,4
10,05	12,04	10	20000	3,6	4,3	9,9
25,04	23,96	20	20000	4,1	5,2	12,2
25,04	36,22	20	20000	4,2	5,5	12,9
25,01	32,43	10	20000	4,2	5,5	12,9
35,14	48,29	20	20000	4,3	5,7	13,5
35,11	36,29	10	15000	4,3	5,7	13,0
75	47,53	10	20000	4,4	6,0	14,2
35,06	2,05	10	15000	3,7	4,5	10,5

Tableau 2-10 : Résultats de l'étude granulométrique sur les particules de tungstène

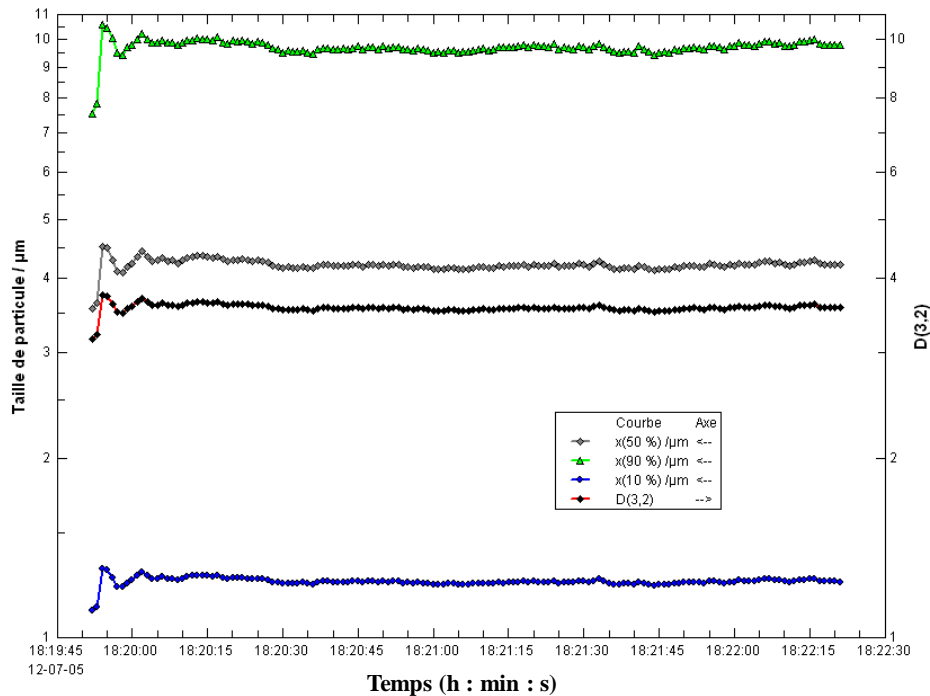


Figure 2-17 : Variation de différents paramètres ($x(10)$, $x(50)$, $x(90)$ et $D(3.2)$) (ou SMD) associés à la taille des particules de tungstène au cours du temps pour les conditions suivantes : Débit d'air = 20000 sccm ; Temps d'injection = 10 s ; Masse de tungstène \approx 10 g (Rendement d'injection \approx 10 %).

Pour la gamme complète de conditions initiales, les résultats obtenus montrent que le SMD, le $x(50)$ et le $x(90)$ restent quasiment stables. L'étude des résultats pour l'étude granulométrique nous donne des particules de tungstène avec un SMD moyen d'environ 4 μm , un $x(50)$ moyen d'environ 5 μm et un $x(90)$ moyen compris entre 10 et 14 μm .

Les tailles de particules de tungstène obtenues sont bien plus importantes que celles données par le fournisseur (pour rappel : inférieures à 1 μm) mais nos valeurs sont obtenues dans des conditions réelles d'injection et des phénomènes importants d'agglomération peuvent exister.

2.3.3 Mesures des concentrations des poussières par extinction laser

2.3.3.1 Principe

L'extinction de la lumière est basée sur le principe de l'atténuation d'un faisceau parallèle de lumière, entre son émetteur et un récepteur, par l'absorption et la diffusion de cette lumière par des particules se trouvant sur le trajet du faisceau de lumière. La notation laser vient du fait que la source lumineuse utilisée au cours de cette étude est un laser, émettant à une unique longueur d'onde.

Pour une particule unique donnée, de diamètre d_p , avec un coefficient d'extinction ϵ , dépendant de l'indice de réfraction m de la particule et de sa taille α , la puissance lumineuse

perdue $-\Delta p_\lambda$ par extinction due à cette particule d'un faisceau parallèle de lumière d'intensité I_0 est égale à [122] :

$$-\Delta p_\lambda = I_0 \cdot \left(\frac{\pi}{4}\right) \cdot d_p^2 \cdot \varepsilon(\alpha, m) \quad \text{Eq 2.33}$$

Lorsqu'un faisceau de lumière monochromatique d'intensité I_0 et de longueur d'onde λ traverse un ensemble homogène de particules de concentration molaire $[C]$ et de taille donnée d_p . La transmittance T de ce faisceau lumineux est donnée par la loi de Beer-Lambert et vaut [124,126] :

$$T = \frac{I}{I_0} = 10^{-\varepsilon \cdot [C] \cdot l} \quad \text{Eq 2.34}$$

Avec : I : l'intensité du faisceau après son passage dans l'ensemble de particules ; ε : le coefficient d'extinction molaire (ou coefficient d'absorption molaire) de la particule donnée (de taille d_p) à la longueur d'onde λ (généralement exprimé en $\text{L} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$) ; $[C]$: la concentration molaire de l'échantillon (généralement exprimée en $\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$) et l : la longueur que l'échantillon (généralement exprimée en cm).

L'absorbance, A , peut alors être introduite et vaut [124,126] :

$$A = \log\left(\frac{I_0}{I}\right) \text{ ou } A = -\log(T) \quad \text{Eq 2.35}$$

La loi de Beer-Lambert vaut alors :

$$A = \varepsilon \cdot [C] \cdot l \quad \text{Eq 2.36}$$

À partir de la mesure du signal fourni par l'enregistrement du signal lumineux sans et avec présence de particules, il est possible de mesurer la concentration de l'échantillon à l'intérieur de l'enceinte utilisée pour les expériences. L'objectif de cette étude est d'observer si lors de l'introduction du mélange gaz+poussières, celui-ci reste homogène à l'intérieur de la bombe, de mesurer, si possible, la concentration des particules injectées pour chaque test et de déterminer des conditions d'injection adéquates pour l'explosion des mélanges diphasiques gaz-poussières.

2.3.3.2 Dispositif expérimental

2.3.3.2.1 Caractéristiques du laser

Le laser utilisé au cours de cette étude est un laser He/Ne de la marque PLASMA® et de modèle GNIK 3-1 PS qui émet dans l'infrarouge à une longueur d'onde de $3,39 \mu\text{m}$. Ce faisceau est envoyé directement à travers la bombe et est réceptionné par un détecteur Hg/Cd/Te infrarouge de marque Kolmar Technologies® CMPV11-1-J1/DC et alimenté par deux batteries 12 V, 7,0 Ah.

2.3.3.2.2 *Protocole expérimental*

Différentes conditions d'injection des poussières ont été testées. L'objectif de ces tests est d'obtenir une introduction de particules faite de manière homogène et en limitant les pertes (particules se collant sur les fenêtres et/ou tombant dans le fond de la bombe sphérique et/ou restant à l'intérieur des canalisations en amont de la bombe sphérique par exemple) le plus possible. Ces tests ont été réalisés, à la différence de l'étude granulométrique, à l'intérieur de la bombe sphérique. Le cyclone « entrée bas » a été utilisé pour tous ces tests.

La première technique utilisée fut l'introduction totale du mélange (gaz+poussières) en une seule fois. Celle-ci ne s'est pas avérée efficace. En effet, quelque soit le débit d'air utilisé en amont pour introduire les particules, celles-ci tombent rapidement au fond de la bombe et/ou alors se collent sur les hublots de la bombe (observation faite visuellement pendant et après les tests).

Une deuxième technique a été alors testée : une introduction en deux phases. La première consiste en une introduction par un by-pass du mélange gazeux uniquement jusqu'à une pression donnée inférieure à la pression initiale désirée. Puis dans un second temps, le gaz chargé de particules est alors introduit jusqu'à atteindre la pression initiale désirée. Cette méthode s'est avérée beaucoup plus efficace et c'est celle-ci qui a été employée pour l'introduction des poussières lors des tests d'extinction laser et pour la réalisation des expériences de combustion.

Les conditions d'introduction des particules sont données dans le Tableau 2-11.

Particules	Pression finale souhaitée dans la bombe (kPa)	Débit total des débitmètres (sccm)	Durée de la première injection (gaz uniquement) (s)	Durée de la deuxième injection (gaz + poussières) (s)
Graphite	50	3750	39	26
Graphite	100	7500	39	26
Tungstène	100	15000	6,5	26

Tableau 2-11 : Conditions d'injection des particules de graphite et de tungstène pour leur introduction dans la bombe sphérique

Il n'existe pas de conditions d'injection pour les particules de tungstène pour une pression finale souhaitée dans la bombe de 50 kPa. En effet, le tungstène, du fait de sa masse volumique élevée, est très difficile à injecter. Un débit très important est nécessaire (15000 sccm pour une condition de pression de 1 bar), un débit plus faible entraînant un rendement très faible mais surtout des particules qui restent bloquées à l'intérieur des canalisations en amont de la bombe. Cependant, ce débit important donne des temps d'injection trop faibles ce qui empêche de trouver une stabilité pour le mélange en fin de remplissage de la bombe.

2.3.3.3 Résultats

Les tests portant sur l'extinction laser ont été réalisés sur les particules de graphite et sur celle de tungstène. Les différents débits et durées d'injection ont été présentés dans le Tableau 2-11.

La mesure des différentes intensités du signal émis par le laser se fait par différence entre les différents signaux (avec et sans particules) enregistrés, comme explicitée sur la Figure 2-18. La mesure de l'intensité I se fait entre le signal de référence mesuré sans le laser et le point où le signal est minimal (une fois que la totalité des particules sont injectées dans l'enceinte). On remarque que dès que l'injection du graphite commence, la valeur du signal décroît rapidement jusqu'à atteindre son minimum. Une fois le minimum atteint, la valeur reste stable pendant une durée d'environ 30 secondes puis la valeur commence à s'accroître à nouveau signifiant qu'il y a moins de particules qui bloque le passage du faisceau laser (les particules tombent au fond de l'enceinte). L'intervalle, pendant lequel le signal est stable, est très important. Une valeur stable signifie que le mélange est en équilibre et que la turbulence est minimale. C'est pendant cet intervalle de temps que nous avons choisi de réaliser l'inflammation des mélanges lors des tests de combustion.

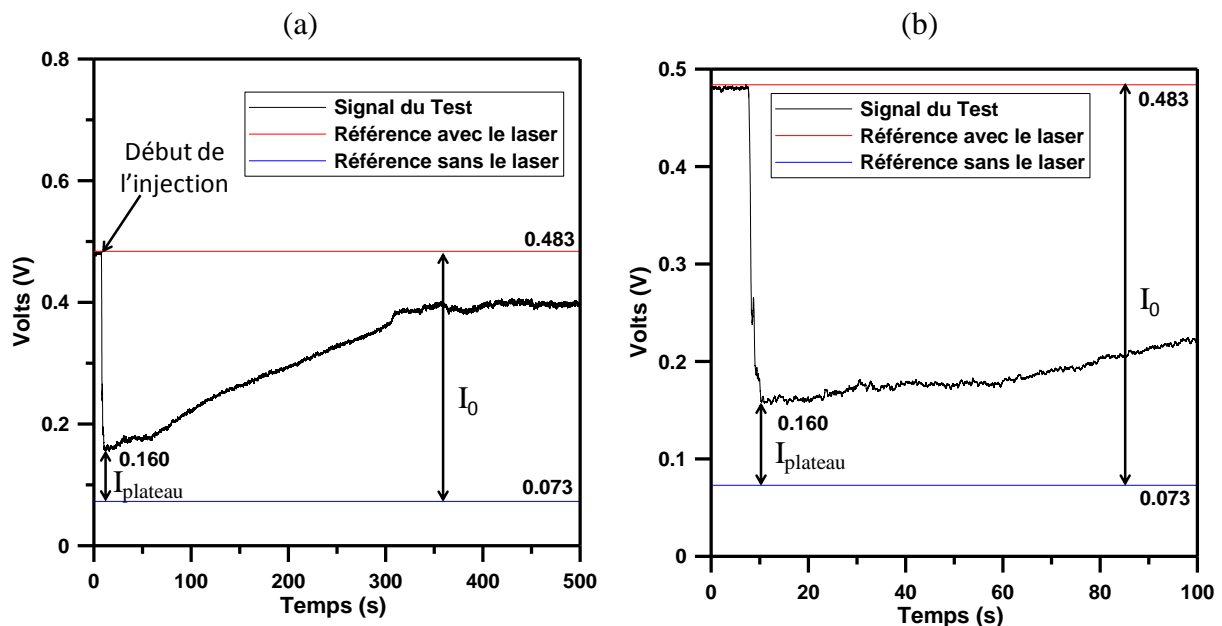


Figure 2-18 : Enregistrements des différents signaux pour une expérience à $P_{ini}=50$ kPa et avec une masse de graphite de 0,07 g : (a) Signal complet ; (b) Zoom.

Pour les particules de graphite, l'inflammation se produira 10 secondes après la fin de l'introduction du mélange dans la bombe. Pour les particules de tungstène, ce délai est ramené à 5 secondes après la fin de l'injection (la stabilité est moins importante pour ces particules).

Pour chaque expérience, le rapport $I_{plateau}/I_0$ a été calculé et a été tracé en fonction de la concentration en particules injectées. Pour le graphite, les résultats sont donnés sur la Figure 2-19 et pour le tungstène sur la Figure 2-20.

Les résultats montrent, pour les deux composés, une linéarité entre la valeur du $\log(I_{plateau}/I_0)$ et la concentration en particules à l'intérieur de la bombe.

Concernant l'étude sur le graphite, la concentration en graphite injectée est limitée à environ 25 g/m^3 , au-delà le récepteur IR est saturé et il est impossible de déterminer la valeur minimale du signal pendant le test. Ne pouvant échapper à ce problème, nous avons considéré pour le reste de l'étude que les conditions d'injection utilisée jusqu'à des concentrations de 25 g/m^3 peuvent l'être également pour des concentrations plus élevées. Les phénomènes de particules collées aux parois et/ou tombant au fond de l'enceinte et/ou restant coincées dans le système d'injection en amont sont peu présents pour des concentrations plus élevées et ont été vérifiés de manière visuelle.

Concernant, les particules de tungstène, le phénomène de saturation du récepteur IR, n'apparaît qu'à partir de concentrations au-delà de 250 g/m^3 . Comme pour les particules de graphite, pour des concentrations plus élevées, nous avons considéré que les conditions d'injection sont également correctes.

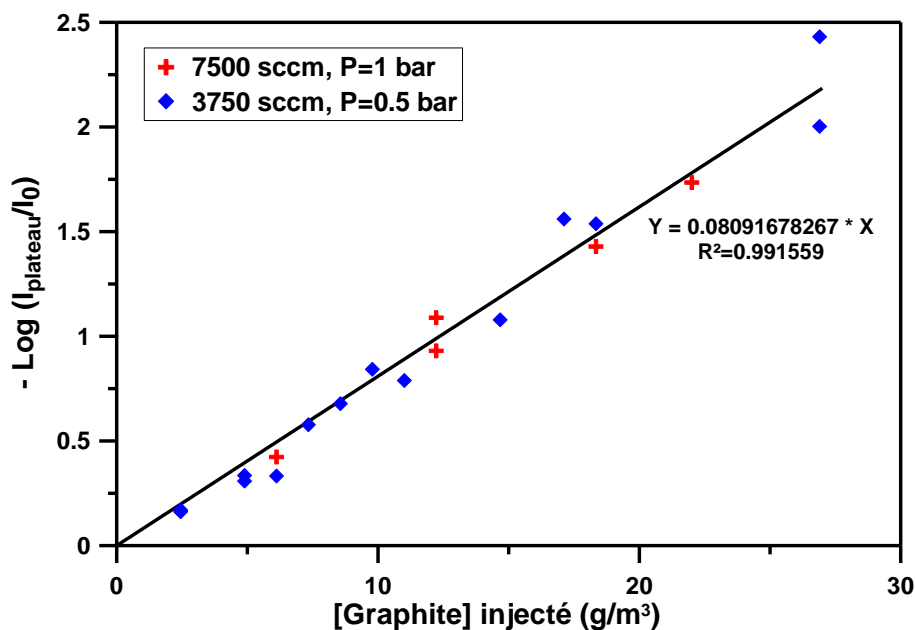


Figure 2-19 : $-\log(I_{\text{plateau}}/I_0)$ en fonction de la concentration en graphite injectée (en g/m^3) dans la bombe sphérique.

La linéarité obtenue entre la valeur $-\log(I_{\text{plateau}}/I_0)$ et la concentration en particules injectées dans l'enceinte nous permet, connaissant le diamètre interne de la bombe sphérique (250 mm), de calculer le coefficient d'extinction (ou absorption) des particules de graphite et de tungstène.

La valeur du coefficient d'extinction est déterminée à partir de la valeur du fit linéaire et l'incertitude est calculée à partir de chaque cas séparément.

Pour le carbone, le coefficient d'extinction vaut alors :

$$(\varepsilon \pm \Delta\varepsilon)_{\text{Graphite}} = (3,237 \pm 0,410) \text{ L.g}^{-1}.\text{cm}^{-1};$$

Et celui du tungstène est égal à :

$$(\varepsilon \pm \Delta\varepsilon)_{\text{Tungstène}} = (0,145 \pm 0,054) \text{ L.g}^{-1}.\text{cm}^{-1}.$$

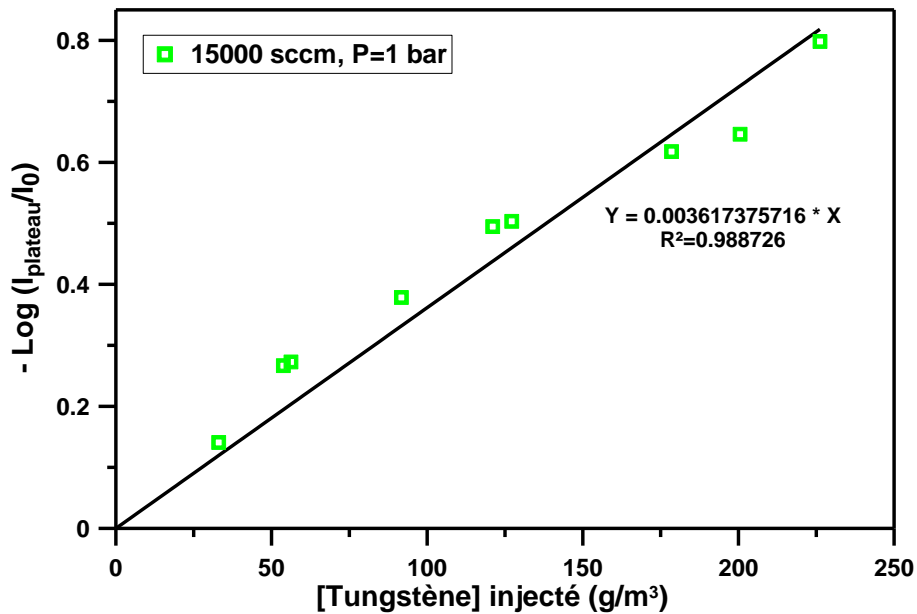


Figure 2-20 : $-\log(I_{\text{plateau}}/I_0)$ en fonction de la concentration en tungstène injectée (en g/m^3) dans la bombe sphérique.

2.4 Conditions expérimentales

Les conditions expérimentales étudiées au cours de l'étude sur les mélanges gazeux $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2$ sont données dans le Tableau 2-12 et celles concernant les mélanges diphasiques $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2/\text{poussières}$ dans le Tableau 2-13.

%mol d'hydrogène	Rapport N_2/O_2	Température (K)	Pression (kPa)
10%	0,66 ; 1 ; 1,5 ; 2,33 ; 3,76 ; 9	303 ; 343 ; 383	50 ; 100
20%	0,66 ; 1 ; 1,5 ; 2,33 ; 3,76 ; 9	303 ; 343	50 ; 100
30%	0,66 ; 1 ; 1,5 ; 2,33 ; 3,76 ; 9	303 ; 343	50 ; 100
40% ; 50% ; 60%	2,33 ; 3,76 ; 9	303 ; 343	50 ; 100

Tableau 2-12 : Composition des mélanges étudiés et conditions de pression et de température lors des expériences sur les mélanges $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2$

Nature des particules	Concentration (g/m^3)	% mol d' H_2	Rapport N_2/O_2	Température (K)	Pression (kPa)
Graphite	[0 - 338,8]	10% ; 20% ; 30%	2,33 ; 3,76	298	50 ; 100
Tungstène	[0 - 433,8]	10% ; 20% ; 30%	2,33 ; 3,76	298	100

Tableau 2-13 : Composition des mélanges étudiés et conditions de pression et de température lors des expériences sur les mélanges $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2/\text{poussières}$

2.5 Modélisation

La dernière partie de ce chapitre concerne les logiciels de modélisation utilisés et les mécanismes cinétiques détaillés étudiés au cours de ce travail.

2.5.1 Logiciels de simulation

Différents codes de calculs numériques ont été utilisés afin de valider les mécanismes cinétiques détaillés au vu des résultats obtenus lors de cette étude et de ceux de la littérature.

La détermination de la Pression Adiabatique de Combustion Complète (ou P_{AICC}) a été réalisée avec le code Equil de la librairie Chemkin II® [127]. Son architecture simplifiée est la suivante : à partir du fichier « mécanisme cinétique », dans lequel sont déclarés les éléments et les espèces, du fichier « données thermodynamiques », dans lequel sont donnés la composition élémentaire, la phase et les données thermodynamiques (sous la forme de 2*7 coefficients) de chaque espèce chimique, et du fichier « conditions d'entrée », dans lequel sont explicitées les conditions initiales (composition initiale, température, pression, etc.) dans lequel se trouve le mélange, la routine Equil résout numériquement différents systèmes d'équations différentielles qui décrivent l'évolution du système réactif. Les résultats sont alors compilés dans un « fichier résultat » qui nous donne l'évolution thermodynamique du mélange [16].

Une étude de simulation de vitesses de flamme a également 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 $H_2/O_2/N_2$. En effet, pour des mélanges très riches ou très pauvres, la détermination expérimentale des vitesses de flamme n'étant plus possible, la modélisation cinétique offre l'avantage de pouvoir accéder aux vitesses de flamme qui ne sont pas mesurables. Cette étude a été réalisée avec le module Freely-Propagating Flames du logiciel COSILAB® développée par la société Rotexo [128]. Dans ce module, la flamme est considérée comme isobare et plane et se propage librement à une vitesse constante sans pertes thermiques. L'architecture de ce module est semblable à celle décrite précédemment mise à part qu'un fichier « données transport », dans lequel sont décrites les données de transport de chaque espèce intervenant dans le mécanisme cinétique, est nécessaire à la résolution du système. La description de l'ensemble des réactions chimiques intervenant dans le mécanisme est aussi fournie comme donnée d'entrée au code de calcul.

Le logiciel COSILAB® possède également un module (Equilibrium Calculations) permettant le calcul de l'évolution thermodynamique du mélange et donc la détermination de la P_{AICC} .

2.5.2 Choix des mécanismes cinétiques détaillés

Trois différents mécanismes cinétiques détaillés ont été étudiés au cours de cette étude. Leur principale différence vient de la présence ou non des espèces azotées dans le mécanisme cinétique. Ces trois mécanismes sont ceux de Mével, Wang et Hong.

Le mécanisme cinétique détaillé de Mével [129,130], développé au laboratoire ICARE, contient 31 espèces et 203 réactions. Ce modèle a été validé sur des vitesses de flamme de mélanges $H_2/N_2O/Ar$ pour des richesses comprises entre 0,3 et 1,8, à pression atmosphérique, pour des températures initiales comprises entre 296 et 304 K et sur des délais d'auto-inflammation de mélange $H_2/N_2O/Ar$ pour une gamme de richesse comprise entre 0,5 et 2, à température ambiante, pour une pression initiale de 300 kPa et pour une dilution dans l'argon de 98 et 99%.

Le mécanisme cinétique détaillé de Wang [131], développé à l'University of South California, comporte, pour sa partie $H_2/O_2/N_2$, 9 espèces et 28 réactions. Ce modèle a été validé pour cette partie, par de nombreuses expériences sur des délais d'auto-inflammation et des vitesses de flammes sur des mélanges hydrogène-air [48,49,53,56].

Le mécanisme cinétique détaillé de Hong [132], développé à l'Université de Stanford, est composé de 9 espèces et 31 réactions. Ce mécanisme a été réalisé à partir d'expériences en tube à choc par des mesures d'absorption laser pour des mélanges H_2/O_2 . Puis, il a été validé sur des délais d'auto-inflammation, des vitesses de flammes et des structures de flammes sur brûleurs stabilisés. Les auteurs indiquent que le modèle reproduit bien les expériences sur une large gamme de richesse, de pression et de température comprises entre 950 et 3000 K.

Le mécanisme de Hong ne comprend pas de données de transport pour ses 9 espèces. Afin de l'utiliser pour la simulation, les données de transport des 9 espèces concernées ont été celles du mécanisme de Mével, qui sont identiques à celles du mécanisme de Wang.

2.6 Conclusion

Ce deuxième chapitre a été consacré aux différents dispositifs expérimentaux utilisés au cours de ce travail : la bombe sphérique de 56 L, utilisée pour l'étude des mélanges gazeux $H_2/O_2/N_2$, et celle de 8 L utilisée pour l'étude des mélanges $H_2/O_2/N_2/poussières$. Ensuite, la méthodologie associée à la détermination des paramètres d'explosion de ces mélanges est présentée. S'en suit la caractérisation des particules et l'optimisation du système d'injection associé à celles-ci. Afin d'obtenir un mélange homogène et stable à l'intérieur de la bombe, une injection du mélange gaz/poussières en deux temps à l'aide d'un cyclone est utilisée. La fin de ce chapitre est consacrée à la présentation des conditions expérimentales et des outils de modélisation.

CHAPITRE 3 : ETUDES DES MELANGES H₂/O₂/N₂

3 Étude des mélanges monophasiques H₂/O₂/N₂

L'objectif de ce chapitre est de présenter les résultats de l'étude réalisée dans la bombe sphérique de 56 L concernant les propriétés fondamentales de combustion des mélanges H₂/O₂/N₂. Il s'agit ici de déterminer, après une présentation des différents régimes de flamme obtenus dans cette étude, les paramètres d'explosivité (temps de combustion, pression maximale de combustion, indice de déflagration) ainsi que les vitesses de flamme laminaire, les longueurs de Markstein et l'énergie d'activation globale de ces mélanges. Ces paramètres, comme cela a été vu dans la littérature, sont déterminants en ce qui concerne la détermination de paramètres de sécurité de l'installation ITER.

Au cours de ce travail, ces paramètres ont été mesurés pour deux températures initiales (303 et 343 K) et deux pressions (50 et 100 kPa). De nombreux mécanismes cinétiques détaillés ont été publiés ces dernières années. Afin de choisir le mécanisme cinétique le plus adapté à cette étude, une simulation de l'ensemble des résultats obtenus au cours de ce travail sera réalisée avec différents mécanismes de la littérature. Le mécanisme le plus performant sera alors choisi pour évaluer l'énergie globale d'activation nécessaire au calcul du nombre de Zel'dovich.

Les caractéristiques thermocinétiques de ces mélanges sont données en Annexe A.

3.1 Régimes de flamme

La première partie de ce troisième chapitre sera consacrée aux différents régimes de propagation des flammes que nous avons pu observer au cours de ce travail. Ceux-ci sont aux nombres de trois : flammes ascendantes, flamme sphérique lisse devenant cellulaire au cours de l'observation et flamme sphérique lisse. Ces différents régimes sont associés, dans la suite de ce manuscrit, aux différentes conditions pour lesquelles ils apparaissent et aux nombres de Lewis pour l'hydrogène et l'oxygène de ces mélanges.

3.1.1 Flammes ascendantes

Les conditions pour lesquelles les flammes se propagent préférentiellement de manière ascendante sont les flammes avec une teneur en hydrogène de 10 % mol sur tout le domaine de rapports molaires N₂/O₂ pour toutes les conditions initiales de température et de pression. Un exemple de propagation préférentiellement ascendante pour un mélange H₂/O₂/N₂ avec une teneur en hydrogène de 10 % mol, un rapport N₂/O₂ de 2,33, à une pression et une température initiales de 100 kPa 303 K respectivement est présenté sur la Figure 3-1. Les nombres de Lewis de l'oxygène et de l'hydrogène associés à ces mélanges sont donnés dans le Tableau 3-1. Tous les mélanges avec une flamme se propageant préférentiellement de manière ascendante sont pauvres en combustible (la richesse variant de 0,09 à 0,56). C'est donc l'hydrogène qui est le réactif limitant. Celui-ci possède sur tout le domaine un nombre de Lewis inférieur à 1, ce qui explique la propagation cellulaire, en plus d'ascendante, des flammes des mélanges H₂/O₂/N₂.

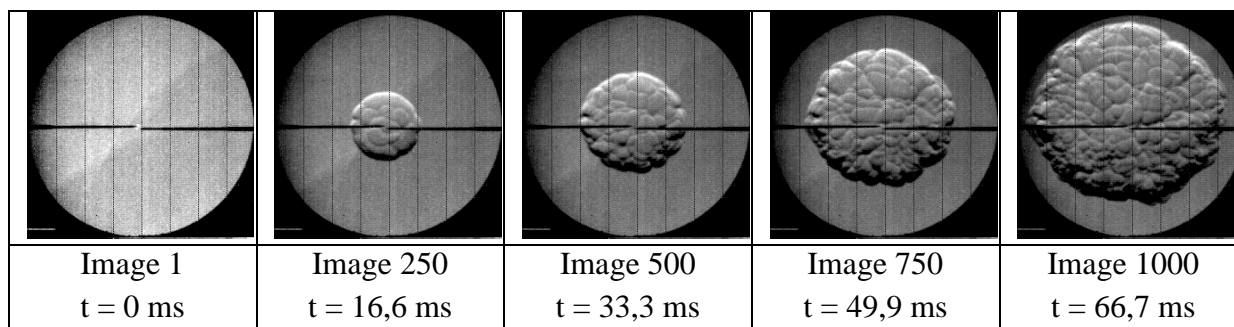


Figure 3-1 : Evolution de la flamme pour un mélange $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol, $N_2/O_2 = 2,33$, $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 303$ K (Vitesse d'enregistrement = 15000 image/s). Échelle : \varnothing hublot = 97 mm.

X_{H_2}	Rapport N_2/O_2	Richesse	P_{ini} (kPa)	$T_{ini} = 303$ K		$T_{ini} = 343$ K		$T_{ini} = 383$ K	
				Le (O_2)	Le (H_2)	Le (O_2)	Le (H_2)	Le (O_2)	Le (H_2)
0,1	0,66	0,09	50	1,483	0,335	1,476	0,336	1,475	0,337
0,1	1	0,11	50	1,454	0,337	1,446	0,337	1,442	0,338
0,1	1,5	0,14	50	1,426	0,338	1,418	0,338	1,412	0,339
0,1	2,33	0,19	50	1,403	0,340	1,396	0,340	1,377	0,339
0,1	3,76	0,26	50	1,380	0,341	1,371	0,341	1,365	0,341
0,1	9	0,56	50	1,358	0,343	1,346	0,342	1,339	0,342
0,1	0,66	0,09	100	1,483	0,335	1,477	0,336		
0,1	1	0,11	100	1,454	0,337	1,445	0,337		
0,1	1,5	0,14	100	1,419	0,338	1,417	0,338		
0,1	2,33	0,19	100	1,402	0,340	1,392	0,340		
0,1	3,76	0,26	100	1,381	0,341	1,370	0,341		
0,1	9	0,56	100	1,359	0,344	1,346	0,342		

Tableau 3-1 : Nombre de Lewis pour l'oxygène et l'hydrogène en fonction des conditions initiales des mélanges où la flamme se propage préférentiellement de manière ascendante.

3.1.2 Flammes sphériques lisses devenant cellulaires

Les conditions pour lesquelles les flammes se propagent de manière sphérique et lisse puis qui deviennent cellulaires au cours de leurs observations sont les suivantes :

- Les flammes avec une teneur en hydrogène de 20 %mol sur un domaine de rapports molaires N_2/O_2 allant de 0,66 à 3,76 pour toutes les conditions initiales de température et de pression. Ces conditions sont précisées dans le Tableau 3-2.

- Les flammes avec une teneur en hydrogène de 30 %mol avec de faibles rapports N_2/O_2 généralement inférieurs ou égaux à 1,5 pour les mélanges à 50 kPa et inférieurs ou égaux à 2,33 pour les mélanges à 100 kPa. Ces conditions sont précisées dans le Tableau 3-2.

Le Tableau 3-2 représente les rayons de flamme, R_f , auxquels la détermination de la vitesse de flamme à partir du rayon en fonction du temps a été arrêtée. Ces rayons sont

déterminés manuellement, donc dépendant de l'expérimentateur, et consiste à déterminer à quel moment la cellularisation de la flamme apparaît. L'erreur sur cette mesure est estimée à 1 mm. La cellularisation de la flamme entraînant, via une augmentation de la surface de la flamme, à une surestimation de la vitesse de flamme, il est nécessaire d'éviter que ce phénomène se produise lors de l'évaluation de la vitesse afin d'obtenir des valeurs de vitesse correctes et le moins surestimées possibles.

Teneur en H ₂	Rapport N ₂ /O ₂	Richesse	P _{ini} (kPa)	T _{ini} = 303 K	T _{ini} = 343 K
				R _f (mm)	R _f (mm)
0,2	0,21	0,66	50	17	19
0,2	0,25	1	50	21	18
0,2	0,31	1,5	50	21	21
0,2	0,42	2,33	50	27	29
0,2	0,60	3,76	50	33	31
0,2	0,21	0,66	100	11	9
0,2	0,25	1	100	12	10
0,2	0,31	1,5	100	12	12
0,2	0,42	2,33	100	11	14
0,2	0,60	3,76	100	16	14
0,3	0,36	0,66	50	29	
0,3	0,43	1	50	32	43
0,3	0,54	1,5	50	34	
0,3	0,54	1,5	100	21	20
0,3	0,71	2,33	100	21	22

Tableau 3-2 : Détermination des rayons de flamme, R_f pour lesquelles la cellularisation de la flamme apparaît en fonction des conditions initiales du mélange pour différentes teneurs en hydrogène dans le milieu.

Pour tous les mélanges dans ce cas, la cellularisation apparaît de plus en plus rapidement (R_f de plus en plus petit) avec une diminution du rapport molaire N₂/O₂, correspondant à une diminution de la richesse. Ceci peut-être mis en rapport avec une diminution du nombre de Lewis de l'hydrogène avec la diminution du rapport N₂/O₂ (Tableau 3-3). On remarque également qu'une augmentation de la pression initiale de 50 à 100 kPa induit, pour un mélange donné, à une cellularisation plus rapide de la flamme. Un exemple de propagation d'une flamme sphérique lisse devenant cellulaire au cours de son observation est présenté sur la Figure 3-2 et les nombres de Lewis associés aux mélanges dont les flammes observent ce comportement sont donnés dans le Tableau 3-3. Ces mélanges, comme les précédents sont pauvres en combustible et c'est le nombre de Lewis de l'hydrogène qui caractérise l'instabilité de la propagation de la flamme.

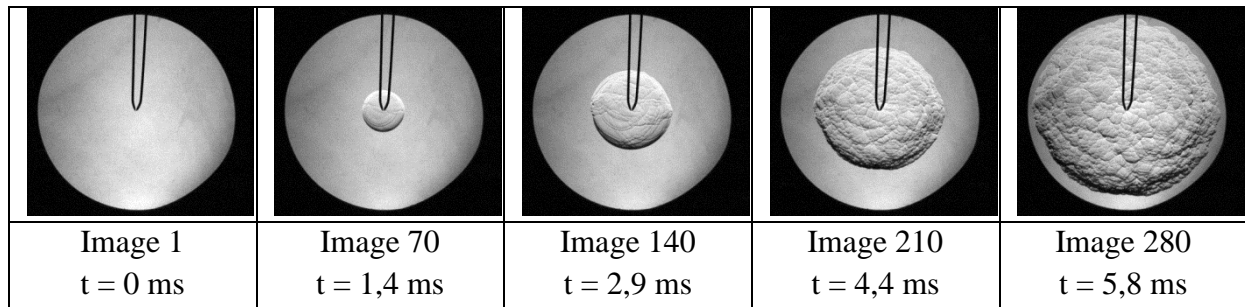


Figure 3-2 : Évolution de la flamme pour un mélange $H_2/O_2/N_2$; $H_2 = 20\% \text{ mol}$, $N_2/O_2 = 1,5$, $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$ et $T_{INI} = 303 \text{ K}$ (Vitesse d'enregistrement = 48000 image/s). Échelle : \varnothing hublot = 97 mm

Teneur en H_2	Rapport N_2/O_2	Richesse	P_{ini} (kPa)	$T_{ini} = 303 \text{ K}$		$T_{ini} = 343 \text{ K}$	
				Le (O_2)	Le (H_2)	Le (O_2)	Le (H_2)
0,2	0,66	0,21	50	1,787	0,383	1,774	0,381
0,2	1	0,25	50	1,738	0,385	1,717	0,383
0,2	1,5	0,31	50	1,694	0,386	1,674	0,384
0,2	2,33	0,42	50	1,650	0,388	1,633	0,386
0,2	3,76	0,60	50	1,623	0,389	1,604	0,387
0,2	0,66	0,21	100	1,789	0,383	1,771	0,381
0,2	1	0,25	100	1,734	0,384	1,717	0,383
0,2	1,5	0,31	100	1,694	0,387	1,673	0,384
0,2	2,33	0,42	100	1,652	0,388	1,635	0,386
0,2	3,76	0,60	100	1,623	0,389	1,604	0,387
0,3	0,66	0,36	50	2,059	0,414		
0,3	1	0,43	50	1,975	0,415	1,953	0,413
0,3	1,5	0,54	50	1,912	0,417		
0,3	1,5	0,54	100	1,912	0,418	1,890	0,415
0,3	2,33	0,71	100	1,860	0,419	1,837	0,417

Tableau 3-3 : Nombre de Lewis pour l'oxygène et l'hydrogène en fonction des conditions initiales des mélanges où la flamme se propage de manière sphérique et lisse avant de devenir cellulaire pendant la durée d'observation de la flamme.

3.1.3 Flammes sphériques lisses

Les conditions pour lesquelles les flammes se propagent de manière sphérique et lisse au cours de leur observation sont les suivantes :

- Les flammes avec une teneur en hydrogène de 20 % mol et un rapport molaire N_2/O_2 égal à 9 pour toutes les conditions initiales de température et de pression.

- Les flammes avec une teneur en hydrogène de 30 % mol avec des rapports molaires N_2/O_2 de 3,76 et 9 pour toutes les conditions initiales de température et de pression plus celles avec un rapport molaire N_2/O_2 de 2,33 et une pression initiale de 50 kPa et celle avec un rapport molaire N_2/O_2 de 1,5 à 50 kPa et 343 K.

- Les flammes avec des teneurs en hydrogène de 40, 50 et 60 % mol avec des rapports molaires N_2/O_2 de 2,33, 3,76 et 9 pour toutes les conditions initiales de pressions et de température. Un exemple de propagation d'une flamme sphérique lisse est présenté sur la Figure 3-3 et les nombres de Lewis associés aux mélanges dont les flammes observent ce comportement sont donnés dans le Tableau 3-4. Ces mélanges sont, dans une très grande majorité, riches en combustible et c'est le nombre de Lewis de l'oxygène qui caractérise la propagation de la flamme. Ceux-ci étant supérieurs à 1, la flamme n'est pas soumise aux instabilités diffusives.

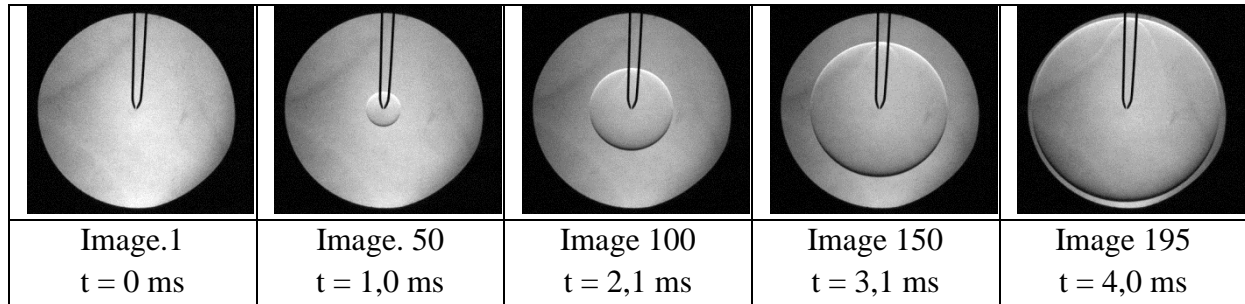


Figure 3-3 : Évolution de la flamme pour un mélange $H_2/O_2/N_2$; $H_2 = 40\% \text{ mol}$, $N_2/O_2 = 3,76$, $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$ et $T_{INI} = 343 \text{ K}$ (Vitesse d'enregistrement = 48000 image/s).

Teneur en H_2	Rapport N_2/O_2	Richesse	P_{ini} (kPa)	$T_{ini} = 303 \text{ K}$		$T_{ini} = 343 \text{ K}$	
				Le (O_2)	Le (H_2)	Le (O_2)	Le (H_2)
0,3	1,5	0,54	50			1,889	0,415
0,3	2,33	0,71	50	1,858	0,419	1,837	0,417
0,4	2,33	1,11	50	2,015	0,435	1,998	0,431
0,5	2,33	1,67	50	2,145	0,434	2,115	0,430
0,6	2,33	2,50	50	2,220	0,417	2,193	0,412
0,4	2,33	1,11	100	2,025	0,435	1,997	0,431
0,5	2,33	1,67	100	2,146	0,434	2,117	0,430
0,6	2,33	2,50	100	2,227	0,416	2,195	0,411
0,3	3,76	1,02	50	1,820	0,421	1,799	0,419
0,4	3,76	1,59	50	1,972	0,437	1,944	0,433
0,5	3,76	2,38	50	2,081	0,436	2,050	0,431
0,6	3,76	3,57	50	2,147	0,418	2,115	0,413
0,3	3,76	1,02	100	1,820	0,421	1,797	0,418
0,4	3,76	1,59	100	1,971	0,437	1,945	0,433
0,5	3,76	2,38	100	2,081	0,435	2,050	0,431
0,6	3,76	3,57	100	2,147	0,418	2,114	0,414
0,2	9	1,25	50	1,588	0,391	1,571	0,389
0,3	9	2,14	50	1,776	0,424	1,752	0,420
0,2	9	1,25	100	1,591	0,392	1,571	0,389
0,3	9	2,14	100	1,777	0,424	1,751	0,420
0,4	9	3,33	100	1,917	0,439	1,887	0,435

Tableau 3-4 : Nombre de Lewis de O_2 et H_2 en fonction des conditions initiales des mélanges où la flamme se propage de manière sphérique et lisse sur toute la durée d'observation

3.2 Vitesses fondamentales de flamme laminaire

La vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul, S_L° , est une caractéristique intrinsèque d'un mélange. Un mélange connu pour des conditions initiales données (température et pression) aura toujours la même vitesse fondamentale de flamme laminaire quelque soit la méthode de mesure et l'enceinte expérimentale utilisées.

3.2.1 Comparaison méthode linéaire - méthode non-linéaire

La comparaison entre les deux méthodes d'extraction de la vitesse de flamme est importante. La méthode d'extraction linéaire de la vitesse de flamme étant une approximation de la méthode non-linéaire, celle-ci peut sous certaines conditions donner des résultats très proches de la méthode non-linéaire. La Figure 3-4 et le Tableau 3-5 montrent les valeurs de vitesses de flamme, V_S° (et de longueurs de Markstein, L_B , obtenues pour les méthodes linéaire et non-linéaire pour un mélange avec une teneur en hydrogène de 40 %mol, un rapport molaire N_2/O_2 de 3,76 initialement à 100 kPa et à 343 K. Les valeurs obtenues de V_S° sont très proches pour les deux méthodes, puisque l'on observe un écart de 2 %. Cependant, un écart plus important (21 %) est observé pour les valeurs de longueurs de Markstein.

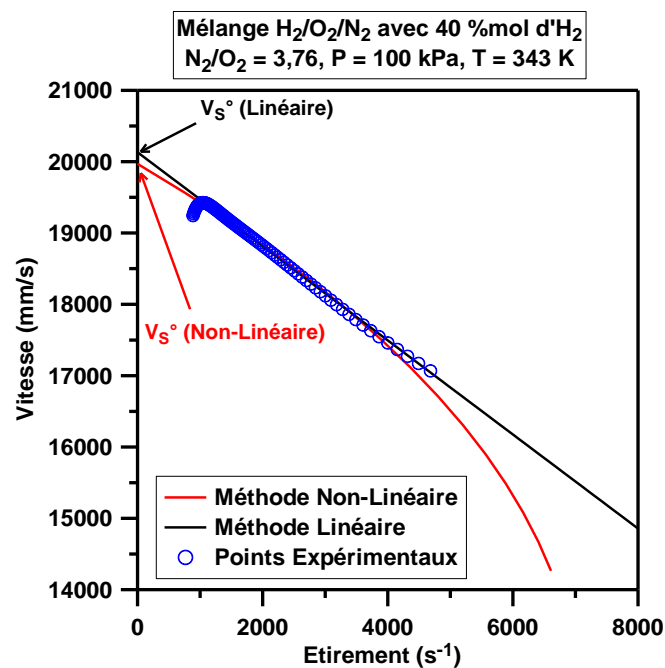


Figure 3-4 : Détermination de la vitesse de flamme à étirement nul pour les méthodes linéaire et non-linéaire dans le cas d'un mélange avec 40% mol H₂, $N_2/O_2 = 3,76$, $P_{INI} = 100$ kPa, $T_{INI} = 343$ K

Cependant, il existe des mélanges pour lesquels l'étirement auquel est soumise la flamme est plus important (K supérieur à 6000 s⁻¹) ce qui conduit au fait que la détermination de la vitesse de flamme et de la longueur de Markstein dépendent de la méthode utilisée. La Figure 3-5 et le Tableau 3-6 montre les valeurs obtenues pour le mélange avec une teneur en hydrogène de 20 %mol, un rapport molaire N_2/O_2 égal à 1 initialement à 100 kPa et à 343 K. Pour ce mélange, l'écart entre les vitesses obtenues est de 10 % et la longueur de Markstein

passé du simple au presque triple quand on utilise la méthode non-linéaire. Dans ce cas de figure, l'approximation réalisée par la méthode linéaire conduit à une surestimation des valeurs de V_S° et de L_B .

Conditions Initiales	Méthode Linéaire		Méthode Non-Linéaire	
	V_S° (cm.s ⁻¹)	L_B (mm)	V_S° (cm.s ⁻¹)	L_B (mm)
XH ₂ = 0,4 ; N ₂ /O ₂ = 3,76 ; P = 100 kPa ; T = 343 K	2013	0,66	1997	0,52

Tableau 3-5 : Valeurs de V_S° et de L_B obtenues par les méthodes linéaire et non-linéaire dans le cas d'un mélange avec 40% mol de H₂, N₂/O₂ = 3,76, P_{INI} = 100 kPa, T_{INI} = 343 K

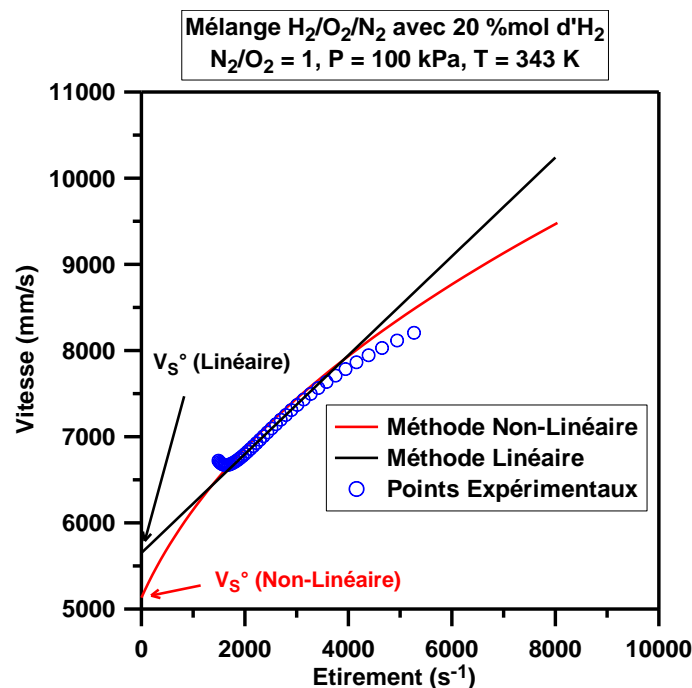


Figure 3-5 : Détermination de la vitesse de flamme à étirement nul pour les méthodes linéaire et non-linéaire dans le cas d'un mélange avec 20% mol H₂, N₂/O₂ = 1, P_{INI} = 100 kPa, T_{INI} = 343 K

Conditions Initiales	Méthode Linéaire		Méthode Non-Linéaire	
	V_S° (cm.s ⁻¹)	L_B (mm)	V_S° (cm.s ⁻¹)	L_B (mm)
XH ₂ = 0,2 ; N ₂ /O ₂ = 1 ; P = 100 kPa ; T = 343 K	565	-0,57	513	-1,34

Tableau 3-6 : Valeurs de V_S° et de L_B obtenues par les méthodes linéaire et non-linéaire dans le cas d'un mélange avec 20% mol de H₂, N₂/O₂ = 1, P_{INI} = 100 kPa, T_{INI} = 343 K

3.2.1.1 Vitesses de flamme

Les comparaisons entre les vitesses fondamentale de flamme expérimentales, S_L° (en cm.s⁻¹), des mélanges H₂/O₂/N₂ selon la méthode d'extraction (linéaire ou non-linéaire) en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents rapports molaires N₂/O₂ et différentes températures initiales sont présentées sur la Figure 3-6 pour les mélanges

initialement à 100 kPa. Les mélanges à une pression initiale de 50 kPa sont présentés en annexe B.

Les vitesses fondamentales de flamme pour les deux différentes méthodes suivent les mêmes tendances. Que ce soit pour la méthode linéaire ou celle non-linéaire, les vitesses obtenues suivent des tendances en forme de cloche avec des maxima différents selon le rapport N_2/O_2 . Les résultats montrent, à de rares exceptions près pour lesquelles l'emploi de la méthode non-linéaire conduit à une baisse de S_L° par rapport à l'emploi de la méthode linéaire, qu'aucune différence notable ne peut être observée sur les vitesses de flamme extraites selon ces deux méthodes d'analyse. La différence entre les vitesses obtenues par les deux méthodes est comprise entre 1 et 10 % avec une majorité de cas possédant un écart de l'ordre de 3 à 4 %.

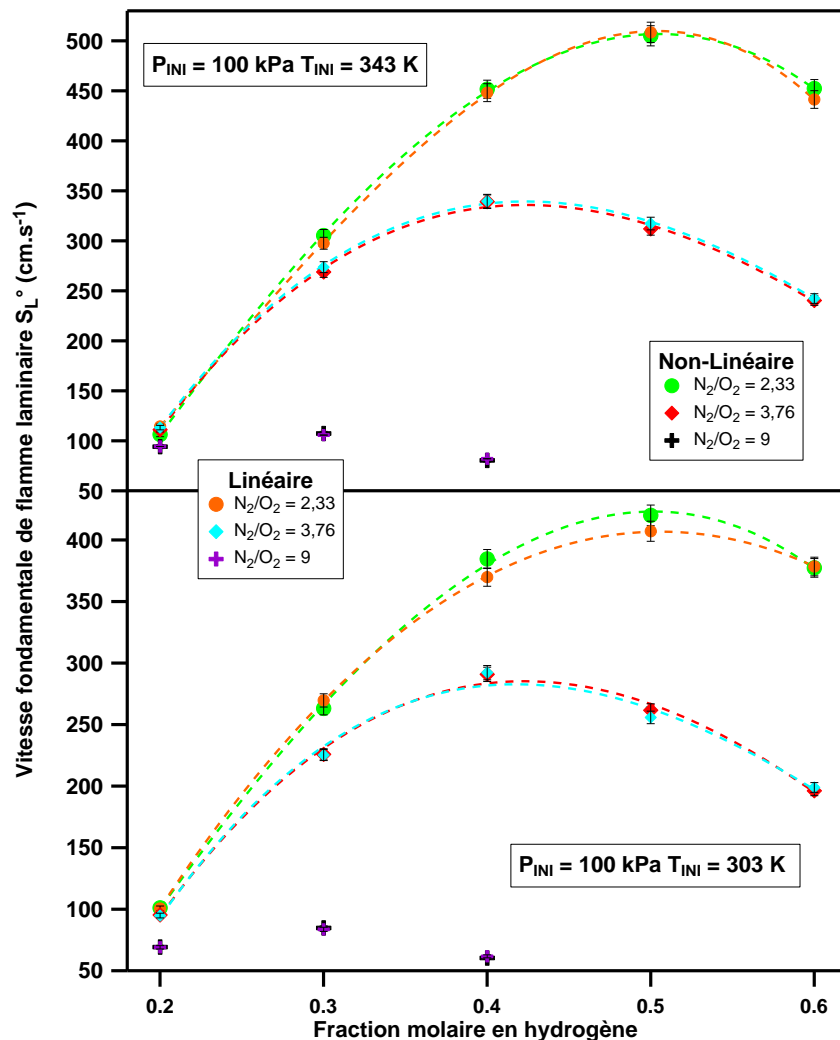


Figure 3-6 : Comparaison entre les vitesses expérimentales fondamentales de flamme laminaire à étirement nul, S_L° , en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures initiales et pour une pression initiale de 100 kPa, pour deux méthodes différentes : linéaire et non-linéaire

3.2.1.2 Longueur de Markstein

La mesure de la longueur de Markstein, comme la mesure de la vitesse fondamentale de flamme laminaire, S_L° , se fait à partir de l'évolution du rayon de la flamme en fonction du temps. La comparaison entre les deux méthodes linéaire et non-linéaire ne peut se faire que si, pour une expérience donnée, la mesure de la longueur de Markstein se fait dans le même intervalle de rayon de flamme et de temps. C'est le cas ici. Cette longueur traduit la susceptibilité d'une flamme à réagir à un étirement par une accélération ou au contraire une décélération.

Les comparaisons entre les longueurs de Markstein, des mélanges $H_2/O_2/N_2$ selon leur méthode choisie (linéaire ou non-linéaire) en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents rapports molaires N_2/O_2 et différentes températures initiales sont présentées sur la Figure 3-7 pour les mélanges initialement à 100 kPa. Les mélanges à une pression initiale de 50 kPa sont présentés en annexe B.

On remarque que sur tout le domaine étudié, les résultats obtenus par les deux méthodes suivent les mêmes tendances. Pour un rapport molaire N_2/O_2 donné, l'augmentation de la fraction molaire d'hydrogène conduit à une augmentation de la longueur de Markstein. Pour une teneur en H_2 donnée, une diminution du rapport N_2/O_2 induit une diminution de la longueur de Markstein.

L'utilisation de la méthode d'extraction non-linéaire conduit de manière générale à une baisse des valeurs de L_B par rapport à l'utilisation de la méthode d'extraction linéaire. Cette baisse peut dans certains cas être très importante. Par exemple, à 50 kPa et 343 K, pour un mélange à une teneur en hydrogène de 50 %mol et un rapport N_2/O_2 égal à 3,76, la longueur de Markstein obtenue par la méthode d'extraction linéaire de la vitesse de flamme est égale à 0,81 mm, celle obtenue à partir de l'évolution non-linéaire de la vitesse de flamme vaut 0,56 mm soit une baisse d'environ 30 % de la valeur.

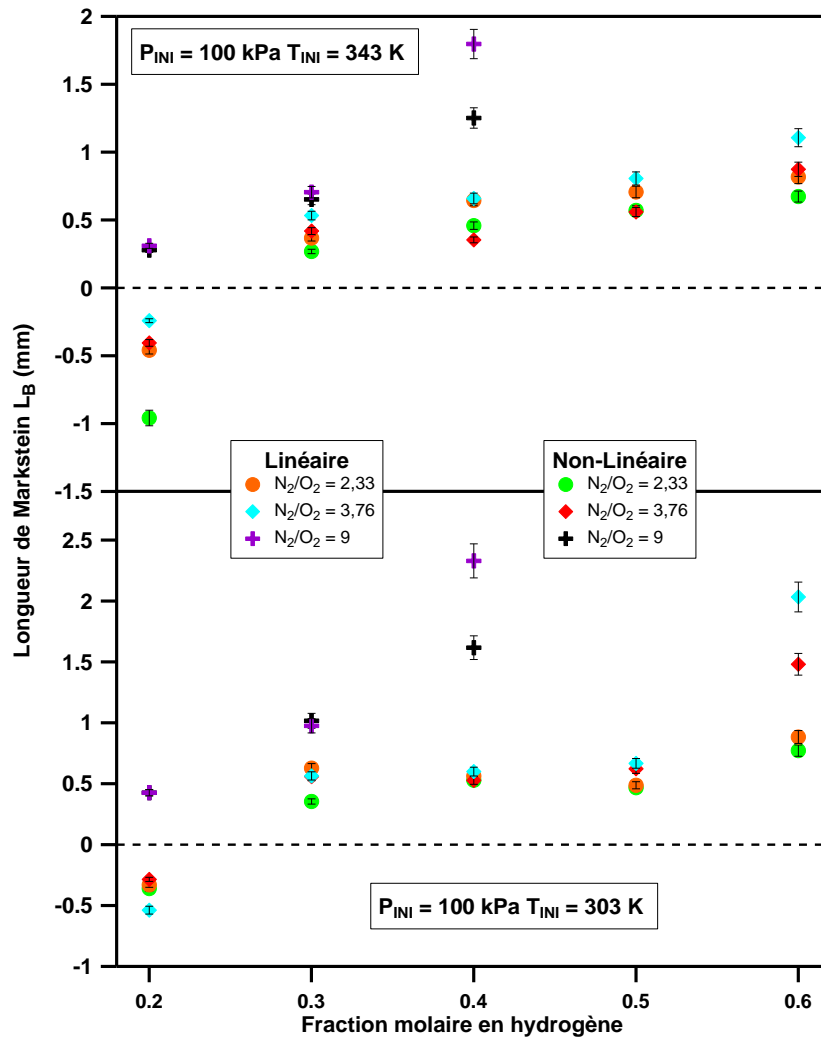


Figure 3-7 : Comparaison entre les longueurs de Markstein, L_B , en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures initiales et pour une pression initiale de 100 kPa, pour deux méthodes différentes : linéaire et non-linéaire

3.2.1.3 Choix de la méthode

À partir des résultats présentés dans les paragraphes précédents, c'est la méthode d'évaluation non-linéaire de la vitesse de flamme qui a été choisie pour le reste de l'étude. Bien que l'impact de la méthode d'extraction sur les vitesses de flamme conduise à de faibles différences sur les valeurs obtenues, les écarts générés par les différentes méthodes d'extraction sur les longueurs de Markstein sont très importants. En effet, la méthode d'extraction linéaire, étant une approximation de la méthode non-linéaire, conduit à des valeurs de longueurs de Markstein, dans certains cas, trop différentes de celles obtenues par la méthode non-approximée.

C'est cette limitation de l'approximation qui nous conduit à choisir les valeurs obtenues pour la méthode d'extraction non-linéaire.

3.2.2 Vitesses de flamme : valeurs expérimentales

3.2.2.1 Pour une teneur en H₂ constante

Les vitesses fondamentales de flamme laminaire S_L° , déterminées par l'extraction non-linéaire des vitesses de flamme, de mélanges H₂/O₂/N₂ en fonction du rapport molaire N₂/O₂ à différentes températures et pressions initiales pour deux fractions molaires en hydrogène dans le milieu (20 et 30 % mol) sont représentées sur la Figure 3-8 et la Figure 3-9.

Sur les domaines expérimentaux considérés dans cette étude, une augmentation du rapport molaire N₂/O₂ induit une diminution de manière exponentielle de la vitesse fondamentale de flamme. En effet, moins l'oxygène est présent dans le milieu, entraînant avec lui une augmentation de la richesse, plus la réactivité du mélange sera faible et plus la vitesse de flamme sera lente. Par exemple, pour le mélange avec une teneur en hydrogène de 30 % mol, initialement à 50 kPa et à 343 K, la vitesse de flamme diminue de 340 à 297 puis à 113 cm.s⁻¹ quand le rapport molaire N₂/O₂ augmente de 1 à 2,33 puis à 9.

Une élévation de la température initiale de 40 K (de 303 à 343 K) induit une augmentation de la vitesse de flamme des mélanges H₂/O₂/N₂. En effet, la température dans le milieu étant plus élevée, la réactivité du mélange va s'accroître. À titre d'exemple, un mélange avec une teneur en hydrogène de 20 % mol, à une pression initiale de 50 kPa et un N₂/O₂ égal à 3,76 voit sa vitesse de flamme augmenter de 96 à 117 cm.s⁻¹ quand la température initiale du milieu augmente de 303 à 343 K.

L'impact de la pression initiale sur les vitesses de flamme des mélanges H₂/O₂/N₂, lui, est plus complexe. En effet, selon la vitesse du mélange considéré, une augmentation de la pression initiale de 50 à 100 kPa peut conduire à une augmentation ou à une diminution de la vitesse de flamme. Avec les données de cette étude, une estimation de la limite de ce changement de comportement avec la pression la situe aux alentours de 140 - 150 cm.s⁻¹. En deçà de cette vitesse, une augmentation de la pression initiale de 50 à 100 kPa conduit à une diminution de la vitesse de flamme. Au-delà de cette limite ($S_L^\circ > 150$ cm.s⁻¹), un accroissement de la pression de 50 à 100 kPa provoque une augmentation de la vitesse de flamme des mélanges H₂/O₂/N₂. Par exemple, pour différents mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 % mol et à 303 K, quand le rapport N₂/O₂ est égal à 9, S_L° à 50 kPa vaut 94 cm.s⁻¹. Celle-ci diminue à 85 cm.s⁻¹ quand la pression initiale s'élève à 100 kPa. À l'inverse, dans les mêmes conditions mais pour un rapport N₂/O₂ de 3,76, S_L° augmente de 204 à 226 cm.s⁻¹ quand la pression initiale augmente de 50 à 100 kPa.

Comme explicité précédemment dans le paragraphe 3.1, les mélanges H₂/O₂/N₂ avec une teneur en hydrogène de 20 % mol et un rapport molaire N₂/O₂ compris entre 0,66 et 3,76 donnent des flammes deviennent cellulaires pendant la durée d'observation. Bien que les vitesses soient calculées avant que la cellularisation n'apparaisse et ne devienne trop importante, les vitesses obtenues peuvent être surestimées à cause de ce phénomène qui conduit à une surestimation de la surface de la flamme et donc de la vitesse. Ce phénomène, bien que moins important, est également valable pour les mélanges avec une teneur en H₂ de 30 % mol concernés. Cette cellularisation est confirmée par les nombres de Lewis de

l'hydrogène de ces mélanges. Pour ces mélanges, l'hydrogène est l'espèce minoritaire dans le milieu, celui-ci possédant un nombre de Lewis inférieur à 1, la cellularisation de la flamme est très rapide.

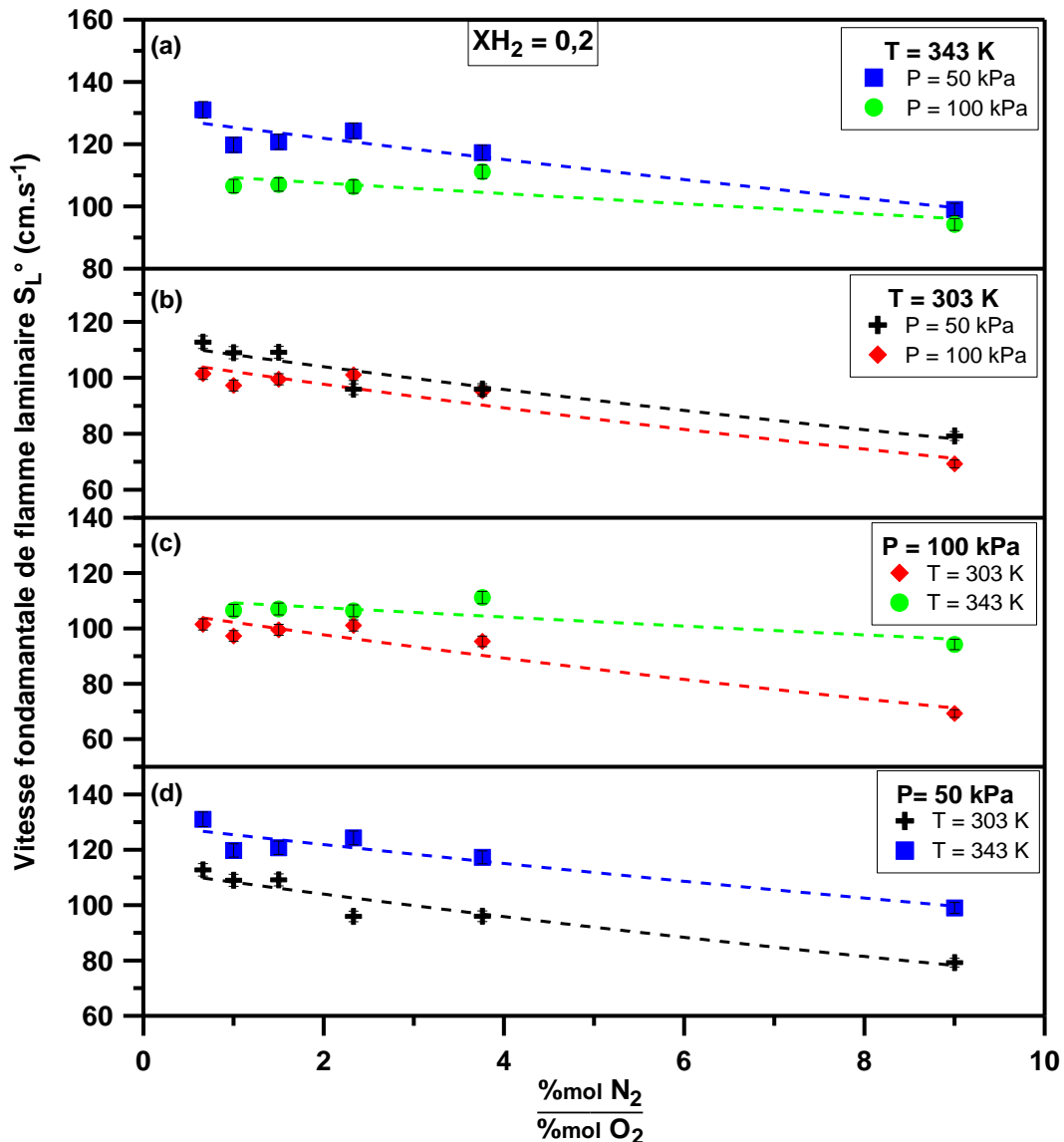


Figure 3-8 : Vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul, S_L° , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales

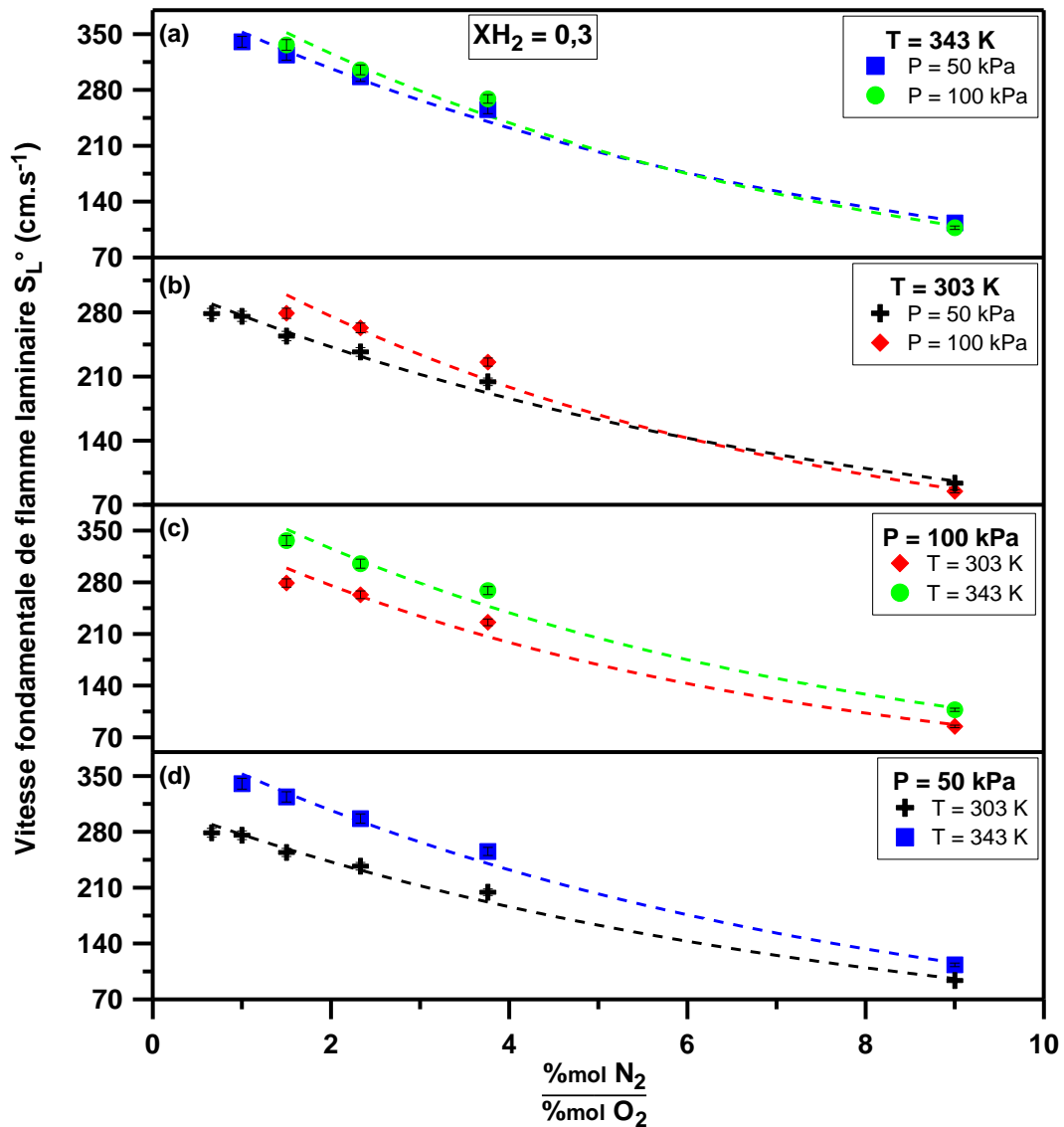


Figure 3-9 : Vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul, S_L° , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales

3.2.2.2 Pour un rapport N_2/O_2 constant

Les vitesses fondamentales de flammes S_L° des mélanges $H_2/O_2/N_2$ sont représentées en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différentes conditions initiales et pour trois différents rapports N_2/O_2 (2,33, 3,76 et 9) sur la Figure 3-10. Les vitesses ont été mesurées pour des teneurs en hydrogène comprises entre 20 et 60 %mol.

Pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 9, les mélanges avec des teneurs en hydrogène de 40 %mol ou plus à une pression initiale de 50 kPa et les mélanges avec des teneurs en hydrogène de 50 et 60 %mol pour une pression initiale de 100 kPa ne se sont pas enflammés au cours de cette étude.

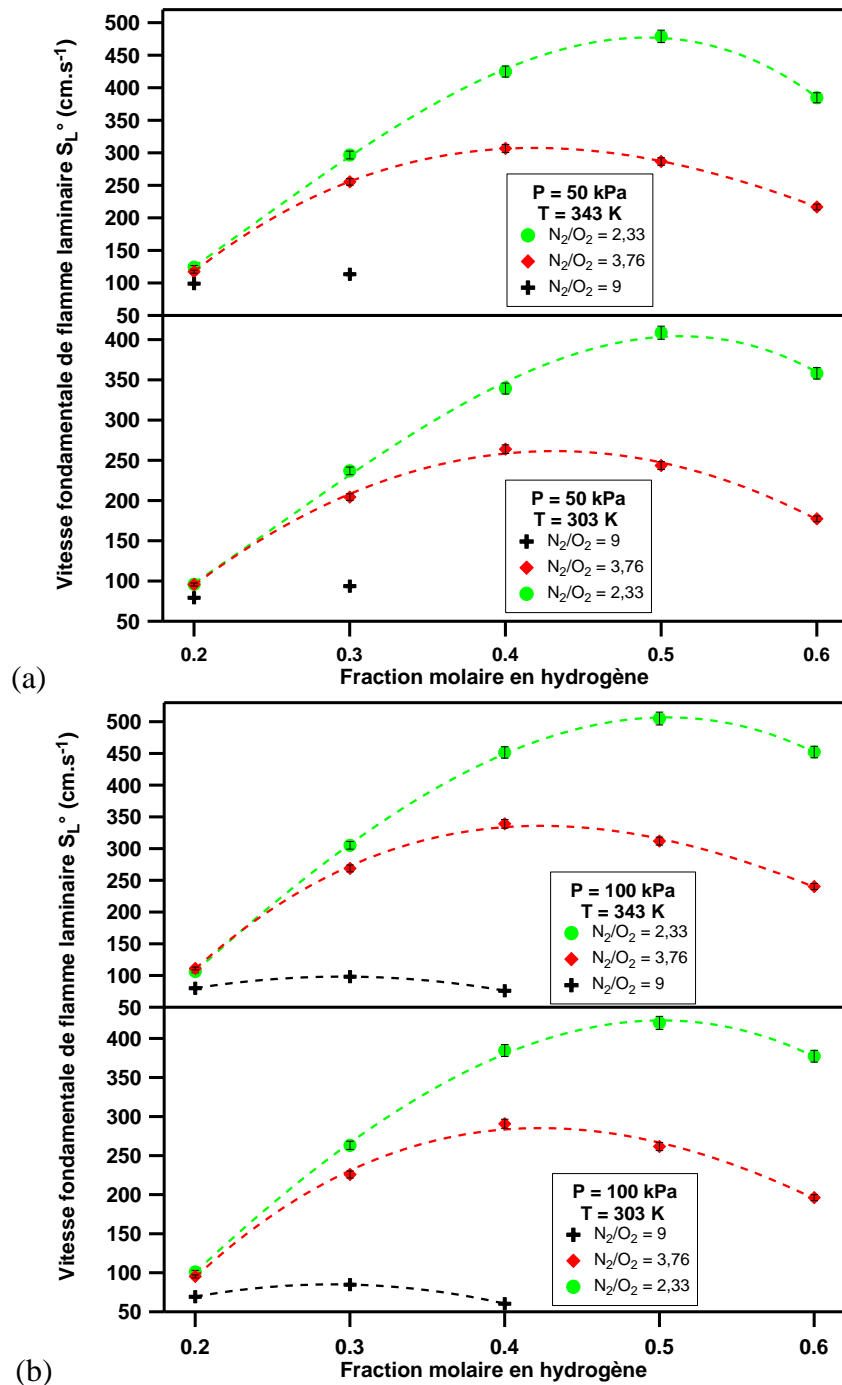


Figure 3-10 : Vitesse fondamentale de flamme laminaire à étirement nul, S_L^0 , en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures initiales : (a) pour une pression initiale de 50 kPa ; (b) pour une pression initiale de 100 kPa

La vitesse fondamentale de flamme suit, avec la fraction molaire en hydrogène dans le milieu, une évolution en forme de cloche avec des maxima de vitesses de flamme pour des teneurs en H_2 différentes pour chaque rapport. Pour un rapport N_2/O_2 égal à 9, S_L^0 est maximal pour des mélanges avec des teneurs en H_2 de 30 %mol, pour un rapport N_2/O_2 de 3,76, ce maximum passe pour des mélanges avec des teneurs en H_2 de 40 puis à 50 %mol pour un rapport N_2/O_2 égal à 2,33. Par exemple, à 100 kPa et 303 K et pour un rapport N_2/O_2

égal à 3,76, la vitesse de flamme S_L° augmente de 95 à 291 cm.s^{-1} quand la fraction molaire en hydrogène augmente de 20 à 40 %mol. Au-delà de ce maximum, S_L° diminue à 262 et à 196 cm.s^{-1} quand la fraction molaire en hydrogène dans le milieu augmente à 50 puis à 60 %mol.

Prenons un mélange avec une teneur en hydrogène de 40 %mol, à une température et une pression respectivement de 343 K et 100 kPa, une diminution du rapport N_2/O_2 (correspondant à une augmentation de la quantité d'oxygène dans le milieu) de 9 à 3,76 puis à 2,33 induit une augmentation de la vitesse fondamentale de flamme de 81 à 339 puis à 452 cm.s^{-1} . Sur tout le domaine expérimental de cette étude, pour un mélange donné, une diminution du rapport N_2/O_2 a pour conséquence une augmentation de S_L° .

3.2.3 Longueur de Markstein

3.2.3.1 Pour une teneur en H_2 constante

Les longueurs de Markstein, L_B , extraites par la méthode non-linéaire, des mélanges $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2$ en fonction du rapport molaire N_2/O_2 à différentes températures et pressions initiales pour deux fractions molaires en hydrogène dans le milieu sont représentées sur la Figure 3-11 pour les mélanges avec des teneurs en hydrogène de 20 %mol et la Figure 3-12 pour les mélanges avec des teneurs en hydrogène de 30 %mol.

Pour les mélanges étudiés, une augmentation du rapport molaire N_2/O_2 , correspondant à une diminution de la quantité d'oxygène dans le milieu et par la même à une augmentation de la richesse, conduit de manière générale à une augmentation de la longueur de Markstein sur tout le domaine étudié. Par exemple, pour un mélange avec une teneur en H_2 de 20 %mol, initialement à 303 K et 100 kPa, L_B augmente de -1,03 à -0,36 puis à 0,43 mm quand le rapport N_2/O_2 augmente de 1 à 2,33 puis à 9.

Les longueurs de Markstein pour les mélanges avec une fraction molaire en hydrogène de 0,2 sont, à l'exception des mélanges avec des rapports N_2/O_2 de 9, négatives. Ces valeurs négatives traduisent que la flamme est instable vis-à-vis des instabilités thermo-diffusives confirmées par la présence de cellules lors des essais expérimentaux (cf. 3.1).

Concernant la pression initiale, son augmentation de 50 à 100 kPa conduit à une diminution de la longueur de Markstein pour une grande partie des mélanges, celle-ci devenant de plus en plus importante au fur et à mesure que le rapport molaire N_2/O_2 augmente. Par exemple, pour un mélange avec une teneur en H_2 de 30 %mol à 303 K et pour un rapport N_2/O_2 de 2,33, quand la pression initiale augmente de 50 à 100 kPa, la longueur de Markstein décroît de 0,62 à 0,35 mm. Pour ces mêmes mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 9, quand la pression initiale augmente de 50 à 100 kPa, L_B diminue de 1,97 à 1,02 mm. Cette diminution de la valeur de L_B conduit à une diminution de la stabilité du mélange vis-à-vis des instabilités thermo-diffusives avec l'augmentation de la pression, ce qui est confirmée par l'arrivée plus précoce des cellules lors de la propagation de la flamme (Tableau 3-2).

Aucune influence globale ne se dégage concernant l'impact de la température initiale sur les longueurs de Markstein.

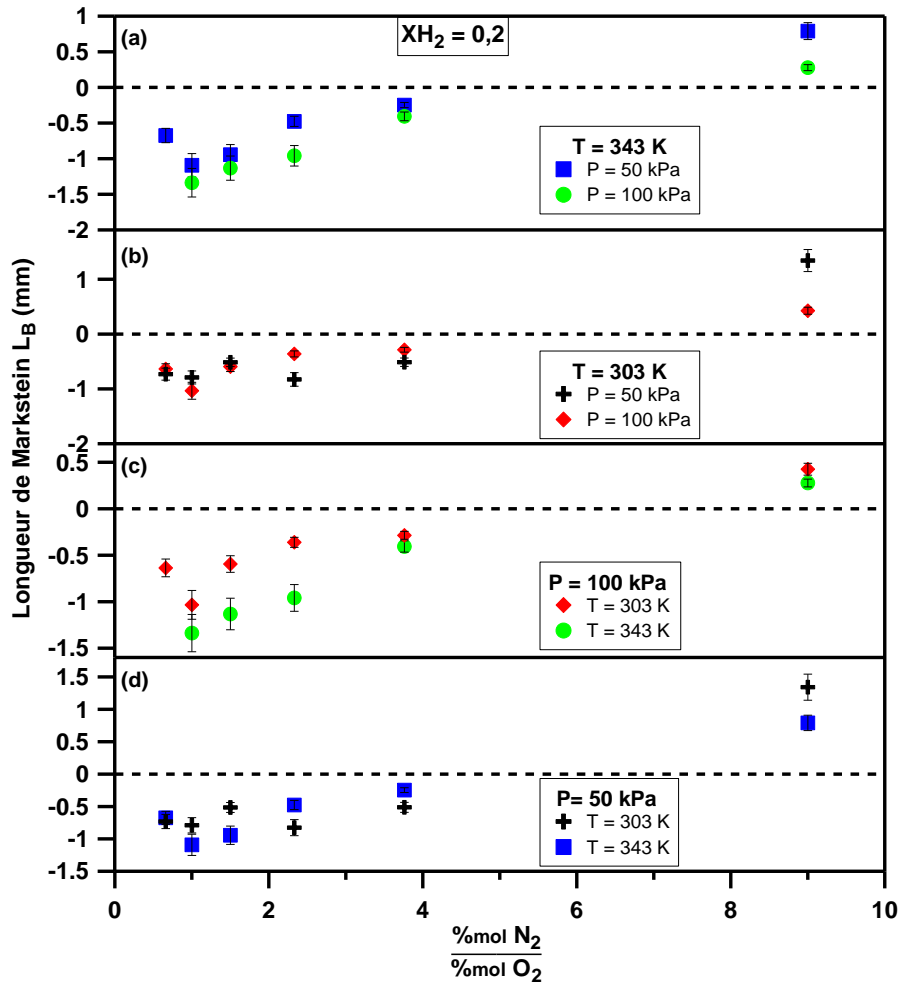


Figure 3-11 : Longueur de Markstein, L_B , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à différentes températures et pressions initiales

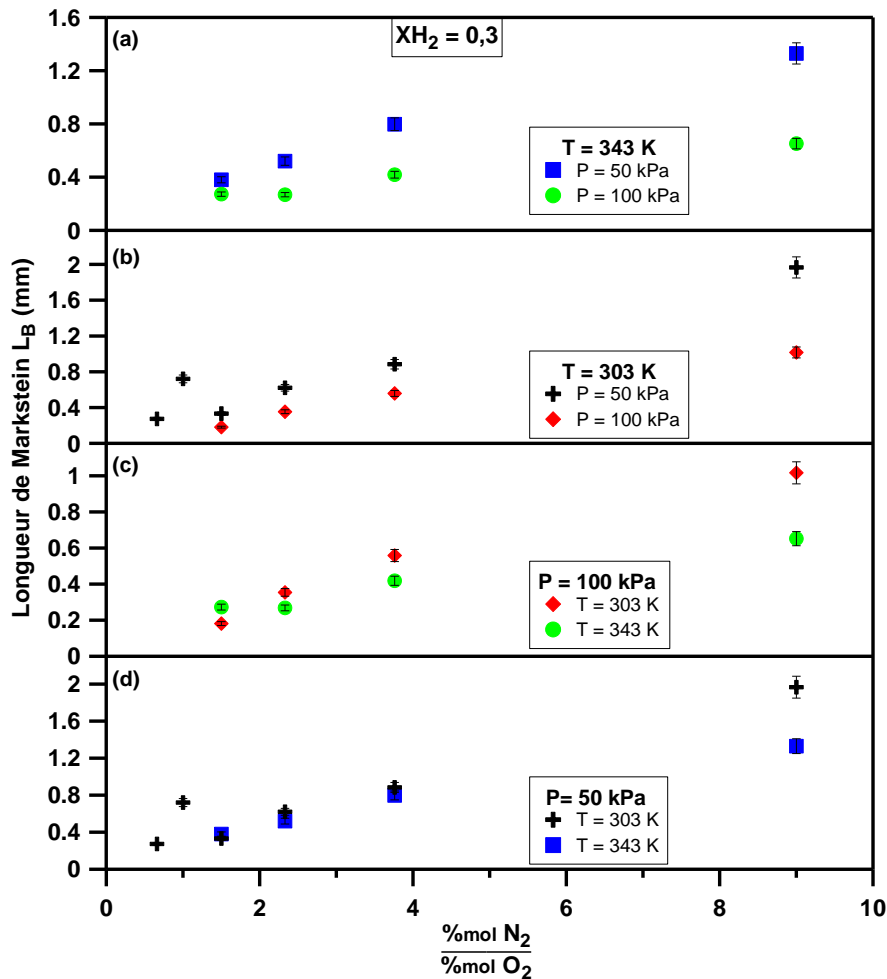


Figure 3-12 : Longueur de Markstein, L_B , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à différentes températures et pressions initiales

3.2.3.2 Pour un rapport N_2/O_2 constant

Les longueurs de Markstein, L_B , des mélanges $H_2/O_2/N_2$, extraites par la méthode non-linéaire, sont représentées en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différentes conditions initiales et pour trois différents rapports N_2/O_2 (2,33, 3,76 et 9) sur la Figure 3-13. Les longueurs ont été mesurées pour des teneurs en hydrogène comprises entre 20 et 60 %mol.

Pour un rapport molaire N_2/O_2 donné, un accroissement de la fraction molaire en hydrogène dans le milieu, correspondant à une augmentation de la richesse, conduit à une augmentation de la longueur de Markstein traduisant une diminution de l'importance des instabilités thermo-diffusives. Par exemple, à 50 kPa et à 303 K, pour un rapport molaire N_2/O_2 de 3,76, L_B est de -0,51, 0,88 puis de 1,34 mm quand la fraction molaire en hydrogène dans le milieu augmente de 0,2 à 0,4 puis à 0,6 respectivement.

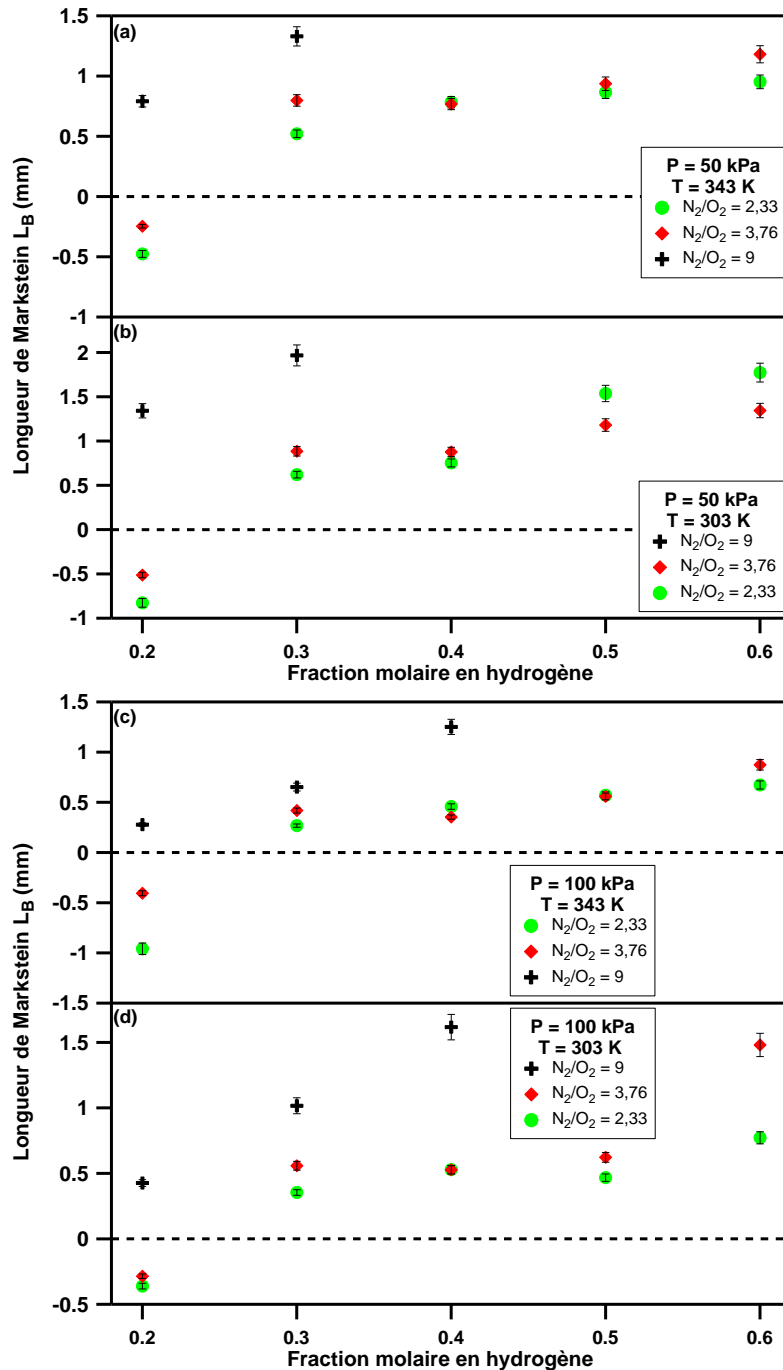


Figure 3-13 : Longueur de Markstein, L_B , en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures et pressions initiales

3.2.4 Comparaison expériences-simulations

Cette partie présente la comparaison entre les valeurs de vitesse de flamme obtenues expérimentalement et celles calculées à partir des modèles cinétiques détaillés présentés dans le chapitre précédent. La comparaison entre les valeurs obtenues expérimentalement et celles calculées par la modélisation est importante car elle permet de déterminer le mécanisme qui présente le meilleur accord avec les données expérimentales. Ce mécanisme sera celui à partir

duquel seront calculées les énergies d'activation et les nombres de Zel'dovich. Dans le manuscrit, seules les comparaisons pour les mélanges à une pression initiale de 100 kPa seront présentées. La comparaison des valeurs de vitesses de flammes obtenues expérimentalement et par la simulation pour les mélanges à une pression initiale de 50 kPa sont présentées avec le même cheminement dans l'annexe C.

3.2.4.1 Pour une teneur en H_2 constante

La Figure 3-14 représente les vitesses fondamentales de flammes laminares obtenues expérimentalement et comparées avec celles obtenues lors de la simulation avec les trois modèles cinétiques détaillés pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol.

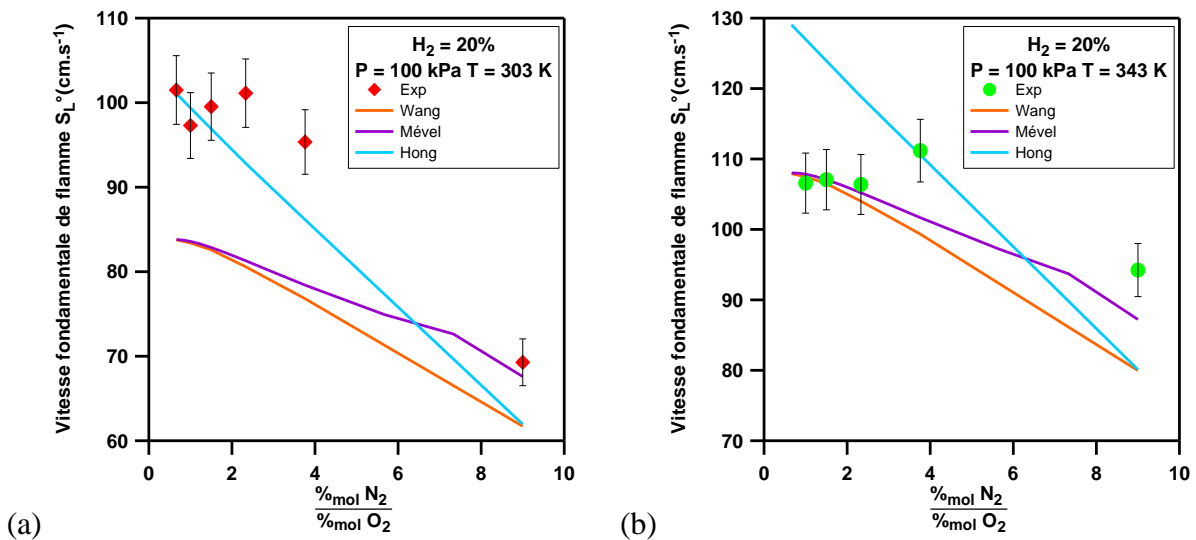


Figure 3-14 : Vitesses fondamentales de flammes laminares expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 303 \text{ K}$ (b) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 343 \text{ K}$

Les erreurs entre les valeurs des simulations et celle expérimentales sont déterminées par l'équation suivante (Eq 3.1) et sont représentées sur la Figure 3-15.

$$Erreur = \frac{(S_{Lmec}^0 - S_{Lexp}^0)}{S_{Lexp}^0} \quad Eq 3.1$$

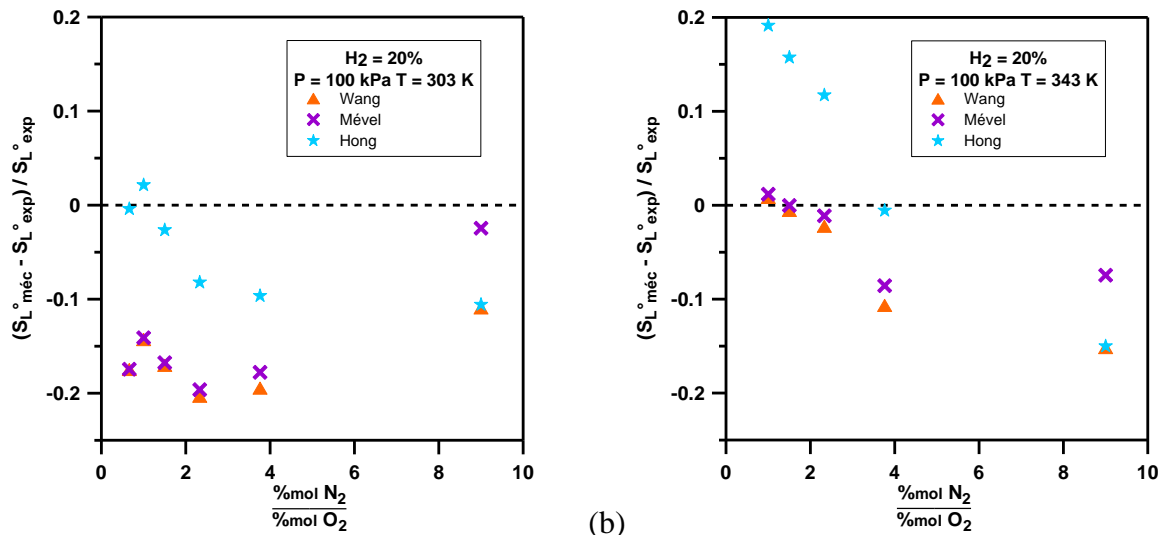
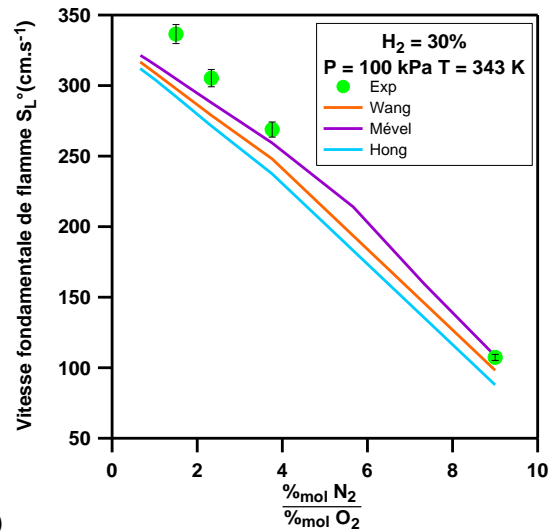
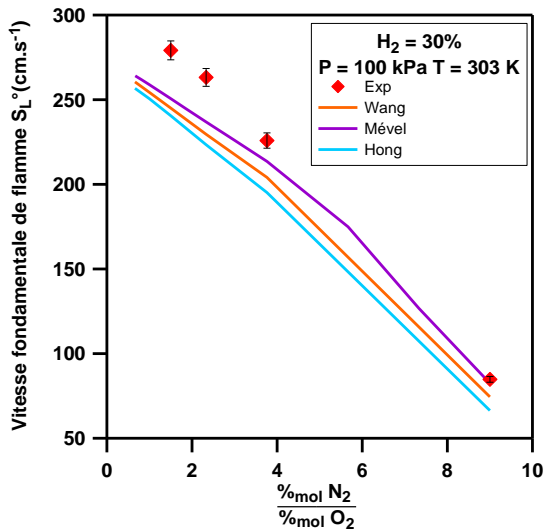


Figure 3-15 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 303 \text{ K}$ (b) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 343 \text{ K}$

Comme décrit précédemment, les flammes obtenues au cours des expériences avec une teneur en hydrogène de 20 %mol sont devenues cellulaires dans la fenêtre d'observation (à l'exception de celle avec un rapport N_2/O_2 égal à 9). Cette cellularisation, peut conduire à une sous-estimation de la surface de la flamme et donc par la même à une surestimation de la vitesse de flamme expérimentale. Les mécanismes cinétiques suivent la même tendance que les résultats expérimentaux avec une diminution de la vitesse avec l'augmentation du rapport molaire N_2/O_2 . On observe que les modèles de Wang et de Mével sous-estiment de manière assez importante les vitesses de flamme à 303 K, à l'exception des mélanges avec un N_2/O_2 égal à 9, mais sont beaucoup plus proches de la réalité quand la température initiale du milieu est de 343 K. Le mécanisme de Hong, lui, suit le cheminement inverse, les vitesses dans ce cas sont très proches de celles mesurées à une température de 303 K mais il surestime de manière importante les vitesses de flamme à 343 K. Pour ces mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 %mol, c'est le modèle de Hong qui s'approche le plus des valeurs expérimentales avec une erreur moyenne de 7,6 % (les erreurs sont comprises entre -15,0 et +12 %). Dans le cas du modèle de Mével, l'erreur moyenne est de 8,4 % (erreurs comprises entre -19,7 et 1,5 %) et avec celui de Wang, elle est de 9,6 %.

La Figure 3-16 présente les vitesses fondamentales de flammes laminaires obtenues expérimentalement et comparées avec celles obtenues lors de la simulation des trois modèles cinétiques détaillées en fonction du rapport molaire N_2/O_2 pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol. Les erreurs entre les modèles et l'expérience sont représentées sur la Figure 3-17.



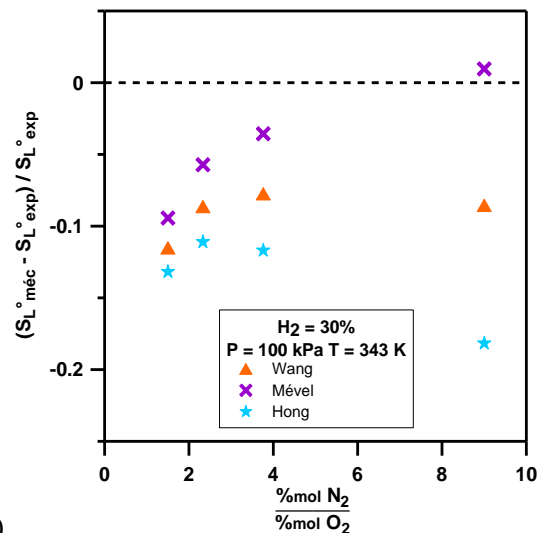
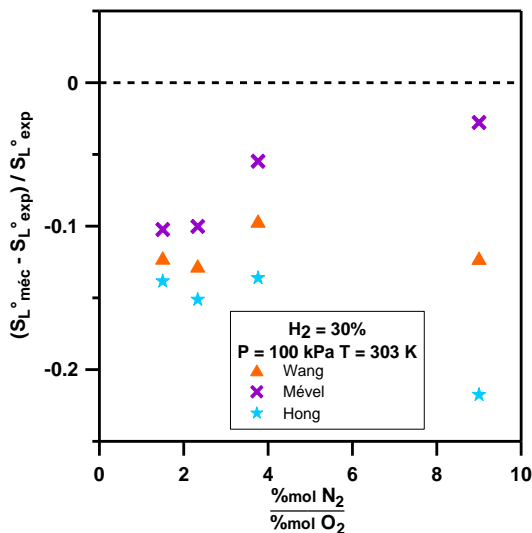
(a)

(b)

Figure 3-16 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 303 \text{ K}$ (b) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 343 \text{ K}$

Les résultats obtenus de la modélisation suivant la même tendance que les résultats expérimentaux avec une diminution de la vitesse avec l'augmentation du rapport molaire N_2/O_2 . Pour toutes les expériences, les trois mécanismes sous-estiment de manière générale les vitesses expérimentales. Le mécanisme de Mével est celui qui estime le mieux les vitesses expérimentales et pour lequel les erreurs obtenues sont les plus faibles. Elles sont comprises entre -10,2 et +1,8% avec une moyenne de 4,9%.

Avec le mécanisme de Wang, l'erreur moyenne est de 7,5 % (les valeurs d'erreurs sont comprises entre -12,7 et -0,3 %). Le mécanisme de Hong-Hanson est celui qui est le plus éloigné avec une erreur moyenne de 13,7% (entre -23,7 et -9,0 %).



(a)

(b)

Figure 3-17 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 303 \text{ K}$ (b) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 343 \text{ K}$

3.2.4.2 Pour un rapport N_2/O_2 constant

La Figure 3-18 représente les vitesses de flammes expérimentales et celles obtenues par la simulation en fonction de la fraction molaire en hydrogène dans le milieu pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour lesquels le rapport N_2/O_2 est égal à 9 pour différentes conditions initiales de température et de pression. Les écarts entre les valeurs expérimentales et la modélisation sont donnés sur la Figure 3-19.

Les valeurs simulées, pour les modèles de Wang et Hong, suivent le même comportement que les valeurs expérimentales avec des maxima de vitesses de flamme pour des mélanges avec une fraction molaire en hydrogène de 30%. Pour le modèle de Mével, étant défini sur plus de conditions, le maximum de vitesse de flamme est obtenu pour une fraction molaire en hydrogène de 0,28. Sur cette série d'expériences, le modèle de Mével donne les valeurs de vitesse de flamme les plus proches de celles expérimentales avec une erreur moyenne de 3,7 % (les erreurs sont comprises entre -7,6 et +2 %). Le modèle de Wang lui réalise une erreur moyenne de 9,8 % (les erreurs sont comprises entre - 15,2 et -5,6 %). Le modèle de Hong est le plus éloigné des valeurs expérimentales avec une erreur moyenne de 19,4 %.

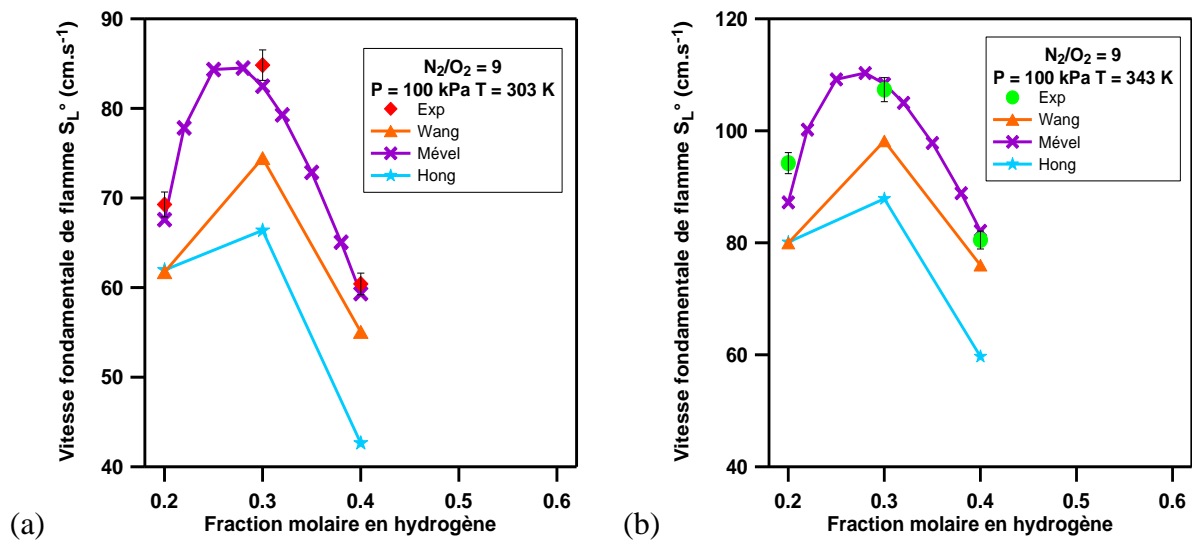


Figure 3-18 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=9$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 303 \text{ K}$ (b) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 343 \text{ K}$

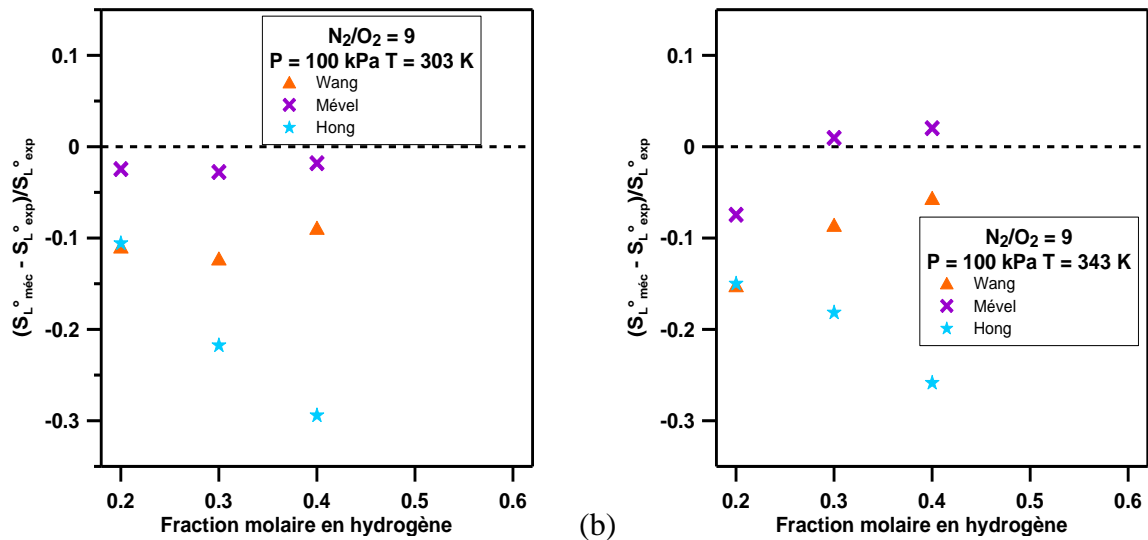


Figure 3-19 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=9$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 303 \text{ K}$ (b) $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 343 \text{ K}$

La Figure 3-20 montre les vitesses obtenues lors de la simulation cinétique et les vitesses expérimentales en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ ayant un rapport N_2/O_2 de 3,76. Les écarts entre les trois modèles et les expériences sont représentés sur la Figure 3-21.

Comme pour les résultats expérimentaux, les vitesses obtenues par la modélisation cinétique des trois mécanismes suivent un comportement en forme de cloche avec des vitesses maximales pour des fractions molaires en hydrogène de 0,4 (0,42 pour le modèle de Mével). Par exemple, pour le mélange avec une teneur en H_2 de 40 %mol initialement à 100 kPa et 343 K, la vitesse fondamentale de flamme expérimentale vaut 339 cm.s^{-1} . Le modèle de Wang est le plus proche avec une vitesse 332 cm.s^{-1} soit une erreur de -2,1 %. Le modèle de Mével, lui, surestime la valeur expérimentale de 3,9 % ($S_L^o \text{ Mével} = 353 \text{ cm.s}^{-1}$).

Sur cette série d'expérience, le modèle de Wang est le modèle le plus proche des expériences avec une erreur moyenne de 5,3 %. Le modèle de Mével lui estime les vitesses expérimentales avec une erreur moyenne de 6,5 %. Le modèle lui sous-estime largement les valeurs de vitesses de flamme avec une erreur moyenne de 10,0 %.

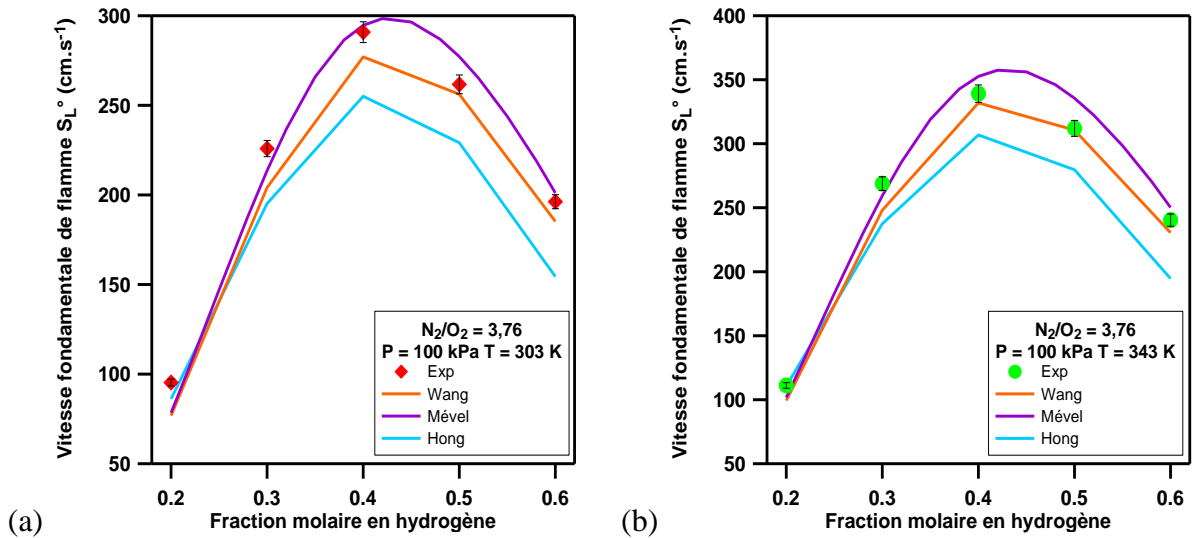


Figure 3-20 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=3,76$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K

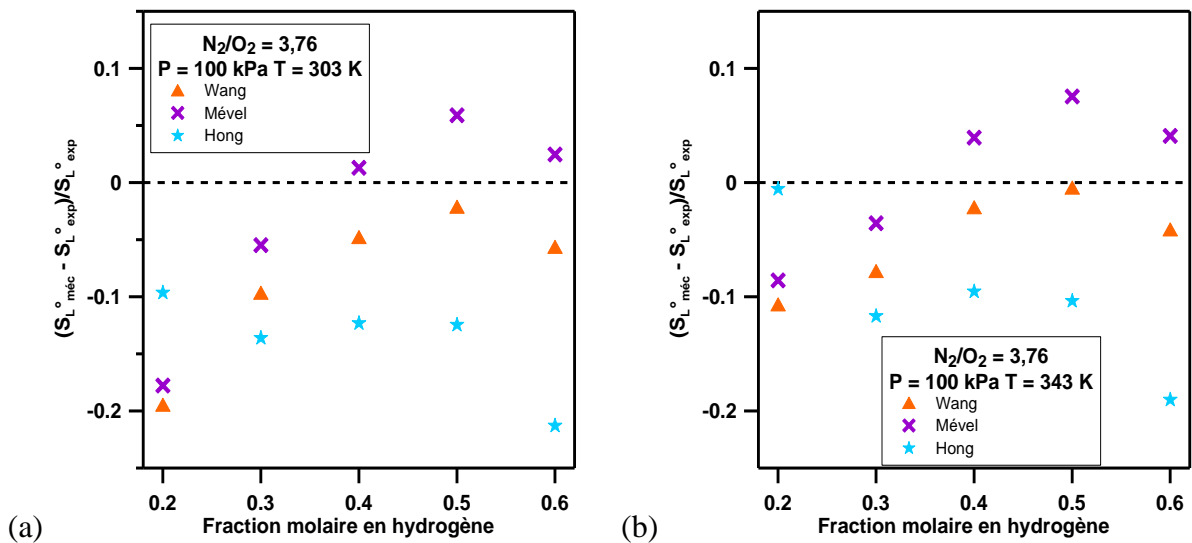


Figure 3-21 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=3,76$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (bd) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K

La Figure 3-22 montre les vitesses obtenues lors de la simulation cinétique et les vitesses expérimentales en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ ayant un rapport N_2/O_2 de 2,33. Les écarts entre les trois modèles et les expériences sont représentés, toujours en fonction de la fraction molaire en hydrogène, sur la Figure 3-23.

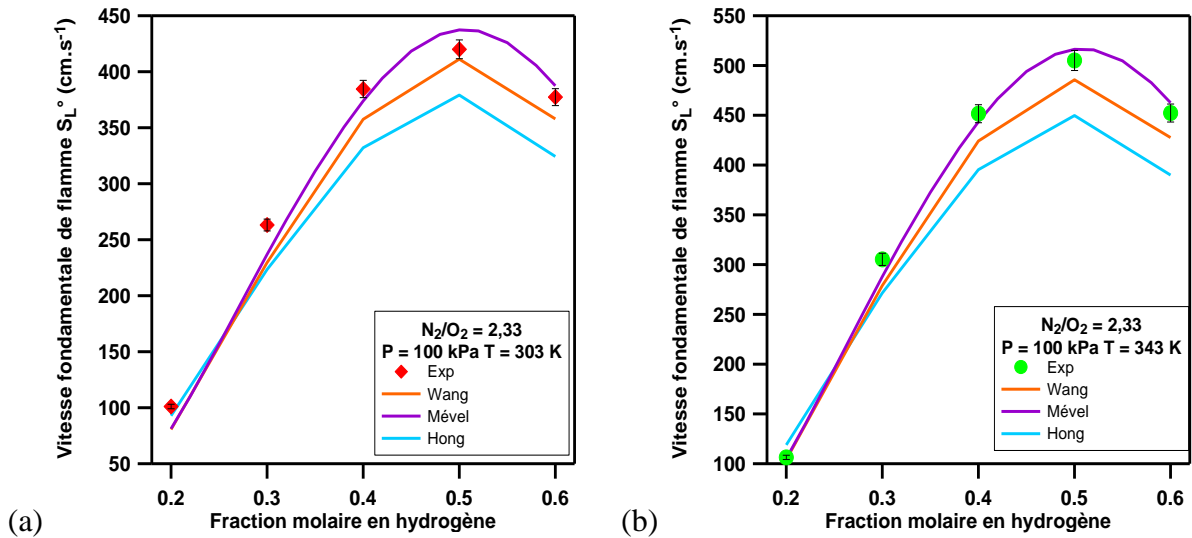


Figure 3-22 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=2,33$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K

Comme pour les résultats des séries d'expériences précédentes (avec des rapports N_2/O_2 de 3,76 et 9), les vitesses de flamme simulées des trois mécanismes suivent le même comportement que les vitesses expérimentales avec une forme de cloche et des vitesses maximales pour des fractions molaires en hydrogène de 0,5. Pour cette série d'expérience, c'est le modèle de Mével qui estime le mieux les vitesses expérimentales avec une erreur moyenne de 4,4 %. Les erreurs associées aux modèles de Wang et de Hong, sont égales respectivement à 5,9 et 10,9 %.

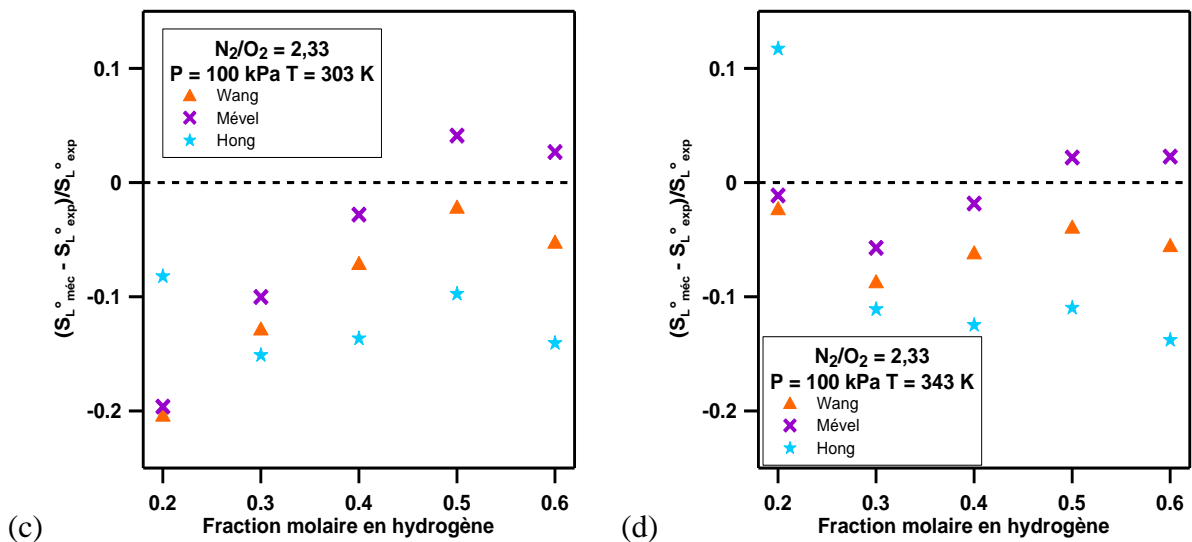


Figure 3-23 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=2,33$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 100$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K

3.2.4.3 Choix du mécanisme cinétique et corrélation des vitesses de flamme

Le choix définitif du mécanisme cinétique le plus proche des vitesses expérimentales est décidé à partir de la moyenne des valeurs absolues des erreurs par rapport à chaque expérience. À ce petit jeu de calcul, c'est le modèle de Mével qui estime le mieux les résultats expérimentaux avec une erreur moyenne de 5,78 % (pour 72 conditions expérimentales différentes). Le modèle de Wang, lui, reproduit les résultats expérimentaux avec une erreur moyenne de 6,88 %. Avec une erreur moyenne de 11,54 %, le modèle de Hong-Hanson est celui qui reproduit le moins bien les résultats expérimentaux. On peut noter que les erreurs les plus importantes, pour les modèles de Mével et de Wang, ont été réalisées sur les mélanges H₂/O₂/N₂ avec une fraction molaire en hydrogène de 20 % mol, mélanges pour lesquels les flammes observées sont cellulaires et peuvent conduire à une surestimation de la vitesse fondamentale de flamme laminaire. Cette étude a permis de proposer une expression de la vitesse de flamme des mélanges H₂/O₂/N₂ en fonction de la composition initiale, de la température et de la pression initiale pour des mélanges avec un rapport molaire N₂/O₂ constant. Ces expressions ont été déterminées pour les vitesses de flamme expérimentales et celles simulées pour les trois modèles. Ces expressions suivent l'équation suivante :

$$S_L^0 = (a_1 \cdot XH_2^3 + a_2 \cdot XH_2^2 + a_3 \cdot XH_2 + a_4) \cdot \left(\frac{P_{ini}}{P_{ref}}\right)^{a_5} \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}}\right)^{a_6} \quad Eq\ 3.2$$

avec : P_{ref} = 100 kPa et T_{ref} = 303 K.

Ces expressions sont valables sur un domaine de température allant de 303 à 343 K et pour une pression initiale allant de 50 à 100 kPa. Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau 3-7.

Vitesses Expérimentales							
Rapport N ₂ /O ₂	Domaine de validation XH ₂	a ₁	a ₂	a ₃	a ₄	a ₅	a ₆
2,33	[0,2 - 0,6]	-5420,7	2902,3	1176,4	-206,6	0,1	1,4
3,76	[0,2 - 0,6]	2310,4	-6094,8	3920,1	-460,0	0,1	1,4
Modèle Mével							
Rapport N ₂ /O ₂	Domaine de validation XH ₂	a ₁	a ₂	a ₃	a ₄	a ₅	a ₆
0,66	[0,2 - 0,6]	-5138,8	4809,1	410,2	-136,9	0,1	1,3
1	[0,2 - 0,6]	-5619,8	4961	356,1	-128,2	0,1	1,3
1,5	[0,2 - 0,6]	-6612,8	5503	169,5	-105,0	0,1	1,3
2,33	[0,2 - 0,6]	-6647,2	4636,4	479	-135,5	0,1	1,4
3,76	[0,2 - 0,6]	-155,2	-3395,8	3095,4	-399,6	0,1	1,5
9	[0,2 - 0,6]	2965,7	-4152,9	1634,8	-116,6	-0,1	2,3

Modèle Wang							
Rapport N ₂ /O ₂	Domaine de validation XH ₂	a ₁	a ₂	a ₃	a ₄	a ₅	a ₆
2,33	[0,2 - 0,6]	-5972,3	3912,8	638,2	-144,0	0,1	1,4
3,76	[0,2 - 0,6]	449,3	-3782,4	3051,3	-377,6	0,1	1,6
Modèle Hong							
Rapport N ₂ /O ₂	Domaine de validation XH ₂	a ₁	a ₂	a ₃	a ₄	a ₅	a ₆
2,33	[0,2 - 0,6]	-5887,3	4182,1	274,0	-72,1	0,1	1,4
3,76	[0,2 - 0,6]	-152,8	-2796,5	2484,2	-291,5	0,1	1,6

Tableau 3-7 : Coefficients obtenus lors de la corrélation pour les vitesses de flamme expérimentales et tirées de la modélisation.

En comparant les expressions obtenues pour les vitesses expérimentales et celles tirées de la modélisation, il est possible d'évaluer si l'impact de la température et de la pression est bien reproduite par les modèles cinétiques. Pour l'influence de la pression initiale, les modèles suivent bien l'évolution observée expérimentalement avec un coefficient a₅ égal à 0,1. L'influence de la température initiale est beaucoup plus importante (coefficient a₆ de l'ordre de 1,4 - 1,6). Pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ de 2,33, les modèles estiment correctement l'influence de la température initiale. Pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ égal à 3,76, les modèles cinétiques surestiment légèrement l'influence de la température initiale avec une valeur a₆ égale à 1,5 pour le modèle de Mével et des valeurs a₆ de 1,6 pour les modèles de Wang et de Hong.

Une autre expression des vitesses de flamme expérimentales et simulées a été déterminée, cette fois-ci pour des mélanges avec des fractions molaires en hydrogène constante. Cette expression suit l'équation suivante et sont valables sur un domaine de température allant de 303 à 343 K et pour une pression initiale allant de 50 à 100 kPa. Les résultats sont présentés dans le Tableau 3-8.

$$S_L^0 = \left(a_1 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right)^3 + a_2 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right)^2 + a_3 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right) + a_4 \right) \cdot \left(\frac{P_{ini}}{P_{ref}} \right)^{a_5} \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}} \right)^{a_6} \quad Eq 3.3$$

avec : P_{ref} = 100 kPa et T_{ref} = 303 K.

Pour l'influence de la pression initiale, pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 % mol, les modèles cinétiques prédisent assez bien l'effet de la pression initiale. En effet, le coefficient a₅ pour les différents modèles cinétiques vaut entre -0,087 (modèle de Hong) et -0,191 (modèle de Wang) ce qui est très proche du coefficient obtenue pour les valeurs expérimentales a_{5,expérimental} = -0,127. Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 % mol, les modèles sous-estiment l'impact de la pression initiale. Pour les valeurs expérimentales, le coefficient a₅ vaut 0,080 alors que pour le modèle de Mével, ce coefficient vaut 0,012, le modèle de Wang donnant un coefficient a₅ négatif (-0,012). Dans

cette série, c'est le modèle de Hong qui suit le mieux les résultats expérimentaux avec un a_5 égal à 0,053.

Pour l'impact de la température initiale, les modèles la prédisent extrêmement bien pour les mélanges avec une fraction molaire en hydrogène de 0,3. Les valeurs expérimentales nous donnant un coefficient a_6 égal à 1,646 alors que les modèles prédisent un impact de la température initiale d'environ 1,57 - 1,58. Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 %mol, les modèles surestiment d'un facteur deux l'impact de la température initiale. Pour les valeurs expérimentales, on trouve un coefficient a_6 égal à 1,185 alors que les modèles prédisent un coefficient a_6 autour de 2.

Ainsi, les trois modèles sont en mesure de prédire correctement les vitesses de flamme sur l'ensemble du domaine avec de meilleures performances pour celui de Mével. Il sera donc retenu pour le calcul des énergies d'activation

Vitesses Expérimentales							
XH ₂	Rapport N ₂ /O ₂	a ₁	a ₂	a ₃	a ₄	a ₅	a ₆
0,2	[0,66-9]	-0,193	2,477	-10,034	106,211	-0,127	1,185
0,3	[0,66-9]	-0,118	1,711	-31,128	319,229	0,080	1,646
Modèle Mével							
XH ₂	Rapport N ₂ /O ₂	a ₁	a ₂	a ₃	a ₄	a ₅	a ₆
0,2	[0,66-9]	-0,008	0,046	-1,960	86,007	-0,161	2,042
0,3	[0,66-9]	-0,050	0,007	-16,882	279,397	0,012	1,580
0,4	[0,66-9]	0,376	-3,697	-43,737	489,668	0,090	1,389
0,5	[0,66-9]	0,082	6,282	-138,819	723,107	0,126	1,304
0,6	[0,66-9]	-1,428	34,868	-300,154	927,260	0,138	1,282
Modèle Wang							
XH ₂	Rapport N ₂ /O ₂	a ₁	a ₂	a ₃	a ₄	a ₅	a ₆
0,2	[0,66-9]	0,029	-0,453	-0,857	84,924	-0,191	2,034
0,3	[0,66-9]	-0,138	1,361	-22,617	275,854	-0,012	1,572
Modèle Hong							
XH ₂	Rapport N ₂ /O ₂	a ₁	a ₂	a ₃	a ₄	a ₅	a ₆
0,2	[0,66-9]	0,003	-0,014	-4,754	104,198	-0,087	1,974
0,3	[0,66-9]	-0,075	0,664	-21,866	271,368	0,053	1,577

Tableau 3-8 : Coefficients obtenus lors de la corrélation pour les vitesses de flamme expérimentales et tirées de la modélisation.

3.2.5 Evaluation des énergies d'activation et nombre de Zel'dovich

La détermination des énergies d'activation et des nombres de Zel'dovich est importante pour l'évaluation de la réactivité globale des mélanges $H_2/O_2/N_2$. Ces déterminations ont été réalisées par la méthode expliquée dans le paragraphe 2.2.4. Ces deux données ne sont accessibles que par la simulation et sur la base du modèle de Mével.

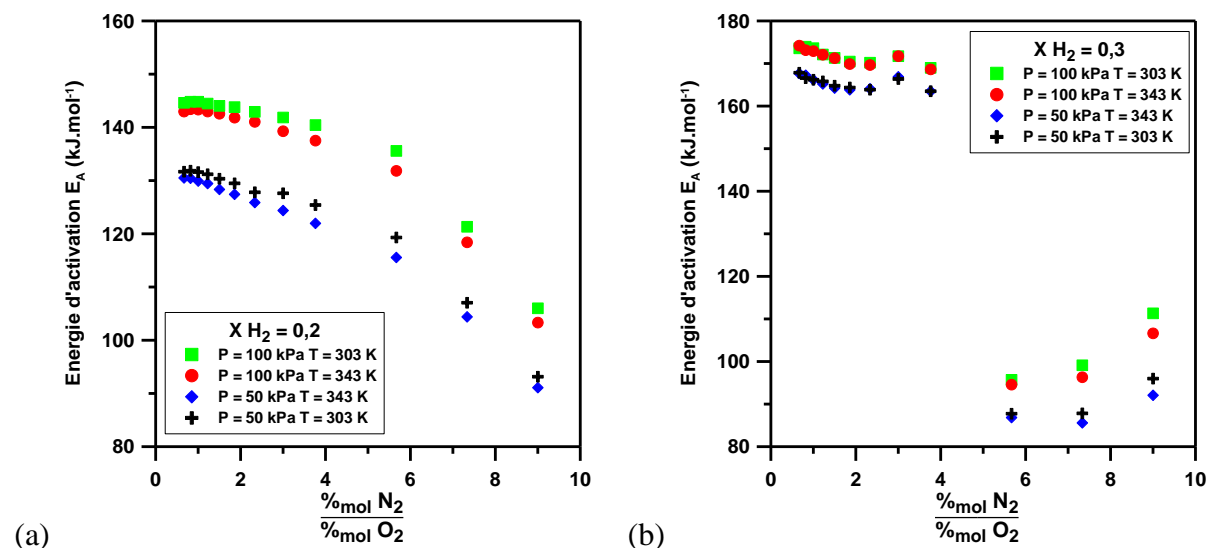
Les résultats présentés ici ne concernent que les mélanges avec une teneur en hydrogène constante. Une étude similaire a été réalisée pour les mélanges avec un rapport molaire N_2/O_2 constant et est présentée dans l'annexe D.

3.2.5.1 Énergies d'activation

3.2.5.1.1 Pour une teneur en H_2 constante

La Figure 3-24 représente les énergies d'activation, E_A , des mélanges $H_2/O_2/N_2$, en fonction du rapport molaire N_2/O_2 pour différentes conditions initiales et à fraction molaire en hydrogène dans le mélange constante. Il est difficile d'évaluer une tendance générale du comportement de l'énergie d'activation en fonction du rapport molaire N_2/O_2 pour les différents mélanges.

L'impact de la température initiale est très peu marqué sur les valeurs de l'énergie d'activation mis à part pour les mélanges où le rapport N_2/O_2 devient supérieur à 3,76, mélanges pour lesquels une augmentation de la température initiale de 303 à 343 K entraîne une diminution de la valeur de l'énergie d'activation. Une augmentation de la température initiale joue le même effet sur les énergies pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 % mol sur tout le domaine étudié.



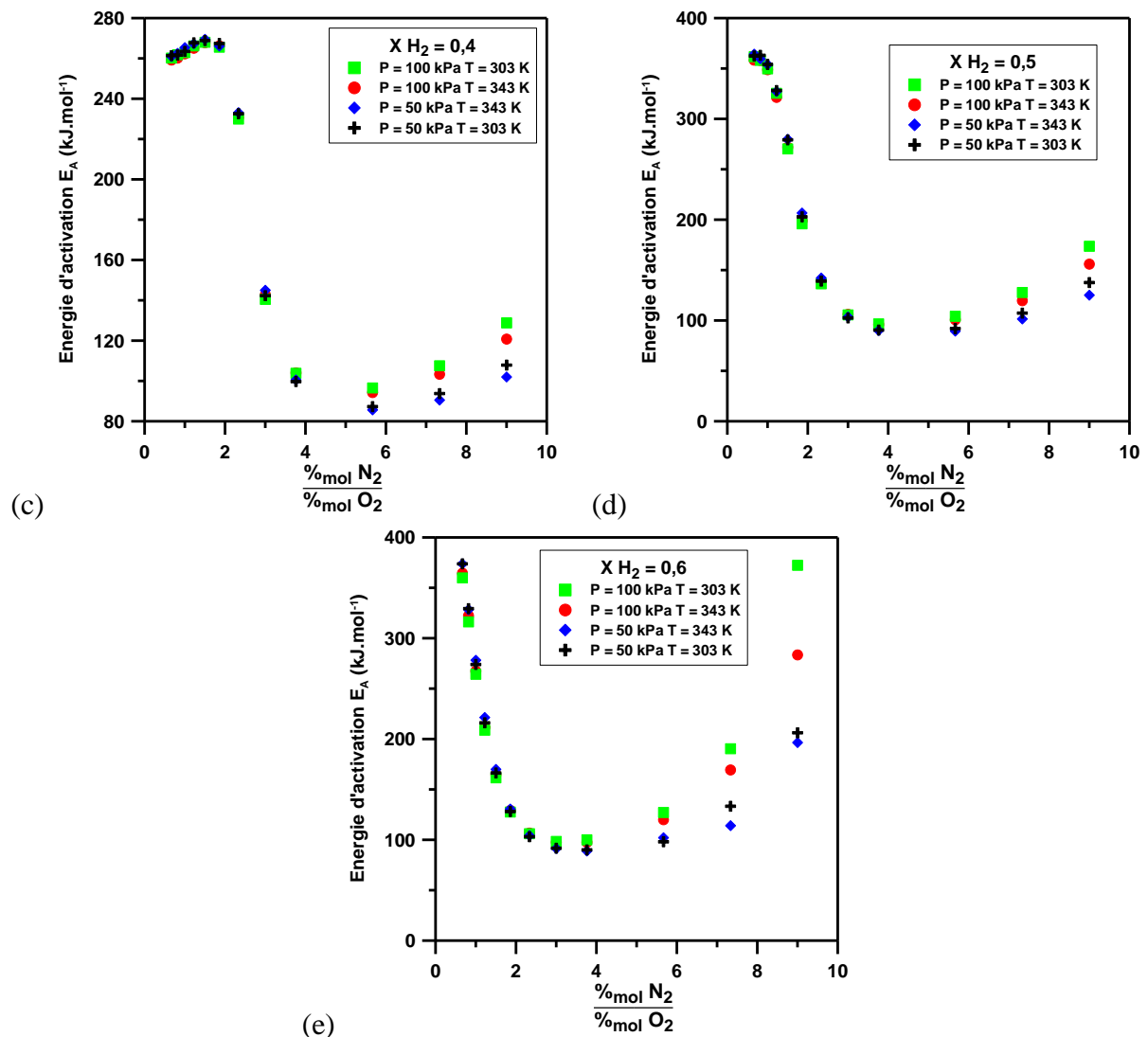


Figure 3-24 : Énergies d'activation E_A , en fonction du rapport molaire N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$: (a) $X_{H_2} = 0,2$; (b) $X_{H_2} = 0,3$; (c) $X_{H_2} = 0,4$; (d) $X_{H_2} = 0,5$; (e) $X_{H_2} = 0,6$.

L'effet de la pression initiale lui est plus prononcé. Une augmentation de la pression initiale de 50 à 100 kPa, conduit à une augmentation de l'énergie d'activation des mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 et 30 % mol sur tout le domaine de rapport molaire N_2/O_2 testé. Pour les mélanges avec des fractions en hydrogène plus importantes (40 à 60 % mol), l'effet de la pression initiale sur les énergies d'activation est marqué pour les mélanges avec un rapport molaire N_2/O_2 supérieur à 3,76.

3.2.5.1.2 Corrélation des énergies d'activation

Comme pour les vitesses de flamme, une corrélation basée sur les conditions physico-chimiques initiales des mélanges a été réalisée pour les énergies d'activation tirées du modèle de Mével.

Pour les mélanges avec une fraction molaire en hydrogène constante, les résultats sont donnés dans le Tableau 3-9. Pour certains mélanges, deux corrélations ont été réalisés en

fonction du rapport N_2/O_2 afin que les valeurs issues de la corrélation soient proches des valeurs réelles. L'écart entre la corrélation et les valeurs est, selon les valeurs, compris généralement autour de 5 %.

L'équation de corrélation est la suivante :

$$E_A = \left(a_1 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right)^3 + a_2 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right)^2 + a_3 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right) + a_4 \right) \cdot \left(\frac{P_{ini}}{P_{ref}} \right)^{a_5} \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}} \right)^{a_6} \quad Eq. 3.4$$

avec : $P_{ref} = 100$ kPa et $T_{ref} = 303$ K.

Cette expression est valable sur un domaine de température allant de 303 à 343 K et pour une pression initiale allant de 50 à 100 kPa.

XH ₂	Rapport N ₂ /O ₂	a ₁	a ₂	a ₃	a ₄	a ₅	a ₆
0,2	[0,66-9]	-0,055	0,169	-1,913	147,506	0,155	-0,135
0,3	[0,66-3,76]	-1,039	7,376	-16,513	182,601	0,053	-0,008
0,3	[3,76-9]	-1,931	44,038	-325,769	878,618	0,109	-0,118
0,4	[0,66-3,76]	13,636	-113,528	220,138	150,249	-0,008	0,003
0,4	[3,76-9]	-0,297	8,123	-62,688	245,983	0,167	-0,253
0,5	[0,66-3,76]	20,149	-105,176	32,820	389,993	-0,020	-0,005
0,5	[3,76-9]	0,120	0,733	-12,934	135,734	0,242	-0,518
0,6	[0,66-3,76]	-20,436	187,492	-568,667	665,730	-0,037	0,078
0,6	[3,76-9]	2,222	-31,610	160,261	-156,107	0,593	-1,281

Tableau 3-9 : Coefficients obtenus lors de la corrélation pour les énergies d'activation des mélanges H₂/O₂/N₂, avec une teneur en hydrogène constante.

Les résultats montrent que l'impact de la pression et de la température initiales sur les énergies d'activation des mélanges H₂/O₂/N₂ est très faible mis à part pour les mélanges avec des rapports molaires N₂/O₂ supérieurs à 3,76 pour lesquels une augmentation de la pression de 50 à 100 kPa induit une augmentation de E_A (coefficient a₅ positif) et une augmentation de la température initiale conduit à une diminution de E_A (coefficient a₆ négatif).

La Figure 3-25 représente les énergies d'activation des mélanges H₂/O₂/N₂ obtenus dans cette étude comparées à ceux trouvés dans la littérature : Malet [58] et Sun [133]. Les résultats obtenus au cours de cette étude sont plus importantes que celles obtenues par Malet et Sun. De plus, le maximum local observé pour une fraction molaire en hydrogène de 0,32 n'apparaît pas chez Malet et Sun. Cette différence de comportement et entre les valeurs peut s'expliquer par le fait que Malet et Sung utilisent un modèle cinétique détaillé différent du nôtre (GRI 3.0).

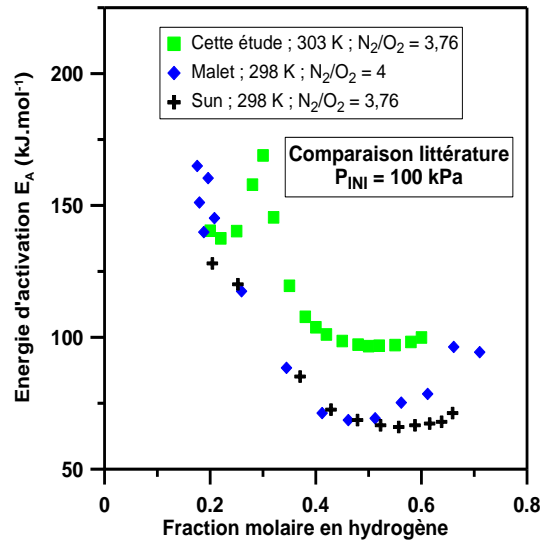


Figure 3-25 : Comparaison des valeurs d'énergies d'activation des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec celles de la littérature pour des mélanges initialement à 100 kPa.

3.2.5.2 Nombre de Zel'dovich

Le nombre de Zel'dovich, β , est un nombre adimensionnel qui permet de normaliser l'énergie d'activation par rapport aux températures initiales des gaz frais et finales des gaz brûlés. Il est calculé à partir de l'équation :

$$\beta = \frac{E_a}{R \cdot T_B^2} (T_B - T_0) \quad \text{Eq 3.5}$$

Avec : T_B : la température des gaz brûlés (en K) et T_0 : la température des gaz frais (en K).

3.2.5.2.1 Pour une teneur en H_2 constante

La Figure 3-26 représente les nombres de Zel'dovich des mélanges $H_2/O_2/N_2$ en fonction du rapport molaire N_2/O_2 pour des mélanges avec des teneurs en hydrogène constantes pour différentes conditions initiales de température et de pression.

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 et 30 %mol, sur tout le domaine étudié, une augmentation de la pression initiale conduit un accroissement des valeurs de β à l'inverse d'une augmentation de la température initiale de 303 à 343 K. Ces conclusions sont également valables pour les autres mélanges mais seulement pour des rapports molaires N_2/O_2 supérieurs à 3,76. À l'inverse, pour ces trois mélanges (teneurs en hydrogène de 40, 50 et 60 %mol), quand le rapport N_2/O_2 devient inférieur à 3,76, une augmentation de la pression de 50 à 100 kPa conduit à une baisse du nombre de Zel'dovich, l'impact de la température lui ne changeant pas.

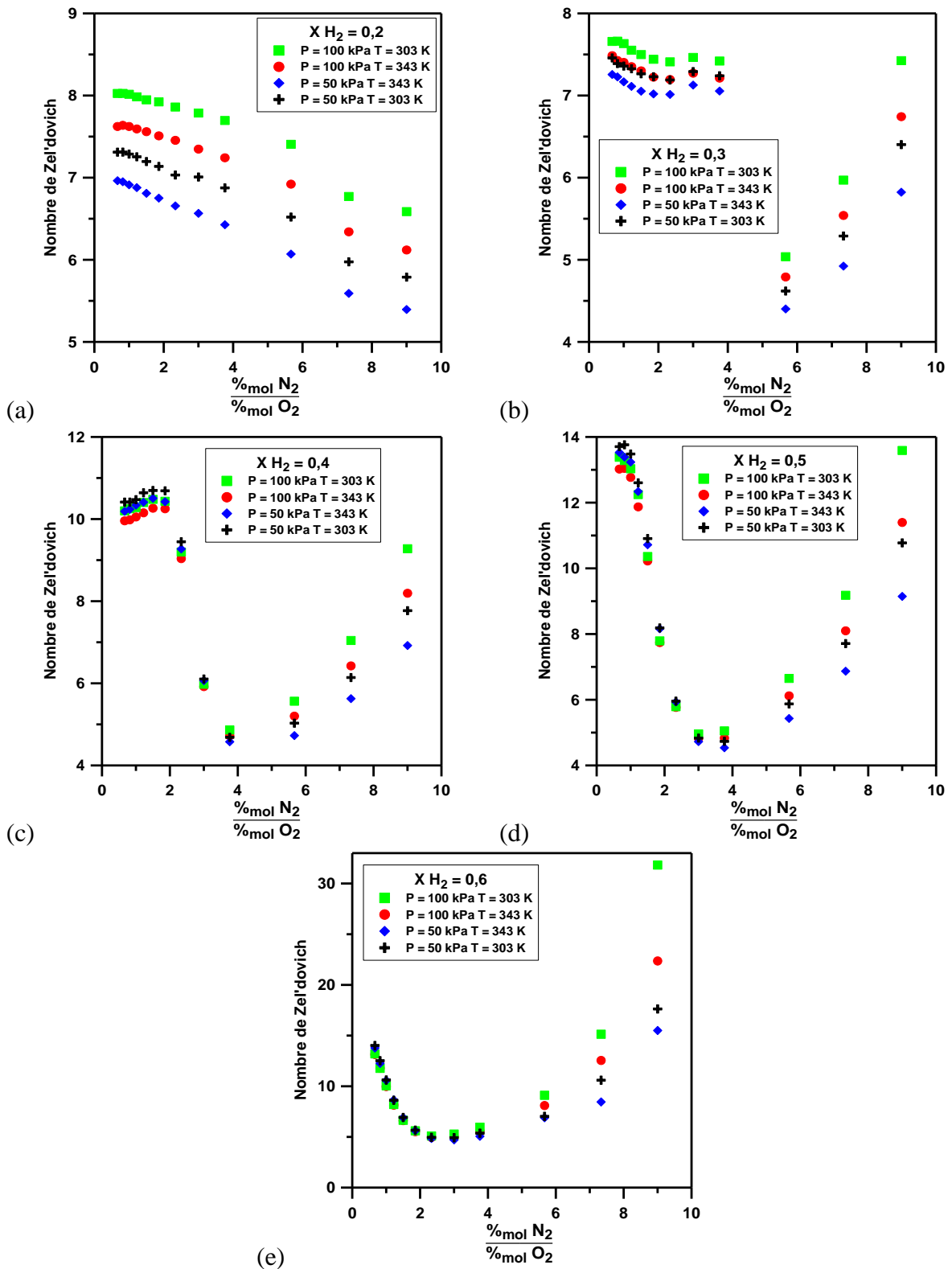


Figure 3-26 : Nombres de Zel'dovich, β , en fonction du rapport molaire N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différentes conditions initiales et différentes fractions molaires en hydrogène X_{H_2} : (a) $X_{H_2} = 0,2$; (b) $X_{H_2} = 0,3$; (c) $X_{H_2} = 0,4$; (d) $X_{H_2} = 0,5$; (e) $X_{H_2} = 0,6$.

3.2.5.2.2 *Corrélation des nombres de Zel'dovich*

Les nombres de Zel'dovich ont été corrélés par une expression à partir des conditions initiales de composition, de température et de pression. Cette expression est présentée dans l'équation suivante :

$$\beta = \left(a_1 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right)^3 + a_2 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right)^2 + a_3 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right) + a_4 \right) \cdot \left(\frac{P_{ini}}{P_{ref}} \right)^{a_5} \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}} \right)^{a_6} \quad Eq\ 3.6$$

avec : $P_{ref} = 100$ kPa et $T_{ref} = 303$ K.

Cette expression est valable sur un domaine de température allant de 303 à 343 K et pour une pression initiale allant de 50 à 100 kPa. Pour certains mélanges, deux corrélations ont été réalisées en fonction du rapport N_2/O_2 afin que les valeurs issues de la corrélation soient proches des valeurs réelles. L'écart entre la corrélation et les valeurs est, selon celles-ci, compris généralement autour de 5 %.

Le Tableau 3-10 présente les résultats obtenus pour les différentes corrélations des mélanges $H_2/O_2/N_2$. On remarque le coefficient lié à la température est pour toutes les expressions négatif, ce qui corrobore les commentaires précédents avec une baisse du nombre de Zel'dovich quand la température initiale augmente. Cet effet est cependant beaucoup plus prononcé pour les mélanges où le rapport N_2/O_2 devient supérieur à 3,76.

XH ₂	Rapport N ₂ /O ₂	a ₁	a ₂	a ₃	a ₄	a ₅	a ₆
0,2	[0,66-9]	0,002	-0,035	-0,026	8,126	0,155	-0,461
0,3	[0,66-3,76]	-0,034	0,279	-0,738	8,074	0,042	-0,220
0,3	[3,76-9]	-0,084	1,935	-13,984	37,458	0,128	-0,485
0,4	[0,66-3,76]	0,502	-4,142	8,044	6,172	-0,030	-0,164
0,4	[3,76-9]	-0,008	0,277	-1,852	8,670	0,188	-0,723
0,5	[0,66-3,76]	0,749	-3,912	1,664	14,146	-0,046	-0,159
0,5	[3,76-9]	0,021	-0,176	1,015	3,095	0,263	-1,079
0,6	[0,66-3,76]	-0,692	6,491	-19,527	23,819	-0,053	-0,105
0,6	[3,76-9]	0,210	-3,050	16,215	-21,859	0,632	-1,983

Tableau 3-10 : Coefficients obtenus lors de la corrélation pour les nombres de Zel'dovich des mélanges $H_2/O_2/N_2$, avec un XH₂ constant.

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 et 30 %mol, l'impact de la pression est positif, une augmentation de la pression initiale conduit à une élévation du nombre de Zel'dovich. Pour les autres mélanges, on note que pour les mélanges enrichis en oxygène ($N_2/O_2 < 3,76$), la pression joue un rôle négatif à l'inverse des mélanges où le rapport N_2/O_2 devient supérieur à 3,76.

Les nombres de Zel'dovich obtenus au cours de cette étude sont comparés avec ceux trouvés dans la littérature (Figure 3-27). Les nombres de Zel'dovich obtenus par Malet [58] et

Sun [133] sont inférieurs à ceux obtenus au cours de cette étude. La différence entre ces valeurs peut s'expliquer par l'utilisation d'un modèle cinétique détaillé différent (GRI 3.0).

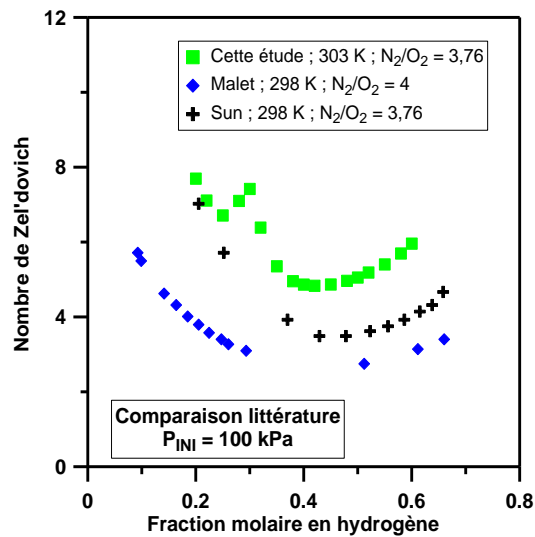


Figure 3-27 : Comparaison des nombres de Zel'dovich des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec celles de la littérature pour des mélanges initialement à 100 kPa

3.3 Détermination des paramètres d'explosivité

3.3.1 Le temps de combustion

Le temps de combustion ou t_c , est un paramètre important pour la détermination de l'explosivité d'un mélange. Ce paramètre dépend de l'enceinte utilisée et représente l'intervalle de temps qui sépare le temps où l'inflammation est initiée de celui où le maximum de pression est atteint

3.3.1.1 Pour une teneur en H_2 constante

Le temps de combustion de différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ en fonction du rapport molaire N_2/O_2 pour différentes fractions molaires en hydrogène (0,1, 0,2 et 0,3) sont représentées sur les Figure 3-28 à Figure 3-30.

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol (Figure 3-28), une diminution du rapport N_2/O_2 , soit une augmentation de la quantité d'oxygène dans le milieu, conduit à une diminution du temps de combustion. Par exemple, pour des mélanges initialement à 50 kPa et 303 K, une diminution du rapport N_2/O_2 de 9 à 3,76 puis à 1,5 et à 0,66, conduit à une diminution du temps de combustion de 834 à 564 puis à 439 et à 421 ms. Cette diminution du temps de combustion s'explique par une présence plus importante d'oxygène dans le milieu permettant à l'hydrogène de réagir plus facilement avec celui-ci.

Un accroissement de la température initiale induit une diminution du temps de combustion. Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol, t_c diminue de 564

à 318 pour un mélange avec un rapport N_2/O_2 égal à 3,76, pour une pression initiale de 50 kPa quand la température initiale augmente de 303 à 383 K (Figure 3-28).

L'effet de la pression initiale sur ces mélanges est plus complexe. En effet, pour des rapports N_2/O_2 inférieurs ou égaux à 2,33, une élévation de la pression initiale de 50 à 100 kPa induit une augmentation du temps de combustion. Au-delà de ce rapport de 2,33, soit pour des rapports de 3,76 et de 9, une augmentation de la pression conduit à une diminution de t_c . Par exemple, pour une température initiale de 303 K et un rapport N_2/O_2 de 9, le temps de combustion diminue de 834 à 675 ms quand la pression initiale augmente de 50 à 100 kPa. Cependant, cet effet est plus important pour les mélanges à 303 K que pour les mélanges à 343 K

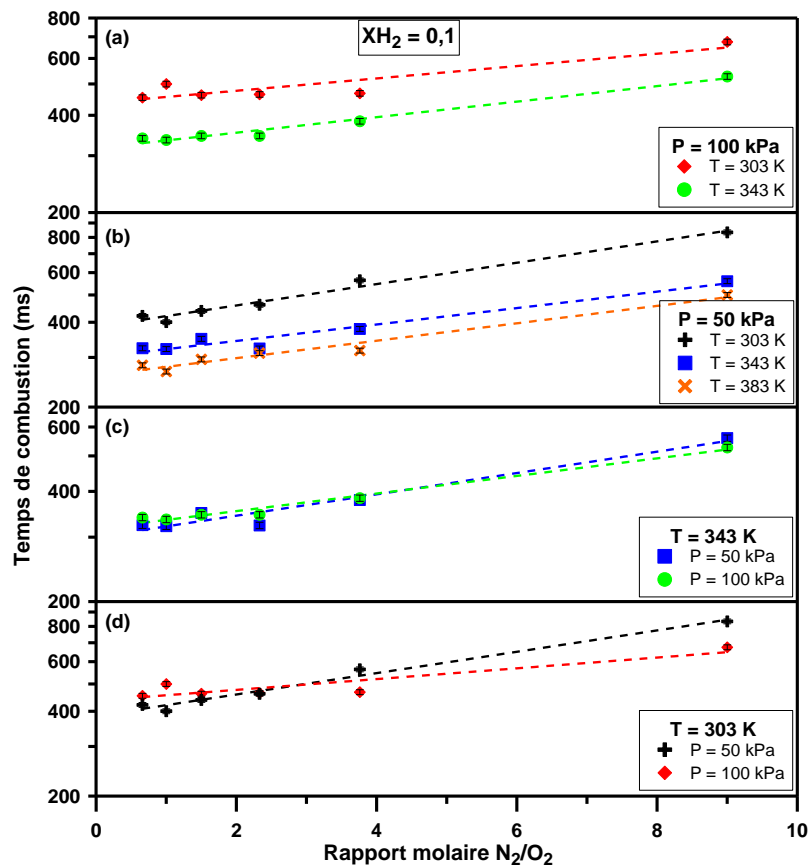


Figure 3-28 : Temps de combustion en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 10 %mol à différentes températures et pressions initiales

Les résultats des mélanges présentant une teneur en hydrogène de 20 %mol sont donnés dans la Figure 3-29. Ceux des mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 %mol sont présentés dans la Figure 3-30. Tout comme les mélanges une teneur en hydrogène de 10 %mol, une réduction du rapport N_2/O_2 et une augmentation de la température initiale induisent une diminution du temps de combustion des mélanges. Il faut également noter que les temps de combustion obtenus pour ces mélanges sont 10 à 50 fois inférieurs à ceux obtenus pour les mélanges avec une fraction molaire en hydrogène de 10 %mol. En effet,

pour les mélanges une teneur en hydrogène de 20 et 30 %mol, la flamme obtenue lors de la combustion est sphérique alors que pour les autres, la propagation de la flamme se déroule préférentiellement vers le haut (cf. 3.1)

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 %mol, l'impact de l'augmentation du rapport N_2/O_2 dépend à la fois de la température et de la pression initiales. Ainsi, pour des températures initiales de 303 et 343 K, les temps de combustion sont généralement plus courts à 100 kPa qu'à 50 kPa. Cependant, cet écart diminue lorsque le rapport N_2/O_2 augmente et pour un rapport N_2/O_2 égal à 9, les temps de combustion sont quasiment identiques pour les deux pressions initiales.

De même, pour les deux pressions initiales étudiées, une augmentation de la température initiale de 303 à 343 K induit une diminution des temps de combustion. L'écart entre les deux températures est d'autant plus marqué que le rapport N_2/O_2 est élevé. Par exemple pour les mélanges avec à 50 kPa, une augmentation de la température initiale de 303 à 343 K conduit pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 de 1,5 à une baisse du temps de combustion de 32 à 30 ms. Pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 de 9, cette baisse est plus importante et le temps de combustion diminue de 81 à 69 ms quand la température initiale s'accroît de 303 à 343 K.

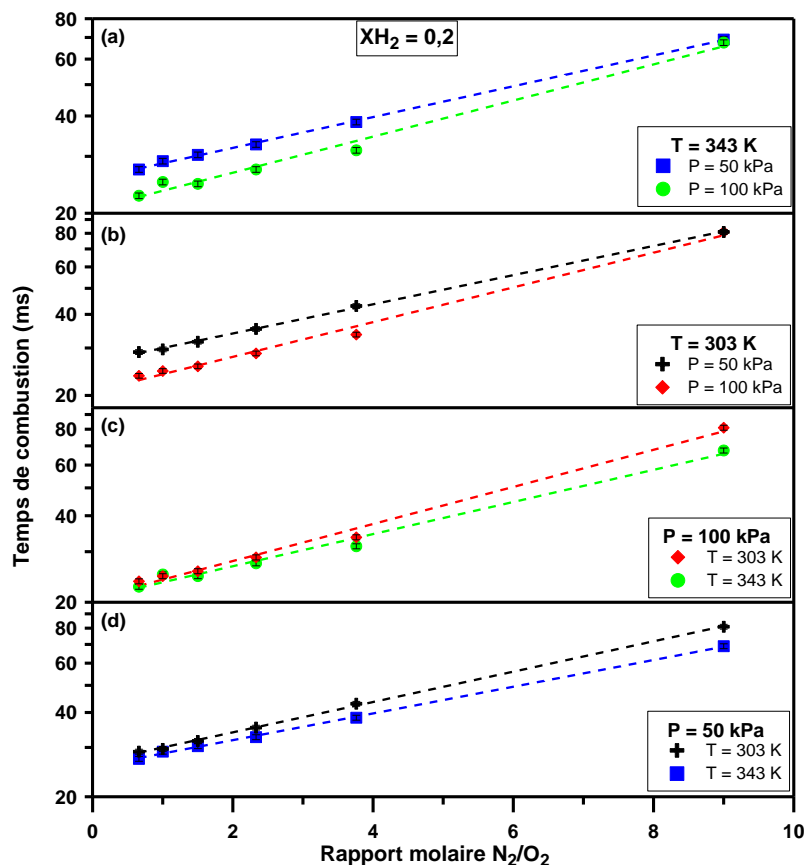


Figure 3-29 : Temps de combustion en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à différentes températures et pressions initiales

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 % mol, lorsque la pression initiale est de 50 kPa, le temps de combustion augmente lorsque le rapport N_2/O_2 augmente et la température initiale ne semble pas avoir d'effet sur le temps de combustion et cela pour tous les rapports N_2/O_2 . Pour les mélanges à 100 kPa, les conclusions sont les mêmes. Lorsque la température initiale est fixe (303 et 343 K), l'augmentation de la pression initiale a pour effet de diminuer les temps de combustion. Cependant, l'écart entre les deux conditions de pression diminue avec l'augmentation du rapport N_2/O_2 et pour la valeur particulière de 9, aucun écart n'est observé.

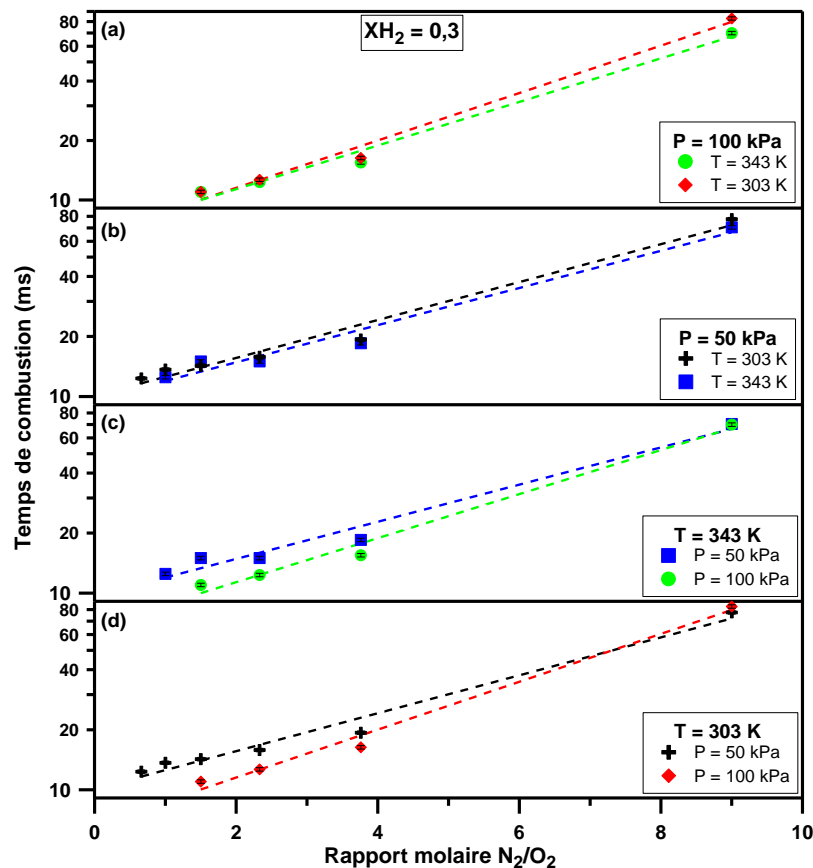


Figure 3-30 : Temps de combustion en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 % mol à différentes températures et pressions initiales

3.3.1.2 Pour un rapport N_2/O_2 constant

La Figure 3-31 représente le temps de combustion de mélanges $H_2/O_2/N_2$ en fonction de la fraction molaire en H_2 pour trois rapports N_2/O_2 (2,33, 3,76 et 9) pour différentes conditions initiales.

L'évolution du temps de combustion en fonction de la fraction molaire en hydrogène suit une courbe en forme de U avec un minimum qui dépend de la température initiale, de la pression initiale et du rapport N_2/O_2 . Ce minimum est d'autant plus bas que le rapport N_2/O_2

est faible. Par exemple, à une pression initiale de 100 kPa et à une température de 303 K, pour un mélange avec une teneur en hydrogène de 40 %mol, le temps de combustion est égal à 137 ms quand le rapport N_2/O_2 est égal à 9, quand celui-ci diminue à 3,76, le temps de combustion tombe à 14 ms et même à 9 ms pour un rapport N_2/O_2 de 2,33. La même tendance est observée pour les autres conditions initiales.

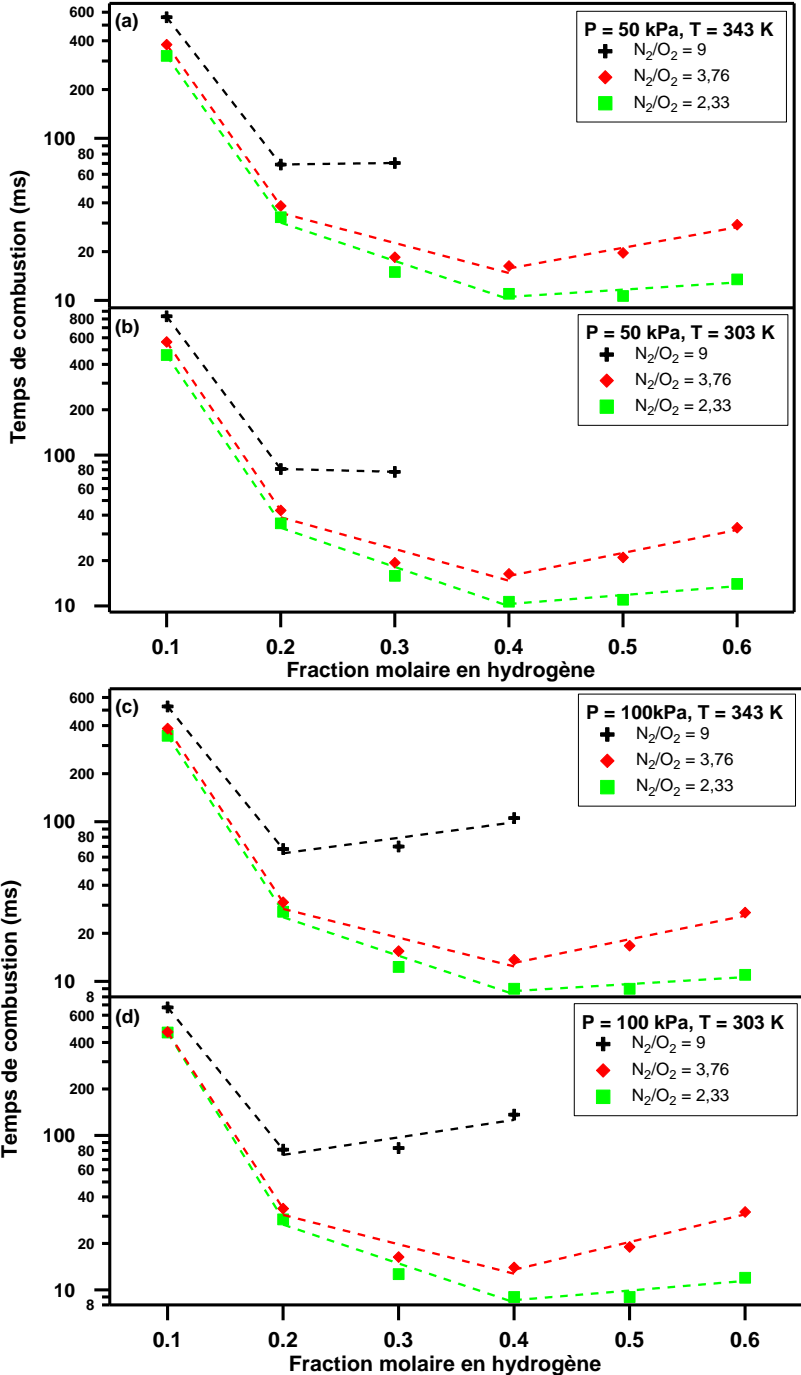


Figure 3-31 : Temps de combustion en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures et pressions initiales

Dans le cas où le rapport N_2/O_2 est fixé à 9, le minimum de temps de combustion est observé pour une teneur en hydrogène de 20 %mol. Pour ces mélanges, au-delà d'une teneur en hydrogène de 30 %mol, aucune mesure n'a été possible car les mélanges ne s'enflammaient pas pour une pression initiale de 50 kPa. Lorsque que cette dernière est portée à 100 kPa, aucune mesure n'est possible au-delà d'une teneur en hydrogène de 40 %mol dans le mélange.

Lorsque le rapport N_2/O_2 diminue à 3,76, les minima de t_C sont observés pour des teneurs en hydrogène dans le milieu de 40 %mol. Pour un N_2/O_2 égal à 2,33, les minima sont observés pour des teneurs en H_2 de 40 et 50 %mol. Les minima de temps de combustion obtenus pour les différents mélanges correspondent au maxima de vitesse de flamme observés auparavant (cf. 3.2.2.2).

3.3.2 La pression maximale de combustion

La pression maximale de combustion (P_{MAX}) est un paramètre très important pour la définition de l'explosivité d'un mélange mais également pour la sûreté industrielle, en général, et nucléaire, en particulier. C'est un des paramètres qui permet la définition de protocoles de sécurité des personnes et des biens. Il est mesuré comme étant la surpression obtenue à l'intérieur de l'enceinte après l'explosion du mélange gazeux auquel s'ajoute la pression initiale du mélange.

3.3.2.1 Pour une teneur en H_2 constante

La Figure 3-32 représente l'évolution de la pression maximale de flamme (P_{MAX}) en fonction du rapport N_2/O_2 pour des mélanges ayant une teneur en hydrogène de 10 %mol pour différentes conditions initiales de température et de pression.

Pour toutes les conditions expérimentales étudiées, un changement du rapport N_2/O_2 n'entraîne que peu de conséquences sur P_{MAX} . Les valeurs de P_{MAX} sont semblables pour des mêmes conditions de température et de pression initiales sur tout le domaine de N_2/O_2 . Cette figure nous montre également qu'une augmentation de la pression initiale induit une augmentation de la pression finale. Par exemple, pour les mélanges ayant une pression initiale de 50 kPa, la pression maximale obtenue est de l'ordre de 170-190 kPa alors que pour les mélanges avec une $P = 100$ kPa, P_{MAX} est de l'ordre de 350-390 kPa.

Pour une pression initiale de 50 kPa et un rapport molaire de N_2/O_2 de 2,33, la pression maximale de combustion est de 193 kPa pour une température initiale de 303 K. Cette pression maximale de combustion diminue jusqu'à 181 kPa pour une température initiale de 343 K puis jusqu'à 162 kPa pour une température initiale de 383 K. Cette diminution de la pression maximale de combustion avec l'augmentation de la température initiale est due à une diminution de la masse volumique du mélange $H_2/O_2/N_2$ avec l'augmentation de la température initiale.

La pression maximale de combustion et la P_{AICC} (P_{AICC} pour Pression Adiabatique Isochore de Combustion Complète) sont représentées en fonction du rapport N_2/O_2 pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 10 %mol pour différentes conditions initiales sur la Figure 3-33. La P_{AICC} est la pression maximale de combustion théorique d'un mélange donné et elle est calculée à partir de la thermodynamique.

Les écarts entre P_{MAX} et P_{AICC} sur ces expériences sont comprises entre 5 et 14 % et sont représentés sur la Figure 3-33. Ces écarts sont dus à deux phénomènes qui se produisent lors de l'explosion du mélange combustible. Le premier correspond aux pertes thermiques qui ont lieu aux parois de l'enceinte et qui sont responsables du refroidissement des gaz brûlés limitant ainsi la pression maximale atteinte en fin de combustion. Le deuxième phénomène est connu sous le nom d'effet de température flash négatif (Effet FTN). Sa définition est la suivante : Quand les gaz brûlés chauds atteignent le capteur de pression, sa température augmente brutalement ce qui conduit à une diminution du signal de tension envoyé à l'oscilloscope et donc réduit artificiellement la pression maximale d'explosion mesurée.

Les écarts entre P_{MAX} et la P_{AICC} pour ces mélanges sont importants du fait de la propagation préférentiellement ascendante de la flamme (cf. 3.1.1). En effet, ce type de propagation conduit à des temps de combustion suffisamment long (cf. 3.3.1.1) pour permettre des échanges thermiques avec la paroi importants menant à une baisse de la pression dans le milieu.

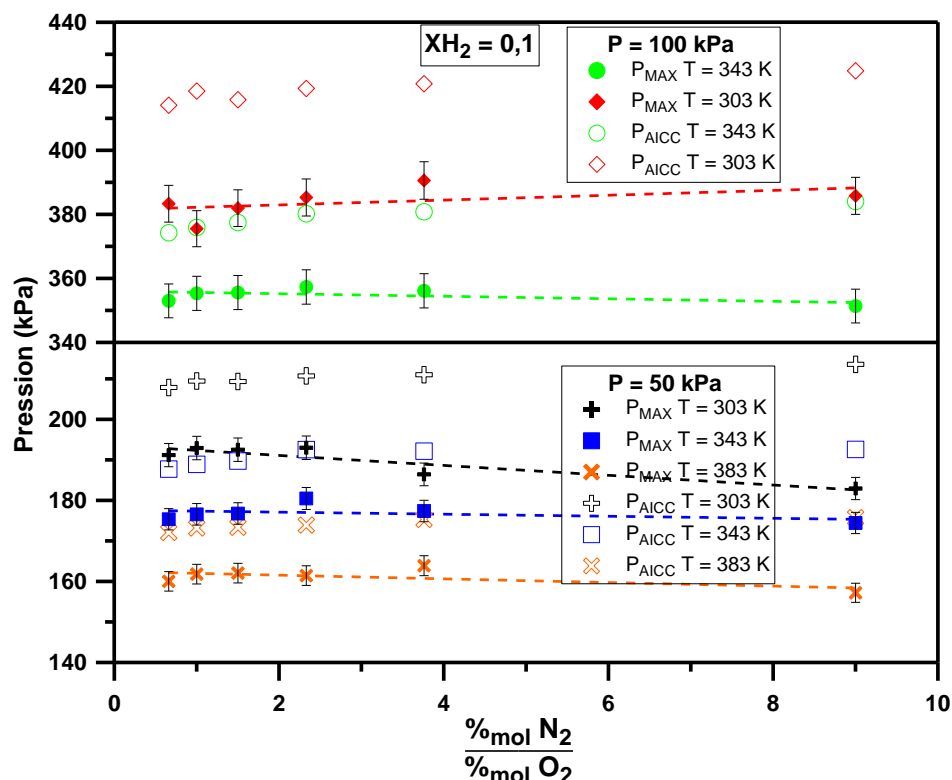


Figure 3-32 : Pression maximale de combustion, P_{MAX} , et P_{AICC} , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 10 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales

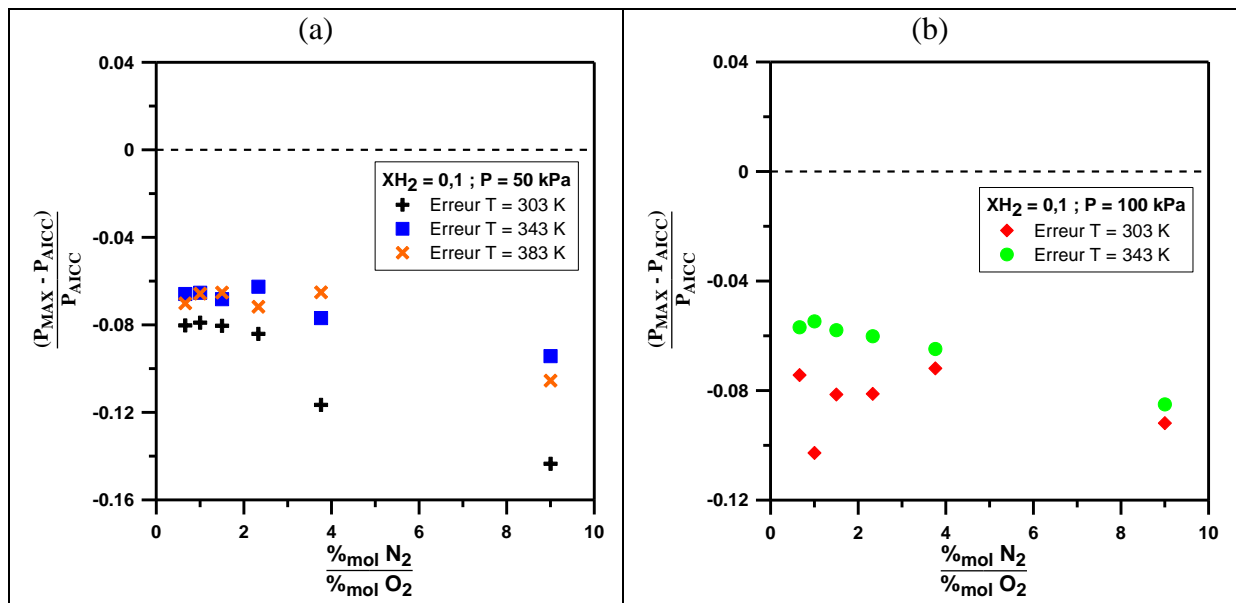


Figure 3-33 : Écart entre la pression maximale de combustion P_{MAX} et la P_{AICC} en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 10 %mol à différentes températures initiales pour (a) : $P_{INI} = 50$ kPa et (b) : $P_{INI} = 100$ kPa

Les influences de la température initiale et de la pression initiale sur la pression maximale de combustion de mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une fraction molaire en H_2 de 20 %mol sont les mêmes que celles observées pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol (Figure 3-34). Une augmentation de la température initiale de 303 à 343 K induit une diminution de la valeur de la pression maximale de combustion de l'ordre de 10%. L'influence du rapport N_2/O_2 est toutefois quelque peu différente. En effet, même si les valeurs de pressions maximales de combustion sont sensiblement les mêmes pour des valeurs de N_2/O_2 comprises entre 0,66 et 3,76, pour les mélanges avec un rapport $N_2/O_2 = 9$, les valeurs de P_{MAX} obtenues sont plus faibles. Par exemple, pour les mélanges à 50 kPa et à 303 K, la pression maximale de combustion se situe autour de 310 kPa pour des rapports N_2/O_2 compris entre 0,66 et 3,76. Celle-ci n'est plus que de à 275 kPa quand N_2/O_2 devient égal à 9. Les mélanges avec un rapport N_2/O_2 de 9 sont riches en combustibles à l'inverse des autres mélanges, qui eux sont pauvres. Pour ces mélanges, il n'y a donc pas assez d'oxygène dans le milieu pour brûler tout l'hydrogène ce qui conduit à une baisse des valeurs de P_{MAX} et de P_{AICC} par rapport à celles des mélanges où l'oxygène est en quantité suffisante.

Les écarts entre les P_{MAX} et les P_{AICC} de ces différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ sont montrés sur la Figure 3-35. Ces écarts entre la P_{MAX} et la P_{AICC} , pour ces expériences, sont compris entre 1,3 et 5,9 %, ce qui montre que la combustion du mélange à l'intérieur de l'enceinte est complète. Ceci est confirmé par la visualisation de la propagation de la flamme de ces mélanges qui, dans tous les cas, conduit à une flamme sphérique (lisse ou cellulaire selon les mélanges) comme vu dans les paragraphes 3.1.2 et 3.1.3.

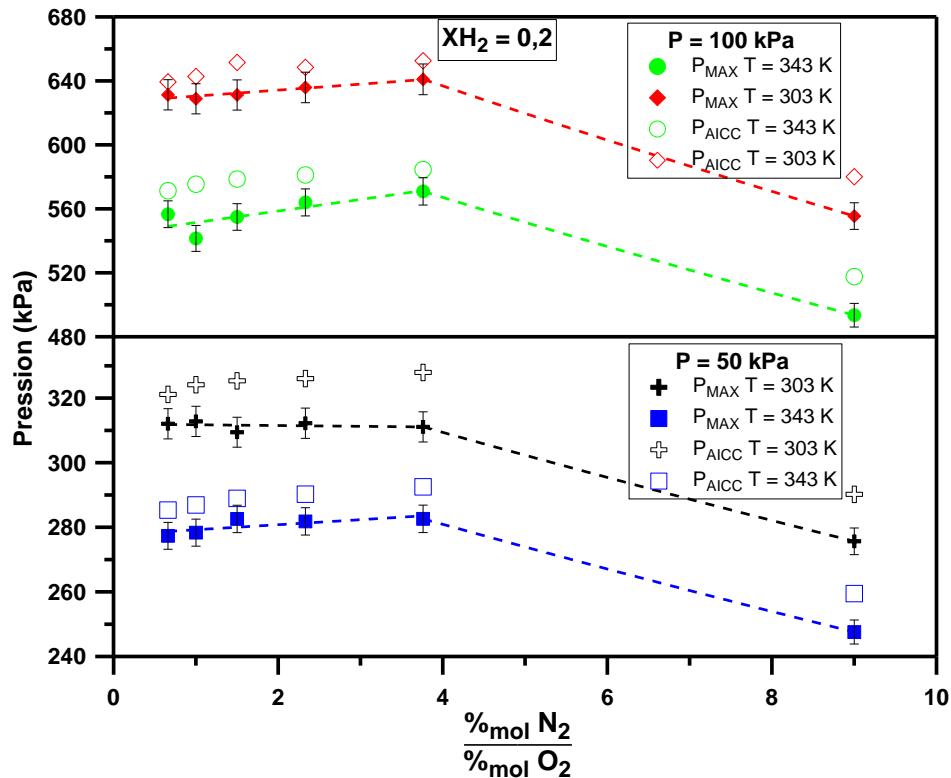


Figure 3-34 : Pression maximale de combustion, P_{MAX} , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales

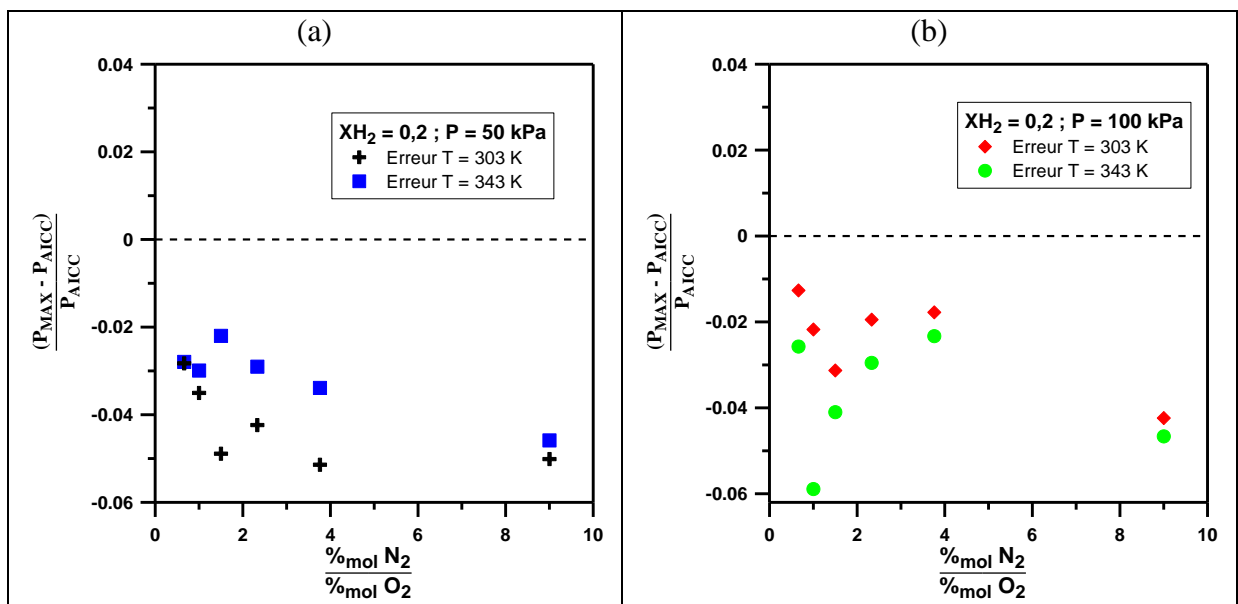


Figure 3-35 : Écart entre la pression maximale de combustion P_{MAX} et la P_{AICC} en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à différentes températures initiales pour (a) : $P_{INI} = 50 \text{ kPa}$ et (b) : $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$

L'impact du rapport N_2/O_2 , de la pression et de la température initiale sur les pressions maximales de combustion pour des mélanges contenant une teneur en hydrogène de 30 %mol (Figure 3-36). Comme pour les mélanges précédents, une élévation de la pression initiale

conduit à une augmentation de P_{MAX} alors qu'un accroissement de la température initiale de 40 K induit une baisse de P_{MAX} de près de 10 %.

Le rapport N_2/O_2 joue peu sur les valeurs de pressions maximales de combustion pour des rapports allant de 0,66 à 3,76. En effet, pour ces rapports, les valeurs de P_{MAX} restent sensiblement égales, par exemple à 50 kPa et 343 K, P_{MAX} reste autour de 330 kPa. Néanmoins, lorsque le rapport N_2/O_2 devient égal à 9, les valeurs de P_{MAX} diminuent sensiblement. Par exemple dans le cas des mélanges à 50 kPa et à 343 K, la pression maximale de combustion devient égale à 230 kPa pour un rapport N_2/O_2 égal à 9. Cette baisse dans les valeurs de P_{MAX} s'explique comme précédemment par les valeurs de richesse de ces mélanges. Pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 allant de 0,66 à 3,76, la richesse augmente de 0,36 à 1,02. Pour tous ces mélanges, il y a suffisamment d'oxygène pour brûler tout l'hydrogène présent (à l'exception du mélange avec un N_2/O_2 égal à 3,76 avec sa richesse de 1,02, celui-ci est proche de la stœchiométrie mais très légèrement riche) à l'inverse du mélange à $N_2/O_2 = 9$ pour lequel la richesse est égale à 2,14. Dans ce mélange, l'oxygène est le réactif limitant et une partie de l'hydrogène ne peut pas brûler.

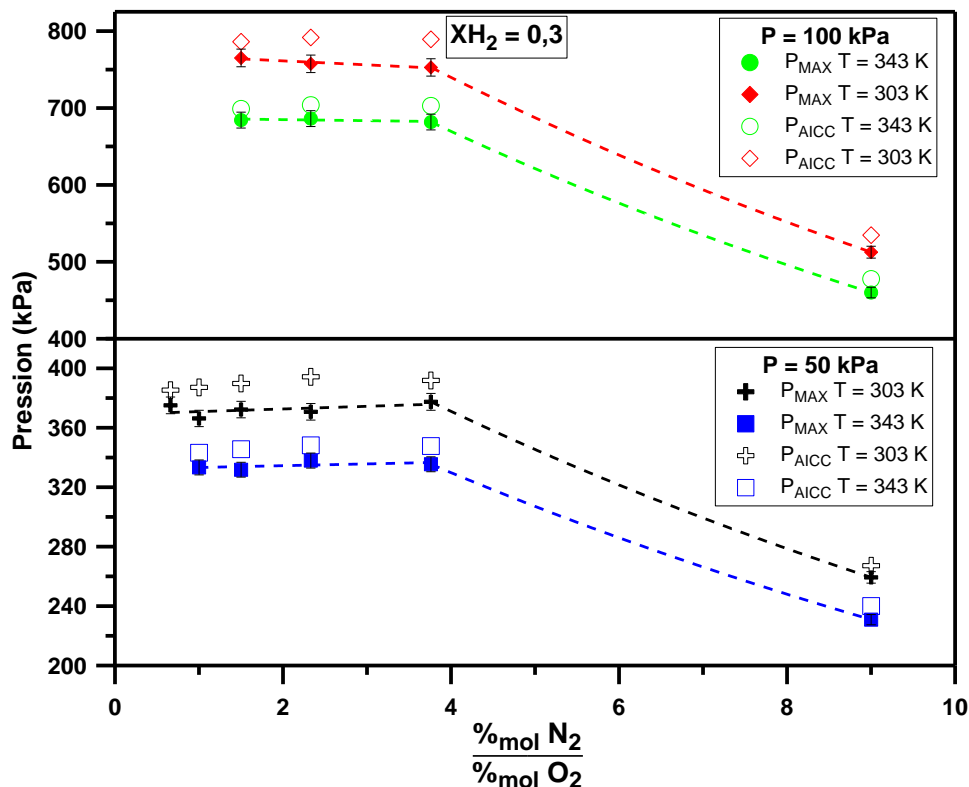


Figure 3-36 : Pression maximale de combustion, P_{MAX} , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales

Les écarts entre les P_{MAX} et les P_{AICC} de ces différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ sont montrés sur la Figure 3-37. Les écarts entre la P_{MAX} et la P_{AICC} , pour ces expériences, sont compris entre 2,1 et 6,0 %, ce qui montre que la combustion du mélange à l'intérieur de l'enceinte est complète. Ceci est confirmé par l'observation des propagations de flamme liées à ces mélanges. Celles-ci sont, pour tous ces mélanges, sphériques (lisses ou cellulaires) (cf. 3.1).

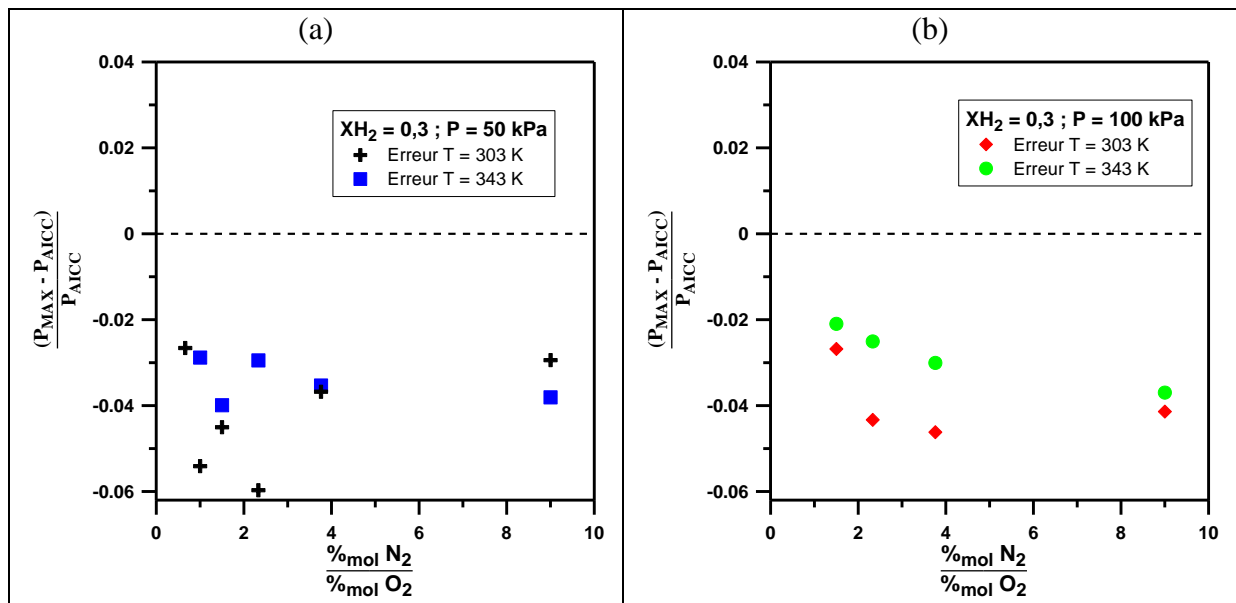


Figure 3-37 : Écart entre la pression maximale de combustion P_{MAX} et la P_{AICC} en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à différentes températures initiales pour (a) : $P_{INI} = 50$ kPa et (b) : $P_{INI} = 100$ kPa

3.3.2.2 Pour un rapport N_2/O_2 constant

Les pressions maximales de combustion expérimentales (P_{MAX}) et théoriques (P_{AICC}) sont représentées en fonction de la fraction molaire en H_2 pour différentes conditions initiales de pression et température et pour trois rapports N_2/O_2 (2,33, 3,76 et 9) (Figure 3-38). Les influences positive de la pression initiale et négative de la température initiale sur les mélanges $H_2/O_2/N_2$ sont les mêmes que celles explicitées précédemment pour les mélanges à fraction molaire en hydrogène constante.

Les valeurs de pressions maximales de combustion obtenues suivent une courbe en forme de cloche avec des maximums différents selon la valeur du rapport N_2/O_2 . Pour un rapport N_2/O_2 égal à 9, le maximum de P_{MAX} et de P_{AICC} est obtenu pour les mélanges avec une fraction molaire en H_2 de 0,2. Par exemple, pour les mélanges initialement à 100 kPa et à 303 K, la pression maximale de combustion, pour une teneur en hydrogène de 20 %mol, vaut 556 kPa. Pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 3,76, le maximum de P_{MAX} et de P_{AICC} est décalé pour une teneur en H_2 dans le mélange de 30 %mol. A titre d'exemple, à 50 kPa et 343 K, P_{MAX} pour une teneur en hydrogène de 30 %mol vaut 336 kPa. Le maximum de P_{MAX} est obtenu pour une teneur en H_2 de 40 %mol pour les mélanges où le rapport molaire N_2/O_2 est de 2,33. Ces maxima sont obtenus pour les mélanges les plus proches de la stœchiométrie, mélanges pour lesquels la combustion de l'hydrogène par l'oxygène est la plus complète.

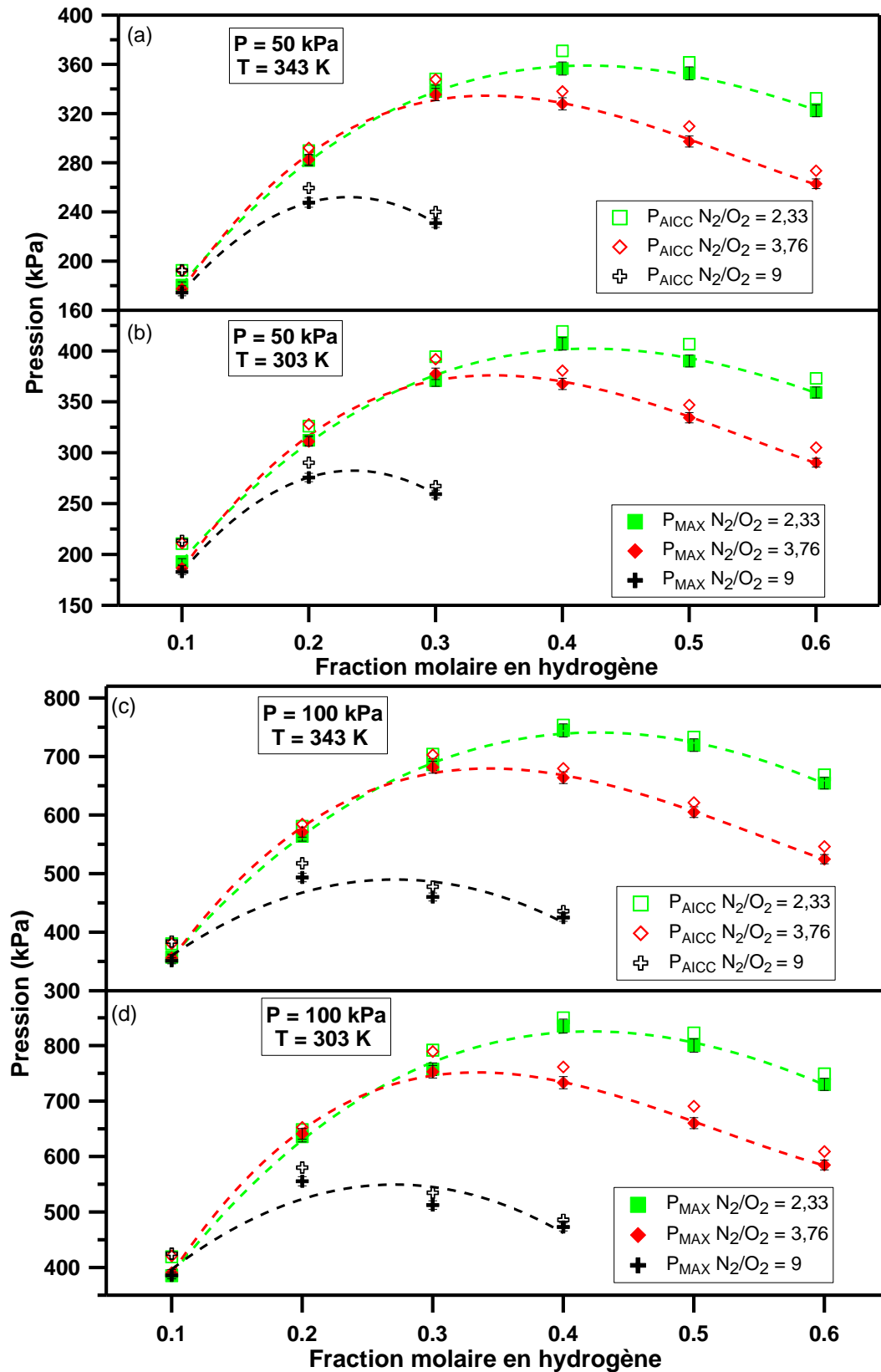


Figure 3-38 : Pression maximale de combustion P_{MAX} en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures et pressions initiales.

Pour une fraction molaire en hydrogène donnée, une diminution du rapport N_2/O_2 induit une augmentation de P_{MAX} . Cependant, pour les mélanges avec des teneurs en H_2 inférieures ou égales à 30 %mol, une diminution du rapport N_2/O_2 de 3,76 à 2,33 ne modifie pas la pression maximale de combustion. L'impact de la diminution du rapport N_2/O_2 entre 3,76 et 2,33 se fait vraiment ressentir et son impact est beaucoup plus important dès que la teneur en H_2 du mélange devient supérieure à 40 %mol. Par exemple, à 100 kPa et 303 K, pour une teneur en hydrogène de 50 %mol, P_{MAX} vaut 660 kPa quand N_2/O_2 est égal à 3,76 et augmente à 800 kPa quand N_2/O_2 vaut 2,33.

À l'inverse, une diminution du rapport N_2/O_2 entre 9 et 3,76 induit dans tous les cas une hausse de la pression maximale de combustion. Par exemple, pour une pression initiale de 50 kPa et une température de 343 K et pour une teneur en hydrogène de 30 %mol, P_{MAX} augmente de 231 à 336 kPa quand le rapport N_2/O_2 décroît de 9 à 3,76.

3.3.3 L'indice de déflagration

Le taux maximal de montée en pression ou $(dP/dt)_{MAX}$ est une caractéristique importante pour la sûreté nucléaire et industrielle. Ce paramètre caractérise la violence avec laquelle une explosion se produit. Il est déterminé à partir du signal de pression en fonction du temps. Cependant, ce paramètre dépend de beaucoup de facteurs et en particulier de la forme du signal de pression en lui-même étant donné les fluctuations obtenues avec le capteur. Pour ces différentes raisons, on estime l'incertitude sur la valeur du $(dP/dt)_{MAX}$ à 25%.

L'indice de déflagration, K_G , permet la normalisation, par la relation introduite dans le chapitre précédent (Eq 2.26), des valeurs précédentes par rapport au volume de l'enceinte utilisée pour les expériences.

3.3.3.1 Pour une teneur en H_2 constante

Les indices de déflagration, K_G , des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 10 %mol sont présentés sur la Figure 3-39.

Pour ces mélanges, l'impact du rapport N_2/O_2 , lorsqu'il est compris entre 0,66 et 3,76, sur les indices de déflagration est faible. En effet, sur ce domaine, K_G reste dans des gammes de valeurs similaires. Par exemple, sur cet intervalle de rapport N_2/O_2 , les indices de déflagration des mélanges à 100 kPa et 343 K varient entre 0,96 et 1,09 MPa.m.s⁻¹. Cependant, lorsque le rapport N_2/O_2 devient égal à 9, K_G diminue par rapport au reste des autres valeurs. Pour les mélanges à 100 kPa et 343 K, il vaut alors 0,61 MPa.m.s⁻¹.

Une hausse de la pression initiale de 50 à 100 kPa induit une augmentation de l'indice de déflagration sur toutes les conditions initiales étudiées ici. Cette augmentation de K_G s'explique par la diminution du temps de combustion lorsque la pression initiale augmente. À 303 K pour un rapport N_2/O_2 égal 2,33, l'indice de déflagration augmente de 0,44 à 0,83 MPa.m.s⁻¹ quand la pression initiale augmente de 50 à 100 kPa.

L'impact de la température initiale sur l'indice de déflagration est semblable à celui de la pression initiale, un accroissement de la température initiale de 303 à 343 K induisant une augmentation de l'indice de déflagration.

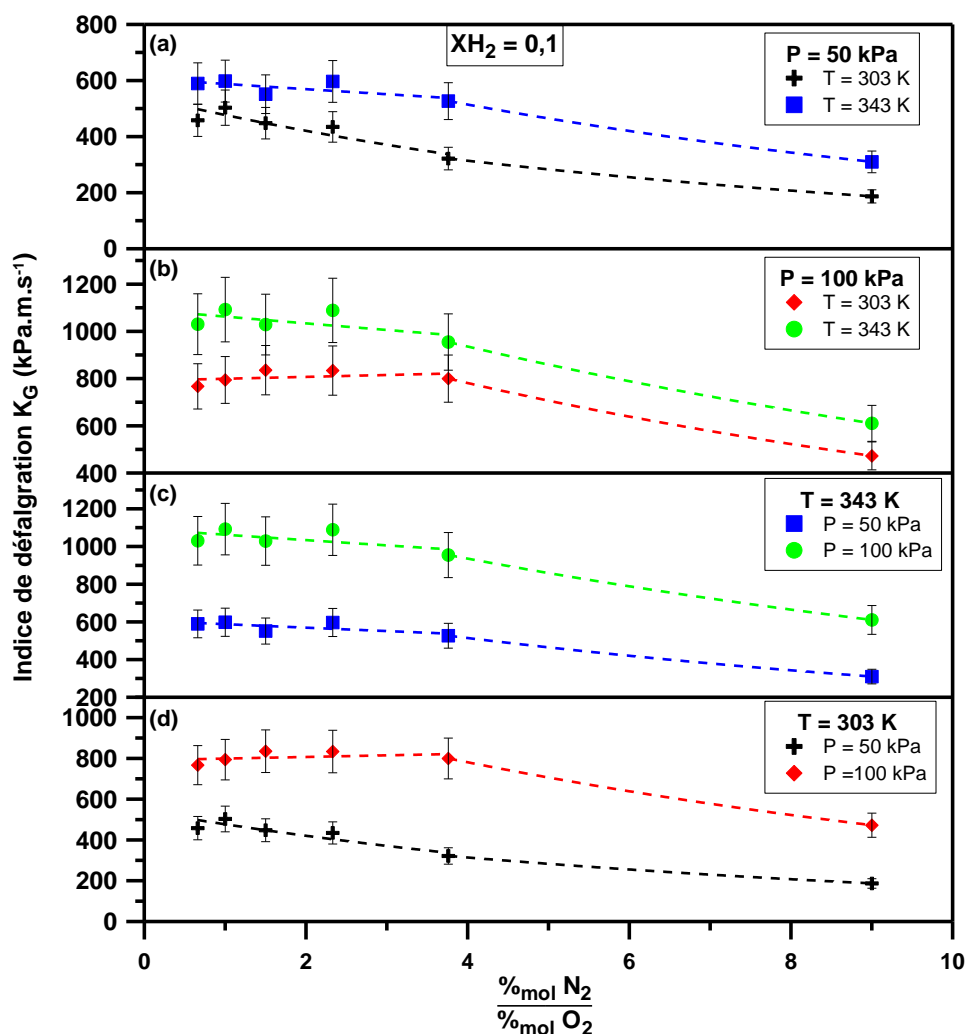


Figure 3-39 : Indice de déflagration, K_G , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 10 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales

La Figure 3-40 montre les indices de déflagration des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol. L'impact du rapport N_2/O_2 est assez semblable à celui observé pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol (à l'exception des mélanges à 50 kPa et 343 K, pour lesquels on observe une diminution de l'indice de déflagration avec l'augmentation du rapport N_2/O_2 sur tout le domaine) : les valeurs restent semblables sur un domaine de rapports N_2/O_2 compris entre 0,66 et 2,33. Au-delà de ce rapport, les valeurs des indices de déflagration diminuent. À 100 kPa et 303 K, l'indice de déflagration diminue de 50 à 37 puis à 11 MPa.m.s⁻¹ quand le rapport N_2/O_2 augmente de 2,33 à 3,76 puis à 9. Cette diminution s'explique par la diminution de la réactivité des mélanges (temps de combustion plus long et pression maximale d'explosion plus faible).

Une augmentation de la pression initiale conduit à une augmentation de l'indice de déflagration sur l'ensemble du domaine. À l'inverse et contrairement aux mélanges avec une

teneur en hydrogène de 10 %mol, une élévation de la température initiale induit une baisse de l'indice de déflagration sur l'ensemble de l'étude. Pour les mélanges à une pression initiale de 100 kPa, selon le rapport N_2/O_2 , l'impact de la température sur K_G est plus ou moins important. Minimale pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 9, celui-ci augmente avec la diminution du rapport N_2/O_2 , jusqu'à des valeurs de N_2/O_2 égales à 2,33 ou alors, l'augmentation de la température de 303 à 343 K induit une baisse des valeurs de l'indice de déflagration équivalente sur l'ensemble du domaine. L'impact de la pression, lui, est identique sur tout le domaine.

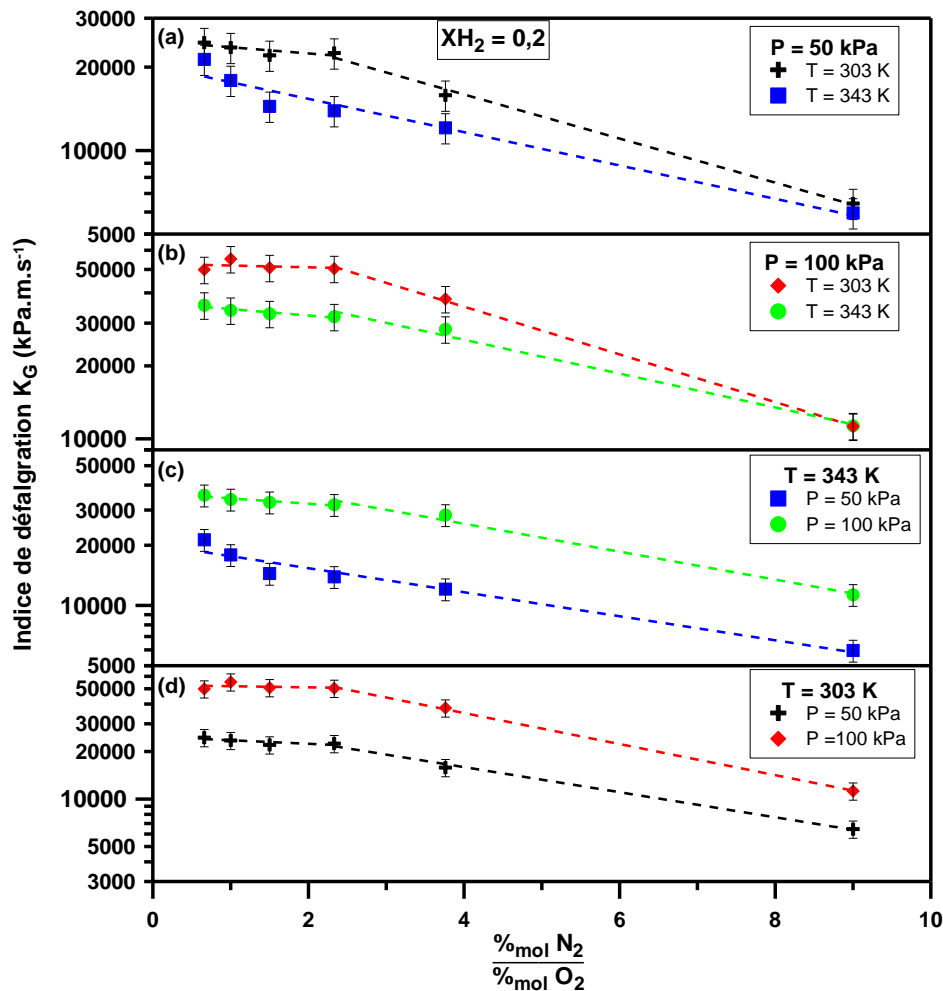


Figure 3-40 : Indice de déflagration, K_G , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales

Les résultats obtenus pour les indices de déflagration des mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 %mol sont présentés sur la Figure 3-41. Les conclusions, concernant l'impact du rapport N_2/O_2 et de la pression initiale sur les valeurs des indices de déflagration des différents mélanges données pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 %mol, s'appliquent également à ces mélanges.

Cependant, pour ces mélanges, une augmentation de la température de 303 à 343 K semble avoir une influence nettement moins importante sur les valeurs des indices de déflagration notamment pour les mélanges à 50 kPa.

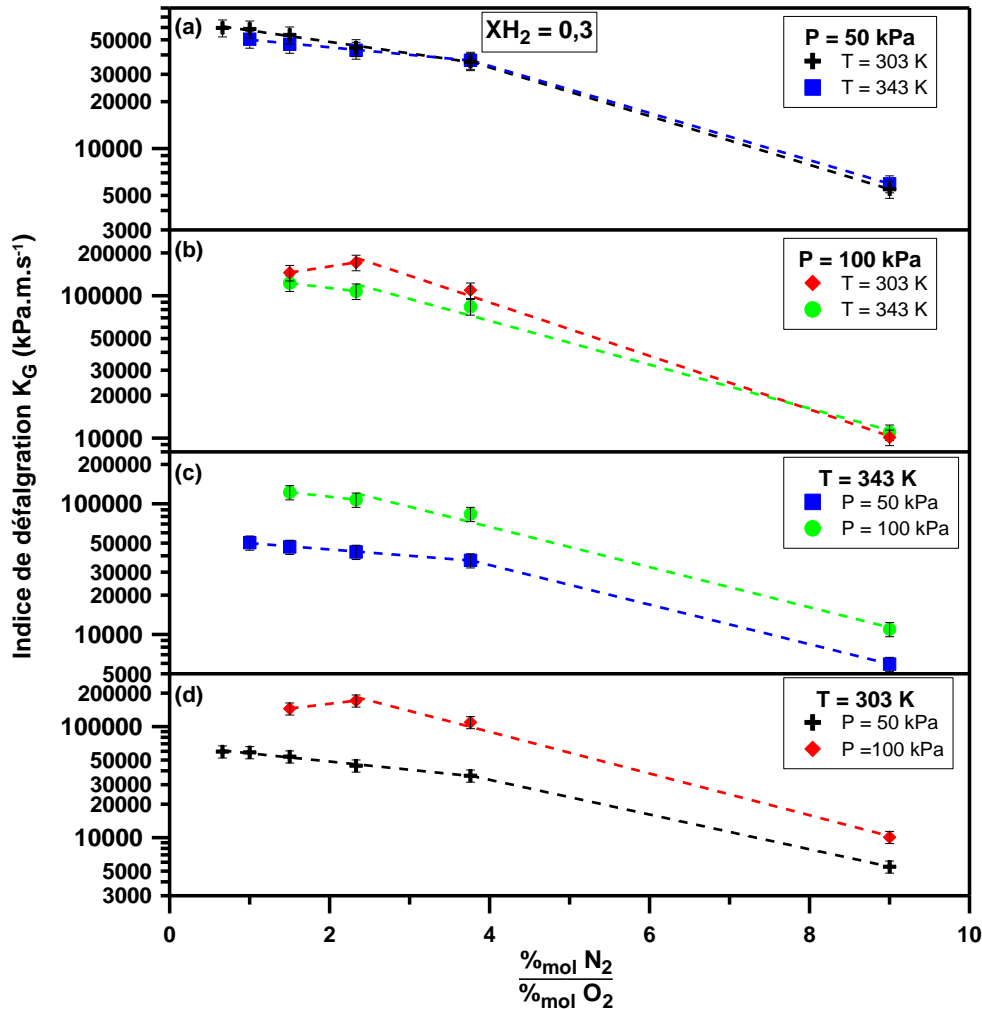


Figure 3-41 : Indice de déflagration, K_G , en fonction du rapport N_2/O_2 pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à différentes températures et différentes pressions initiales

3.3.3.2 Pour un rapport N_2/O_2 constant

Les indices de déflagration des mélanges $H_2/O_2/N_2$ en fonction de la fraction molaire en hydrogène dans le milieu pour différents rapports molaires N_2/O_2 sont représentés sur la Figure 3-42.

Sur tout le domaine de conditions initiales étudiées, les valeurs de K_G obtenues suivent une courbe en forme de cloche avec des maxima de valeurs obtenus pour différentes teneurs en H_2 selon le rapport N_2/O_2 . Pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 de 9, ces maxima sont obtenus pour des mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 %mol, ceux-ci se décalent vers des quantités d'hydrogène plus importantes avec la diminution du rapport N_2/O_2 ; pour

des mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 ou 40 % mol quand le rapport N_2/O_2 est égal à 3,76 puis vers des teneurs en hydrogène de 40 ou 50 % mol quand N_2/O_2 atteint 2,33.

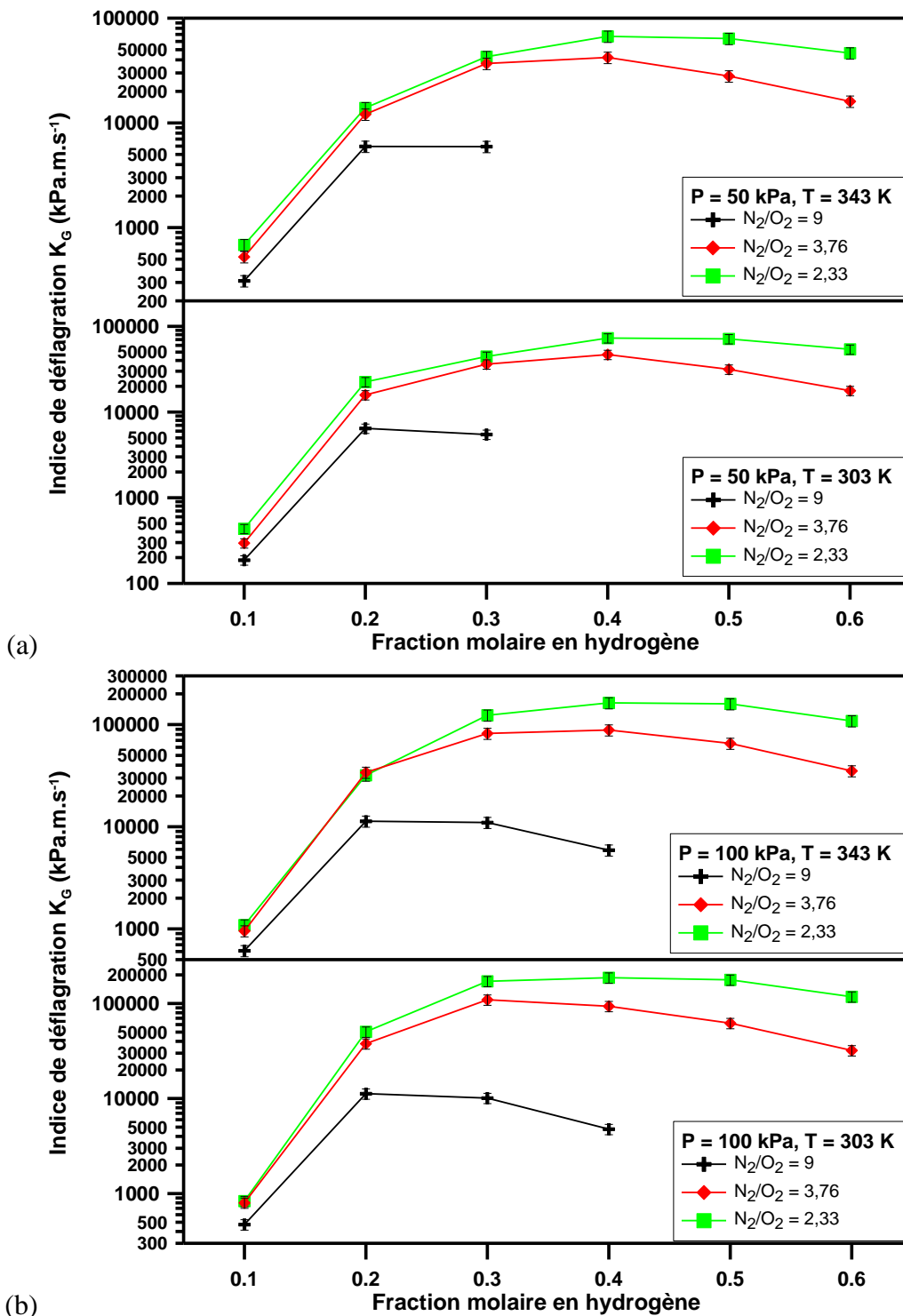


Figure 3-42 : Indice de déflagration, K_G , en fonction de la fraction molaire en hydrogène (X_{H_2}) pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures initiales : (a) pour une pression initiale de 50 kPa ; (b) pour une pression initiale de 100 kPa

Ces maxima sont obtenus pour les mélanges où le compromis entre les valeurs maximales de P_{MAX} (obtenues pour des mélanges proches de la stœchiométrie) et les valeurs minimales de temps de combustion (obtenues pour les mélanges avec les vitesses de flamme les plus rapides) est le meilleur. Par exemple, pour les mélanges avec un rapport molaire N_2/O_2 égal à 3,76 à 50 kPa et 303 K, l'indice de déflagration est maximal pour le mélange avec une teneur en hydrogène de 40 %mol. Si on compare avec les résultats obtenus précédemment, ces mêmes mélanges admettent un maximum de P_{MAX} pour le mélange avec une teneur en hydrogène de 30 %mol et un maximum de S_L° pour le mélange avec une teneur en hydrogène de 40 %mol.

Pour une teneur en H_2 donnée, une diminution du rapport N_2/O_2 provoque une augmentation de K_G , celle-ci s'expliquant par l'augmentation de la réactivité du mélange avec l'augmentation de la quantité d'oxygène dans le milieu. Par exemple, à 100 kPa, 343 K et pour une teneur en hydrogène de 40 %mol, une diminution du rapport N_2/O_2 de 9 à 2,33 en passant par 3,76 conduit à une augmentation de l'indice de déflagration de 5,9 à 88 puis à 163 MPa.m.s⁻¹.

3.4 Conclusion

Ce troisième chapitre présente les résultats obtenus lors de l'étude de la combustion des mélanges $H_2/O_2/N_2$ dans une enceinte sphérique fermée. L'objectif de cette étude était de déterminer les paramètres d'explosivité de ces mélanges nécessaires à la sûreté de l'installation ITER. Ces paramètres ont été mesurés pour des mélanges ayant une teneur en hydrogène comprise entre 20 et 60 %mol et un rapport molaire N_2/O_2 compris entre 0,66 et 9. Cette étude a été réalisée pour deux températures initiales : 303 et 343 K et pour deux pressions initiales : 50 et 100 kPa.

Dans une première partie, les différents régimes de propagation de flamme observés au cours de l'étude sont présentés. Ceux-ci sont au nombre de trois : flammes avec une propagation ascendante, flammes sphériques lisses puis devenant cellulaires au cours de l'observation et flammes sphériques lisses. Ces différents régimes de propagation sont associés aux nombre de Lewis des mélanges. Les flammes ascendantes ou cellulaires, pauvres en combustible, sont caractérisées par un nombre de Lewis de l'hydrogène inférieur à 1 et elles deviennent plus rapidement plissées en raison de la diffusion de l'hydrogène qui est plus rapide que la diffusion thermique : les instabilités thermo-diffusives sont ainsi favorisées. Tout comme les flammes lisses, elles sont en grande majorité, riches en combustible et avec l'oxygène en tant que réactif limitant qui admettent un nombre de Lewis de l'oxygène supérieur à 1.

La deuxième partie de ce chapitre concerne l'étude des vitesses fondamentales de flamme laminaire et l'étude des longueurs de Markstein. Ces deux types de données sont déterminés à partir de la mesure du rayon de la flamme se propageant au cours du temps. Deux méthodes de dérivation (linéaire et non-linéaire) de la vitesse de flamme et de la longueur de Markstein ont été comparées pour leurs déterminations. La méthode d'extraction

linéaire, étant une approximation de la méthode non-linéaire, fait apparaître dans certains cas des erreurs importantes notamment au niveau de la détermination de la longueur de Markstein. Ce sont donc les résultats obtenus par la méthode non-linéaire qui ont été retenus.

La troisième partie de ce chapitre concerne la comparaison des vitesses de flamme expérimentales avec celles obtenues par la simulation de trois mécanismes cinétiques détaillés. Cette comparaison nous a permis de déterminer que le modèle de Mével est le plus adapté à notre domaine d'expérience avec une erreur moyenne de 5,88 %. Ce modèle est le seul parmi les trois testés à contenir des espèces azotés dans son mécanisme cinétique. C'est donc à partir de ce mécanisme que sont calculés les énergies d'activation et les nombres de Zel'dovich des mélanges $H_2/O_2/N_2$.

Les études sur les vitesses fondamentales de flammes expérimentales et simulées nous ont permis de tirer des corrélations permettant de déterminer facilement les valeurs des vitesses de flamme, des énergies d'activation et des nombres de Zel'dovich en fonction des conditions initiales et dans la gamme de température et de pression initiales étudiées.

La dernière partie concerne l'étude des paramètres d'explosivité tels que le temps de combustion, t_C , la pression maximale de combustion, P_{MAX} , et l'indice de déflagration, K_G . Pour ces expériences, une augmentation de la température initiale conduit à une diminution du temps de combustion (la réactivité du milieu augmente), de la pression maximale de combustion (la masse volumique du mélange diminue) et de l'indice de déflagration. À l'inverse une augmentation de la pression initiale de 50 à 100 kPa conduit à une augmentation de la pression maximale de combustion et de l'indice de déflagration.

Cette étude de référence concernant les mélanges monophasiques $H_2/O_2/N_2$ est complétée par la suite par l'étude des mélanges diphasiques hydrogène-poussières métalliques-oxygène-azote pour des conditions initiales similaires et dans une installation expérimentale semblable. Cette deuxième partie de l'étude est également nécessaire à l'étude de sûreté de l'installation ITER.

CHAPITRE 4 : COMBUSTION DES MÉLANGES DIPHASIQUES

4 Combustion des mélanges diphasiques

Le quatrième et dernier chapitre de ce travail concerne l'étude des mélanges diphasiques hydrogène - poussières micrométriques (carbone graphite ou tungstène) - oxygène - azote. Ce chapitre est divisé en deux parties : les mélanges avec les poussières de graphite sont présentés dans la première partie et les mélanges avec les poussières de tungstène dans la deuxième partie de ce chapitre. Toutes ces expériences ont été réalisées dans la bombe sphérique de 8 L pour des températures initiales de 298 ± 2 K.

Pour chaque mélange, caractérisé par la fraction molaire en hydrogène, l'impact de la masse de poussières injectées sur les propriétés d'explosion est étudié.

4.1 Mélanges H₂/C(graphite)/O₂/N₂

La première partie de ce chapitre concerne l'étude des mélanges à base d'hydrogène et de poussières de graphite. L'étude de ces mélanges a été réalisée pour des pressions initiales de 50 ± 2 et 100 ± 2 kPa avec trois systèmes d'inflammation différents : deux systèmes à base d'étincelles électriques avec des énergies d'inflammation délivrées de respectivement 1 à 2 mJ (système noté ultérieurement **étincelle A**) et 15 à 20 mJ (système noté ultérieurement **étincelle B**) et le troisième par claquage laser avec une énergie délivrée de l'ordre de 60 mJ.

Les résultats obtenus pour les mélanges sont présentés en fonction de leur teneur, exprimée en % molaire, en hydrogène : 10, 20 et 30 % mol.

Les caractéristiques thermocinétiques de ces mélanges sont données dans l'annexe E.

4.1.1 Caractérisation des produits de combustion

Une combustion conjointe d'hydrogène et de graphite conduit à la formation de CO et de CO₂ tandis que la combustion de l'hydrogène seule ne produit que de la vapeur d'eau. Ainsi, la connaissance des gaz de combustion permettra d'identifier, sans ambiguïté, les cas où l'on a la combustion des deux phases et les cas où seul l'hydrogène brûle.

L'étude des produits issus de la combustion est réalisée de manière théorique, calculée à partir de la thermodynamique, et de manière expérimentale, mesurée par chromatographie en phase gazeuse.

Les résultats sur toute cette partie sont présentés, pour une teneur en hydrogène donnée, à une pression initiale de 50 ou 100 kPa. Il faut noter que la pression n'influe pas sur les tendances déterminées ici.

4.1.1.1 Composition théorique des produits de combustion

La détermination de la composition théorique des gaz de combustion, à la température adiabatique de flamme, est réalisée avec le module Equilibrium Calculations du logiciel COSILAB qui permet le calcul de l'évolution thermodynamique de mélanges diphasiques.

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol (Tableau 4-1), l'introduction de particules de graphite dans le milieu initial conduit à la formation de CO et de CO₂ dans les produits de combustion. La présence de CO₂ est maximale pour une concentration en graphite de 50,1 g/m³ (8,82 %mol). Pour des quantités de graphite plus importantes, c'est le CO qui devient présent en très grande quantité (jusqu'à 30 %mol). Ceci montre le fait que la combustion des particules n'est pas complète et celle-ci s'arrête au CO. La quantité d'eau, issue de la combustion de l'hydrogène, elle diminue avec l'augmentation de la concentration en graphite dans le milieu. Cela s'explique par la non-combustion de l'hydrogène quand les particules de graphite sont présentes dans le milieu. En effet, la quantité d'hydrogène retrouvée dans le milieu augmente avec la concentration en graphite (jusqu'à 8,29 %mol). La thermodynamique montre, que dans un mélange où l'hydrogène et les particules de graphite brûlent simultanément, que la combustion des particules de graphite est favorisée par rapport à la combustion de l'hydrogène.

XH ₂ = 0,1							
Rapport N ₂ /O ₂	3,76				2,33		
[Graphite] (g/m ³)	0	17,1	50,1	108,8	0	36,7	108,8
Composition molaire des produits de combustion							
CO ₂ (% mol)	0	7,10	8,82	0,03	0	12,77	4,29
O ₂ (% mol)	14,37	6,78	0,07	0	22,89	6,99	0
N ₂ (% mol)	74,65	74,19	69,86	56,83	66,11	63,78	53,35
CO (% mol)	0	0,09	10,57	30,15	0	2,63	33,27
H ₂ (% mol)	0	0,03	1,58	8,29	0	0,30	4,72
H ₂ O (% mol)	10,93	10,74	8,39	0,03	10,94	9,58	3,86
C(s) (% mol)	0	0	0	4,67	0	0	0

Tableau 4-1 : Composition molaire des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 10 %mol à P_{INI} = 50 kPa et T_{INI} = 298 K

Les résultats pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 %mol (Tableau 4-2) et 30 %mol (Tableau 4-3) corroborent ceux présentés précédemment. En effet, dès que les particules de graphite sont présentes dans le milieu initial et que leur concentration augmente, du CO et du CO₂ sont trouvés dans les produits de combustion en quantité de plus en plus importantes. À l'inverse de la quantité d'eau, preuve que la combustion de l'hydrogène, diminue avec l'augmentation de la quantité de particules de graphite. À titre d'exemple, la quantité d'eau retrouvée dans les produits de combustion, pour un mélange H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 20 %mol et un rapport N₂/O₂ = 3,76 à 100 kPa, diminue de 22,70 à 0,06 %mol quand la concentration en particules de graphite augmente de 0 à 206,6 g/m³. Ceci est confirmé par l'hydrogène qui voit sa présence, dans les produits de combustion, augmentée de 0,05 à 16,44 %mol dans le même cas.

XH ₂ = 0,2									
Rapport N ₂ /O ₂	3,76						2,33		
[Graphite] (g/m ³)	0	24,5	81,9	94,1	162,6	206,6	0	96,6	199,3
Composition molaire des produits de combustion									
CO ₂ (% mol)	0	4,50	3,71	3,16	0,37	0,04	0	8,23	1,82
O ₂ (% mol)	6,59	1,68	0	0	0	0	14,40	0,64	0
N ₂ (% mol)	69,41	68,62	62,66	61,19	54,18	50,21	61,30	56,18	47,50
CO (% mol)	0	0,95	12,87	15,44	27,30	26,57	0	11,57	32,93
H ₂ (% mol)	0,05	0,70	7,51	9,30	17,05	16,44	0,03	3,19	13,38
H ₂ O (% mol)	22,70	21,41	12,96	10,76	0,78	0,06	22,70	16,49	4,19
C(s) (% mol)	0	0	0	0	0,32	6,67	0	0	0

Tableau 4-2 : Composition molaire des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

XH ₂ = 0,3									
Rapport N ₂ /O ₂	3,76						2,33		
[Graphite] (g/m ³)	0	24,5	47,7	86,8	158,9	204,2	0	75,8	196,8
Composition molaire des produits de combustion									
CO ₂ (% mol)	0	1,76	2,00	1,64	0,13	0,05	0	4,33	0,55
O ₂ (% mol)	0,56	0,03	0	0	0	0	5,92	0,13	0
N ₂ (% mol)	63,52	60,99	58,24	53,89	47,25	43,82	55,96	51,02	41,45
CO (% mol)	0	3,68	8,09	15,35	24,51	23,07	0	11,64	32,66
H ₂ (% mol)	2,70	7,79	12,45	19,01	25,12	23,46	0,95	8,16	23,44
H ₂ O (% mol)	30,88	24,66	18,78	10,04	0,36	0,13	32,30	21,76	1,81
C(s) (% mol)	0	0	0	0	2,62	9,45	0	0	0,05

Tableau 4-3 : Composition molaire des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

4.1.1.2 Analyse expérimentale des gaz de combustion et calcul de la masse de graphite brûlé

Une analyse des gaz de la combustion par chromatographie en phase gazeuse, la description est donnée dans le chapitre 2 (cf. 2.1.3.2.1), a été réalisée pour ces mélanges. Ces analyses nous donnent la composition des gaz brûlés refroidis. Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol (Tableau 4-4), sur tout le domaine d'expériences réalisées, les résultats montrent que le CO et le CO₂, résultants de la combustion d'une particule de graphite, n'ont jamais été détectés, ce qui amène à la conclusion que pour ces mélanges, les

poussières de graphite ne brûlent pas, contrairement à ce qui a été observé pour les résultats des calculs à l'équilibre.

Cette différence s'explique par le fait que les calculs thermodynamiques considèrent que l'hydrogène et le graphite brûlent simultanément ce qui n'est pas le cas expérimentalement. En effet, l'énergie d'inflammation fournie dans le milieu n'est pas suffisamment importante pour permettre l'inflammation des particules seules, la combustion des poussières pour nos mélanges ne pouvant être que concomitantes à une explosion d'hydrogène.

L'hydrogène n'est pas présent dans les produits de combustion ce qui montre que, sur l'ensemble du domaine, sa combustion est complète.

On observe une différence avec les résultats obtenus par Denkevits [112]. En effet, pour des mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol, celui-ci observe une combustion des particules de poussières. Cette différence peut s'expliquer par des différences dans la méthode de dispersion utilisée (la méthode d'injection des poussières de Denkevits conduit à un milieu plus turbulent) et dans l'énergie d'inflammation (les énergies d'inflammation utilisées par Denkevits au vu des caractéristiques données semblent plus importantes).

XH ₂ = 0,1							
Rapport N ₂ /O ₂	3,76				2,33		
[Graphite] (g/m ³)	0	17,1	50,1	108,9	0	36,7	108,8
Résultats GC pour les gaz brûlés							
CO ₂ (% mol)	0	0	0	0	0	0	0
O ₂ (% mol)	16,48	16,51	16,63	16,52	24,29	24,64	25,01
N ₂ (% mol)	80,72	81,56	81,74	81,35	72,56	73,03	74,06
CO (% mol)	0	0	0	0	0	0	0
H ₂ (% mol)	0,04	0,03	0	0	0	0	0

Tableau 4-4 : Composition des gaz brûlés obtenues par CPG pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 10 %mol à P_{INI} = 50 kPa et T_{INI} = 298 K

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 %mol (Tableau 4-5) et 30 %mol (Tableau 4-6), du CO et du CO₂ sont présents dans les produits de combustion, ce qui prouve la combustion des particules de graphite.

Dès que le graphite est présent dans le milieu, on observe du CO₂ dans les gaz brûlés. De plus, sa concentration dans les gaz brûlés augmente avec la concentration en particules de graphite dans le milieu initial. On observe même pour certains mélanges avec une teneur en H₂ de 20 %mol (pour des milieux très concentrés en particules de graphite : [Graphite] = 150 - 200 g/m³), la présence de CO et même de l'hydrogène restant. Pour les mélanges avec une

teneur en H₂ de 30 % mol (Tableau 4-6), le CO apparaît dès que les particules de graphite sont présentes. Cependant pour tous ces mélanges, les quantités mesurées sont beaucoup plus faibles que celles obtenues par les calculs à l'équilibre.

Pour les mélanges avec une teneur en H₂ de 30 % mol et pour un rapport N₂/O₂ = 3,76, l'hydrogène est présent dans les produits de combustion (jusqu'à 9,18 % mol), cependant dans des quantités plus faibles que celles obtenues par les calculs à l'équilibre. L'étude des résultats pour ces deux dernières séries de mélanges montre que la combustion des particules de graphite est initiée par celle de l'hydrogène, seule une partie de l'hydrogène ayant besoin d'être brûlé pour que le graphite s'enflamme. Une fois que le graphite commence à brûler, il existe alors une compétition entre l'hydrogène et les particules de graphite pour réagir avec l'oxygène.

XH ₂ = 0,2									
Rapport N ₂ /O ₂	3,76						2,33		
[Graphite] (g/m ³)	0	24,5	81,9	94,1	162,6	206,6	0	96,6	199,3
Résultats GC pour les gaz brûlés									
CO ₂ (% mol)	0	2,19	5,17	5,57	6,48	7	0	7,85	9,53
O ₂ (% mol)	9,59	7,09	5,97	4,36	3,12	2,36	18,73	10,51	8
N ₂ (% mol)	90,48	87,21	86,08	89,9	89,37	86,56	80,79	81,04	77,31
CO (% mol)	0	0	0	0	0,28	0,5	0	0	0
H ₂ (% mol)	0	0	0	0	0	0,21	0	0	0

Tableau 4-5 : Composition des gaz brûlés obtenues par CPG pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

XH ₂ = 0,3									
Rapport N ₂ /O ₂	3,76						2,33		
[Graphite] (g/m ³)	0	24,5	47,7	86,8	158,9	204,2	0	75,8	196,8
Résultats GC pour les gaz brûlés									
CO ₂ (% mol)	0	1,45	1,72	1,92	1,92	2,06	0	8,56	8,47
O ₂ (% mol)	1,17	1,28	1,36	1,46	1,53	1,33	8,54	0,36	0,06
N ₂ (% mol)	94,94	86	84,65	83,09	82,88	82,16	89,46	77,19	79,48
CO (% mol)	0	1,2	1,43	1,88	1,89	2,15	0	4,3	3,1
H ₂ (% mol)	2,71	7,04	7,39	8,31	8,37	9,18	0	4,85	3,67

Tableau 4-6 : Composition des gaz brûlés obtenues par CPG pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

À partir des résultats de l'analyse expérimentale des gaz brûlés, il est possible d'estimer la quantité de particules de graphite qui a brûlé dans le mélange.

À partir de la composition et des conditions initiales du mélange donné, il est possible de connaître les nombres de moles (représentée ultérieurement par la lettre n) des espèces concernés : l'hydrogène, l'oxygène, l'azote (pour ces espèces, on utilise la loi des gaz parfaits) et le graphite solide (pour le graphite, on divise la masse injectée par la masse molaire du graphite). Ces nombres de moles sont calculés pour un volume correspondant au volume de la bombe sphérique soit 8,18 L. Ils sont ramenés à un volume de 1 L, volume dans lequel sont analysés les gaz brûlés.

Pour exemple concret prenons le mélange suivant, qui est nommé par la suite mélange test 1 : Pression initiale : 103 kPa ; Température initiale : 299 K ; $X_{H_2} = 0,3$; Rapport molaire $N_2/O_2 = 3,76$ et masse de graphite injectée : 1,67 g. À partir des données tirées de la calibration des débitmètres, il est possible de déterminer exactement la fraction molaire en hydrogène dans le milieu soit une fraction molaire en H_2 de 0,2988. On détermine alors les quantités de matières des quatre composés. Les résultats sont présentés dans le Tableau 4-7.

	Hydrogène, $H_2(g)$	Oxygène, $O_2(g)$	Azote, $N_2(g)$	Graphite, $C(s)$
n dans la bombe de 8,18 L (mol)	0,1012	0,0499	0,1877	0,1392
n ramené à un volume de 1 L (mol)	0,0124	0,0061	0,0229	0,0170

Tableau 4-7 : Quantités de matières initiales, n (en moles), de chaque espèce présente dans le mélange test 1.

Une analyse des gaz brûlés par chromatographie en phase gazeuse a été réalisée et nous permet de déterminer la composition de ces gaz. Les gaz analysés sont les suivants : H_2 , O_2 , N_2 , CO et CO_2 . L'eau est considérée, par approximation, comme étant entièrement condensée et sous phase liquide et donc non comprise dans l'analyse des gaz brûlés.

À partir de la composition de ces gaz brûlés et de la pression à l'intérieur du ballon utilisé pour la chromatographie, il est possible de déterminer les quantités de matière des gaz brûlés (hors condensation de l'eau). Les résultats sont présentés dans le Tableau 4-8.

	CO_2	O_2	N_2	CO	H_2
Fraction molaire dans les gaz brûlés (hors H_2O) (% mol)	2,06	1,33	82,16	2,15	9,18
n dans les gaz brûlés (hors H_2O) (mol)	5,202E-4	3,358E-4	2,075E-2	5,429E-4	2,318E-3

Tableau 4-8 : Composition des gaz brûlés (hors vapeur d'eau condensée) du mélange test 1.

La quantité d'eau présente dans les gaz brûlés peut se calculer à partir de la différence entre la quantité de matière d'hydrogène présente dans le milieu initial (pour un volume de 1 L) et la quantité de matière d'hydrogène présente dans les gaz brûlés, avec l'hypothèse qu'une mole d'hydrogène réagissant donne une mole d'eau. La même chose peut être faite avec les espèces azotées (NO, NO₂ et N₂O) en calculant la même différence, cependant cette fois pour l'azote.

Ces calculs nous permettent de déterminer approximativement la composition des gaz brûlés en tenant compte de l'eau. Les résultats pour le mélange test 1 sont donnés dans le Tableau 4-9.

	CO ₂	O ₂	N ₂	CO	H ₂	H ₂ O	NO _x
Composition des produits issus de la combustion (% mol)	1,401	0,905	55,891	1,463	6,245	27,202	6,894

Tableau 4-9 : Composition des produits issus de la combustion, vapeur d'eau condensée comprise, du mélange test 1.

La détermination de la quantité de particules de graphite brûlé se fait par le rapport entre la somme des quantités de matières de CO et de CO₂ présents dans les produits de combustion, vapeur d'eau condensée comprise, et la quantité de matière de graphite présente au départ, en émettant l'hypothèse que le graphite lors de sa combustion se transforme seulement en CO et en CO₂.

Dans le cas du mélange test 1, la quantité de graphite brûlé et transformé en CO et en CO₂ est de 6,25 %. Ce faible taux de transformation du graphite en CO et/ou CO₂ est dû à une oxydation incomplète des particules de graphite présentes dans le milieu.

Comme attendu, la quantité de particules de graphite pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol (Tableau 4-12) est nulle.

Pour les deux autres séries de mélanges : teneur en hydrogène de 20 %mol (Tableau 4-11) et teneur en hydrogène de 30 %mol (Tableau 4-12), le pourcentage de graphite transformé en CO et CO₂ diminue avec l'augmentation de la concentration en graphite dans le milieu. Néanmoins, la masse de graphite brûlé augmente avec la concentration en graphite. Pour ces mélanges présentés, une diminution du rapport N₂/O₂ dans le milieu conduit à une augmentation de la quantité de graphite brûlée en CO et CO₂.

Pour les mélanges à N₂/O₂ = 3,76, la combustion des particules de graphite est plus importante pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 %mol (Tableau 4-11) que pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 %mol (Tableau 4-12). Cette baisse de la combustion des particules de graphite avec l'augmentation de la quantité en hydrogène dans le milieu peut s'expliquer par la compétition plus importante qui règne entre ces deux molécules pour réagir avec l'oxygène une fois que les particules de graphite ont commencé à s'enflammer. Pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ = 2,33, l'oxygène est présent en quantité supérieure dans le mélange initial, et les résultats obtenus pour ces deux séries de

mélanges sont très proches malgré un meilleur rendement de combustion des particules de graphite pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 % mol.

XH ₂ = 0,1							
Rapport N ₂ /O ₂	3,76				2,33		
[Graphite] (g/m ³)	0	17,1	50,1	108,8	0	36,7	108,8
Composition molaire des produits de combustion							
CO ₂ (% mol)	0	0	0	0	0	0	0
O ₂ (% mol)	15,12	14,93	14,78	14,94	22,35	22,52	22,56
N ₂ (% mol)	74,05	73,78	72,66	73,56	66,78	66,73	66,80
CO (% mol)	0	0	0	0	0	0	0
H ₂ (% mol)	0,04	0,03	0	0	0,01	0	0
H ₂ O (% mol)	10,79	10,82	10,87	10,85	10,82	10,76	10,65
NO _x (% mol)	0	0,43	1,66	0,62	0	0	0
Graphite transformé en CO et CO ₂							
% de graphite	0	0	0	0	0	0	0
Masse (en g) de graphite	0	0	0	0	0	0	0

Tableau 4-10 : Composition des produits de combustion et mesure de la quantité de graphite transformé en CO et CO₂ pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 10 %mol à P_{INI} = 50 kPa et T_{INI} = 298 K

XH ₂ = 0,2									
Rapport N ₂ /O ₂	3,76						2,33		
[Graphite] (g/m ³)	0	24,5	81,9	94,1	162,6	206,6	0	96,6	199,3
Composition molaire des produits de combustion									
CO ₂ (% mol)	0	1,75	4,08	4,34	5,05	5,55	0	6,08	7,58
O ₂ (% mol)	7,65	5,67	4,71	3,40	2,43	1,87	14,68	8,14	6,36
N ₂ (% mol)	69,76	69,73	67,96	70,01	69,66	68,63	62,50	62,79	61,49
CO (% mol)	0	0	0	0	0,22	0,40	0	0	0
H ₂ (% mol)	0	0	0	0	0	0,17	0	0	0,02
H ₂ O (% mol)	22,59	22,86	22,57	22,26	22,64	22,65	22,82	22,99	23,27
NO _x (% mol)	0	0	0,68	0	0	0,74	0	0	1,27
Graphite transformé en CO et CO ₂									
% de graphite	0	32,01	22,56	21,15	14,85	12,97	0	28,17	16,57
Masse (en g) de graphite	0	0,064	0,151	0,163	0,198	0,219	0	0,223	0,27

Tableau 4-11 : Composition des produits de combustion et mesure de la quantité de graphite transformé en CO et CO₂ pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

XH ₂ = 0,3									
Rapport N ₂ /O ₂	3,76						2,33		
[Graphite] (g/m ³)	0	24,5	47,7	86,8	158,9	204,1	0	75,8	196,8
Composition molaire des produits de combustion									
CO ₂ (% mol)	0	1,01	1,19	1,320	1,32	1,40	0	5,85	5,56
O ₂ (% mol)	0,81	0,89	0,94	1,00	1,05	0,91	5,65	0,245	0,04
N ₂ (% mol)	65,30	59,810	58,44	57,07	56,90	55,89	59,22	52,76	52,20
CO (% mol)	0	0,84	0,99	1,29	1,30	1,46	0	2,94	2,04
H ₂ (% mol)	1,86	4,90	5,10	5,71	5,75	6,25	0	3,32	2,41
H ₂ O (% mol)	32,03	29,19	28,85	28,07	28,10	27,20	35,13	32,45	32,54
NO _x (% mol)	0	3,38	4,49	5,54	5,68	6,89	0	2,44	5,29
Graphite transformé en CO et CO ₂									
% de graphite	0	32,84	20,02	13,27	7,26	6,25	0	47,81	16,56
Masse (en g) de graphite	0	0,066	0,078	0,094	0,094	0,104	0	0,296	0,267

Tableau 4-12 : Composition des produits de combustion et mesure de la quantité de graphite transformé en CO et CO₂ pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

4.1.2 Évolution de la pression dans l'enceinte

La deuxième partie de l'étude des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite concerne l'évolution de la pression dans l'enceinte au cours du temps. Celle-ci est très importante car c'est à partir de cette évolution que sont déterminés les paramètres d'explosivités des mélanges tels que le temps de combustion t_C, la pression maximale de combustion P_{MAX} et l'indice de déflagration K_{ST}.

Il est important de connaître les paramètres pouvant influencer cette évolution pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite en fonction de leur teneur en hydrogène.

L'évolution de la pression des mélanges H₂/O₂/N₂ sans particules de graphite, avec une teneur en H₂ de 10 %mol, dans l'enceinte au cours du temps est présentée sur la Figure 4-1 afin de tester la répétabilité des expériences.

Il est nécessaire de refaire des expériences pour les mélanges sans poussières sans tenir compte de celles réalisées dans le chapitre précédent pour trois raisons : l'enceinte est plus petite (8,18 L au lieu de 56 L), l'introduction des gaz est différente et l'inflammation des mélanges est différente.

Lorsque l'énergie d'allumage est faible (source A : 1 à 2 mJ) les maxima de pression sont obtenues pour des temps variant de 258 à 298 ms soit une variation de près de 15 %. Lorsque l'on augmente l'énergie d'allumage (Source B : 15 à 20 mJ), cette variation est encore plus importante (maxima de pression atteint pour des temps allant de 196 à 265 ms). De plus, la flamme se propage préférentiellement dans une direction ascendante. De même, la

pression maximale mesurée est inférieure à la P_{AICC} . Aussi, a-t-on pour ces flammes, des maxima de pression et des temps de combustion qui varient fortement d'une expérience à l'autre.

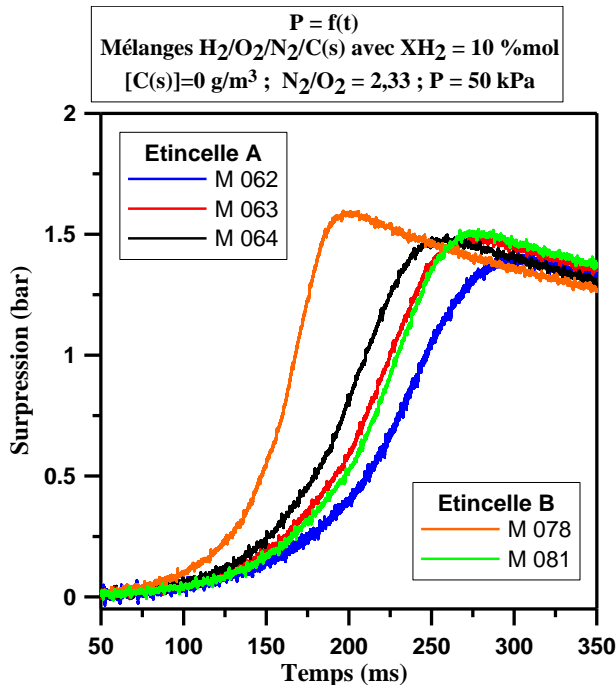


Figure 4-1 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂ avec une teneur en H₂ de 10 %mol et avec deux systèmes d'inflammation différents, pour un rapport N₂/O₂ = 2,33 à P_{INI} = 50 kPa et T_{INI} = 298 K

Pour les flammes les plus lentes, le maximum de pression dans l'enceinte est légèrement plus faible que dans le cas de flammes plus rapides. Pour ces mélanges, les temps de combustion étant longs, les pertes thermiques sont importantes, celles-ci l'étant d'autant plus que le temps de combustion est long, conduisant à des maxima de pression plus faibles.

Pour les mélanges H₂/O₂/N₂, le mélange enflammé par l'étincelle B conduit à un t_c plus court et à un maxima de pression plus élevé. En présence de poussières de graphite, l'énergie d'inflammation semble avoir moins d'impact sur le temps de combustion et donc sur la position du maximum de pression. La répétabilité des expériences est plus importante comme on peut le voir sur la Figure 4-2 dans le cas où l'on ajoute 22 g/m³ de graphite au mélange contenant initialement 10 %mol d'hydrogène.

Un changement de la source d'inflammation avec une augmentation de l'énergie d'inflammation conduit de manière générale à une diminution du temps de combustion (Figure 4-1 et Figure 4-2).

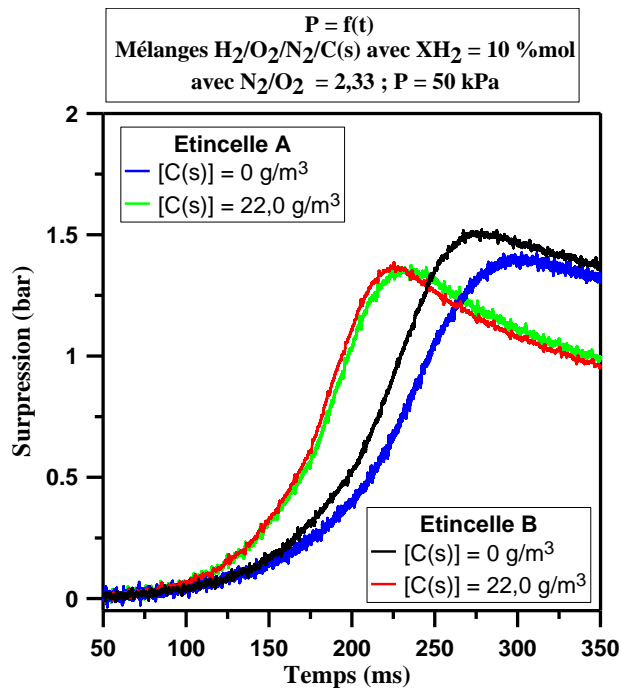


Figure 4-2 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol avec deux systèmes d'inflammation différents, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 50$ kPa et $T_{INI} = 298$ K

Une augmentation de la quantité de poussières dans le milieu pour une condition d'inflammation donnée (Figure 4-2 et Figure 4-3) conduit une baisse de maximum de pression sur tout le domaine. Ayant observé précédemment que pour ces mélanges les particules de graphite ne s'enflamment pas, celles-ci jouent le rôle de puits de chaleur ce qui augmente les pertes thermiques et donc diminue les maxima de pression mesurés.

Le rôle de la concentration en particules est différent sur le temps de combustion. En effet, lorsque des particules de graphite sont présentes dans le milieu (de 0 à $36,7$ g/m^3), celles-ci ajoutent de la turbulence au milieu ce qui conduit à une diminution du temps de combustion. Cependant, lorsque la concentration en graphite dans le milieu augmente à nouveau (de $36,7$ à $108,8$ g/m^3), les perturbations liées à la présence de particules deviennent trop importantes ce qui provoque un ralentissement de la flamme.

Une diminution du rapport N_2/O_2 (Figure 4-4) de 3,76 à 2,33 conduit à une diminution du temps de combustion sur tout le domaine étudié. Cette diminution du temps de combustion est due à une augmentation de la réactivité du mélange à cause de la présence accrue d'oxygène dans l'enceinte. Aucune différence notable n'est observée concernant l'influence du ratio N_2/O_2 sur les maxima de pression.

L'évolution de la pression des mélanges $H_2/O_2/N_2$ sans particules de graphite, avec une teneur en H_2 de 20 %mol, dans l'enceinte au cours du temps est présentée sur la Figure 4-5 afin de tester la répétabilité des expériences.

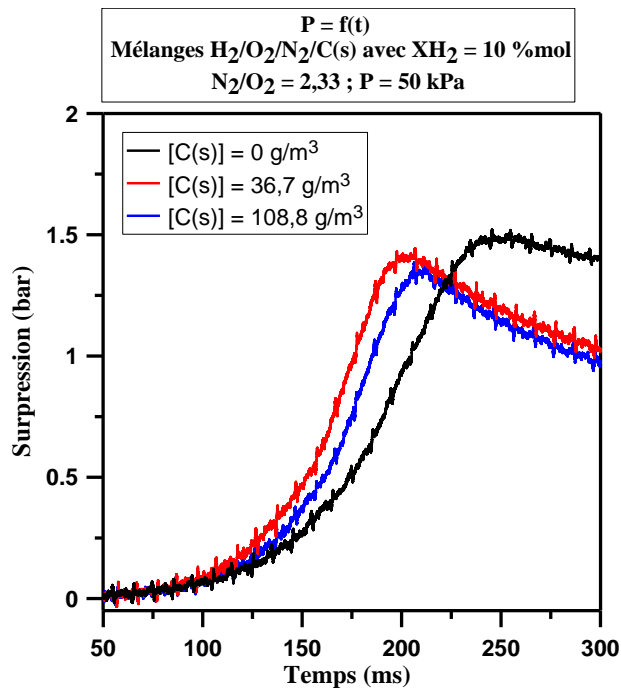


Figure 4-3 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂/C(s) avec une teneur en H₂ de 10 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport N₂/O₂ = 2,33 à P_{INI} = 50 kPa et T_{INI} = 298 K

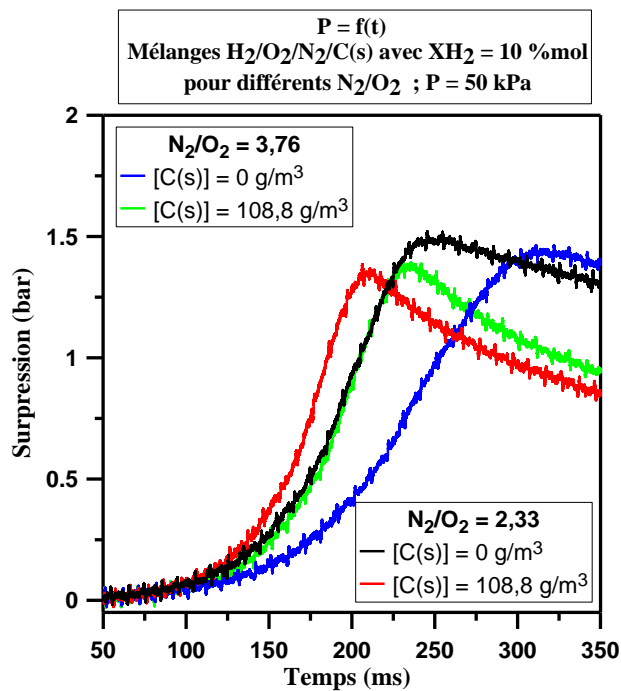


Figure 4-4 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂/C(s) avec une teneur en H₂ de 10 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite et différents rapports N₂/O₂, à P_{INI} = 50 kPa et T_{INI} = 298 K

Pour ces mélanges, la propagation de flamme se fait de manière sphérique initialement lisse puis devenant cellulaire au cours du temps (cf. 3.1.2). L'étude des évolutions de la pression dans l'enceinte au cours du temps montre une bonne répétabilité (temps de combustion et maxima de pression équivalents) des expériences et cela pour les deux systèmes d'inflammations différents (étincelle B et laser). La combustion dans ce cas est totale comme l'indiquent les analyses de gaz brûlés (Tableau 4-5).

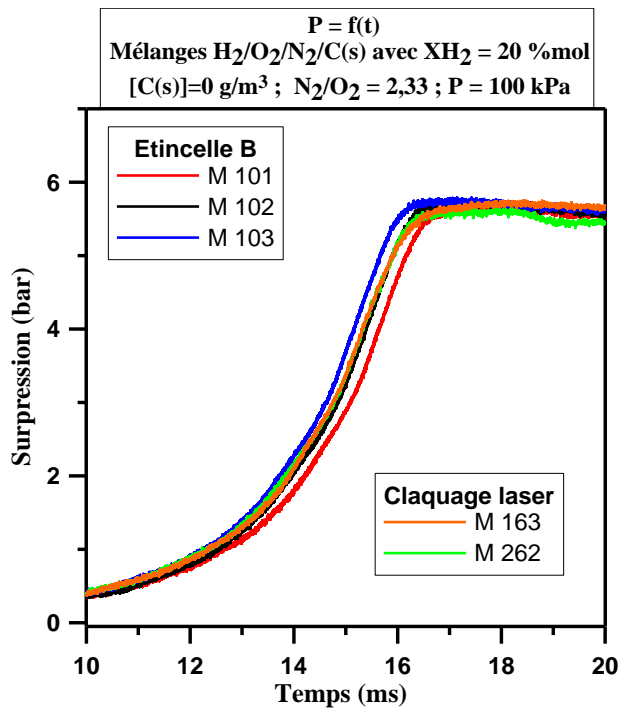


Figure 4-5 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂ avec une teneur en H₂ de 20 %mol et avec deux systèmes d'inflammation différents, pour un rapport N₂/O₂ = 2,33 à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

L'utilisation de différentes sources d'inflammation sur les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 %mol (Figure 4-5 et Figure 4-6) conduit à des valeurs de maxima de pression et de temps de combustion quasi-équivalents. En effet, à l'inverse des mélanges avec 10 %mol, la propagation de la flamme, due à la combustion de l'hydrogène, se fait de manière suffisamment rapide pour que l'influence de l'énergie d'inflammation se fasse moins ressentir.

L'injection de particules dans le milieu (Figure 4-6 et Figure 4-7) conduit à une augmentation du temps de combustion et à une augmentation des maxima de combustion dans le mélange H₂/O₂/N₂/Graphite. En effet, pour ces mélanges, comme vu précédemment (Tableau 4-5), les particules de graphite brûlent. Pour tous ces mélanges, l'hydrogène brûle entièrement et l'augmentation de la pression est liée à la production de CO et de CO₂ lors de la combustion du graphite

La présence de graphite dans le milieu pour un large domaine de concentration (de 96,6 à 326,4 g/m³) conduit à une forme de pic de pression différente (Figure 4-7). En effet, après une première montée en pression semblable à celles des mélanges H₂/O₂/N₂ (mais plus rapide à cause de la turbulence générée par la combustion du graphite), la pression augmente à nouveau légèrement pendant un laps de temps assez long par rapport à la première montée (environ 5 à 10 ms pour une première montée d'environ 15 à 20 ms) et conduit à des valeurs de temps de combustion plus élevées. Ce comportement peut s'expliquer par la combustion des poussières plus longue et qui contribue à apporter une surpression supplémentaire dans l'enceinte.

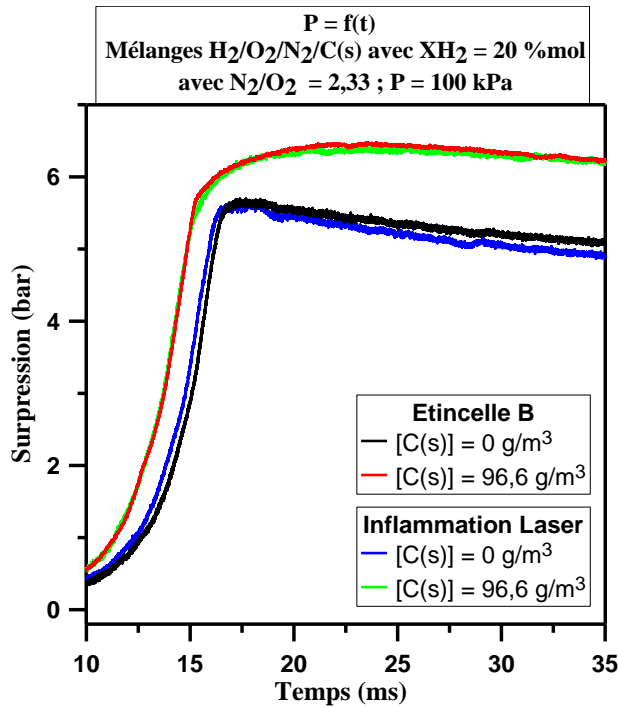


Figure 4-6 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 20 %mol avec deux systèmes d'inflammation différents, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K

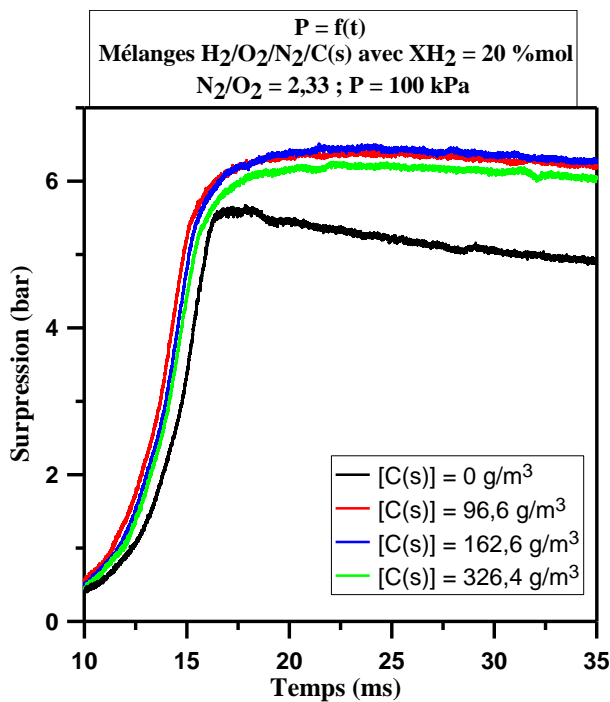


Figure 4-7 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/C(s)$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K

Une diminution du rapport N_2/O_2 (Figure 4-8) de 3,76 à 2,33 conduit à une diminution sur tout le domaine étudié du temps de combustion. Cette diminution du temps de combustion est due à une augmentation de la réactivité du mélange à cause de la présence accrue d'oxygène dans l'enceinte. Présence qui conduit également à une augmentation des maxima de pression, pour une concentration en graphite donnée, quand le rapport N_2/O_2 diminue de 3,76 à 2,33.

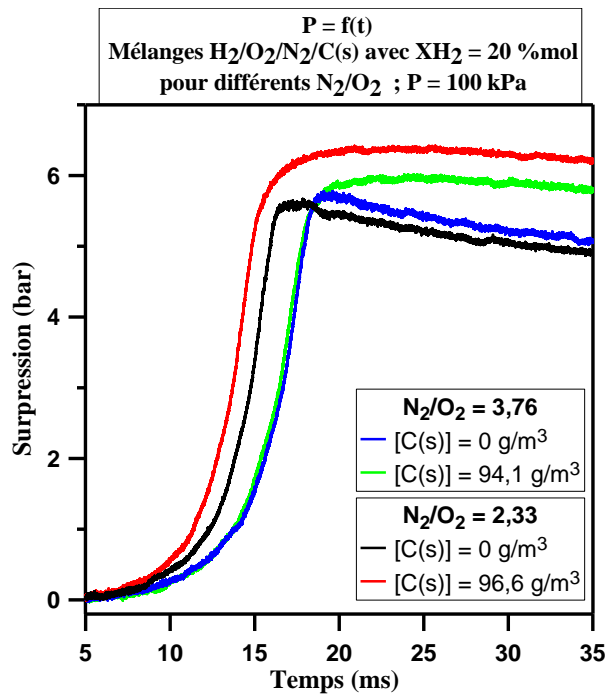


Figure 4-8 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂/C(s) avec une teneur en H₂ de 20 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite et différents rapports N₂/O₂, à $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$ et $T_{INI} = 298 \text{ K}$

L'évolution de la pression des mélanges H₂/O₂/N₂ sans particules de graphite, avec une teneur en H₂ de 30 %mol, dans l'enceinte au cours du temps est présentée sur la Figure 4-9 afin de tester la répétabilité des expériences.

Pour ces mélanges, la propagation de flamme se fait de manière sphérique lisse (cf. 3.1.3). L'étude des évolutions de la pression dans l'enceinte au cours du temps montre une bonne répétabilité (temps de combustion et maxima de pression équivalents) des expériences et cela pour les deux systèmes d'inflammations différents (étincelle B et laser).

L'utilisation de différentes sources d'inflammation sur les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 30 %mol (Figure 4-9 et Figure 4-10) conduit à des valeurs de maxima de pression et de temps de combustion quasi-équivalents (on observe une légère diminution du temps de combustion quand le mélange est enflammé avec le laser). En effet, tout comme les mélanges avec 20 %mol, la propagation de la flamme, due à la combustion d'hydrogène, se fait de manière suffisamment rapide pour que l'influence de l'énergie d'inflammation se fasse moins ressentir.

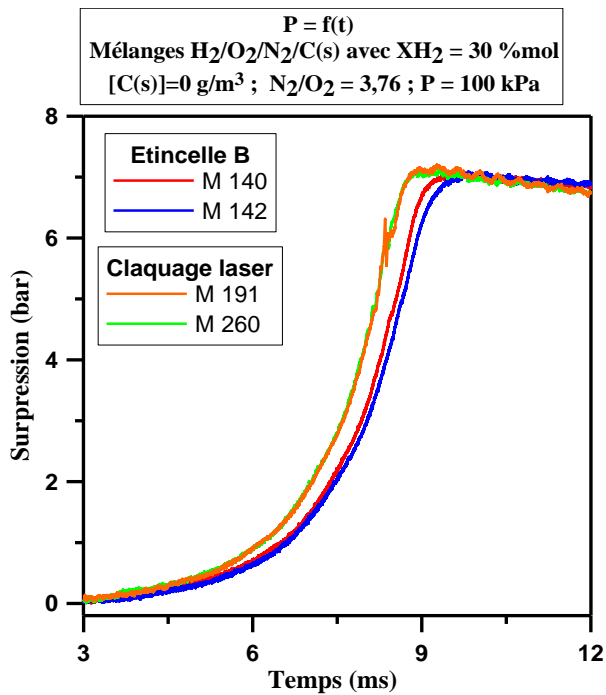


Figure 4-9 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂ avec une teneur en H₂ de 30 %mol et avec deux systèmes d'inflammation différents, pour un rapport N₂/O₂ = 3,76 à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

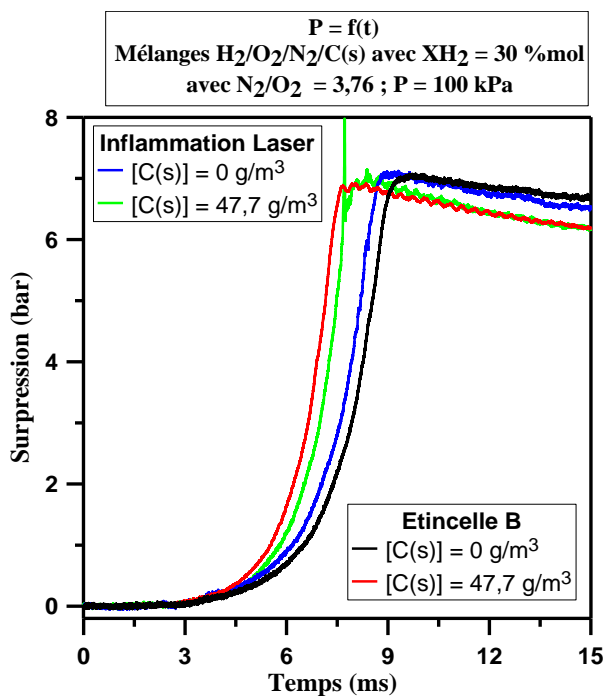


Figure 4-10 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂/C(s) avec une teneur en H₂ de 30 %mol avec deux systèmes d'inflammation différents, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport N₂/O₂ = 3,76 à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

L'injection de particules dans le milieu (Figure 4-11) conduit pour ces mélanges à une diminution du temps de combustion. Pour ces mélanges, deux phénomènes induisent une augmentation de la vitesse de propagation de la flamme : (i) la présence de particules dans le milieu va rendre la flamme plissée augmentant ainsi sa surface et (ii) comme vu précédemment (Tableau 4-5), les particules de graphite brûlent. Celles-ci en brûlant amènent une énergie supplémentaire qui accélère la flamme et donc conduit à des temps de combustion plus courts. Il faut noter que l'on n'observe pas de différences dans la forme des pics de pression entre les mélanges sans et avec poussières. Dans le cas où les poussières sont

présentes dans le milieu, la richesse globale est très élevée. La combustion initialement ne concerne que la phase gazeuse puis les particules s'enflamment dans un second temps. Elles n'auront donc qu'une quantité limitée d'oxygène disponible pour brûler.

La présence de graphite dans le milieu pour un large domaine de concentration (de 24,5 à 204,2 g/m³) conduit pour ces mélanges (Figure 4-11) à des valeurs quasi-identiques de maxima de pression. Ce phénomène s'explique par le fait que le mélange est très riche en combustible (hydrogène et graphite). En effet, une fois que les particules de graphite ont commencé à s'enflammer, il existe une compétition entre l'hydrogène et le graphite pour savoir lequel va réagir avec l'oxygène. Ceci conduit à une situation où l'hydrogène se retrouve en quantité importante dans les produits de combustion (jusqu'à plus de 6 % mol). Le mélange étant extrêmement réactif, la compétition se déroule également avec l'azote, des quantités importantes d'oxydes d'azote ayant été trouvées dans les produits de combustion (Tableau 4-12). Tous ces phénomènes conduisent à des valeurs de maxima de pression, pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ = 3,76 et à 100 kPa, quasi-identiques sur l'ensemble du domaine.

À l'inverse, pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ de 2,33 (Figure 4-12), la présence de graphite dans le milieu conduit à une augmentation du maximum de pression. L'oxygène étant plus présent, la combustion de l'hydrogène est plus complète.

Une diminution du rapport N₂/O₂ de 3,76 à 2,33 conduit à une diminution du temps de combustion et à une augmentation des maxima de pressions pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite.

Durant la montée en pression dans l'enceinte, on observe dans certains cas (Figure 4-12) un pic pendant la montée en pression. Ce phénomène perturbe la détermination des valeurs d'indices de déflagration et est dû à la puissance très importante de l'explosion à l'intérieur de l'enceinte. Bien que des méthodes de protection aient été mises en place au niveau du capteur de pression (ajout d'une couche de graisse conductrice protectrice), ce phénomène n'a pas pu être totalement évité.

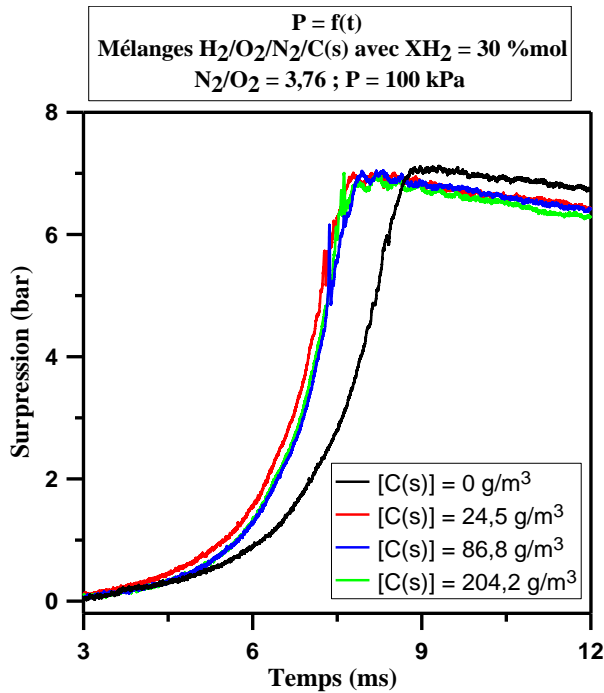


Figure 4-11 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂/C(s) avec une teneur en H₂ de 10 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite, pour un rapport N₂/O₂ = 3,76 à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

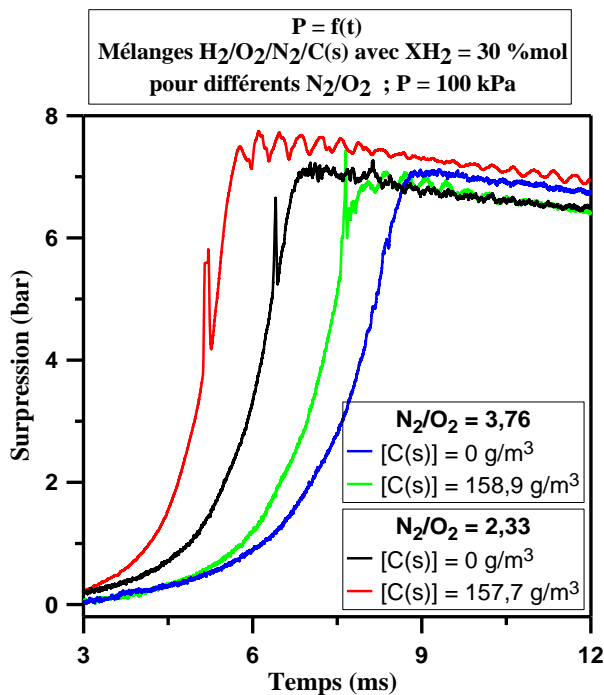


Figure 4-12 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂/C(s) avec une teneur en H₂ de 30 %mol enflammés par claquage laser, pour différentes concentrations en graphite et différents rapports N₂/O₂, à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

4.1.3 Enregistrements vidéo

La troisième partie de la description de l'explosion des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite concerne la description des régimes de propagation des flammes via des enregistrements vidéo de la propagation de la flamme dans l'enceinte.

Pour un mélange avec une teneur en hydrogène de 10 %mol (Figure 4-13), aucun phénomène ne traduisant la combustion des particules de graphite n'est observé. La flamme se

propage dans toute l'enceinte, contrairement au mélange pur où la propagation se fait de manière ascendante préférentiellement (cf. 3.1.1).

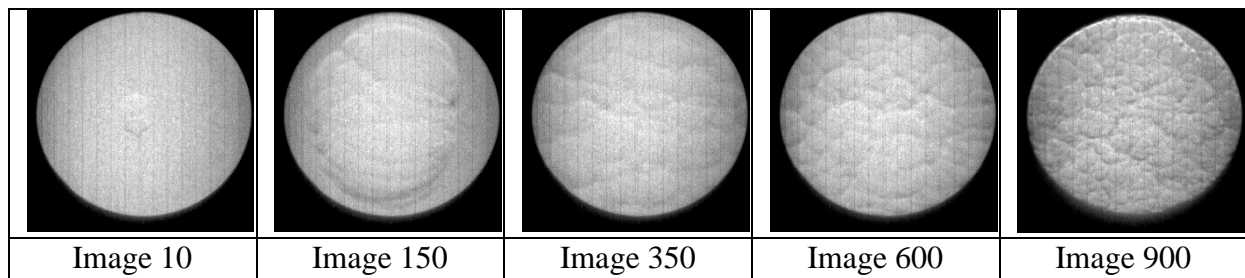


Figure 4-13 : Évolution de la flamme au cours du temps pour un mélange $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en hydrogène de 10 %mol et une concentration en graphite de $17,1 \text{ g/m}^3$, avec $N_2/O_2 = 3,76$ à $P_{INI} = 50 \text{ kPa}$ et $T_{INI} = 298 \text{ K}$ (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s)

Pour un mélange avec une teneur en hydrogène de 20 %mol (Figure 4-14), l'apparition d'un flash extrêmement lumineux (il démarre pour l'image 95 et devient très important à l'image 110 : le capteur CCD de la caméra saturant en luminosité) pendant la propagation de la flamme, prouve la combustion des particules de graphite pendant cet intervalle de temps. Quand les images de l'observation de la flamme sont mises en rapport avec le pic de pression observé simultanément, on note que la combustion des particules de graphite se fait pendant la montée en pression dans le milieu (la surpression dans le milieu est à ce moment précis d'environ 300 kPa). Ce même phénomène est observé pour les différents mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 %mol. On peut en conclure, qu'au départ de la flamme seul l'hydrogène brûle, celui-ci conduit à une augmentation de la pression de la température et de la pression à l'intérieur de l'enceinte conduisant à l'inflammation des poussières de graphite.

Le même type de phénomène est observé pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 %mol (Figure 4-15).

Pour la Figure 4-14 et la Figure 4-15, les images de l'observation de la flamme ne sont pas retravaillées afin de permettre la visualisation du flash lumineux.

Le même type de comportement a été observé par Denkevits [112], celui-ci décrivant le comportement de l'évolution de la pression comme une combustion d'un mélange avec un seul combustible (observation d'un seul pic de pression). Ces conclusions sont similaires aux nôtres : une partie de l'hydrogène a besoin de brûler afin de permettre la combustion des particules de graphite (cf. 1.4.1.2). Cependant, il observe ce comportement à partir des teneurs en hydrogène de 10 %mol, alors que pour notre étude, on l'observe à partir de teneurs en hydrogène de 20 %mol. Cet écart s'explique par le fait que les méthodes d'injection et les énergies d'inflammation entre les deux études sont différentes.

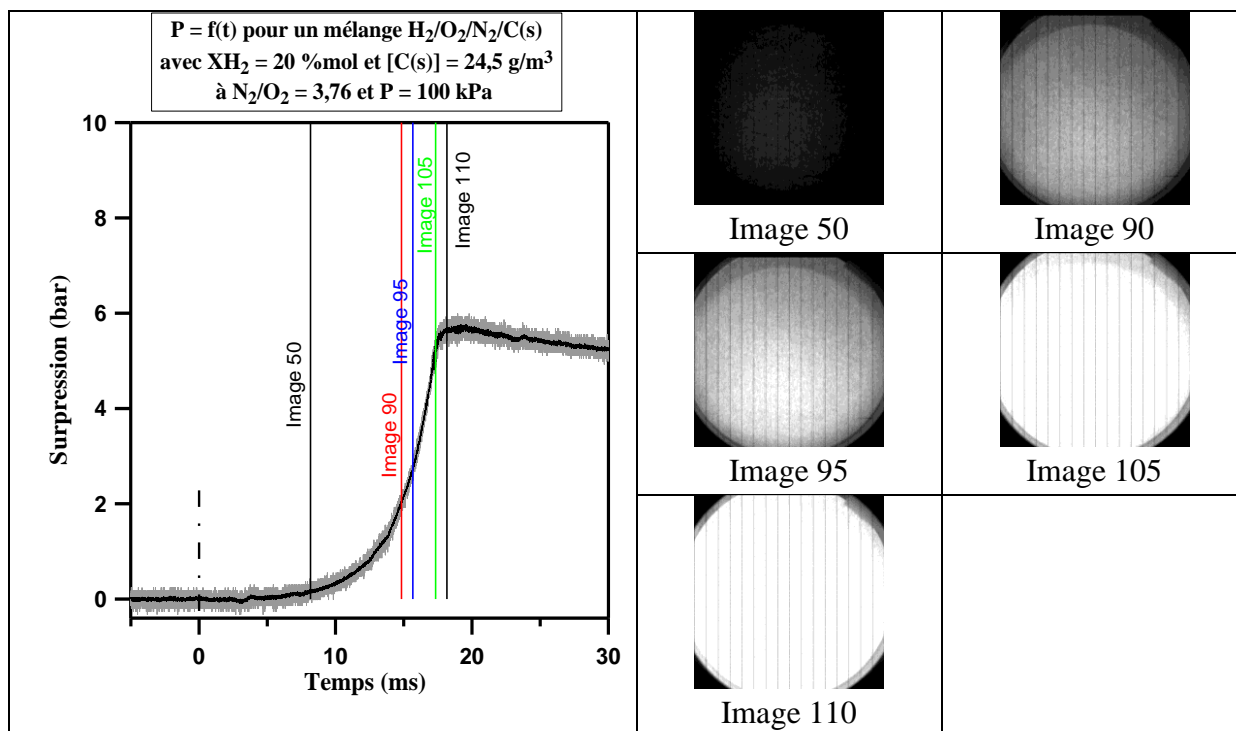


Figure 4-14 : Évolutions du signal de pression et de la flamme au cours du temps pour un mélange H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 %mol et une concentration en graphite de 24,45 g/m³, avec N₂/O₂ = 3,76 à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s)

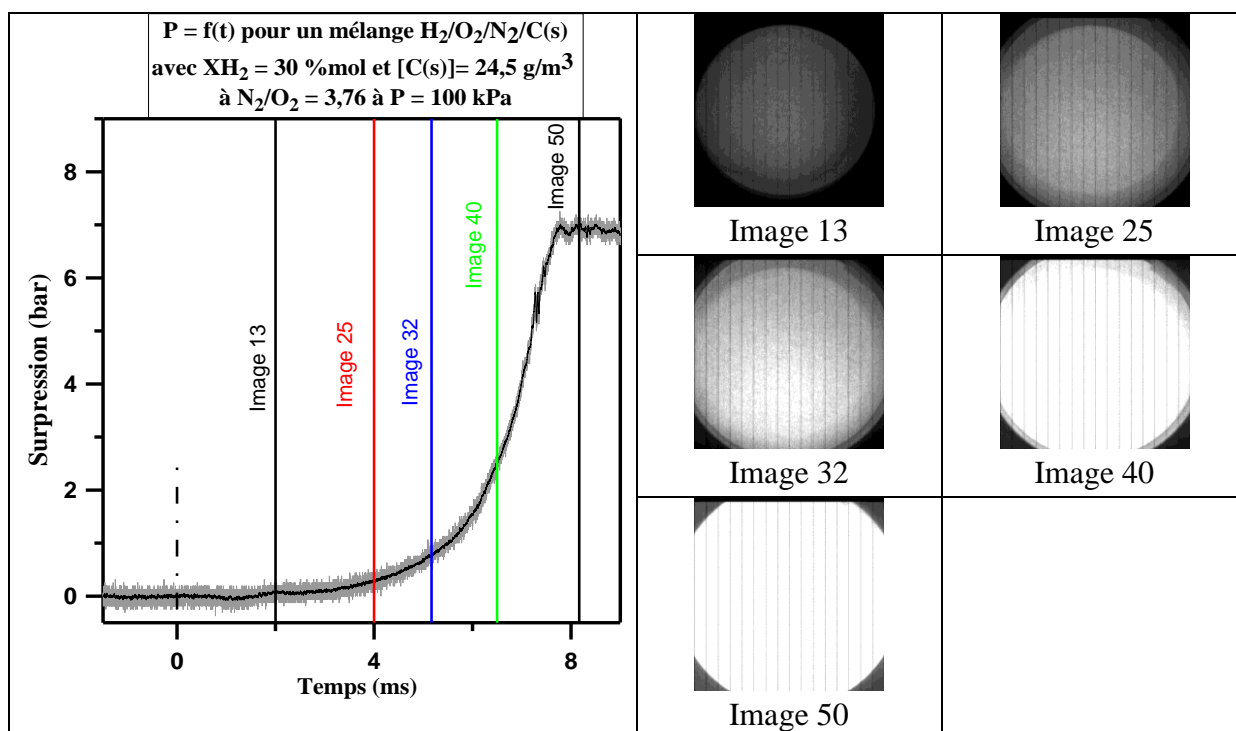


Figure 4-15 : Évolution du signal de pression et de la flamme au cours du temps pour un mélange H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 30 %mol et une concentration en graphite de 24,45 g/m³, avec N₂/O₂ = 3,76 à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s)

4.1.4 Pression maximale de combustion

L'influence de chaque paramètre initial (énergie d'inflammation, concentration en graphite, rapport molaire N_2/O_2) sur l'évolution de la pression à l'intérieur de l'enceinte et donc sur la pression maximale de combustion est étudiée dans le paragraphe 4.1.2. Seuls les résultats complets sont présentés ici. Les résultats de l'étude paramétrique sur les pressions maximales de combustion sont présentés en annexe F.

La Figure 4-16 représente l'évolution de la pression maximale de combustion mesurée en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 10 %, pour différentes pressions initiales et différents rapports N_2/O_2 . Sur cette même figure, on peut trouver les pressions adiabatiques de combustion complète (P_{AICC}) des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec et sans particules de graphite.

Pour les quatre conditions étudiées, une augmentation de la quantité de graphite dans le milieu conduit à une baisse de la pression maximale de combustion (Figure 4-3)

Sur l'ensemble des données, les valeurs de P_{MAX} sont très inférieures aux valeurs des P_{AICC} des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite, cette différence peut s'expliquer par la non-combustion des particules de graphite pour ces mélanges. En effet, comme vu précédemment, les calculs réalisés à l'équilibre montrent une combustion des particules (Tableau 4-1) conduisant à des P_{AICC} beaucoup plus élevées que les maxima de pression observés.

La comparaison des résultats pour les mélanges sans graphite avec ceux obtenus dans l'enceinte sphérique de plus grande taille (cf. 3.3.2), donne des valeurs de P_{MAX} légèrement supérieures pour les explosions réalisés dans l'enceinte de 8 L. En effet, l'enceinte étant d'un diamètre plus petit (cf. 2.1.2), la flamme atteindra plus rapidement la paroi de l'enceinte (temps de combustion plus faible), les pertes thermiques seront alors plus faibles ce qui conduit à des valeurs de P_{MAX} supérieures. Pour le mélange $H_2/O_2/N_2$ à une pression de 100 kPa et avec un rapport N_2/O_2 de 3,76, P_{MAX} vaut environ 406 kPa dans l'enceinte de 8 L alors qu'il est de 391 kPa dans l'enceinte de 56 L. Il existe également une turbulence résiduelle dans la sphère de 8 L à cause de la méthode d'injection utilisée.

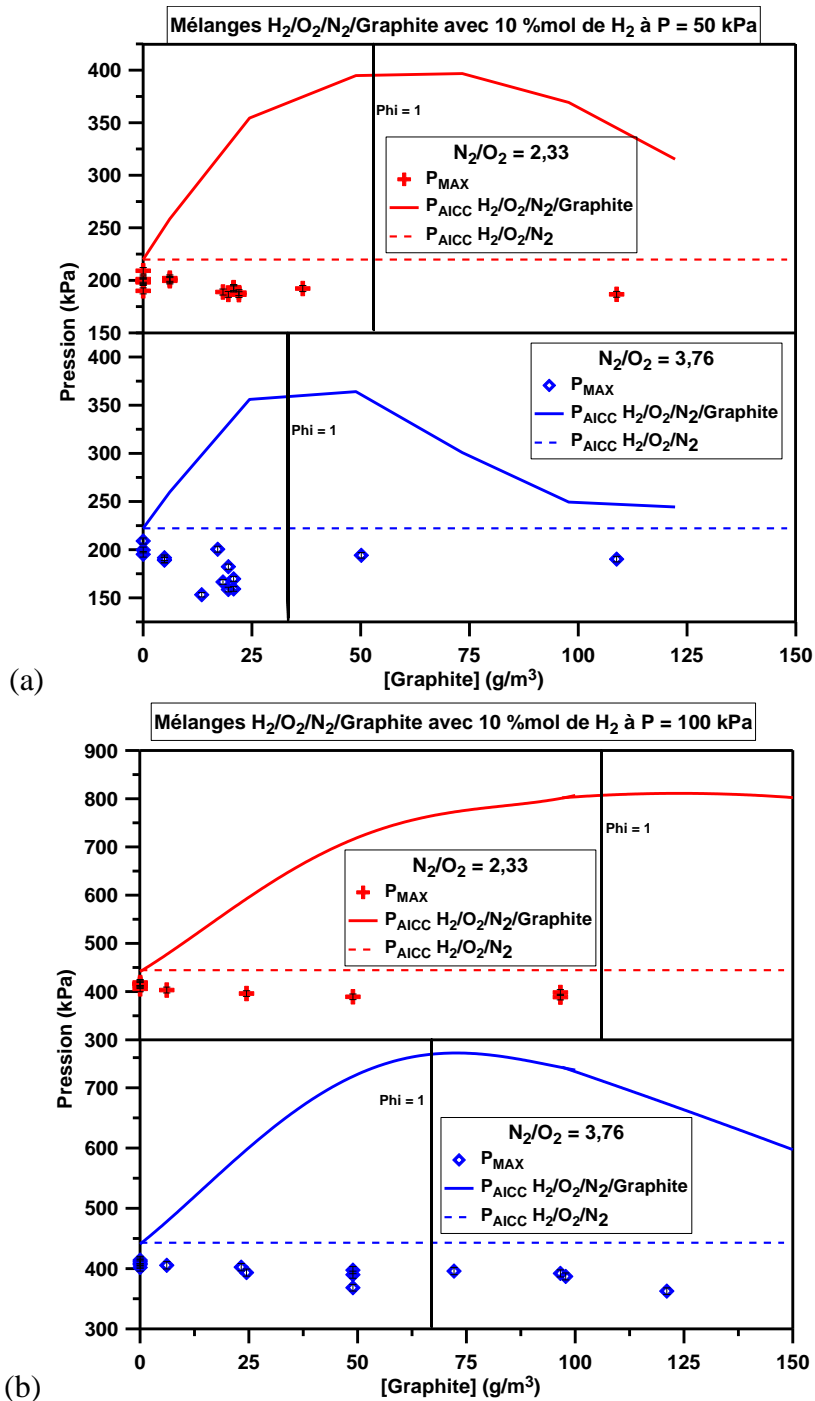


Figure 4-16 : Pression maximale d'explosion, P_{MAX} , et pressions adiabatiques de combustion des mélanges H₂/O₂/N₂ et H₂/O₂/N₂/Graphite, P_{AICC} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 10 %mol, pour différents rapports N₂/O₂ à : (a) $P_{INI} = 50$ kPa et (b) $P_{INI} = 100$ kPa

Les pressions maximales de combustion des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 %mol, ainsi que les P_{AICC} de ces mélanges avec et sans poussières, sont présentées sur la Figure 4-17.

Pour les mélanges à 50 kPa et avec un rapport de 3,76, P_{MAX} reste quasi-identique sur l'ensemble du domaine avec des valeurs comprises entre 320 et 325 kPa sur l'ensemble du domaine testé. Pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 2,33, P_{MAX} augmente légèrement avec l'augmentation de la concentration en graphite dans le milieu. P_{MAX} varie de 330 à 350 kPa quand la concentration en graphite dans le milieu augmente de 0 à 152,8 g/m³.

Pour les mélanges à $N_2/O_2 = 2,33$, la pression maximale de combustion des mélanges testés est supérieure à la P_{AICC} du mélange $H_2/O_2/N_2$ sans graphite pour des concentrations en graphite supérieures à 50 g/m³. Pour ces mélanges, l'hydrogène brûle entièrement, l'accroissement supplémentaire de pression est dû à la combustion des particules de graphite (Figure 4-6).

Pour ces deux derniers mélanges, on note que la pression maximale de combustion est également supérieure à P_{AICC} des mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$. Bien que ce phénomène puisse paraître contradictoire, celui-ci s'explique par le fait que les calculs à l'équilibre sont réalisés avec le fait que l'hydrogène et les particules de graphite brûlent ensemble, pour les mélanges où l'oxygène est en défaut, il existe alors une compétition entre l'hydrogène et le graphite pour le brûler. Au niveau expérimental, le déroulement de l'expérience est différent. En effet, comme vu sur la Figure 4-14, on observe tout d'abord après inflammation une combustion de l'hydrogène dans le milieu. Celle-ci provoque une augmentation de la température et de la pression dans l'enceinte qui conduit à l'inflammation des particules de graphite. En effet, les conditions d'inflammation utilisées pour nos expériences ne permettent pas l'inflammation des particules de graphite directement, la combustion de ces particules devant passer par l'explosion d'une partie de l'hydrogène. Pour corroborer ce fait, l'analyse des produits de la combustion obtenus par les calculs à l'équilibre et de manière expérimentale donne des différences importantes dans les quantités de CO et de CO₂ présentes postcombustion (Tableau 4-2 et Tableau 4-11).

Pour les mélanges initialement à 100 kPa (Figure 4-17) avec un rapport N_2/O_2 égal à 2,33, P_{MAX} évolue en forme de cloche avec un maximum (765 kPa) pour une concentration en graphite de 121,3 g/m³. Pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 de 3,76, le maximum de P_{MAX} est atteint pour une concentration en graphite égale à 97,5 g/m³. Concernant, la comparaison entre P_{MAX} et les différentes P_{AICC} , les explications de ces phénomènes sont similaires à celles fournies pour les mélanges à 50 kPa.

La comparaison entre les valeurs obtenues dans les différentes enceintes donne des pressions maximales de combustion légèrement supérieures pour les combustions réalisées dans l'enceinte de 8 L. En effet, pour le mélange $H_2/O_2/N_2$ à une pression de 50 kPa et avec un rapport N_2/O_2 de 3,76, la pression maximale de combustion vaut 320 kPa dans l'enceinte de 8 L alors qu'elle est de 311 kPa dans l'enceinte de 56 L. Cet écart est plus important pour les mélanges à 100 kPa et atteint 25-30 kPa. Cette différence s'explique également par la différence de taille entre les deux enceintes et aussi par la méthode d'introduction des gaz.

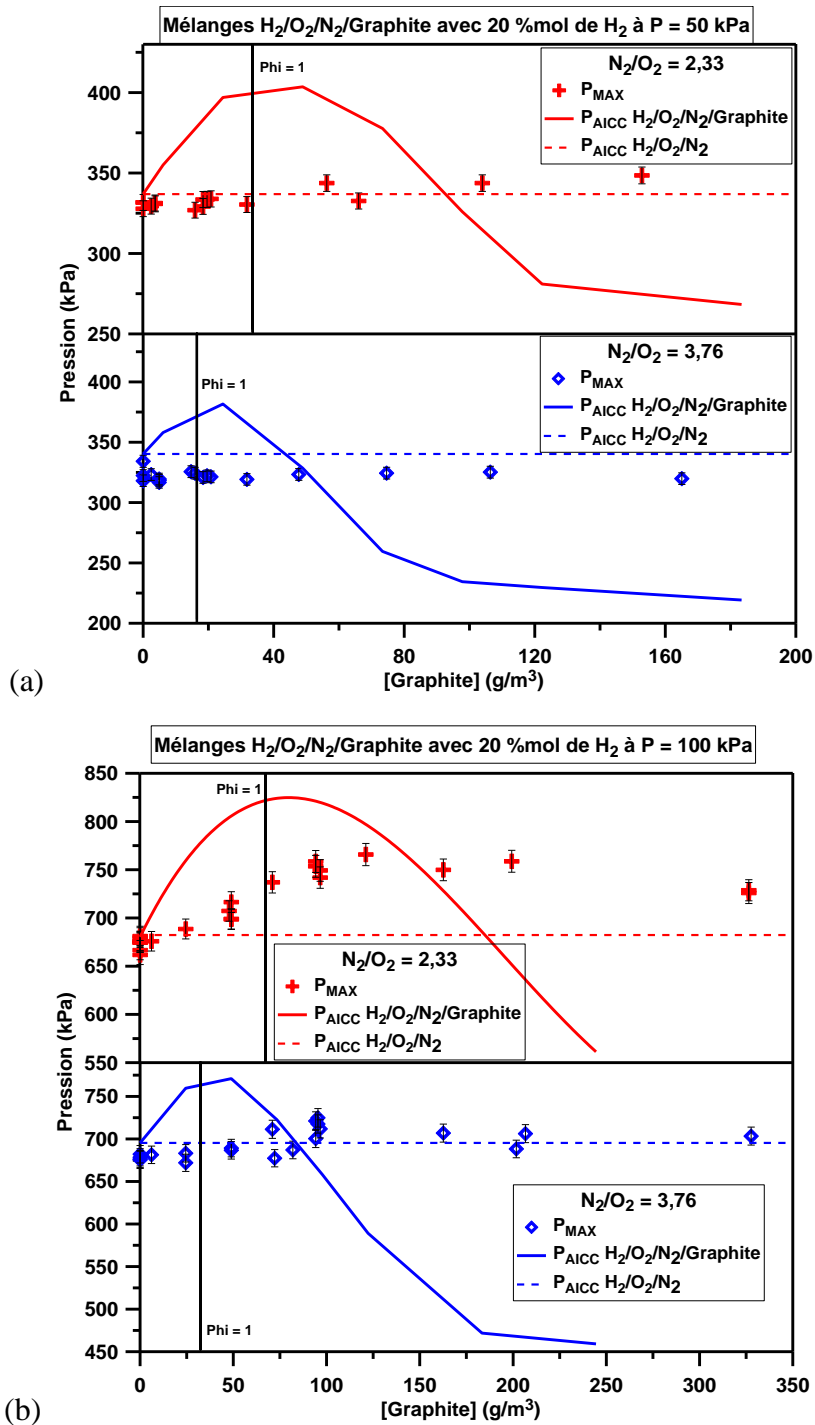
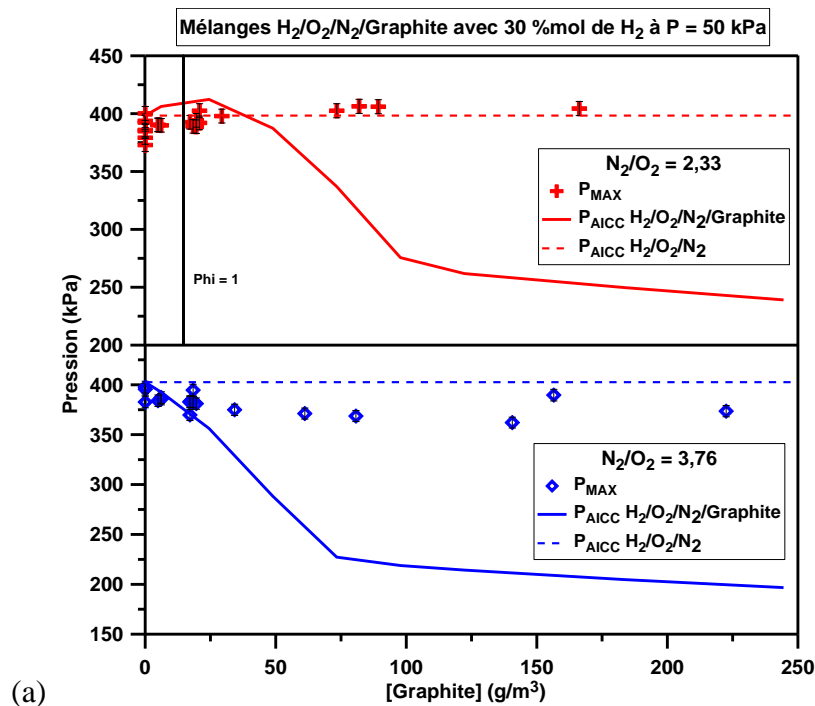


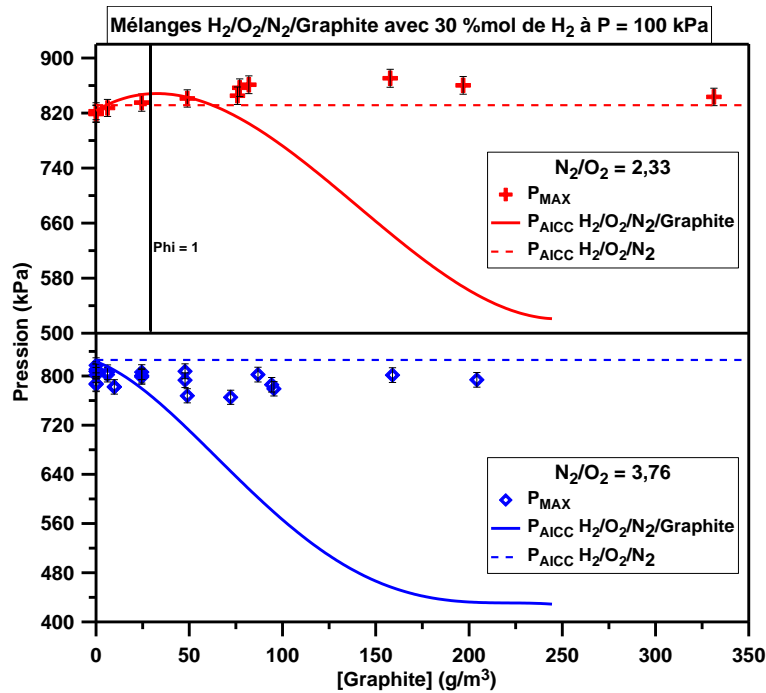
Figure 4-17 ; Pression maximale d'explosion, P_{MAX} , et pressions adiabatiques de combustion des mélanges $H_2/O_2/N_2$ et $H_2/O_2/N_2/Graphite$, P_{AICC} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en H_2 de 20 %mol, pour différents rapports N_2/O_2 à : (a) $P_{INI} = 50$ kPa et (b) $P_{INI} = 100$ kPa

Les pressions maximales de combustion des mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol, ainsi que les P_{AICC} de ces mélanges avec et sans poussières, sont présentées sur la Figure 4-18.

Pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 de 3,76, une augmentation de la concentration en poussières dans le milieu conduit à des valeurs quasi-identiques de P_{MAX} pour les mélanges à 100 kPa et décroissantes avec l'augmentation de la quantité de graphite pour les mélanges à 50 kPa. Ceci est du à la présence limitée d'oxygène dans le milieu (les richesses de ces mélanges sont très supérieures à 1).

Pour les mélanges avec un N_2/O_2 de 2,33, la pression maximale de combustion évolue en forme de cloche avec des maxima pour des concentrations en graphite de 81,9 et de 157,7 g/m^3 pour des pressions initiales respectives de 50 et 100 kPa. Les explications fournies pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 %mol (Figure 4-17) et les valeurs de P_{MAX} supérieures à leurs valeurs de P_{AICC} respectives sont également valables pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 %mol (Figure 4-18). La comparaison des valeurs des mélanges $H_2/O_2/N_2$ entre les deux enceintes (8 et 56 L) pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 %mol donne des conclusions similaires à celles observées pour les mélanges à 20 %mol (Figure 4-17).





(b)

Figure 4-18 : Pression maximale d'explosion, P_{MAX} , et pressions adiabatiques de combustion des mélanges H₂/O₂/N₂ et H₂/O₂/N₂/Graphite, P_{AICC} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 30 %mol, pour différents rapports N₂/O₂ à : (a) $P_{INI} = 50$ kPa et (b) $P_{INI} = 100$ kPa

4.1.5 Temps de combustion

L'influence de chaque paramètre initial (énergie d'inflammation, concentration en graphite, rapport molaire N₂/O₂) sur l'évolution de la pression à l'intérieur de l'enceinte et donc sur le temps de combustion est étudiée dans le paragraphe 4.1.2. Seuls les résultats complets sont présentés ici. Les résultats de l'étude paramétrique sur les temps de combustion des mélanges sont présentés en annexe F.

Les résultats concernant les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 10 %mol sont présentés sur la Figure 4-19. Une diminution du rapport N₂/O₂ de 3,76 à 2,33 conduit de manière générale à une baisse du temps de combustion des mélanges.

Pour ces mélanges, une augmentation de la quantité de graphite introduite dans le milieu conduit à une baisse générale du temps de combustion. Cependant, quand les particules sont présentes en trop grande quantité, les temps de combustion deviennent plus importants. Par exemple, pour les mélanges à 100 kPa et N₂/O₂ = 3,76 avec l'inflammation laser, le temps de combustion est de 267, 214 puis de 224 ms quand la concentration en graphite augmente de 0 à 23,2 puis à 96,6 g/m³ respectivement.

Les temps de combustion des mélanges H₂/O₂/N₂ sans graphite sont compris, pour cette étude, entre 200 et 300 ms. Si on compare ces résultats avec ceux des mêmes mélanges mais réalisées dans l'enceinte de 56 L. (cf. 3.3.1), on note une baisse significative des valeurs

de t_c (dans l'enceinte de 56 L, les temps de combustion de ces mélanges se situent aux alentours de 460 ms et même 564 ms pour le mélange à 50 kPa et avec un ratio $N_2/O_2 = 3,76$)

Cette différence importante s'explique par la différence de rayon des enceintes (cf. 2.1.2) mais également par la propagation de la flamme qui se fait de manière préférentiellement ascendante (cf. 3.1.1).

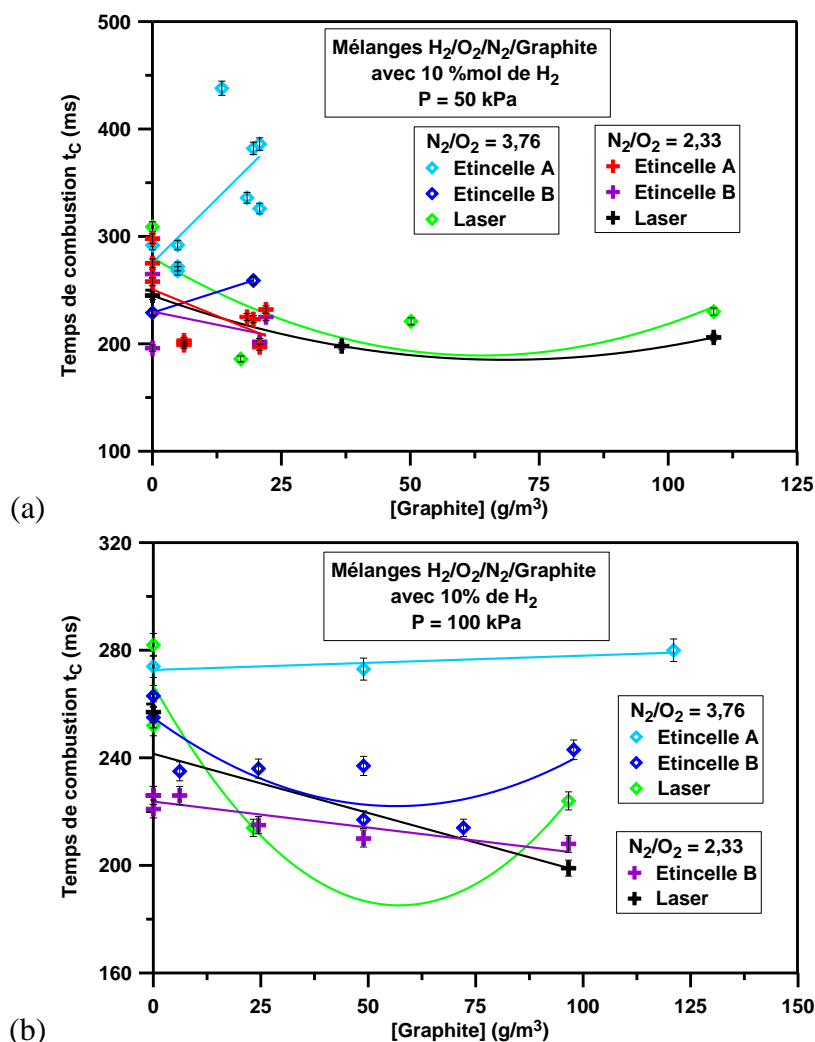


Figure 4-19 : Temps de combustion, t_c , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N_2/O_2 à : (a) $P_{INI} = 50$ kPa et (b) $P_{INI} = 100$ kPa

L'ensemble des temps de combustion pour les différents mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol sont présentés sur la Figure 4-20. À l'exception des mélanges à 50 kPa et pour un rapport N_2/O_2 de 2,33, l'augmentation de la concentration en particules de graphite dans le milieu conduit à une augmentation du temps de combustion. En effet, comme on a pu le constater avec le signal de pression (Figure 4-7), la combustion des particules est initiée en fin de propagation et elles mettent plus de temps à brûler augmentant ainsi le temps de combustion.

L'utilisation de différentes sources d'inflammation, conduit à des valeurs de temps de combustion similaires. Contrairement aux mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol, la flamme d'hydrogène se propage de manière suffisamment rapide pour que l'impact de l'énergie d'inflammation se fasse moins ressentir (Figure 4-6).

La comparaison des résultats obtenus pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ sans graphite entre les deux différentes enceintes (4.3.1) montre une baisse des temps de combustion dans l'enceinte de 8 L (compris entre 17 et 21 ms pour les mélanges à 100 kPa par exemple) par rapport à ceux de l'enceinte de 56 L (t_c compris entre 29 et 34 ms pour ces mélanges). Cette différence s'explique simplement par le diamètre plus important de la sphère de 56 L.

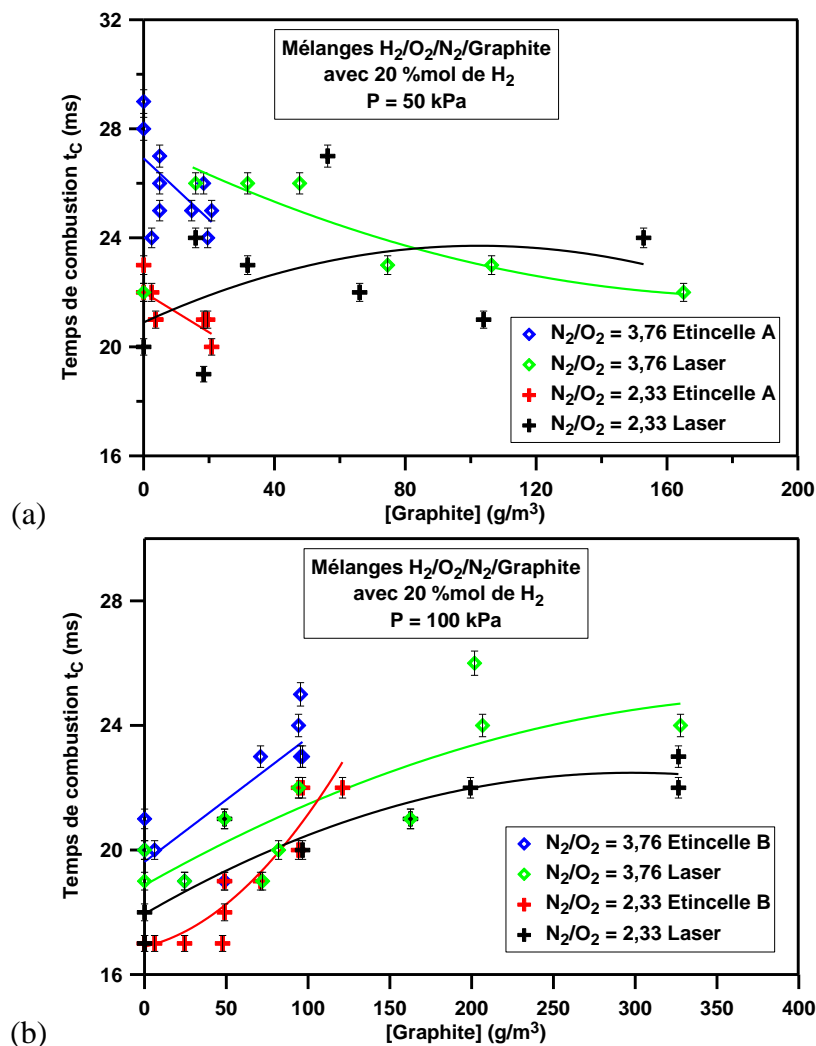


Figure 4-20 : Temps de combustion, t_c , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en H_2 de 20 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N_2/O_2 à : (a) $P_{INI} = 50$ kPa et (b) $P_{INI} = 100$ kPa

La Figure 4-21 représente l'ensemble des résultats des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 30 %mol. Les résultats obtenus montrent que la source d'inflammation n'influe pas sur les temps de combustion des mélanges (Figure 4-9) tout comme une augmentation de la quantité de graphite présente dans le milieu (Figure 4-11). Cependant, la présence de graphite dans le milieu conduit à une baisse du temps de combustion par rapport aux mélanges gazeux purs.

Les valeurs de temps de combustion obtenues pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ sans graphite sont, comme pour les mélanges avec des teneurs en hydrogène de 10 et 20 %mol, inférieures à celles obtenues dans l'enceinte de 56 L (cf. 3.3.1).

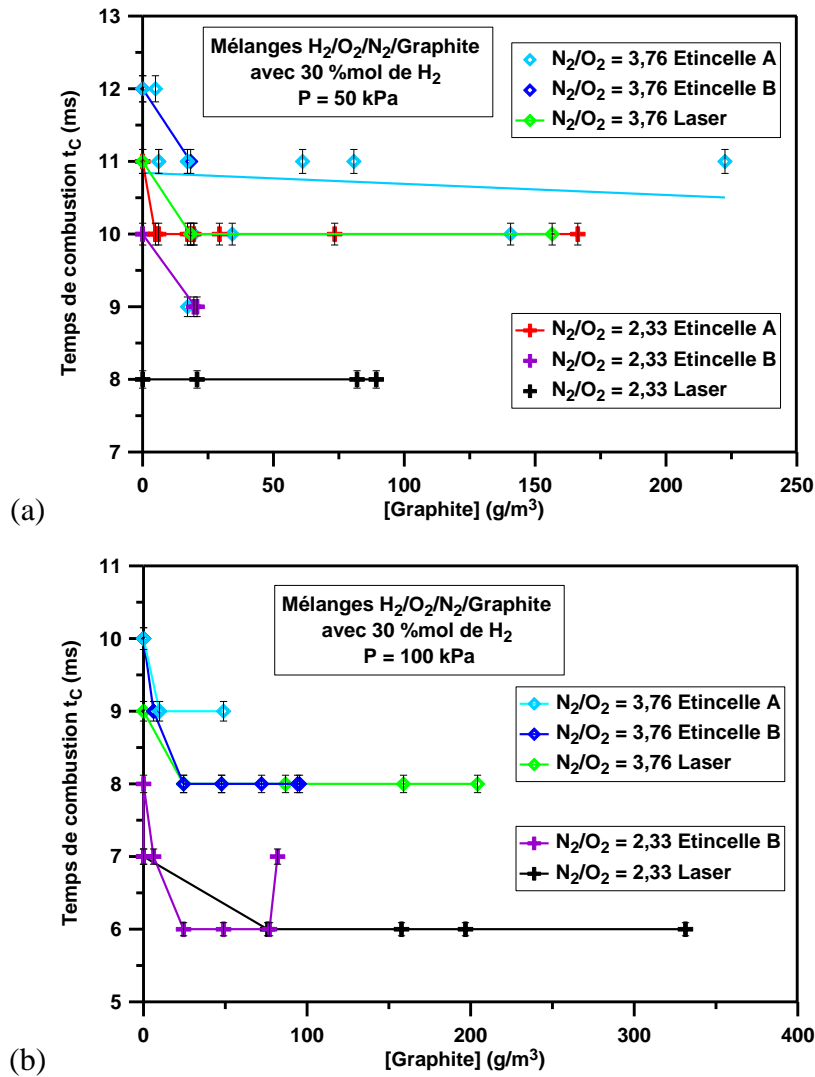


Figure 4-21 : Temps de combustion, t_c , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en H_2 de 30 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N_2/O_2 à : (a) $P_{INI} = 50$ kPa et (b) $P_{INI} = 100$ kPa

4.1.6 Indice d'explosivité

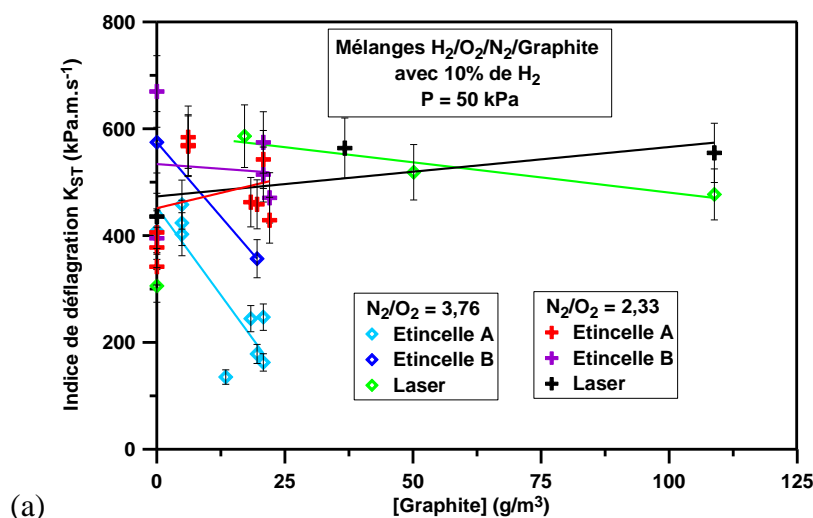
L'indice d'explosivité, K_{ST} , est très dépendant de l'évolution de la pression au cours du temps. En effet, celui-ci en première approche est une dérivée de la pression au cours du temps. Sa détermination est explicitée dans le chapitre 2 et est réalisée avec une erreur de 25 % (cf. 2.2.3.3).

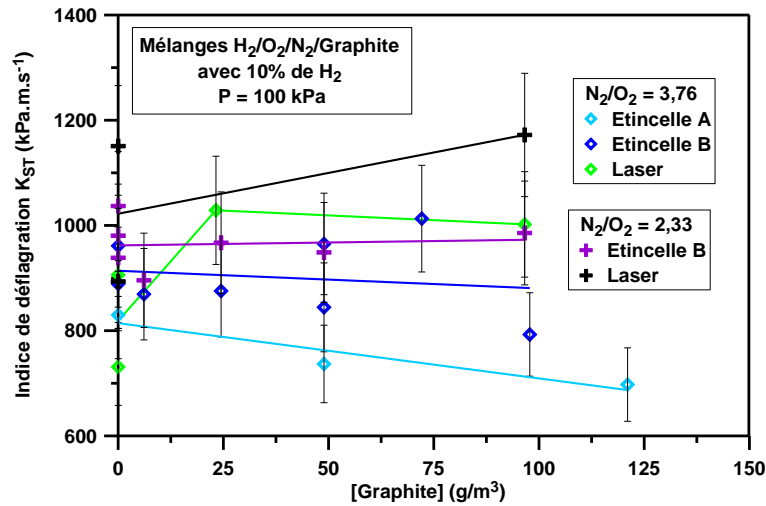
L'influence de chaque paramètre initial (énergie d'inflammation, concentration en graphite, rapport molaire N_2/O_2) sur l'évolution de la pression à l'intérieur de l'enceinte et donc sur l'indice d'explosivité est étudiée dans le paragraphe 4.1.2. Seuls les résultats complets sont présentés ici. Les résultats de l'étude paramétrique sur les indices d'explosivités des mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$ sont présentés en annexe F.

L'ensemble des résultats obtenus pour les indices de déflagration des mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en hydrogène de 10 % mol sont présentés sur la Figure 4-22. Pour des mélanges à une pression et un rapport N_2/O_2 donné, l'impact de la concentration en particules de graphite de particules influe peu sur les valeurs de K_{ST} . Par exemple, pour les mélanges à 50 kPa, K_{ST} oscille entre 400 et 600 $kPa.m.s^{-1}$. Une augmentation de l'énergie d'inflammation conduit de manière générale à des valeurs de K_{ST} plus élevées. En effet, l'utilisation d'une énergie d'inflammation plus importante conduit pour ces mélanges à des temps de combustion plus faibles et des pressions maximales de combustion plus élevées.

La comparaison des valeurs obtenues pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ sans graphite, entre les deux enceintes sphériques (cf. 3.3.3) montrent des valeurs dans les mêmes ordres de grandeur pour tous les mélanges ; celles-ci sont comprises entre 400 et 600 $kPa.m.s^{-1}$ pour les mélanges à 50 kPa et entre 800 et 1000 $kPa.m.s^{-1}$ pour les mélanges à une pression initiale de 100 kPa.

L'ensemble des mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec 10 %mol d'hydrogène est classifié St 1 dans la classification de Bartknecht (cf. 1.3.3).





(b)

Figure 4-22 : Indice de déflagration, K_{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 10 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N₂/O₂ à : (a) $P_{INI} = 50$ kPa et (b) $P_{INI} = 100$ kPa

Les indices de déflagration obtenus pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 20 %mol sont présentés sur la Figure 4-23. Pour les mélanges présentés ici, à l'exception des mélanges à 50 kPa et pour un rapport N₂/O₂ égal à 2,33, l'augmentation de la teneur en graphite ne modifie pas significativement la valeur du K_{ST} mesurée. En effet, comme nous avons pu le voir lors de la présentation des profils de pression l'augmentation rapide la pression initiale et qui conditionne la valeur de K_{ST} est due à la combustion de l'hydrogène seul. La combustion des particules se produisant plus tard n'impacte quasiment pas ce paramètre. Pour les mélanges à 50 kPa et avec un N₂/O₂ égal à 2,33, une augmentation de la concentration en graphite dans le milieu conduit à une légère augmentation de K_{ST} sur l'ensemble du domaine.

Sur l'ensemble du domaine, une diminution du rapport N₂/O₂ de 3,76 à 2,33 induit une augmentation de K_{ST} .

La comparaison des valeurs obtenues pour les mélanges H₂/O₂/N₂ sans graphite, entre les deux enceintes sphériques (cf. 3.3.3) montrent des valeurs dans les mêmes ordres de grandeur pour tous les mélanges mêmes si celles obtenues pour les mélanges dans l'enceinte sphérique de 56 L sont légèrement plus élevées pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ = 2,33. Par exemple, pour le mélange à H₂/O₂/N₂ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol, un rapport N₂/O₂ égal à 2,33, et initialement à 50 kPa, dans l'enceinte de 8 L, l'indice de déflagration vaut environ 16 MPa.m.s⁻¹ alors que dans l'enceinte de 56 L, celui-ci vaut 22 MPa.m.s⁻¹.

Les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec 20 %mol d'hydrogène sont classifiés, dans la classification de Bartknecht, St 1 pour les mélanges initialement à 50 kPa et St 3 pour les mélanges initialement à 100 kPa (cf.1.3.3).

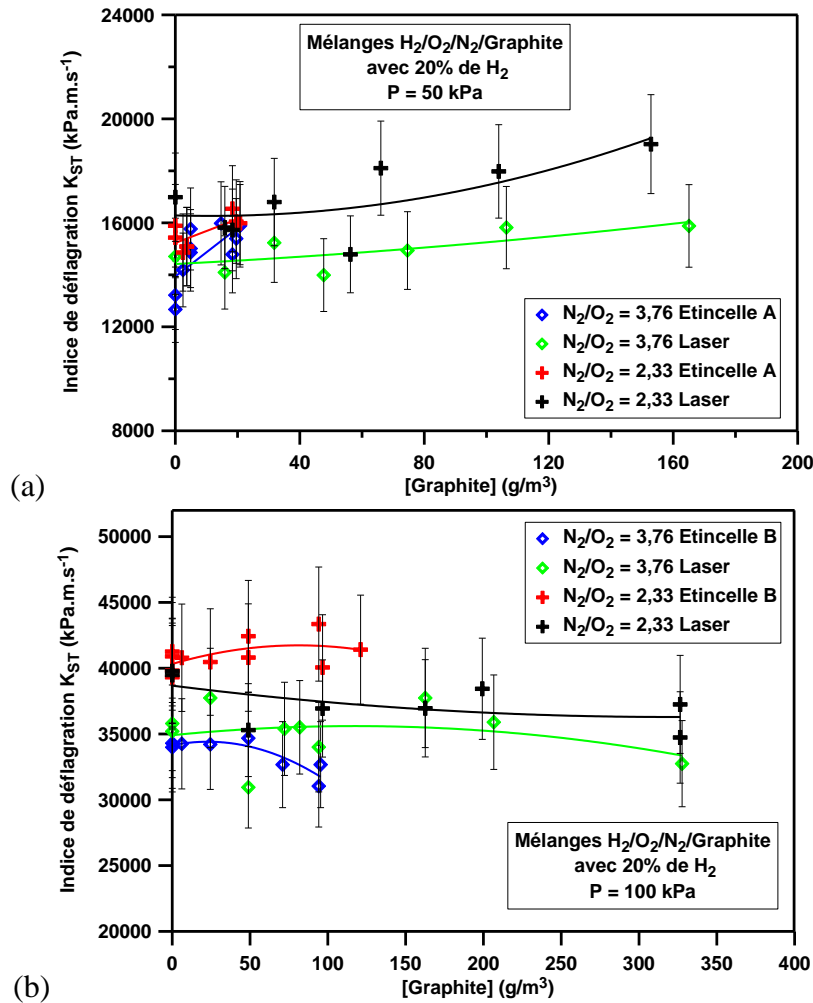


Figure 4-23 : Indice de déflagration, K_{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 20 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N₂/O₂ à : (a) $P_{INI} = 50$ kPa et (b) $P_{INI} = 100$ kPa

Pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 30 %mol, les indices de déflagration sont présentés sur la Figure 4-24. Pour les mélanges à 100 kPa, l'augmentation de la concentration en graphite dans le milieu conduit à une augmentation de K_{ST} sur l'ensemble du domaine étudié.

Pour les mélanges à 50 kPa, les tendances sont différentes. En effet, pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ de 3,76, bien que les énergies d'inflammation influent peu sur les valeurs de K_{ST} , l'impact de la concentration en graphite sur le milieu conduit à des valeurs quasi-identiques de K_{ST} . Pour le mélange avec un rapport N₂/O₂ égal à 2,33, le problème est différent et les valeurs obtenues selon les énergies d'inflammation sont totalement différentes. En effet, on trouve un facteur 2 sur les valeurs de K_{ST} en fonction de la source d'inflammation utilisée (60 MPa.m.s⁻¹ pour le laser et 30 MPa.m.s⁻¹ pour l'étincelle A).

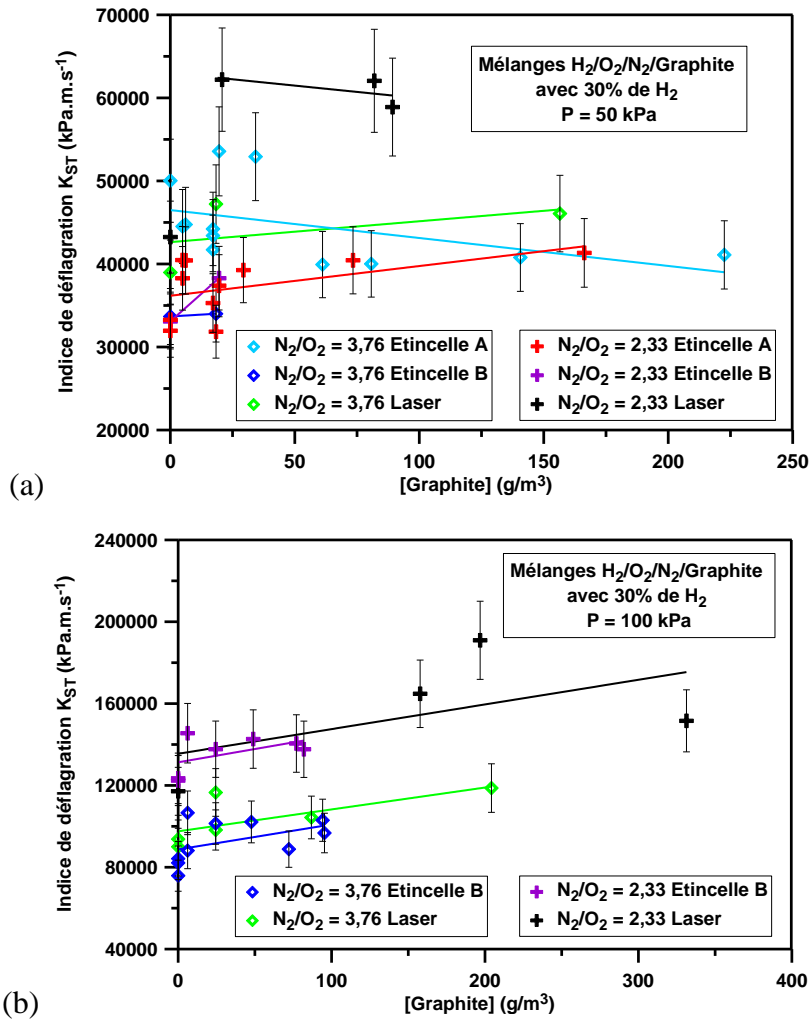


Figure 4-24 : Indice de déflagration, K_{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 30 %mol, enflammés par différents systèmes, pour différents rapports N₂/O₂ à : (a) $P_{INI} = 50$ kPa et (b) $P_{INI} = 100$ kPa

La comparaison des valeurs obtenues pour les mélanges H₂/O₂/N₂ sans graphite, entre les deux enceintes sphériques (4.3.3) montrent des valeurs sensiblement équivalentes pour tous les mélanges à l'exception du mélange à 100 kPa et pour un rapport N₂/O₂ = 2,33 pour lequel la valeur obtenue pour le mélange dans l'enceinte sphérique de 8 L est plus faible (120 MPa.m.s⁻¹) que celle obtenues dans l'enceinte de 56 L (171 MPa.m.s⁻¹). La présence d'un pic pendant la montée en pression, dans la bombe sphérique de 8 L, rendant l'accès difficile à l'indice de déflagration permet d'expliquer cette différence. En effet, lors de la détermination de K_{ST} , ce pic est « lissé » au maximum, autrement la valeur trouvée est totalement incohérente, ce qui contribue à une diminution de la valeur de $(dP/dt)_{MAX}$ et donc du K_{ST} mesuré.

L'ensemble des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec 30 %mol d'hydrogène dans le milieu sont classifiés St 3 dans la classification de Bartknecht (cf. 1.3.3).

4.2 Mélanges H₂/Tungstène/O₂/N₂

La deuxième partie de ce chapitre concerne l'étude des mélanges à base d'hydrogène et de tungstène (W). Contrairement aux mélanges précédents à base de graphite, l'étude des mélanges H₂/O₂/N₂/W a été réalisée pour une pression initiale de 100 kPa et pour un seul système d'inflammation : l'inflammation par claquage laser.

Les résultats obtenus pour les mélanges sont présentés en fonction de leur teneur, exprimée en % molaire, en hydrogène : 10, 20 et 30 % mol.

Les caractéristiques thermocinétiques de ces mélanges sont données dans l'annexe G.

4.2.1 Caractérisation des produits de combustion

L'étude des produits issus de la combustion est réalisée de manière théorique, calculée à partir de la thermodynamique, et de manière expérimentale, mesurée par chromatographie en phase gazeuse.

Les résultats sur toute cette partie sont présentés, pour une teneur en hydrogène donnée, à une pression initiale de 100 kPa.

4.2.1.1 Composition théorique des produits de combustion

La détermination de la composition théorique des gaz de combustion, à la température adiabatique de flamme, est réalisée avec le module Equilibrium Calculations du logiciel COSILAB qui permet le calcul de l'évolution thermodynamique de mélanges diphasiques.

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 % mol (Tableau 4-13), l'ajout de tungstène dans le milieu conduit sur tout le domaine à la formation d'oxydes de tungstène et particulièrement de WO₃(s), pour lequel les quantités de matière trouvées dans les produits de combustion sont quasiment égales à celles du tungstène initial. Pour ces mélanges, la quasi-totalité de l'hydrogène brûle (moins de 1 % d'imbrûlé), contrairement aux mélanges avec la même teneur en hydrogène et avec du graphite.

Les résultats pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 % mol (Tableau 4-14) et 30 % mol (Tableau 4-15) corroborent ceux présentés précédemment. En effet, dès que les particules de tungstène sont présentes dans le milieu initial et que leur concentration augmente, des oxydes de tungstène sont trouvés dans les produits de combustion en quantité de plus en plus importantes. Comme pour les mélanges avec 10 % mol d'hydrogène, les particules de tungstène présentes initialement se transforment, lors de la combustion, très majoritairement en WO₃(s).

XH ₂ = 0,1						
Rapport N ₂ /O ₂	3,76			2,33		
[Tungstène] (g/m ³)	0	48,9	424,21	0	64,79	410,76
W(s) initial (mol)	0	2,18E-03	1,89E-02	0	2,88E-03	1,83E-02
H ₂ initial (mol)	3,61E-02	3,66E-02	3,61E-02	3,50E-02	3,66E-02	3,65E-02
Composition des produits de combustion						
W(s) (mol)	0	5,19E-18	5,85E-07	0	1,72E-17	4,85E-08
WO ₂ (s) (mol)	0	5,00E-08	1,70E-04	0	7,92E-08	7,83E-05
WO ₃ (s) (mol)	0	2,18E-03	1,87E-02	0	2,88E-03	1,82E-02
WO (mol)	0	8,63E-27	1,28E-10	0	8,88E-26	1,13E-11
WO ₂ (mol)	0	1,56E-18	5,69E-07	0	9,74E-18	1,29E-07
H ₂ (mol)	2,51E-08	2,48E-07	5,60E-04	1,76E-08	3,33E-07	2,48E-04
O ₂ (mol)	4,45E-02	4,17E-02	1,38E-02	6,90E-02	6,77E-02	4,09E-02
H ₂ O (mol)	3,61E-02	3,66E-02	3,42E-02	3,49E-02	3,66E-02	3,47E-02
N ₂ (mol)	2,36E-01	2,39E-01	2,34E-01	2,02E-01	2,11E-01	2,08E-01

Tableau 4-13 : Composition des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges H₂/O₂/N₂/Tungstène avec une teneur en hydrogène de 10 %mol à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

Cependant, contrairement aux mélanges précédents, une augmentation de la concentration en particules de tungstène dans le milieu conduit à des quantités de moins en moins importantes d'eau dans les produits de combustion. Pour les mélanges avec une fraction molaire en hydrogène de 0,3 et un rapport N₂/O₂ égal à 3,76, on trouve près de 30 % de l'hydrogène qui reste imbrûlé dans le milieu quand la concentration en particules de tungstène vaut 397,3 g/m³. Pour ce même mélange, près de 37 % des particules de tungstène présentes initialement restent sous cette forme. Ces taux très importants d'imbrûlés s'expliquent par la très faible quantité d'oxygène présente dans le milieu et par la compétition qui existe entre l'hydrogène et le graphite pour brûler.

XH ₂ = 0,2						
Rapport N ₂ /O ₂	3,76			2,33		
[Tungstène] (g/m ³)	0	61,12	405,87	0	64,79	266,5
W(s) initial (mol)	0	2,72E-03	1,81E-02	0	2,88E-03	1,19E-02
H ₂ initial (mol)	7,03E-02	7,10E-02	7,03E-02	7,03E-02	6,97E-02	6,90E-02
Composition des produits de combustion						
W(s) (mol)	0	5,48E-09	9,51E-04	0	1,24E-09	1,70E-06
WO ₂ (s) (mol)	0	1,23E-05	1,33E-03	0	7,93E-06	1,46E-04
WO ₃ (s) (mol)	0	2,71E-03	1,57E-02	0	2,87E-03	1,17E-02
WO (mol)	0	2,88E-13	3,70E-07	0	9,39E-14	1,85E-09
WO ₂ (mol)	0	4,62E-09	7,83E-05	0	2,58E-09	3,47E-06
H ₂ (mol)	1,71E-04	4,44E-04	1,20E-02	1,04E-04	2,60E-04	1,80E-03
O ₂ (mol)	1,95E-02	1,53E-02	8,13E-04	4,31E-02	3,76E-02	2,21E-02
H ₂ O (mol)	6,95E-02	6,94E-02	5,54E-02	6,95E-02	6,81E-02	6,35E-02
N ₂ (mol)	2,10E-01	2,12E-01	2,11E-01	1,85E-01	1,83E-01	1,80E-01

Tableau 4-14 : Composition des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges H₂/O₂/N₂/Tungstène, XH₂ = 20 %mol à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

XH ₂ = 0,3								
Rapport N ₂ /O ₂	3,76				2,33			
[Tungstène] (g/m ³)	0	70,9	246,9	397,3	0	99,0	180,9	314,2
W(s) initial (mol)	0	3,15E-3	1,10E-2	1,77E-2	0	4,41E-3	8,05E-3	1,40E-2
H ₂ initial (mol)	1,00E-1	1,01E-1	9,99E-2	1,02E-1	9,92E-2	1,01E-1	1,01E-1	1,02E-1
Composition molaire des produits de combustion								
W(s) (mol)	0	7,26E-5	2,34E-3	6,55E-3	0	5,02E-6	3,74E-5	3,86E-4
WO ₂ (s) (mol)	0	1,99E-4	1,19E-3	1,95E-3	0	9,66E-5	2,59E-4	7,27E-4
WO ₃ (s) (mol)	0	2,87E-3	7,43E-3	9,13E-3	0	4,30E-3	7,72E-3	1,27E-2
WO (mol)	0	1,41E-8	2,15E-7	3,85E-7	0	8,10E-9	8,29E-8	1,05E-6
WO ₂ (mol)	0	4,72E-6	3,06E-5	4,29E-5	0	6,28E-6	3,49E-5	2,07E-4
H ₂ (mol)	7,59E-3	1,34E-2	2,62E-2	3,23E-2	2,64E-3	5,22E-3	8,19E-3	1,43E-2
O ₂ (mol)	1,73E-3	6,95E-4	1,40E-4	7,36E-5	1,73E-2	1,19E-2	8,21E-3	4,33E-3
H ₂ O (mol)	9,01E-2	8,46E-2	7,13E-2	6,70E-2	9,27E-2	9,00E-2	8,65E-2	8,03E-2
N ₂ (mol)	1,86E-1	1,87E-1	1,86E-1	1,89E-1	1,61E-1	1,63E-1	1,64E-1	1,66E-1

Tableau 4-15 : Composition des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique des mélanges H₂/O₂/N₂/Tungstène XH₂ = 30 %mol à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

4.2.1.2 Analyse expérimentale des gaz de combustion

La plupart des produits de combustion des particules de tungstène se retrouve sous forme solide : c'est le cas des oxydes de tungstène WO_2 ou WO_3 . Ceux-ci n'ont pas pu être étudiés par chromatographie en phase gazeuse. Ces analyses nous donnent la composition des gaz brûlés refroidis.

Comme pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite, à partir des résultats obtenus par chromatographie, on peut déterminer les quantités d'eau produites lors de la combustion de l'hydrogène des mélanges.

Les produits de combustion des mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol sont présentés dans le Tableau 4-16. Ceux-ci montrent que la totalité de l'hydrogène est brûlé sur l'ensemble du domaine. On remarque une légère diminution de la quantité d'oxygène dans le milieu mais celle-ci peut être expliquée par la présence de NO_x dans les produits de combustion. On en conclut à une non-inflammation des particules de tungstène pour ces mélanges.

XH ₂ = 0,1						
Rapport N ₂ /O ₂	3,76			2,33		
[Tungstène] (g/m ³)	0	48,9	424,2	0	64,8	410,8
Composition molaire des produits de combustion						
O ₂ (% mol)	14,82	14,34	13,99	22,34	21,58	21,33
N ₂ (% mol)	72,94	71,90	73,12	66,24	65,39	65,92
H ₂ (% mol)	0	0	0,03	0	0	0
H ₂ O (% mol)	11,32	11,38	11,38	11,42	11,55	11,59
NO _x (% mol)	0,92	2,36	1,33	0	1,37	1,08

Tableau 4-16 : Composition des produits de combustion pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène avec une teneur en hydrogène de 10 %mol à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 %mol (Tableau 4-17), l'hydrogène n'est pas retrouvé dans les produits de combustion. Ceci indique, comme pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec la même teneur, que l'hydrogène est brûlé entièrement. Avec l'augmentation de la quantité de tungstène introduite, une baisse de la quantité d'oxygène dans les produits de combustion est observée sans que des NO_x soient produits (3 cas sur 4). Ceci pourrait indiquer une consommation de l'oxygène par les particules de tungstène.

XH ₂ = 0,2						
Rapport N ₂ /O ₂	3,76			2,33		
[Tungstène] (g/m ³)	0	61,1	405,9	0	64,8	266,5
Composition molaire des produits de combustion						
O ₂ (% mol)	7,56	7,11	6,68	14,43	13,95	13,52
N ₂ (% mol)	69,45	69,01	70,12	62,50	62,64	63,30
H ₂ (% mol)	0	0	0	0	0	0
H ₂ O (% mol)	22,99	23,20	23,20	23,07	23,35	23,17
NO _x (% mol)	0	0,68	0	0	0	0

Tableau 4-17 : Composition des produits de combustion pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Tungstène avec une teneur en hydrogène de 20 %mol à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 %mol (Tableau 4-18), des similitudes importantes avec les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite sont trouvées. En effet, pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ de 3,76, de l'hydrogène est retrouvé dans les produits de combustion en quantité de plus en plus importante avec l'augmentation de la quantité de tungstène.

Pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ égal à 2,33, l'hydrogène brûle entièrement. De plus, la quantité d'oxygène dans le milieu diminue avec l'augmentation de la quantité de tungstène dans le milieu. On peut en déduire que celui-ci est consommé par la combustion des particules de tungstène. Ceci est également valable pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ de 3,76.

XH ₂ = 0,3								
Rapport N ₂ /O ₂	3,76				2,33			
[Tungstène] (g/m ³)	0	70,9	246,9	397,3	0	99,0	180,9	314,2
Composition molaire des produits de combustion								
O ₂ (% mol)	0,80	0,89	0,86	0,79	5,51	4,94	4,81	4,60
N ₂ (% mol)	64,12	61,10	61,52	60,38	59,10	59,44	59,48	59,43
H ₂ (% mol)	2,12	2,74	3,54	3,84	0	0	0	0
H ₂ O (% mol)	32,51	31,84	31,07	30,79	35,39	35,63	35,71	35,97
NO _x (% mol)	0,45	3,39	3,01	4,20	0	0	0	0

Tableau 4-18 : Composition des produits de combustion pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Tungstène avec une teneur en hydrogène de 30 %mol à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

4.2.2 Évolution de la pression dans l'enceinte

Comme pour les mélanges à base de graphite, l'étude de l'évolution de la pression dans l'enceinte au cours du temps est très importante car c'est à partir de cette évolution que sont déterminés les paramètres d'explosivités des mélanges tels que le temps de combustion t_C , la pression maximale de combustion P_{MAX} et l'indice de déflagration K_{ST} .

Il est important de connaître les paramètres pouvant influencer cette évolution pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène en fonction de leur teneur en hydrogène.

L'évolution de la pression des mélanges $H_2/O_2/N_2$ sans particules de tungstène, avec une teneur en H_2 de 10 %mol, dans l'enceinte au cours du temps est présentée sur la Figure 4-25 afin de tester la répétabilité des expériences.

Pour ces mélanges, l'évolution de la pression diffère selon l'expérience. Pour les expériences, les maxima de pression sont obtenues pour des temps variant de 208 à 224 ms soit une variation de près de 8 %.

Comme vu dans le chapitre précédent (cf. 3.1.1), ces flammes ont une propagation ascendante. Elles sont en outre très plissées, cela conduit donc à une répétabilité très limitée des expériences.

Pour les flammes les plus lentes, le maximum de pression dans l'enceinte est légèrement plus faible que dans le cas des flammes les plus rapides. Pour ces mélanges, les temps de combustion étant longs, les pertes thermiques sont importantes, celles-ci l'étant d'autant plus que le temps de combustion est long, conduisant à des maxima de pression plus faibles.

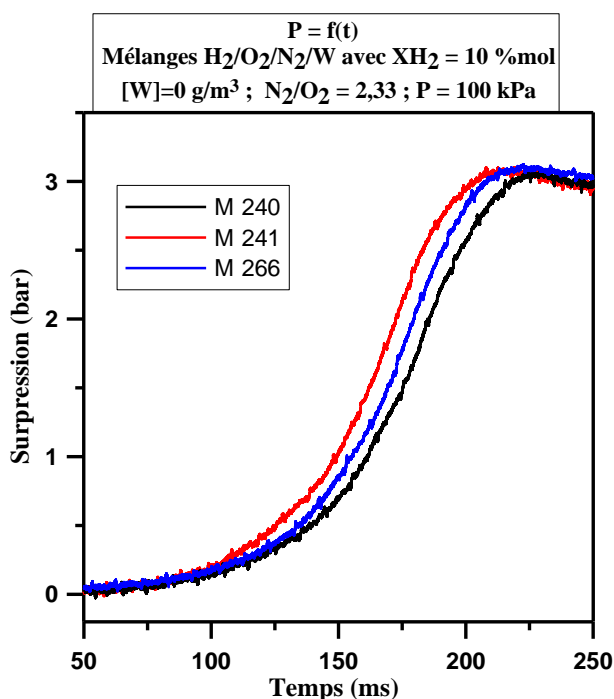


Figure 4-25 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol et un rapport $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 100$ kPa et $T_{INI} = 298$ K

Une augmentation de la quantité de poussières dans le milieu (Figure 4-26) conduit globalement à une baisse du temps de combustion par rapport aux mélanges sans poussières.

En réalité pour un domaine allant de 0 à 212,7 g/m³, la présence de particules ajoute de la turbulence au milieu ce qui conduit à une diminution du temps de combustion. Cependant, arrivé à un certain point, lorsque la concentration en tungstène augmente à nouveau (410,8 g/m³), les perturbations liées à la présence de particules deviennent trop importantes ce qui induit une augmentation du temps de combustion.

Sur l'ensemble du domaine testé, l'augmentation de la quantité de particules dans le milieu induit une augmentation du maximum de pression. Contrairement aux particules de graphite, les particules de tungstène jouent moins le rôle de puits de chaleur même lorsque celles-ci ne brûlent pas. Leur effet accélérateur conduit à une baisse du temps de combustion, ce qui signifie une baisse des pertes thermiques et donc une augmentation du maximum de pression.

Une diminution du rapport N₂/O₂ (Figure 4-27) de 3,76 à 2,33 conduit à une diminution, sur tout le domaine étudié, du temps de combustion. Cette diminution du temps de combustion est due à une augmentation de la réactivité du mélange à cause de la présence accrue d'oxygène dans l'enceinte. Aucune différence notable n'est observée concernant l'influence du ratio N₂/O₂ sur les maxima de pression.

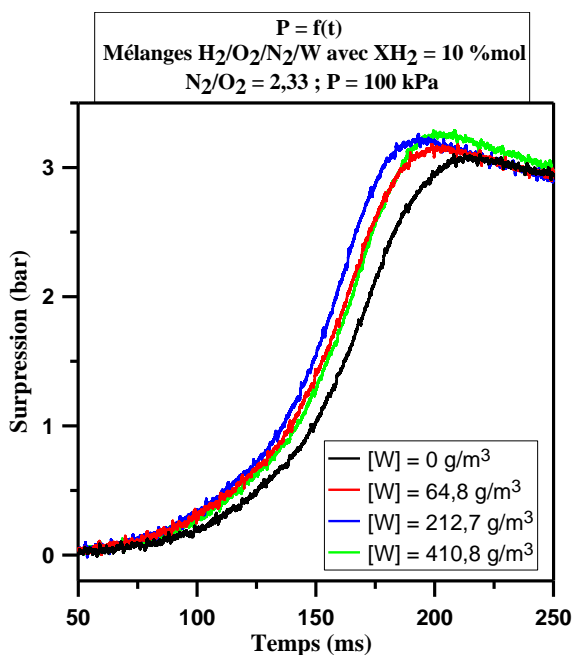


Figure 4-26 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂/W avec une teneur en H₂ de 10 %mol, pour différentes concentrations en tungstène, pour un rapport N₂/O₂ = 2,33 à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

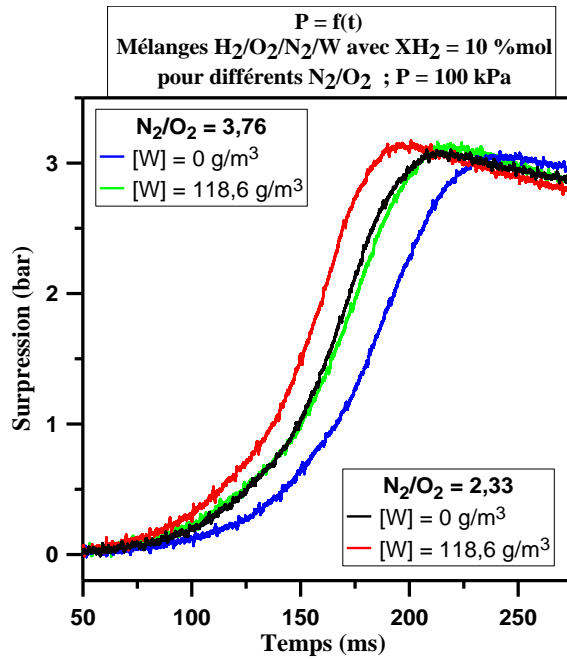


Figure 4-27 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/W$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol, pour différentes concentrations en tungstène et différents rapports N_2/O_2 , à $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$ et $T_{INI} = 298 \text{ K}$

L'évolution de la pression des mélanges $H_2/O_2/N_2$ sans particules de tungstène, avec une teneur en H_2 de 20 %mol, dans l'enceinte au cours du temps est présentée sur la Figure 4-28 afin de tester la répétabilité des expériences.

Pour ces mélanges, la propagation de flamme se fait de manière sphérique lisse devenant cellulaire au cours du temps (cf. 3.1.2). L'étude des évolutions de la pression dans l'enceinte au cours du temps montre une bonne répétabilité (temps de combustion et maxima de pression équivalents) des expériences.

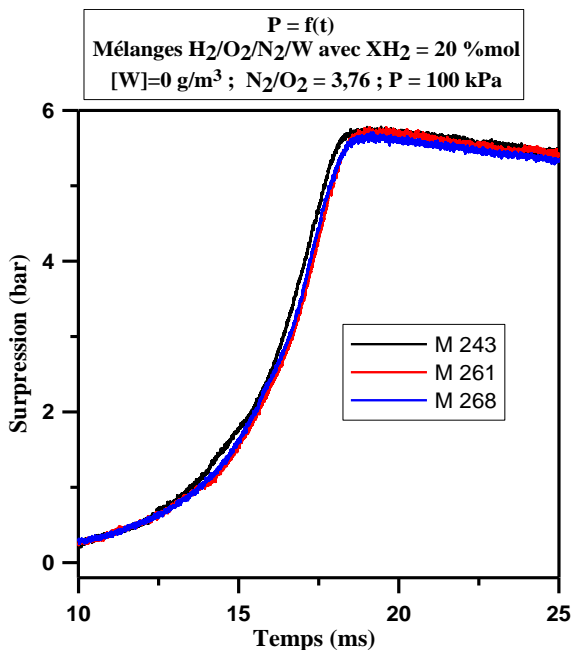


Figure 4-28: Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en H_2 de 20 %mol et un rapport $N_2/O_2 = 3,76$ à $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$ et $T_{INI} = 298 \text{ K}$

L'injection de particules dans le milieu (Figure 4-29 et Figure 4-30) conduit à une diminution du temps de combustion. En effet, contrairement aux mélanges avec du graphite, la forme du pic de pression reste semblable à celle du mélange sans particules. En effet, la présence de particules qui brûlent conduit à une diminution du temps de combustion à cause de la turbulence générée par la combustion du tungstène.

La présence dans le milieu du tungstène induit une augmentation des maxima de pression par rapport aux mélanges sans poussières. Cependant, quelque soit la quantité de tungstène dans le milieu, les profils de pression sont identiques.

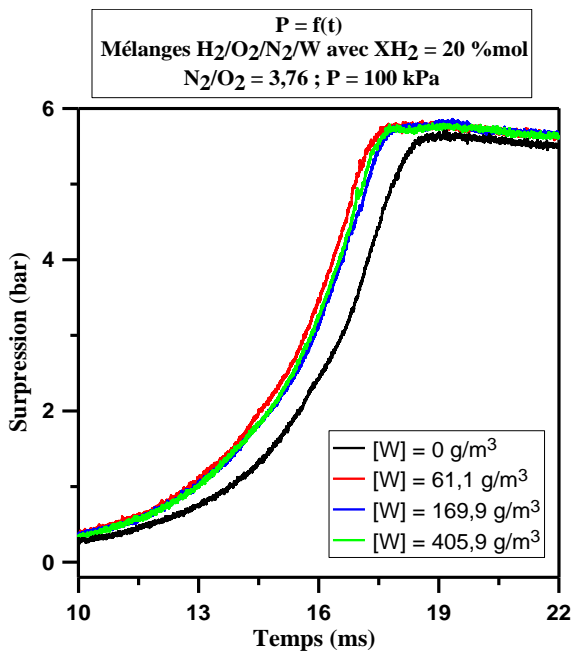


Figure 4-29 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂/W avec une teneur en H₂ de 20 %mol, pour différentes concentrations en tungstène, pour un rapport N₂/O₂ = 3,76 à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

Une diminution du rapport N₂/O₂ (Figure 4-30) de 3,76 à 2,33 conduit à une diminution, sur tout le domaine étudié, du temps de combustion. Cette diminution du temps de combustion est due à une augmentation de la réactivité du mélange à cause de la présence accrue d'oxygène dans l'enceinte. L'enrichissement du mélange en oxygène ne modifie pas le maximum de pression enregistré.

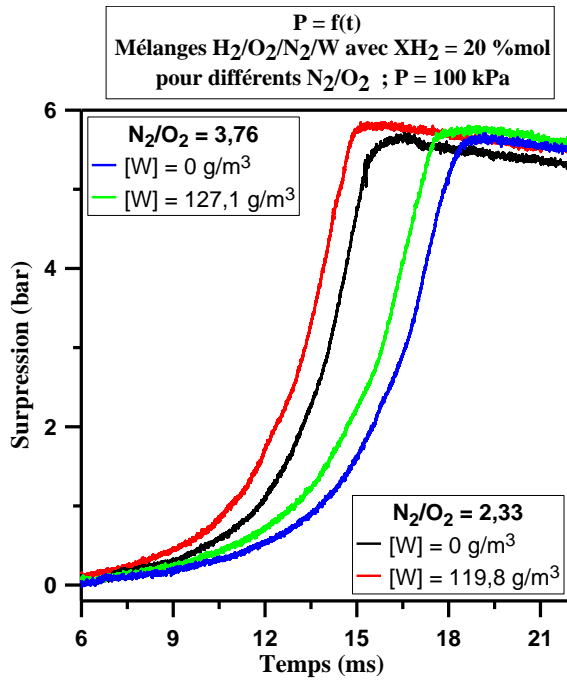


Figure 4-30 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂/W avec une teneur en H₂ de 20 %mol, pour différentes concentrations en tungstène et différents rapports N₂/O₂, à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

L'évolution de la pression des mélanges H₂/O₂/N₂ sans particules de graphite, avec une teneur en H₂ de 30 %mol, dans l'enceinte au cours du temps est présentée sur la Figure 4-31 afin de tester la répétabilité des expériences.

Pour ces mélanges, la propagation de flamme se fait de manière sphérique lisse (cf. 3.1.3). L'étude des évolutions de la pression dans l'enceinte au cours du temps montre une bonne répétabilité (temps de combustion et maxima de pression équivalents) des expériences.

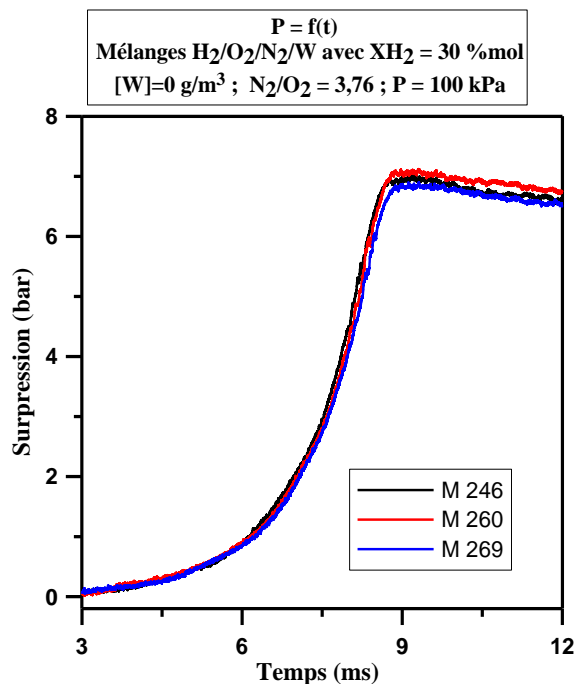


Figure 4-31 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂ avec une teneur en H₂ de 30 %mol et un rapport N₂/O₂ = 3,76 à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

L'injection de particules dans l'enceinte (Figure 4-32) induit la création d'une turbulence résiduelle au moment de l'inflammation. De plus, la flamme se propage dans un milieu diphasique qui entraîne le plissement de sa surface et donc une augmentation de la vitesse de combustion. Ces deux phénomènes combinés ont pour résultat une diminution significative du temps de combustion.

La présence de graphite dans le milieu pour un large domaine de concentration (de 47,7 à 246,9 g/m³) n'induit pas pour ces mélanges (Figure 4-32) à une modification des maxima de pression. En effet, les produits de combustion du tungstène étant en grande majorité sous forme solide, celui-ci en brûlant n'ajoute pas de surpression supplémentaire au milieu. Ce phénomène conduit à des valeurs de maxima de pression, pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ = 3,76, quasi-identiques sur l'ensemble du domaine.

Une diminution du rapport N₂/O₂ de 3,76 à 2,33 conduit à une diminution du temps de combustion (Figure 4-33).

Comme pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite (Figure 4-12), on observe dans certains cas des pics pendant la montée en pression perturbant la détermination de l'indice de déflagration.

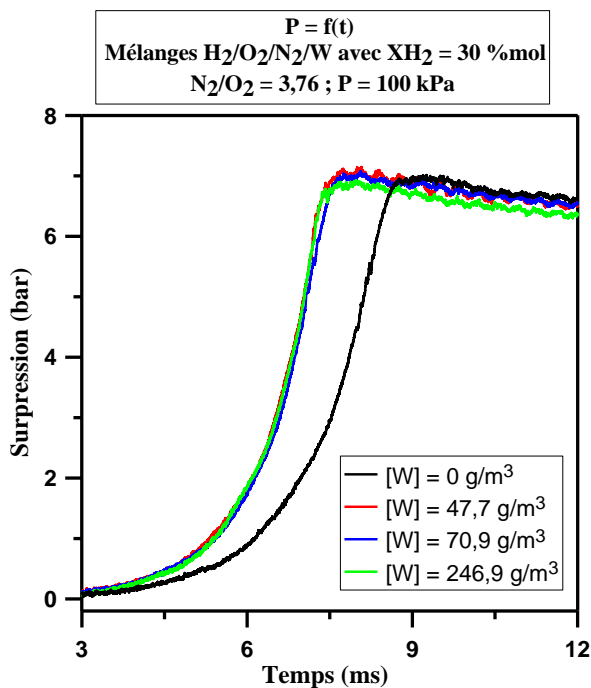


Figure 4-32 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂/W avec une teneur en H₂ de 30 %mol, pour différentes concentrations en tungstène, pour un rapport N₂/O₂ = 3,76 à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

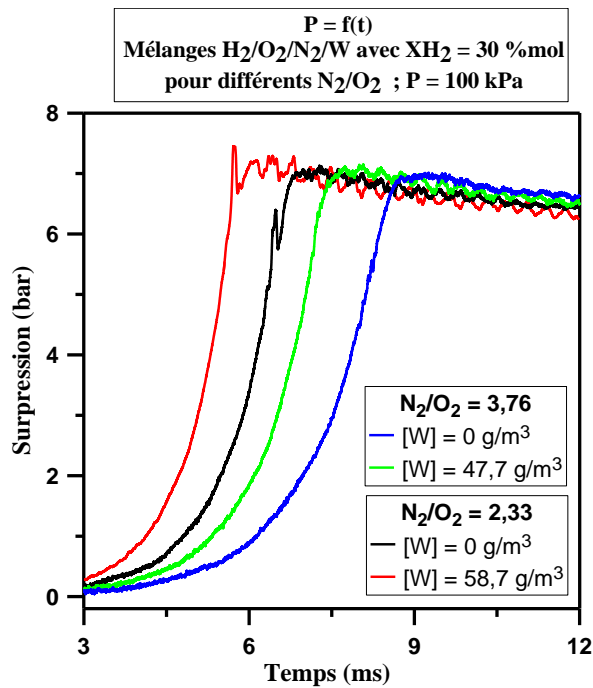


Figure 4-33 : Évolution de la surpression au cours du temps dans l'enceinte pour des mélanges H₂/O₂/N₂/W avec une teneur en H₂ de 30 %mol, pour différentes concentrations en tungstène et différents rapports N₂/O₂, à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K

4.2.3 Enregistrements vidéo

La troisième partie de la description de la combustion des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite concerne la description des explosions via des enregistrements vidéo de la propagation de la flamme dans l'enceinte.

Pour un mélange avec une teneur en hydrogène de 10 %mol (Figure 4-34), aucun phénomène ne traduisant la combustion ou non des particules de tungstène n'est observé. Le comportement est semblable aux mélanges avec les poussières de graphite. La flamme se propage comme le mélange pur avec une propagation se faisant de manière ascendante préférentiellement (cf. 3.1.1).

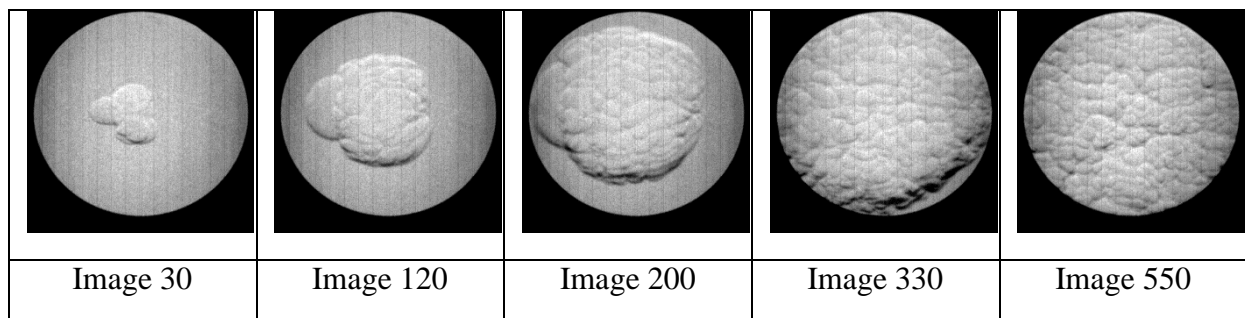
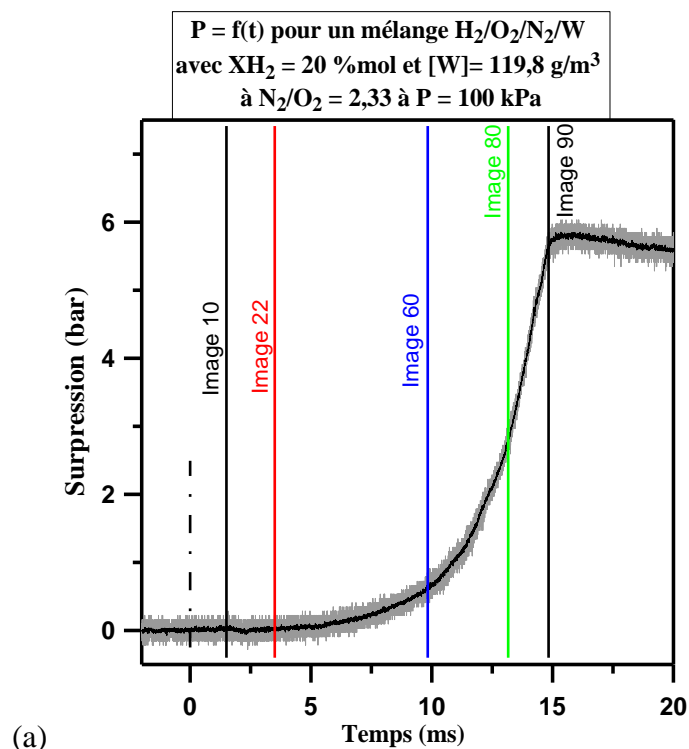


Figure 4-34 : Évolution de la flamme au cours du temps pour un mélange H₂/O₂/N₂/Tungstène avec [Tungstène] = 129,58 g/m³, N₂/O₂ = 3,76 à P_{INI} = 100 kPa et T_{INI} = 298 K (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s)

Pour un mélange avec une teneur en hydrogène de 20 % mol (Figure 4-35), l'apparition d'un flash extrêmement lumineux (il démarre pour l'image 80 et devient très important à l'image 90) pendant la propagation de la flamme, prouve la combustion des particules de tungstène dans cet intervalle de temps. Quand les images de l'observation de la flamme sont mises en rapport avec le pic de pression observé simultanément, on note que la combustion des particules de graphite se fait pendant la montée en pression dans le milieu (la pression dans le milieu est à ce moment précis d'environ 350 kPa). Ce même phénomène est observé pour les différents mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 % mol. On peut en conclure, qu'au départ de la flamme seul l'hydrogène brûle, celui-ci conduit à une augmentation de la pression de la température et de la pression à l'intérieur de l'enceinte conduisant à l'inflammation des poussières de tungstène.

Le même type de phénomène est observé pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 % mol (Figure 4-36).

Le même type de comportement a été observé par Denkevits [113] : une partie de l'hydrogène a besoin de brûler afin de permettre la combustion des particules de tungstène (cf. 1.4.2.2). Cependant, il observe ce comportement à partir des teneurs en hydrogène de 7 % mol, alors que pour notre étude, on l'observe à partir de teneurs en hydrogène de 20 % mol.



(b)

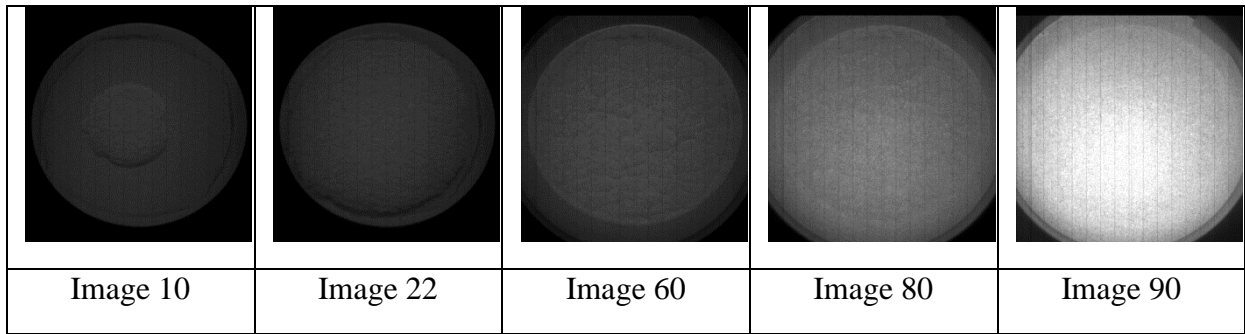
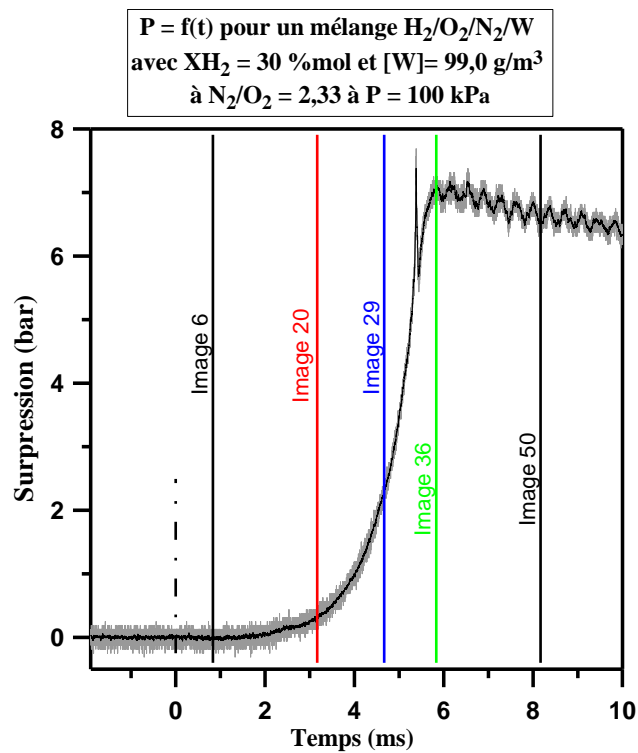


Figure 4-35 : Évolutions : (a) du signal de pression et (b) de la flamme au cours du temps pour un mélange $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène avec $[Tungstène] = 119,8 \text{ g/m}^3$, $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$ et $T_{INI} = 298 \text{ K}$ (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s)



(a)

(b)

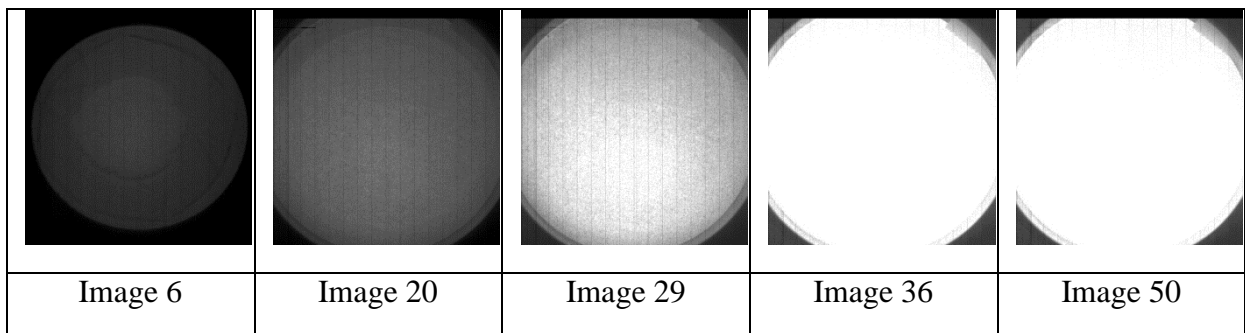


Figure 4-36 : Évolutions : (a) du signal de pression et (b) de la flamme au cours du temps pour un mélange $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène avec $[Tungstène] = 99,0 \text{ g/m}^3$, $N_2/O_2 = 2,33$ à $P_{INI} = 100 \text{ kPa}$ et $T_{INI} = 298 \text{ K}$ (Vitesse d'acquisition des images = 6000 images/s)

4.2.4 Analyse des particules

Les produits de combustion des particules de tungstène étant sous forme solide, ceux-ci ne peuvent pas être analysés par chromatographie en phase gazeuse. Afin de déterminer la composition et nature exacte, des échantillons de ces particules ont été prélevés à l'intérieur de la bombe sphérique après différentes expériences.

Ceux-ci ont été envoyés au CRMD (Centre de Recherche sur la Matière Divisée situé sur le campus du CNRS d'Orléans) où ils ont été analysés par Microscopie Electronique en Transmission (MET) et par Spectroscopie de Photoelectron X (XPS).

4.2.4.1 Caractéristiques des instruments utilisés :

Le microscope utilisé pour ces analyses est un microscope Electronique en transmission Philips CM20 et ses caractéristiques sont les suivantes :

- Tension d'accélération : 200 kV ;
- Source d'émission : LaB6 ;
- Résolution : 0,14 nm ;
- Caméra : Caméra numérique Gatan Orius ;
- Analyse par dispersion d'énergie : Détecteur EDX-EADX ; Logiciel : IDFix.

Le spectroscope utilisé pour cette étude est un ESCALAB 250 de ThermoFischer Scientific® et ses caractéristiques sont les suivantes :

- Platine motorisée permettant de mémoriser la position d'un point d'analyse avec une précision de l'ordre du micron ;
- Monochromateur avec une résolution accrue des états chimiques et une puissance améliorée pour les petites surfaces d'analyse ;
- Source Twin anode Al et Mg, sans monochromateur ;
- Système de détection à six lentilles : cinq électrostatiques et une magnétique. Gain de signal ;
- Platine refroidie à l'azote liquide pour éviter la diffusion d'éléments lors de l'érosion ;
- Caméra pour le repérage des zones analysées ;
- Système de neutralisation de charge pour isolants ;
- Canon d'abrasion ionique ;
- Résolution latérale : 20 μm ;

- Profondeur d'analyse : De 2 à 10 nm ;
- Limite de détection : 0.05 % atomiques.

4.2.4.2 Analyse des particules pour les mélanges ave 10 %mol de H₂

Pour ces mélanges, des échantillons de particules de tungstène post-combustion pour deux différentes expériences ont été récupérés. Les conditions des expériences pour lesquelles les prélèvements ont été effectués sont les suivantes :

- Test 235 : Ratio molaire N₂/O₂ = 3,76 ; [Tungstène] = 424,2 g/m³ ; T = 299 K, P = 1,02 bar ;

- Test 239 : Ratio molaire N₂/O₂ = 2,33 ; [Tungstène] = 410,8 g/m³ ; T = 299 K, P = 1,03 bar.

La Figure 4-37 représente différentes vues observées par MET confirmant la présence de WO₃ en surface de la particule. La caractérisation de ces particules a été réalisée via la distance inter-plan qui est une donnée caractéristique d'une molécule (environ 3,7 Å pour le WO₃). Aucune particule de W(s) n'a été observée sur l'ensemble des échantillons testés.

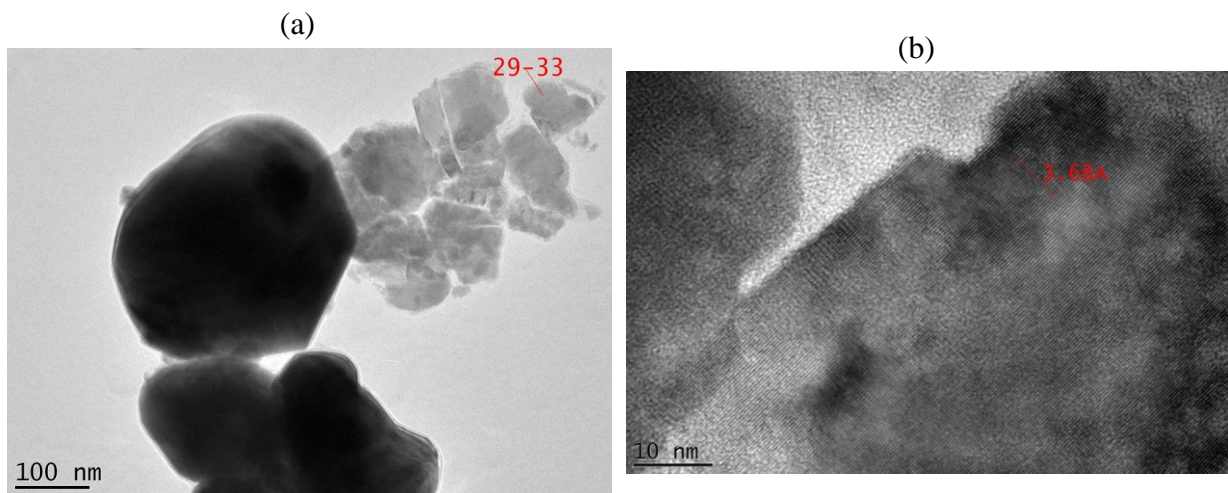


Figure 4-37 : Images observées via MET sur les particules prélevées lors du test 235 : (a) Observation de différents cristallites (b) Zoom sur la particule 32

L'analyse par XPS confirme ces résultats. Les résultats de cette analyse montrent une oxydation en surface des particules de W(s) en WO₃. Une partie des résultats des analyses réalisées par XPS sont présentées sur la Figure 4-38. Pour ces analyses aussi, aucune particule de W(s) n'a été observée sur l'ensemble des échantillons testés.

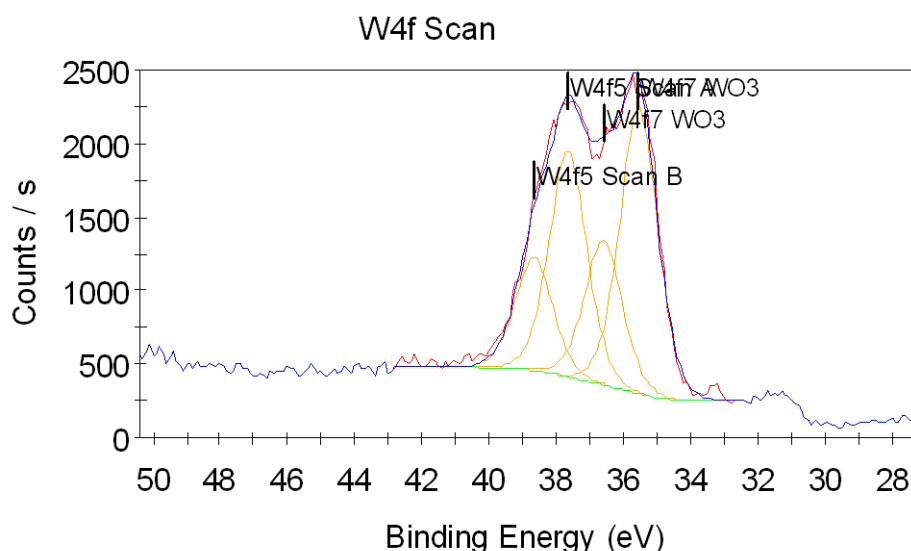


Figure 4-38 : Analyse par XPS des particules de tungstène prélevées lors du test 235

Les analyses réalisées sur les échantillons tirés d'expériences pour des mélanges avec 10 %mol d'hydrogène montrent une oxydation en surface des particules de tungstène en WO_3 . Ce phénomène peut paraître surprenant car contrairement aux mélanges avec 20 et 30 %mol d'hydrogène dans le milieu, aucune observation de ce phénomène n'a pu être faite via l'analyse de l'enregistrement vidéo.

4.2.4.3 Analyse des particules pour les mélanges avec 30 %mol de H_2

Pour ces mélanges, un échantillon de particules de tungstène a été récupéré et envoyé en analyse. Les caractéristiques de ce test sont les suivantes :

- Test 231 : Ratio molaire $\text{N}_2/\text{O}_2 = 3,76$; [Tungstène] = $397,3 \text{ g/m}^3$; $T = 299 \text{ K}$, $P = 1,04 \text{ bar}$.

L'analyse par MET permet d'observer des particules de WO_3 sur la surface de l'échantillon. La caractérisation de ces particules a été réalisée via la distance inter-plan qui est une donnée caractéristique d'une molécule (environ $3,7 \text{ \AA}$ pour le WO_3). La Figure 4-39 représente différentes vues observées par MET. Ces résultats montrent une oxydation des particules de tungstène en WO_3 comme cela pouvait être attendu après la visualisation des enregistrements vidéos (le flash lumineux indiquant la combustion des particules).

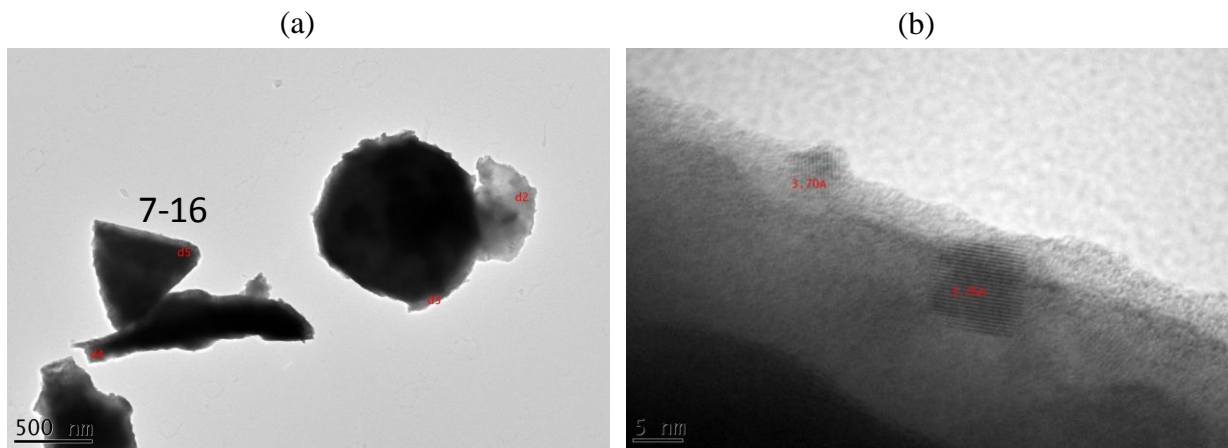


Figure 4-39 : Images observées via MET sur les particules prélevées lors du test 231 : (a) Observation de différents cristallites (b) Zoom sur les particules 10 et 11

Les résultats des analyses en XPS pour cet échantillon sont présentés sur la Figure 4-40. A la différence de l'analyse en MET, on observe pour cet échantillon, une oxydation du tungstène en $WO_3(s)$ mais également en $WO_2(s)$. Cependant, aucune trace de $W(s)$ n'est trouvée. Le ratio entre la quantité de WO_3 trouvée et celle de WO_2 est environ égal à 10.

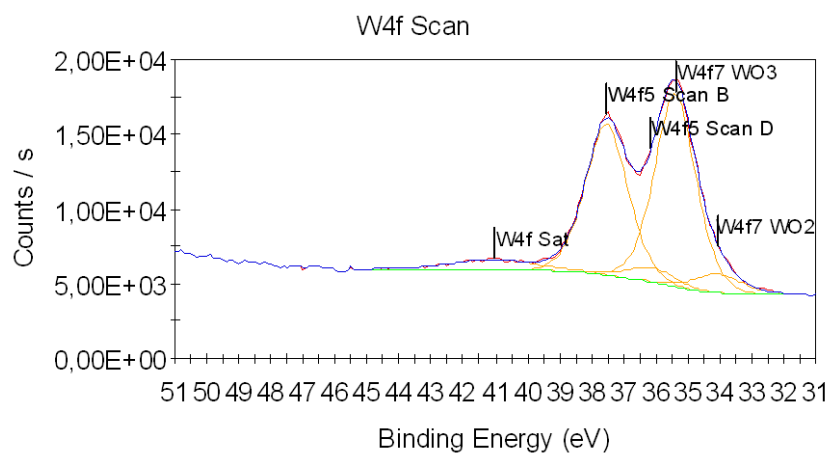


Figure 4-40 : Analyse par XPS des particules de tungstène prélevées lors du test 231

Les analyses réalisées sur l'échantillon prélevé pour un mélange avec 30 %mol d'hydrogène montrent une oxydation des particules de tungstène solide en WO_3 et WO_2 . Contrairement aux mélanges avec 10 %mol, ce résultat est attendu car l'observation de l'enregistrement vidéo montre un flash lumineux caractéristique de l'explosion des particules de tungstène.

4.2.5 Pression maximale de combustion

La Figure 4-41 représente la pression maximale de combustion, P_{MAX} , et le rapport P_{MAX}/P_{ini} des mélanges $H_2/O_2/N_2/W$ avec une teneur en hydrogène de 10 % mol en fonction de la concentration en particules de tungstène dans le milieu.

La représentation de P_{MAX}/P_{ini} est souhaitable car la méthode d'injection des poussières dans la bombe sphérique peut conduire, à cause du débit très important des gaz et du faible temps d'injection des poussières, à des différences pouvant aller jusqu'à 4 kPa, qui peuvent empêcher de déterminer des tendances concernant l'impact d'un paramètre donné sur P_{MAX} . Ce phénomène présent pour tous les mélanges, où le tungstène se retrouve dans le mélange initial, ne l'est pas pour les poussières de graphite présentées précédemment, les conditions d'injection étant plus favorables (débit plus faible et temps d'injection plus long).

Une augmentation de la concentration en tungstène dans le milieu conduit, pour un rapport molaire N_2/O_2 donné, à une augmentation du rapport P_{MAX}/P_{ini} donc à un accroissement de P_{MAX} (Figure 4-26). Une diminution du rapport N_2/O_2 de 3,76 à 2,33 conduit à une augmentation de P_{MAX} pour une concentration en tungstène donnée (Figure 4-27). On note, néanmoins que les valeurs obtenues sont très inférieures à celles de la P_{AICC} des mélanges avec poussières. En effet, les calculs thermodynamiques réalisés montrent (Tableau 4-13) que pour ces mélanges, les particules de tungstène brûlent alors qu'expérimentalement, on observe seulement une oxydation de surface des particules de tungstène en $WO_3(s)$ (Figure 4-37 et Figure 4-38).

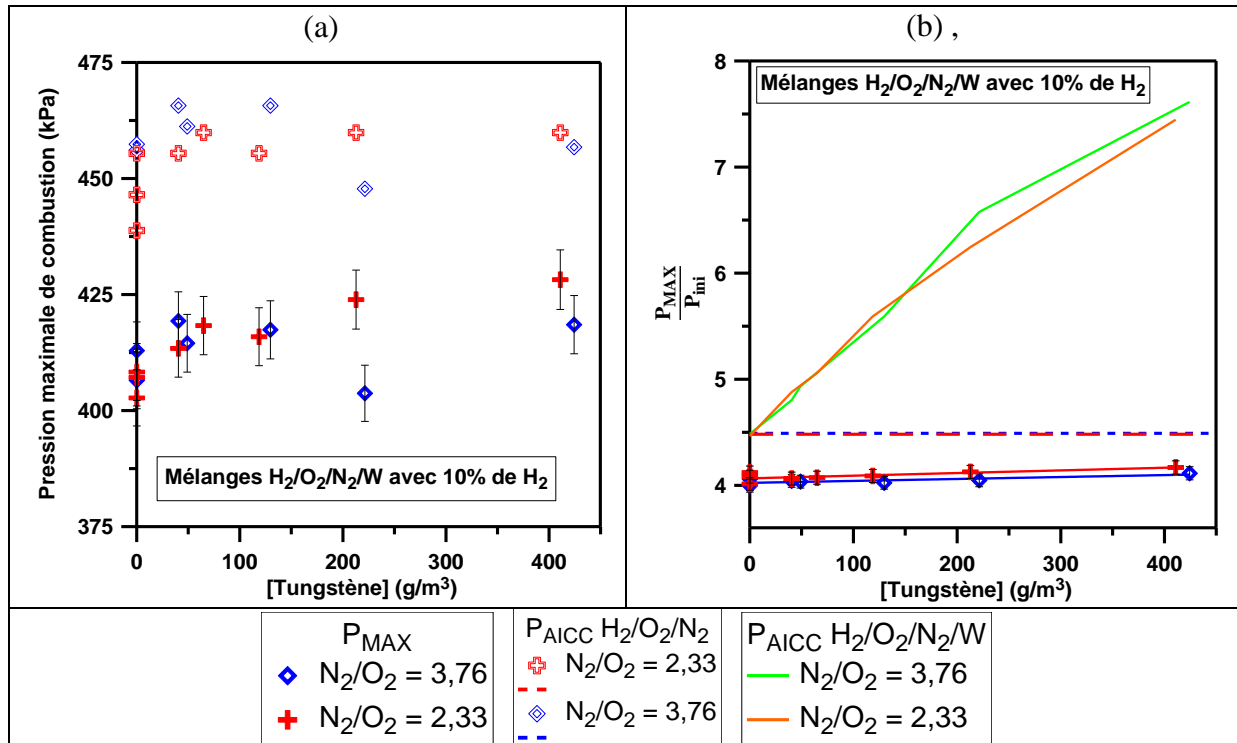


Figure 4-41 : (a) Pressions maximales de combustion, P_{MAX} , et (b) rapport P_{MAX}/P_{ini} en fonction de la concentration en particules de tungstène dans le milieu pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/W$ avec une teneur en hydrogène de 10% mol pour différents rapports molaires N_2/O_2

Les pressions maximales d'explosion et les rapports P_{MAX}/P_{ini} sont représentés en fonction de la concentration en particules de tungstène dans le milieu pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/W$ avec une teneur en hydrogène de 20 % mol sur la Figure 4-42.

Pour tous les mélanges présentés ici, le rapport N_2/O_2 n'influe pas sur la valeur de P_{MAX} . Les valeurs obtenues pour les rapports N_2/O_2 égaux à 2,33 et 3,76 sont semblables (Figure 4-30). La comparaison des P_{MAX} avec les P_{AICC} des mélanges $H_2/O_2/N_2$ purs montre que les pressions maximales de combustion sont inférieures de près de 25 kPa à la P_{AICC} . Si on suppose une combustion des particules de tungstène en se basant sur les expériences avec le graphite, ces valeurs de P_{MAX} peuvent s'expliquer par le fait que contrairement au graphite, la grande majorité des produits de combustion des particules de tungstène sont sous forme solide et donc ne rajoutent pas de surpression supplémentaire au mélange lors de sa combustion.

L'impact de la concentration en tungstène sur P_{MAX} est semblable pour les deux rapports molaires N_2/O_2 . La pression maximale de combustion augmente quand la concentration en tungstène s'accroît de 0 à environ 150 g/m^3 , concentration pour laquelle elle atteint son maximum avec des valeurs de rapport P_{MAX}/P_{ini} d'environ 6,6. Au-delà de cette concentration, P_{MAX} diminue très légèrement quand la concentration en tungstène augmente (pour un rapport $N_2/O_2 = 2,33$) ou n'est pas modifiée avec une valeur de rapport P_{MAX}/P_{ini} égale à 6,6 (pour un rapport $N_2/O_2 = 3,76$).

Les pressions maximales de combustion sont très inférieures aux valeurs de P_{AICC} des mélanges avec poussières obtenues. Cela s'explique par le fait que les calculs à l'équilibre sont réalisés avec le fait que l'hydrogène et les particules de tungstène brûlent ensemble. Au niveau expérimental, le déroulement de l'expérience est différent. En effet, comme vu sur la Figure 4-35, on observe tout d'abord après inflammation une combustion de l'hydrogène dans le milieu. Celle-ci provoque une augmentation de la température et de la pression dans l'enceinte qui conduit à l'inflammation des particules de tungstène. En effet, les conditions d'inflammation utilisées pour nos expériences ne permettent pas l'inflammation des particules de tungstène directement, la combustion de ces particules devant passer par l'explosion d'une partie de l'hydrogène.

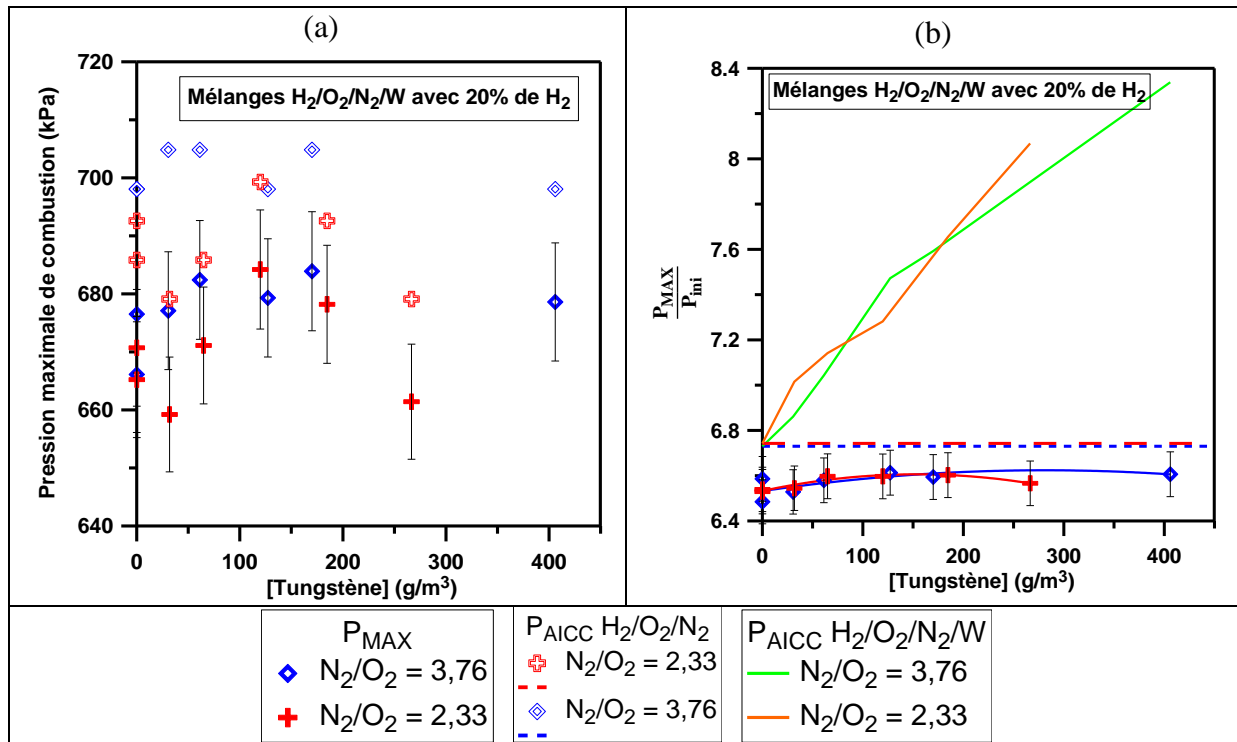


Figure 4-42 : (a) Pressions maximales de combustion, P_{MAX} , et (b) rapport P_{MAX}/P_{ini} en fonction de la concentration en particules de tungstène dans le milieu pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/W$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol pour différents rapports molaires N_2/O_2

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 %mol (Figure 4-43), une augmentation de la quantité d'oxygène dans le milieu initial (soit une baisse du rapport N_2/O_2 de 3,76 à 2,33) conduit, pour une concentration en tungstène donnée, à une augmentation de la pression maximale de combustion. L'influence de la concentration en particules de tungstène est différente selon le rapport N_2/O_2 du mélange. Pour les mélanges à $N_2/O_2 = 3,76$, la pression maximale de combustion augmente quand la concentration en tungstène augmente de 0 à 47,7 g/m³. Pour des concentrations supérieures, une augmentation de celle-ci conduit à une baisse des valeurs de P_{MAX} . À l'inverse pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 2,33, sur tout le domaine une augmentation de la concentration en tungstène conduit de manière générale à une augmentation de la pression maximale de combustion. On remarque de plus que pour certaines expériences, le rapport P_{MAX}/P_{ini} est supérieur à P_{AICC}/P_{ini} , bien que la différence entre les deux valeurs reste dans la marge d'erreur de P_{MAX}/P_{ini} . Ces valeurs peuvent s'expliquer par le fait que la puissance de l'explosion est tellement importante, caractérisées par des t_C très courts (Figure 4-46) et des K_{ST} très élevés (Figure 4-49) qu'une petite partie des produits de combustion du tungstène généralement en phase solide est pour ces expériences passée en phase gazeuse.

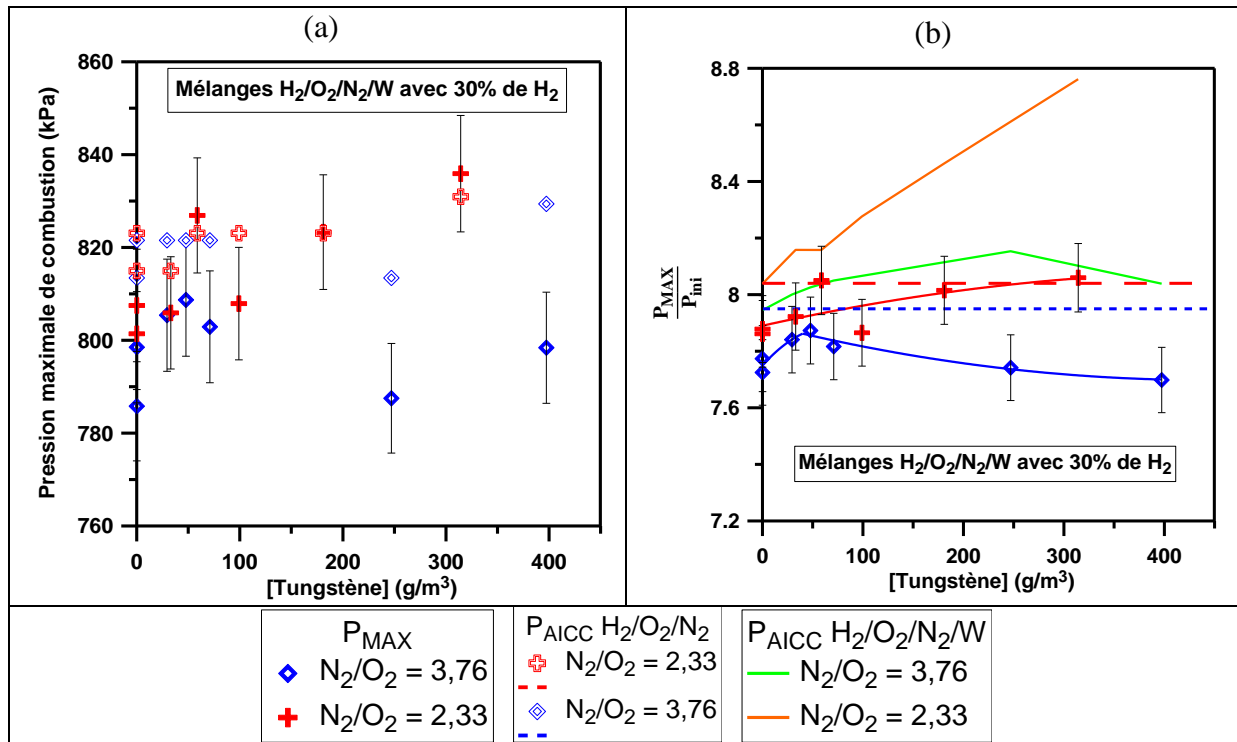


Figure 4-43 : (a) Pressions maximales de combustion, P_{MAX} , et (b) rapport P_{MAX}/P_{ini} en fonction de la concentration en particules de tungstène dans le milieu pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/W$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol pour différents rapports molaires N_2/O_2 à 100 kPa et 298 K

4.2.6 Temps maximal de combustion

Les temps de combustion des mélanges $H_2/O_2/N_2/W$ avec une teneur en hydrogène de 10 %mol sont donnés en fonction de la concentration en particules de tungstène sur la Figure 4-44.

Pour les mélanges sans tungstène, on observe une certaine dispersion des valeurs de t_C (Figure 4-25). Pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 2,33, la présence de tungstène dans le milieu conduit à une diminution du temps de combustion jusqu'à une concentration en particules environ égale à 200 g/m³. Par exemple, t_C est de 215, 191 puis 199 ms quand la concentration en particules de tungstène est de 0, 212,7 et 410,8 g/m³ respectivement. Pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 3,76, le minimum de t_C est observé pour des concentrations en tungstène aux alentours de 50 g/m³.

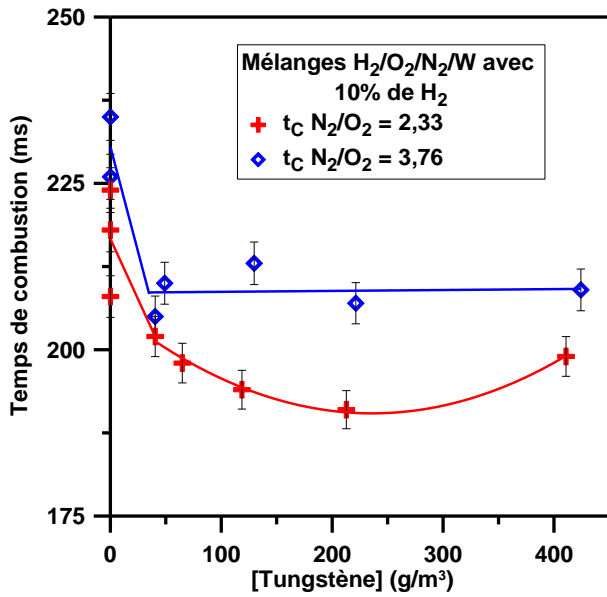


Figure 4-44 : Temps de combustion, t_C , des mélanges H₂/Tungstène/O₂/N₂ avec 10 %mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N₂/O₂ à 100 kPa et 298 K

Les temps de combustion des mélanges H₂/O₂/N₂/W avec une teneur en hydrogène de 20 %mol sont donnés en fonction de la concentration en particules de tungstène sur la Figure 4-45. Sur tout le domaine étudié, une diminution du rapport molaire N₂/O₂ de 3,76 à 2,33 conduit à une diminution du temps de combustion (Figure 4-30). L'impact de la concentration en particules de tungstène dans le milieu n'a que peu voire pas d'influence sur les valeurs du temps de combustion, t_C oscillant entre 19 et 20 et entre 15 et 16 ms pour les mélanges avec un N₂/O₂ respectivement égal à 3,76 et à 2,33 sur tout le domaine étudié (Figure 4-29).

Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 30 %mol (Figure 4-46), une diminution du rapport N₂/O₂ de 3,76 à 2,33 conduit à une diminution du temps de combustion sur tout le domaine (Figure 4-33).

La présence de tungstène dans le milieu conduit à une baisse de t_C par rapport aux mélanges sans poussières. Par exemple, la présence de tungstène dans le milieu conduit à une diminution de 9 à 8 ms pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ égal à 3,76. Cependant, dès que le tungstène est présent dans le milieu, le temps de combustion est identique et cela pour tous les mélanges étudiés. Pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ égal à 2,33, le temps de combustion est égal à 6 ms dès que le tungstène est présent dans le milieu (Figure 4-32).

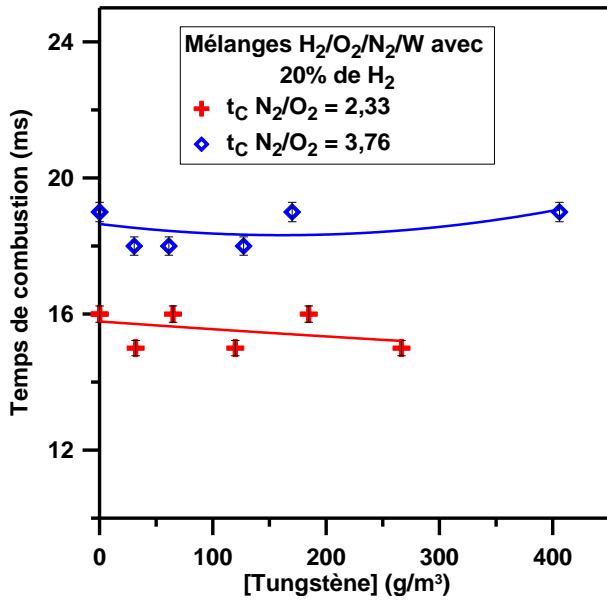


Figure 4-45 : Temps de combustion, t_c , des mélanges H₂/Tungstène/O₂/N₂ avec 20 %mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N₂/O₂ à 100 kPa et 298 K

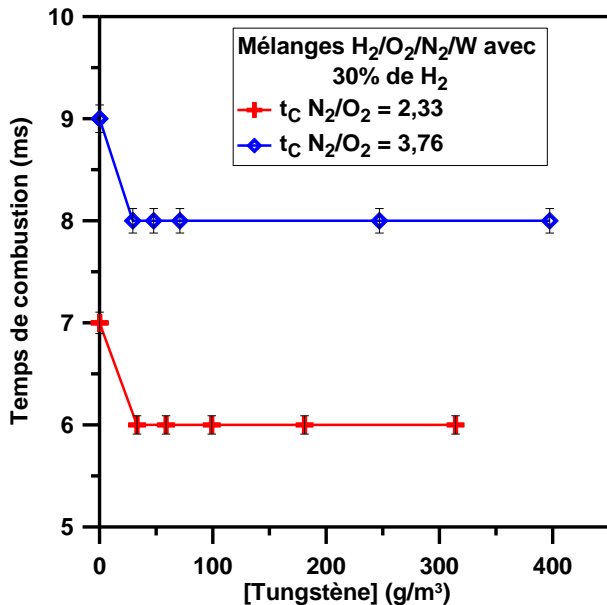


Figure 4-46 : Temps de combustion, t_c , des mélanges H₂/Tungstène/O₂/N₂ avec 30 %mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N₂/O₂ à 100 kPa et 298 K

4.2.7 Indice d'explosivité

Les indices de déflagration, K_{ST} , des mélanges H₂/O₂/N₂/W avec une teneur en hydrogène de 10%mol sont représentés en fonction de la concentration en particules de tungstène dans le milieu sur la Figure 4-47. Une diminution du rapport molaire N₂/O₂ de 3,76 à 2,33 conduit à une augmentation du K_{ST} sur tout le domaine étudié. Pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ égal à 3,76, une élévation de la concentration en tungstène dans le milieu conduit à une augmentation de K_{ST} sur tout le domaine en variant d'environ 0,9 à environ 1,15 MPa.m.s⁻¹ quand la concentration en tungstène augmente de 0 à 424,2 g/m³.

Pour les mélanges avec un N₂/O₂ de 2,33, l'indice de déflagration augmente quand la concentration en tungstène augmente de 0 à 212,8 g/m³, concentration pour laquelle le

maximum de K_{ST} est atteint (avec une valeur de $1,27 \text{ MPa.m.s}^{-1}$), au-delà quand la concentration en particules de tungstène augmente, l'indice de déflagration diminue à nouveau. Les mélanges $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2/\text{W}$ avec 10 %mol d'hydrogène dans le milieu sont classifiés St 1 dans la classification de Bartknecht (cf. 1.3.3).

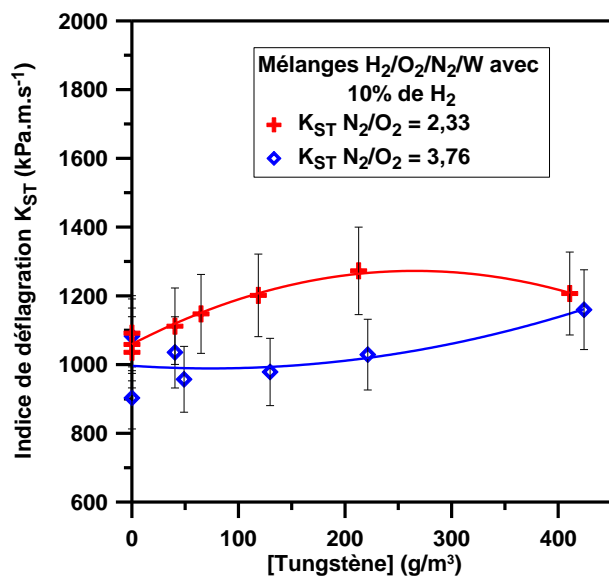


Figure 4-47 : Indice de déflagration, K_{ST} , des mélanges $\text{H}_2/\text{Tungstène}/\text{O}_2/\text{N}_2$ avec 10 %mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N_2/O_2 à 100 kPa et 298 K

Comme pour les mélanges précédents, une diminution du rapport N_2/O_2 de 3,76 à 2,33 conduit à une augmentation de l'indice de déflagration pour les mélanges $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2/\text{W}$ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol (Figure 4-48). La concentration en particules ne modifie pas l'indice de déflagration des mélanges $\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2/\text{W}$. En effet, pour les mélanges avec un rapport $\text{N}_2/\text{O}_2 = 3,76$, K_{ST} oscille entre 34 et 41 MPa.m.s^{-1} et entre 40 et 45 MPa.m.s^{-1} quand N_2/O_2 vaut 2,33. Tous ces mélanges sont, dans la classification de Bartknecht, classés St 3 (cf. 1.3.3).

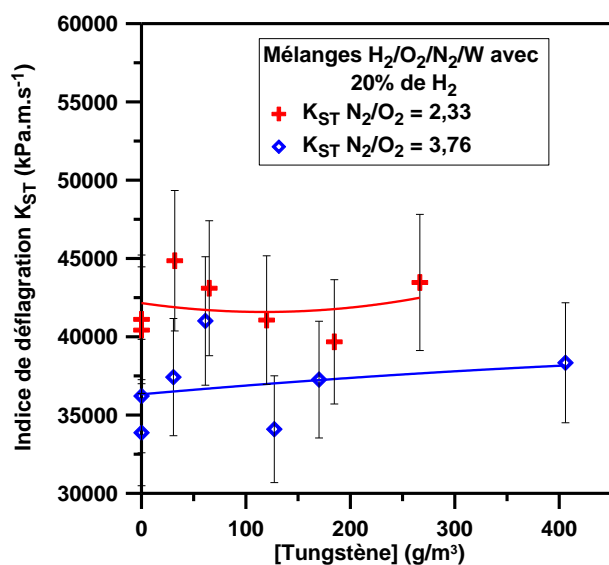


Figure 4-48 : Indice de déflagration, K_{ST} , des mélanges $\text{H}_2/\text{Tungstène}/\text{O}_2/\text{N}_2$ avec 20 %mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N_2/O_2 à 100 kPa et 298 K

Les indices de déflagration, K_{ST} , des mélanges $H_2/O_2/N_2/W$ avec une teneur en hydrogène de 30 % mol sont représentés en fonction de la concentration en particules de tungstène dans le milieu sur la Figure 4-49. Une diminution du rapport molaire N_2/O_2 de 3,76 à 2,33 conduit à une augmentation du K_{ST} sur tout le domaine étudié.

Quand la concentration en particules de tungstène dans le milieu s'accroît dans le milieu, K_{ST} augmente de manière « logarithmique ». Au départ, pour des faibles concentrations en tungstène (jusqu'à 50 g/m^3), K_{ST} augmente rapidement puis on observe une faible élévation (pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 2,33) voire une stagnation (pour les mélanges avec un N_2/O_2 de 3,76) des valeurs de l'indice de déflagration quand la concentration en particules de tungstène devient importante dans le mélange. Par exemple, pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 de 2,33, l'indice de déflagration augmente de 110 à 136 MPa.m.s^{-1} quand la concentration en tungstène varie de 0 à $33,0 \text{ g/m}^3$ puis à 143 et à 149 MPa.m.s^{-1} quand la concentration dans le milieu augmente et passe respectivement à 99,0 et à $314,2 \text{ g/m}^3$.

Tous ces mélanges sont classifiés St3 dans la classification de Bartknecht (cf. 1.3.3).

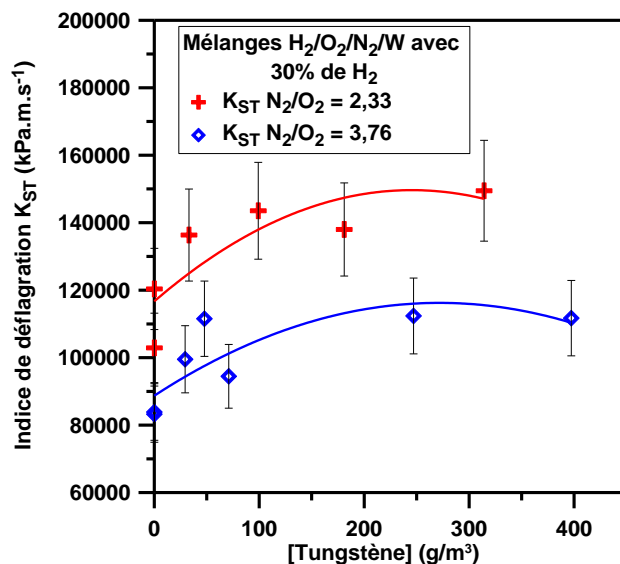


Figure 4-49 : Indice de déflagration, K_{ST} , des mélanges H_2 /Tungstène/ O_2/N_2 avec 30 % mol d'hydrogène en fonction de la concentration en tungstène dans le mélange pour différents rapports N_2/O_2 à 100 kPa et 298 K

4.3 Conclusion

Ce quatrième chapitre présente les résultats obtenus lors de l'étude de la combustion des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite et $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène dans une enceinte sphérique fermée. L'objectif de cette étude est de déterminer les paramètres d'explosivité de ces mélanges nécessaires, à la sûreté de l'installation ITER. Ces paramètres ont été mesurés pour des mélanges ayant une teneur en hydrogène comprise entre 10 et 30 % mol et pour deux rapports molaires N_2/O_2 de 2,33 et 3,76. Cette étude a été réalisée pour les particules de graphite à deux pressions initiales : 50 et 100 kPa et une seule pour les particules de tungstène : 100 kPa.

La première partie de ce chapitre concerne les mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite. Ceux-ci sont présentés en fonction de leur composition en hydrogène. Les paramètres étudiés sont les mêmes que ceux présentés dans le chapitre précédent : le temps de combustion, t_c , la pression

maximale de combustion, P_{MAX} , et l'indice de déflagration, K_{ST} . Des enregistrements vidéo ainsi que des mesures de la composition des gaz brûlés par chromatographie en phase gazeuse ont été également réalisées pour déterminer si pour un mélange donné, la combustion des poussières a lieu ou non. Des analyses par microscopie électronique en transmission et spectroscopie par photoélectron X ont également été réalisées sur des prélèvements de particules de tungstène post-combustion.

Les résultats obtenus montrent que la combustion des particules de graphite a lieu pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 20 et 30 %mol. Celle-ci se produit pendant la combustion de l'hydrogène, combustion nécessaire à l'inflammation des particules. Pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol, les particules de graphite jouent le rôle d'un puits de chaleur, la pression maximale de combustion diminue avec l'augmentation de la concentration en particules dans le milieu, mais joue le rôle d'accélérateur de la flamme d'hydrogène, le temps de combustion diminue avec l'augmentation de la concentration en particules de graphite. L'analyse des prélèvements des gaz brûlés par CPG permet de déterminer la quantité de particules de graphite transformé en CO et CO₂.

La deuxième partie concerne l'étude des mélanges H₂/O₂/N₂/Tungstène. Les paramètres étudiés sont identiques à ceux utilisés pour le graphite tout comme les conclusions. Les particules de tungstène brûlent quand la fraction molaire d'hydrogène dans le milieu est de 20 et de 30 %mol mais ne brûlent pas quand la fraction molaire en hydrogène est de 10 %mol. Cependant, pour ces mélanges contrairement à ceux avec du graphite, on observe une oxydation en surface des particules de tungstène, ce qui conduit à une augmentation de P_{MAX} avec l'augmentation de la concentration en particules de graphite.

CONCLUSION

Les travaux réalisés dans cette thèse s'inscrivent dans le cadre de l'évaluation de la sûreté de l'installation ITER. En effet, dans le processus de création d'électricité à partir de fusion nucléaire, une température initiale de plusieurs millions de degrés est nécessaire. Porté à très haute température, le plasma bien que confiné par un champ magnétique peut éroder les parois de l'enceinte métallique situé tout autour. Des dépôts de graphite, tungstène et béryllium peuvent alors se déposer sur les parois et dans le fond de l'enceinte VV. Des scénarii d'accident hors-dimensionnement prévoit, par des entrées d'eau ou d'air accidentelles, la mobilisation des ces particules dans l'enceinte et donc à la création d'atmosphères explosives composé d'hydrogène, de poussières métalliques, d'oxygène et d'azote. Ces mélanges sont susceptibles, dans différents cas de figure, de fissurer voire de détruire l'enceinte VV et donc de provoquer des dégâts irrémédiables à l'installation et à l'environnement proche. L'étude de la combustion des mélanges à base d'hydrogène et/ou de poussières de type graphite ou tungstène est donc nécessaire à la sûreté de l'installation ITER.

Une étude bibliographique a permis de mettre en exergue le manque de données concernant l'étude de certains mélanges. En effet, bien que les mélanges hydrogène-air soient extrêmement bien connus, les mélanges hydrogène-oxygène-azote le sont beaucoup moins notamment ceux où la fraction d'oxygène dans l'air devient supérieure à 21 %mol. Les données concernant les paramètres d'explosivité de ces mélanges sont également rares. Il en est de même pour les mélanges à base de poussières. Une attention toute particulière a été portée sur la caractérisation des explosions de poussières dans l'air et aujourd'hui les phénomènes les caractérisant sont bien définis. Néanmoins, les données concernant les nuages constitués d'un gaz combustible et d'une suspension de poussières ont été peu étudiés. C'est le cas pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ /poussières où seul Denkevits, en partie en collaboration avec Dorofeev, a travaillé sur les mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec des particules de graphite et/ou de tungstène. Néanmoins, les conditions utilisées lors de ses études (pourcentage d'hydrogène dans le milieu au maximum de 20 %mol, fraction d'oxygène dans l'air ne dépassant 21 %mol), ne couvrent pas toutes les conditions d'accident pouvant se réaliser dans l'installation ITER. Il existe donc un besoin de données supplémentaires notamment pour les mélanges avec de l'air enrichi en oxygène.

Pour mener à bien ces travaux, différents dispositifs expérimentaux (deux enceintes sphériques de 8,18 et 56 L) ont été utilisés. Ces enceintes sont hautement instrumentées pour permettre la visualisation de la flamme et la mesure du signal de pression. L'inflammation dans ces enceintes peut être réalisée par étincelle électrique ou par claquage laser. Dans les deux cas, l'énergie d'inflammation est mesurée pour chaque expérience. Les expériences sur les mélanges gazeux $H_2/O_2/N_2$ ont été réalisées sur l'enceinte sphérique de 56 L et celles concernant les mélanges diphasiques $H_2/O_2/N_2$ /graphite et $H_2/O_2/N_2$ /tungstène dans l'enceinte

de 8,18 L. Des études préliminaires concernant la mise en place d'un système d'introduction des poussières ont été réalisées : ceux-ci ont conduit à la mise en place d'un cyclone. Ce système mis en place, les tailles des particules utilisées au cours de l'étude ont été mesurées par granulométrie laser et leur comportement à l'intérieur de l'enceinte sphérique par extinction laser. Ces différents tests ont permis la mise en place de protocoles expérimentaux précis permettant de connaître au moment de l'inflammation du mélange diphasique dans la bombe sa composition exacte.

Les travaux concernant les mélanges $H_2/O_2/N_2$ ont été menés à bien dans l'enceinte sphérique fermée de 56 L. Ceux-ci ont été réalisés pour deux températures initiales : 303 et 343 K, deux pressions initiales : 50 et 100 kPa pour des fractions molaires en hydrogène allant de 0,1 à 0,6 et des rapports molaires N_2/O_2 allant de 0,66 à 9. Une comparaison entre deux méthodes de dérivation (linéaire et non-linéaire) de la vitesse de flamme expérimentale a été réalisée. La méthode linéaire étant une approximation de la méthode non-linéaire, dans certains cas les écarts obtenus entre les valeurs de vitesses de flamme et de longueur de Markstein pour les deux méthodes sont très importants, c'est donc la méthode non-linéaire qui a été retenue pour la détermination des vitesses de flamme expérimentales. Des corrélations des vitesses de flamme en fonction de la composition initiale du mélange (pour une fraction molaire en hydrogène X_{H_2} constante ou un rapport N_2/O_2 constant), de la température et de la pression initiales ont été proposées.

$$S_L^0 = (a_1 \cdot X_{H_2}^3 + a_2 \cdot X_{H_2}^2 + a_3 \cdot X_{H_2} + a_4) \cdot \left(\frac{P_{ini}}{P_{ref}} \right)^{a_5} \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}} \right)^{a_6}$$

avec : $P_{ref} = 100$ kPa et $T_{ref} = 303$ K

Rapport N_2/O_2	Domaine de validation X_{H_2}	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5	a_6
2,33	[0,2 - 0,6]	-5420,7	2902,3	1176,4	-206,6	0,1	1,4
3,76	[0,2 - 0,6]	2310,4	-6094,8	3920,1	-460,0	0,1	1,4

$$S_L^0 = \left(a_1 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right)^3 + a_2 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right)^2 + a_3 \cdot \left(\frac{N_2}{O_2} \right) + a_4 \right) \cdot \left(\frac{P_{ini}}{P_{ref}} \right)^{a_5} \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}} \right)^{a_6}$$

avec : $P_{ref} = 100$ kPa et $T_{ref} = 303$ K

X_{H_2}	Rapport N_2/O_2	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5	a_6
0,2	[0,66 - 9]	-0,193	2,477	-10,034	106,211	-0,127	1,185
0,3	[0,66 - 9]	-0,118	1,711	-31,128	319,229	0,080	1,646

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'activation des mélanges $H_2/O_2/N_2$. C'est le mécanisme de Mével qui s'est révélé être le meilleur sur le domaine de conditions initiales testées. Des corrélations sur les mêmes modèles que les précédentes ont été proposées pour évaluer l'énergie globale d'activation et le nombre de Zel'dovich en fonction des conditions initiales des mélanges.

La dernière partie de l'étude sur les mélanges $H_2/O_2/N_2$ concerne la détermination de leurs paramètres d'explosivité (temps de combustion, pression maximale de combustion et indice de déflagration). Sur l'ensemble du domaine, une augmentation de la température initiale de 303 à 343 K induit une diminution du temps de combustion (mélange plus réactif donc vitesse plus rapide) et de la pression maximale de combustion (diminution de la densité du mélange). À l'inverse une augmentation de la pression initiale de 50 à 100 kPa induit une augmentation de la pression maximale de combustion et l'indice de déflagration.

La dernière partie de ce manuscrit concerne l'étude des mélanges diphasiques à base d'hydrogène et de poussières de graphite/tungstène. Pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite, les compositions des produits de combustion à l'équilibre thermodynamique et expérimentaux permettent de donner une indication sur la combustion des particules ou non dans le mélange. En effet, la présence de CO et de CO_2 dans le milieu est, pour nos mélanges, caractéristique de la combustion des particules de graphite. L'étude de l'évolution de la pression dans l'enceinte sphérique permet de déterminer les paramètres d'explosivité de ces mélanges. De plus, des enregistrements vidéo de la propagation de la flamme à l'intérieur de l'enceinte ont été réalisés montrant que pour les mélanges avec 20 et 30 % mol d'hydrogène, une explosion de poussières peut être concomitante à une explosion d'hydrogène. Pour ces mélanges, au départ une partie de l'hydrogène brûle provoquant une augmentation de la température et de la pression à l'intérieur de l'enceinte, ces deux phénomènes conduisant à la combustion des particules de graphite. Néanmoins, pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol, aucune combustion des particules de graphite n'a été observée. Pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Tungstène, le même cheminement a été réalisé. Celui-ci nous permet de conclure que pour les mélanges avec une teneur en hydrogène dans le milieu de 20 et 30 %mol, une combustion des particules de tungstène concomitante à celle de l'hydrogène se produit. Pour ces mélanges le tungstène se transforme en WO_3 et en WO_2 Comme pour les particules de graphite, un mélange avec une teneur en hydrogène de 10 %mol ne permet pas l'inflammation des particules de tungstène, cependant celles-ci s'oxydent en surface en WO_3 . L'ensemble des mélanges contenant du graphite et ou du tungstène avec des teneurs en hydrogène de 20 et 30 %mol (à l'exception des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite initialement à 50 kPa classés St 1), sont classifiés St 3. Les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 % sont eux classifiés St 1.

Les travaux réalisés au cours de cette thèse ouvrent des perspectives concernant l'étude des mélanges diphasiques. Ainsi, il serait possible de déterminer des limites d'inflammabilité pour savoir à partir de quelle teneur en hydrogène dans le milieu, il est possible d'obtenir une explosion concomitante de poussières mais également à partir de quelle teneur l'hydrogène arrête de se propager dans un milieu contenant des poussières en suspension. Ceci permettrait d'obtenir des données expérimentales supplémentaires sur la propagation de mélanges diphasiques en vue d'améliorer les outils de simulation numérique utilisés dans la sûreté de l'installation ITER.

RÉFÉRENCES

-
- [1] Veynante D., *Flammes de diffusion laminaire*, Techniques de l'ingénieur, Réf BE 8320, 1999, <http://www.techniques-ingenieur.fr>
- [2] Borghi R., Destriau M., *La combustion et les flammes*, 1995, Editions Technip, 373 p.
- [3] Glassman I., *Combustion 2ème édition*, 1987, Academic Press, Inc, Londres, 501 p.
- [4] Murty Kanury A., *Introduction to combustion phenomena*, Editeur: Gordon and Breach Science Publishers, 1975, 411 p.
- [5] Van Tiggelen A., Burger J., *Oxydations et Combustions Volume 1*, Publications de l'Institut Français du Pétrole, 1968, 584 p.
- [6] Coward, H. F., Jones G. W., *Limits of flammability of gases and vapors*, Bureau of Mines, Bulletin 503, 1952, 155 p.
- [7] Cheikhraovat H., *Etude expérimentale de la combustion de l'hydrogène dans une atmosphère inflammable en présence de gouttes d'eau*, Thèse doctorale : Cinétique chimique appliquée : Université d'Orléans, 2009 [25/09/2009], 259 p.
- [8] Cheikhraovat H., Chaumeix N., Bentaib A., Paillard C.-E., *Flammability limits of hydrogen-air mixtures*, 2012, Nuclear Technology, Vol. 178, p. 5-16
- [9] Jones T., *Explosive nature of hydrogen in partial-pressure vacuum*, 2009, Heat Treating progress, Vol. 9, p. 43-46.
- [10] Kuznetsov M., Grune J., et al., *Experiments for the hydrogen combustion aspects of ITER LOVA scenarios*, 2011, Fusion Engineering and Design, Vol. 86, Issue 9-11, p. 2747-2752.
- [11] Kuznetsov M., Kobelt S., Grune J. , Jordan T., *Flammability limits and laminar flame speed of hydrogen-air mixtures at sub-atmospheric pressures*, 2012, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 37, I. 22, p. 17580-17588
- [12] Kumar R.K., *Flammability Limits of Hydrogen-Oxygen-Diluent Mixtures*, 1985, Journal of Fire Sciences, Vol. 3, p.245-262
- [13] Belles F.E., Drell I.L., *Survey of hydrogen combustion properties*, 1958, Lewis Flight Propulsion Laboratory, Report 1383
- [14] Berman M., Cumming J.C., *Hydrogen behavior in light-water reactors*, 1984, Nuclear Safety, Vol. 25, Issue 1, p. 53-74

[15] Andrews G.E., Bradley D., Determination of burning velocities : A critical Review, 1972, Combustion and Flame, Vol. 18, p. 133-153

[16] Mével R., Etude de mécanismes cinétiques et des propriétés explosives des systèmes hydrogène-protoxyde d'azote et silane-protoxyde d'azote. Application à la sûreté industrielle. Thèse doctorale : Cinétique chimique appliquée : Université d'Orléans, 2009 [26/11/2009], 284 p.

[17] Eschenbach R.C., Agnew J.T., Use of the constant-volume bomb technique for measuring burning velocity, 1958, Combustion and flame, Vol. 2, p. 273-285

[18] Evans M.W., Current theoretical Concepts of Steady-State Flame Propagation, 1952, Chemical Reviews, Vol. 51, p. 363-429

[19] Kuo K, Principles of combustion, 1986, John Wiley & Sons, Inc, 810 p.

[20] Mallard E. et Le Châtelier H.L., Recherches expérimentales et théoriques sur la combustion des mélanges gazeux explosifs, 1883, Annales des Mines. Vol. 4, p 379

[21] Damköhler G., 1940, Z. Elektrochem., Vol. 46, p. 601

[22] Bartholomé E., 1949, Naturwissenschaften, Vol. 36, p. 171

[23] Emmons H.W., Harr J.A. et Strong P., Thermal Flame Propagation, Decembre 1949, Computation Laboratory of Harvard University.

[24] Bechert K., 1948, Z. Naturfosch., Vol. 3A, p. 584

[25] Tanford C. et Peese R.N., Theory of Burning Velocity. II. The Square Root Law for Burning Velocity, 1941, The Journal of Chemical Physics, Vol. 15, p. 431

[26] Van Tiggelen A., Les réactions en chaînes et les propriétés des mélanges inflammables de méthane et d'air, 1946, Bulletin des Sociétés Chimiques Belges, Vol. 55, p. 202-244

[27] Manson N., On the Theory of Burning Velocities in Gas Mixtures, 1949, Journal of Chemical Physics, Vol. 17, p. 837

[28] Gaydon A.G., Wolfhard H.G., Spectroscopic Studies of Low-Pressure Flames; Temperature Measurements in Acetylene Flames, 1948, Proceedings of the royal society of London A, Vol. A194, p. 169-184

[29] Zel'dovich Y.B., Frank-Kamenetskii D.A., 1938, Compte-rendu de l'Académie des sciences URSS, Vol. 19, p. 638

[30] Zel'dovich Y.B., et Semenov N., 1940, Journal of Experimental and Theoretical Physics URSS, Vol. 10, p. 1116

[31] Lewis B. et von Elbe G., On the Theory of Flame Propagation, 1934, Journal of Chemical Physics, Vol. 2, p. 537-545

-
- [32] Boys S.F. et Corner J., The Structure of the Reaction Zone in a Flame, 1949, Proceedings of the royal society of London A, Vol. A197, p. 90-106
- [33] Hirschfelder J.O. et Curtiss C.F., The Theory of Flame Propagation, 1949, Journal of Chemical Physics, Vol. 17, p. 1076-1081
- [34] von Karmann T. et Penner S.S., 1954, Selected Combustion Problems, Fundamentals and Aeronautical Applications, Butterworths Scientific Publications, p. 5-41
- [35] Esposito E., Combustion en prémélange gazeux, Techniques de l'ingénieur, Réf BE 8315, 1995, <http://www.techniques-ingenieur.fr>
- [36] Zel'dovich B., Barenblatt G.I., Librovich V.B., Makhviladze G.M., Mathematical theory of combustion and explosions, 1985, Consultants Bureau, New York, U.S.A., p. 618
- [37] Clavin P., Dynamic behavior of premixed flame fronts in laminar and turbulent flows, 1985, Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 11, I. 1, p. 1-59.
- [38] Lamoureux N., Djebaili-Chaumeix N., 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; Rapport intermédiaire de contrat CNRS-4070 9B56870; octobre 2001.
- [39] Scholte T.G., Vaags P.B., The burning velocity of hydrogen-air mixtures and mixtures of some hydrocarbons with air, 1959, Combustion and Flame, Vol. 3, p. 495-501
- [40] Edmondson H., Heap M. P., The burning velocity of hydrogen-air flames, 1971, Combustion and Flame, Vol. 16, I. 2, p. 161-165
- [41] Günther R., Janisch G., Measurements of burning velocity in a flat flame front, 1972, Combustion and Flame, Vol. 19, I. 1, p. 49-53
- [42] Andrews G.E., Bradley D., Determination of burning velocity by double ignition in a closed vessel, 1973, Combustion and Flame, Vol. 20, I. 1, p. 77-89
- [43] Liu D.D.S., MacFarlane R., Laminar burning velocities of hydrogen-air and hydrogen-air-steam flames, 1983, Combustion and Flame, Vol. 49, I. 1-3, p. 59-71
- [44] Wu C.K., Law C.K., On the determination of laminar flame speeds from stretched flames, 1985, Symposium (International) on Combustion, Vol. 20, p. 1941-1949
- [45] Milton B.E. Keck J.C., Laminar burning velocities in stoichiometric hydrogen and hydrogen-hydrocarbon gas mixtures, 1984, Combustion and Flame, Vol. 58, I. 1, p. 13-22
- [46] Iijima T., Takeno T., Effects of temperature and pressure on burning velocity, 1986, Combustion and Flame, Vol. 65, p. 35-43
- [47] Koroll G.W., Mulpuru S.R., The effect of dilution with steam on the burning velocity and structure of premixed hydrogen flames, 1988, Symposium (International) on Combustion, Vol. 21, p. 1811-1819

[48] Dowdy D.R., Smith D.B. et al., The use of expanding spherical flames to determine burning velocities and stretch effects in hydrogen/air mixtures, 1991, Symposium (International) on Combustion, Vol. 23, p. 325-332.

[49] Egolfopoulos F.N., Law C.K., An experimental and computational study of the burning rates of ultra-lean to moderately-rich $H_2/O_2/N_2$ laminar flames with pressure variations, 1991, Symposium (International) on Combustion, Vol. 23, p. 333-340.

[50] Kwon S., Tseng L. K., et al., Laminar burning velocities and transition to unstable flames in $H_2/O_2/N_2$ and $C_3H_8/O_2/N_2$ mixtures, 1992, Combustion and Flame, Vol. 90, p. 230-246.

[51] Koroll G.W., Kumar R.K. et al., Burning velocities of hydrogen-air mixtures, 1993, Combustion and Flame, Vol. 94, p. 330-340.

[52] Shebeko Y.N., Tsarichenko S.G. et al. Burning velocities and flammability limits of gaseous mixtures at elevated temperatures and pressures, 1995, Combustion and Flame, Vol. 102, p. 427-437.

[53] Aung K.T., Hassan M.I., et al., Flame stretch interactions of laminar premixed hydrogen/air flames at normal temperature and pressure, 1997, Combustion and Flame, Vol. 109, p. 1-24.

[54] Aung K.T., Hassan M.I., et al., Effects of pressure and nitrogen dilution on flame/stretch interactions of laminar premixed $H_2/O_2/N_2$ flames, 1998, Combustion and Flame, Vol. 112, p. 1-15.

[55] Qin X., Kobayashi H., et al., Laminar burning velocity of hydrogen-air premixed flames at elevated pressure, 2000, Experimental Thermal and Fluid Science, Vol. 21, p. 58-63.

[56] Tse S.D., Zhu D.L., et al., Morphology and burning rates of expanding spherical flames in H_2/O_2 /inert mixtures up to 60 atmospheres, 2000, Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 28, p.1793-1800.

[57] Lamoureux N., Djebaïli-Chaumeix N., et al., Laminar flame velocity determination for H_2 -air-He- CO_2 mixtures using the spherical bomb method, 2003, Experimental Thermal and Fluid Science, Vol. 27, p. 385-393.

[58] Malet F., Etude expérimentale et numérique de la propagation de flammes prémélangées turbulentes dans une atmosphère pauvre en hydrogène et humide. Thèse doctorale : Cinétique chimique appliquée : Université d'Orléans, 2005 [20/12/2005], p. 136.

[59] Qiao L., Kim C.H., et al., Suppression effects of diluents on laminar premixed hydrogen/oxygen/nitrogen flames, 2005, Combustion and Flame, Vol. 143, p. 79-96.

[60] Verhelst S., Woolley R., et al., Laminar and unstable burning velocities and Markstein lengths of hydrogen-air mixtures at engine-like conditions, 2005, Proceedings of the Combustion Institute, Vol. 30, p. 209-216.

-
- [61] Ilbas M., Crayford A.P., et al., Laminar-burning velocities of hydrogen-air and hydrogen-methane-air mixtures : An experimental study, 2006, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 31, p. 1768-1779.
- [62] Bradley D., Lawes M., et al., Laminar burning velocities of lean hydrogen-air mixtures at pressures up to 1.0 MPa, 2007, Combustion and Flame, Vol. 149, p. 162-172.
- [63] Qiao L., Gu Y., et al., A study of the effects of diluents on near-limit H₂-air flames in microgravity at normal and reduced pressures, 2007, Combustion and Flame, Vol. 151, p. 196-208.
- [64] Hu E., Huang Z., et al., Experimental and numerical study on laminar burning velocities and flame instabilities of hydrogen-air mixtures at elevated pressures and temperatures, 2009, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 34, p. 8741-8755.
- [65] Ratna Kishore V., Muchahary R., et al., Adiabatic burning velocity of H₂-O₂ mixtures diluted with CO₂/N₂/Ar, 2009, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 34, p. 8378-8388.
- [66] Tang C., Huang Z., et al., Explosion characteristics of hydrogen-nitrogen-air mixtures at elevated pressures and temperatures, 2009, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 34, p.554-561.
- [67] Abbasi T., Abbasi S.A., Review : Dust explosions – Cases, causes, consequences, and control, 2007, Journal of Hazardous Materials, Vol. 140, p. 7-44.
- [68] National Fire Protection Association 68, Standard on Explosion Protection by Deflagration Venting, Edition 2007
- [69] Eckhoff R.K., Dust explosions in the process industries 2nd Edition, 1997, Edité par Butterworth Heinemann, 643 p.
- [70] Cashdollar K.L., Overview of dust explosibility characteristics, 2000, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 13, p. 183-199.
- [71] Siwek R., Determination of technical safety indices and factors influencing hazard evaluation of dusts, 1996, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 9, p. 21-31
- [72] Barton J., Dust explosion prevention and protection, 2002, Edité par Butterworth Heinemann, 300 p.
- [73] Gummer J., Lunn G.A., Ignitions of explosive dust clouds by smouldering and flaming agglomerates, 2003, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 16, p. 27-32.
- [74] Gustin J.L., Risques d'explosion de poussières : Caractérisation, 2004 [10/10/04], Techniques de l'ingénieur, Réf : SE 5 030. <http://www.techniques-ingenieur.fr>
- [75] Eckhoff R.K., Differences and similarities of gas and dust explosions : A critical evaluation of the European "ATEX" directives in relation to dusts, 2006, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 19, p. 553-560.

[76] Amyotte, P.R., Chippett S., Pegg M.J., Effects of turbulence on dust explosions, 1989, Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 14, p. 293-310.

[77] ASTM E1226 – 10, Standard Test Method for Explosibility of Dust Clouds, 2010

[78] BS EN 13821:2002, Potentially explosive atmospheres - Explosion Prevention and Protection - Determination of minimum ignition energy of dust/air mixtures, 2002

[79] Whitmore M.W., Prediction of dust cloud minimum ignition energy for organic dusts from modified Hartmann tube data, 1992, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 5, p. 305-309.

[80] Khalili I., Dufaud O., Poupeau M., Cuervo-Rodriguez N., Perrin L., Ignition Sensitivity of gas-vapor/dust hybrid mixtures, 2012, Powder Technology, Vol. 217, p. 199-206.

[81] Bernard S., Lebecki K., Gillard P., Youinou L., Baudry G., Statistical method for the determination of the ignition energy of dust cloud-experimental validation, 2010, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 23, p. 404 - 411.

[82] BS EN 14034-1:2004, Determination of explosion characteristics of dust clouds : Part 1, Determination of the maximum explosion pressure P_{MAX} of dust clouds, 2005

[83] BS EN 14034-2:2006, Determination of explosion characteristics of dust clouds : Part 2, Determination of the maximum rate of explosion pressure rise $(dP/dt)_{MAX}$ of dust clouds, 2006

[84] BS EN 14034-3:2006, Determination of explosion characteristics of dust clouds : Part 3, Determination of the lower explosion limit LEL of dust clouds, 2006

[85] BS EN14034-4:2004, Determination of explosion characteristics of dust clouds : Part 4, Determination of the limiting oxygen concentration LOC of dust clouds, 2005

[86] Cashdollar K.L., Hertzberg M., 20-L explosibility test chamber for dust and gases, 1985, Review of Scientific Instruments, Vol. 56, n°4, p. 596-602.

[87] Kalejaiye O, Amyotte P.R, Pegg M.J., Cashdollar K.L., Effectiveness of dust dispersion in the 20-L Siwek Chamber, 2010, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 23, p. 46-59.

[88] Cashdollar K.L., Chatrathi K., Minimum Explosible Dust Concentration Measured in 20 L and 1 m³ Chambers, 1992, Combustion Science and Technology, Vol. 87, p. 157-171.

[89] Deguingand B., Galant S., Upper Flammability limits of coal dust-air mixtures, 1981, 18th Symposium International on Combustion, Vol. 18, p. 705-715.

[90] Hertzberg M., Cashdollar K.L., Lazarra C.P., The limits of flammability of pulverized coals and other dusts, 1981, 18th Symposium International on Combustion, Vol. 18, p. 717-729.

[91] Hertzberg M., Cashdollar K.L., Ng D.L., Conti R.S., Domains of flammability and thermal ignitability for pulverized coals and other dusts : particle size dependences and microscopic residue analyses, 1982, 19th Symposium International on Combustion, Vol. 19, p. 1169-1180.

[92] Hertzberg M., Cashdollar K.L., Zlochower I.A., Flammability limit measurements for dusts and gases : ignition energy requirements and pressure dependences, 1986, 21st Symposium International on Combustion, Vol. 21, p. 303-313.

[93] Hertzberg M., Zlochower I.A., Cashdollar K.L., Metal dust combustion: Explosion limits, pressures and temperatures, 1992, 24th Symposium International on Combustion, Vol. 24, p. 1827-1835.

[94] Amyotte P.R., Mintz K., Pegg M.J., Sun Y.H., The ignitability of coal dust-air and methane-coal dust-air mixtures, 1993, Fuel, Vol. 72, p. 671-679.

[95] Cashdollar K.L., Flammability of metals and other elemental dust clouds, 1994, Process Safety Progress, Vol. 13, Issue 3, p. 139-145.

[96] Chatrathi K., Dust and hybrid explosibility in a 1m³ spherical chamber, 1994, Process Safety Progress, Vol. 13, Issue 4, p. 183-189.

[97] Cashdollar K.L., Coal dust explosibility, 1996, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 9, p 65-76.

[98] Garcia-Torrent J., Conde-Lazaro E., Wilen C., Rautalin A, Biomass dust explosibility at elevated initial pressures, 1988, Fuel, Vol. 77, n° 9-10, p. 1093-1097.

[99] Chatrathi K., Going J., Dust Deflagration Extinction, 2000, Process Safety Progress, Vol. 19, n°3, p. 146-153.

[100] Going J.E., Chatrathi K., Cashdollar K.L., Flammability limit measurements for dusts in 20-L and 1-m³ vessels, 2000, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 13, p. 209-219.

[101] Pilão, R., Ramalho, E., Pinho, C., Influence of initial pressure on the explosibility of cork dust/air mixtures, 2004, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 17, n°1, p. 87-96.

[102] Amyotte P.R., Khan F.I., Basu A., Dastidar A.G., Dumeah R.K., Erving W.L., Explosibility parameters for mixtures of pulverized fuel and ash, 2006, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 19, p. 142-148.

[103] Amyotte P.R., Solid Inertants and their use in dust explosion prevention and mitigation, 2006, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 19, p. 161 -173.

[104] Cashdollar K.L., Zlochower I.A., Explosion temperatures and pressures of metal and other elemental dust clouds, 2007, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 20, p. 337-348.

[105] Proust C., Accorsi A., Dupont L., Measuring the violence of dust explosions with the « 20 l sphere » and with the standard « ISO 1 m³ vessel » Systematic comparison and analysis of the discrepancies, 2007, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 20, p. 599-606.

[106] Dufaud O., Traoré M., Perrin L., Chazelet S., Thomas D., Experimental investigation and modeling of aluminum dusts explosions in the 20 L sphere, 2010, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 23, p. 226-236.

[107] Eckhoff R.K., Partial Inerting - an additional degree of freedom in dust explosion protection, 2004, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 17, p. 187-193.

[108] Eckhoff R.K., Understanding dust explosions. The role of powder science and technology, 2009, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 22, p. 105-116.

[109] Tamanini F., The role of turbulence in dust explosion, 1998, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 11, p 1-10.

[110] Denkevits A., Dorofeev S., Dust explosion hazard in ITER : Explosion indices of fine graphite and tungsten dusts and their mixtures, 2005, Fusion Engineering and Design, Vol. 75-79, p. 1135-1139.

[111] Denkevits A., Dorofeev S., Explosibility of fine graphite and tungsten dusts and their mixtures, 2006, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 19, p. 174-180.

[112] Denkevits A., Explosibility of hydrogen - graphite dust hybrid mixtures, 2007, Journal of Loss Prevention in the Process Industries, Vol. 20, p. 698-707.

[113] Denkevits A., Hydrogen /dust explosion hazard in ITER : Effect of nitrogen dilution on explosion behavior of hydrogen/tungsten dust/ air mixtures, 2010, Fusion Engineering and Design, Vol. 85, p. 1059-1063.

[114] Coudoro K., Etude expérimentale et modélisation de la propagation de flamme en milieu confiné ou semi-confiné, Thèse doctorale : Energétique : Université d'Orléans, 2012 [27/01/2012], 211 p.

[115] Rallis C.J., Garforth A.M., The Determination of Laminar Burning Velocity, 1983, Witwatersrand University Press, 52 p.

[116] D. Bradley D., Gaskell P.H., Gu X.J., Burning velocities, Markstein lengths, and flame quenching for spherical methane-air flames: A computational study, 1996, Combustion and Flame, Vol. 104, p. 176-198

[117] Markstein G.H., Nonsteady flame propagation, 1964, Edité par Pergamon Press, 328 p.

[118] Matalon M., Matkowsky B.J., Flames as gasdynamic discontinuities, 1982, Journal of Fluids Mechanics, Vol. 124, p. 239-259

[119] Kelley A.P., Law C.K., Nonlinear effects in the Experimental Determination of Laminar Flame Properties from Stretched Flames, Eastern State Fall Technical Meeting, 21-24 Octobre 2007,

[120] Kelley .P., Law C.K., Nonlinear effects in the extraction of laminar flame speeds from expanding spherical flames, 2009, Combustion and Flame, p. 1844-1851

-
- [121] Ronney P.D., Sivashinsky G.I., A theoretical study of Propagation and Extinction of Nonsteady Spherical Flame Fronts, 1989, SIAM Journal of Applied Mathematics, Vol. 49, p. 1029-1046
- [122] Baron, Baron P.A., Willeke K, Aerosol Measurement : Principes Techniques ans Applications 2nd Edition, 2001, Willey Interscience, 1131 p.
- [123] Chatelet J, Systèmes optroniques semi-actifs : Application du laser à la granulométrie, Techniques de l'ingénieur E4410, Juin 1996
- [124] Svanberg S., Atomic and Molecular Spectroscopy : Basic Aspects and Practical Applications 2nd Edition, 1992, Springer-Verlag, 405p.
- [125] Lefebvre A.H., Atomization and Sprays, 1989, Hemisphere Publishing Corporation, 421 p.
- [126] Atkins P.W., De Paula J., Chimie Physique 2^{ème} édition, 2004, Editions De Boeck université, 1151p.
- [127] Kee R.J. et al. (1993), CHEMKIN-II: a Fortran chemical kinetic package for the analysis of gas phase chemical kinetics, Report no. SAND89-8009B, Sandia International Laboratories
- [128] COSILAB : 1-D and Counterflow Flames. Rapport technique, SoftPredict, Roxeto GmbH & Co, 2007
- [129] Mével R., Lafosse F., Chaumeix N. Dupré G., Paillard C.E., Spherical expanding flames in H₂-N₂O-Ar mixtures: flame speed measurements and kinetic modeling, 2009, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 34, p. 9007-9018.
- [130] Mével R., Javoy S., Lafosse F., Chaumeix N., Dupré G., Paillard C.E., Hydrogen-nitrous oxide delay time : shock tube experimental study and kinetic modeling, 2009, Proceeding of the Combustion Institute, Vol. 32, p. 359-366
- [131] Wang H., You X., Joshi A. V., Davis S.G., Laskin A., Egolfopoulos F. et Law C.K., 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
- [132] Hong Z., Davidson D. F., et Hanson R. K., An improved H₂/O₂ mechanism based on recent shock tube/laser absorption measurements, 2011, Combustion and Flame, Vol. 158, p. 633-644.
- [133] Sun C., He L., Law C.K., Dynamics of weakly stretched flames: quantitative description and extraction of global flame parameters, 1999, Combustion and Flame, Vol. 118, p. 108-128

ANNEXES

ANNEXE A : Caractéristiques thermocinétiques des mélanges H₂/O₂/N₂ étudiés au cours de ce travail

Les vitesses de flamme de ces mélanges sont calculées à partir de la corrélation obtenue par l'équation 3-2 et des coefficients du Tableau 3-7.

Mélanges avec 20 %mol H ₂								
N ₂ /O ₂ ratio	Richesse	P _{ini} (kPa)	T _{ini} (K)	T _F (K)	α (m ² /s)	S _L ^o (cm/s)	δ (mm) = α / S_L^o	P _{AICC} (kPa)
0,66	0,21	50	303	1803	7,84E-05	112,8	6,95E-02	321,1
1	0,25	50	303	1815	7,84E-05	109,0	7,19E-02	324,1
1,5	0,31	50	303	1823	7,88E-05	109,2	7,22E-02	325,3
2,33	0,42	50	303	1819	7,85E-05	96,0	8,18E-02	326,0
3,76	0,60	50	303	1829	7,87E-05	96,0	8,19E-02	327,9
9	1,25	50	303	1547	7,83E-05	79,2	9,87E-02	290,2
0,66	0,21	100	303	1804	3,95E-05	101,5	3,89E-02	639,4
1	0,25	100	303	1809	3,94E-05	97,3	4,05E-02	642,8
1,5	0,31	100	303	1828	3,95E-05	99,5	3,97E-02	651,6
2,33	0,42	100	303	1822	3,96E-05	101,1	3,92E-02	648,5
3,76	0,60	100	303	1834	3,96E-05	95,3	4,15E-02	652,6
9	1,25	100	303	1564	3,97E-05	69,3	5,73E-02	580,1
0,66	0,21	50	343	1833	9,71E-05	131,1	7,41E-02	285,3
1	0,25	50	343	1839	9,71E-05	119,8	8,10E-02	286,9
1,5	0,31	50	343	1845	9,70E-05	120,8	8,03E-02	289,0
2,33	0,42	50	343	1851	9,70E-05	124,3	7,81E-02	290,3
3,76	0,60	50	343	1859	9,71E-05	117,3	8,27E-02	292,5
9	1,25	50	343	1582	9,69E-05	99,0	9,78E-02	259,5

1	0,25	100	343	1838	4,85E-05	106,6	4,55E-02	575,4
1,5	0,31	100	343	1848	4,86E-05	107,1	4,54E-02	578,6
2,33	0,42	100	343	1855	4,86E-05	106,4	4,57E-02	581,2
3,76	0,60	100	343	1860	4,85E-05	111,2	4,36E-02	584,6
9	1,25	100	343	1585	4,87E-05	94,2	5,17E-02	517,7
Mélanges avec 30%mol H₂								
N₂/O₂ ratio	Richesse	P_{ini} (kPa)	T_{ini} (K)	T_F (K)	α (m²/s)	S_L^o (cm/s)	δ(mm) = α / S_{L}^o	P_{AICC} (kPa)
0,66	0,36	50	303	2357	9,60E-05	278,9	3,44E-02	385,4
1	0,43	50	303	2366	9,61E-05	275,8	3,49E-02	387,3
1,5	0,54	50	303	2377	9,62E-05	254,3	3,78E-02	389,9
2,33	0,71	50	303	2388	9,57E-05	237,0	4,04E-02	394,4
3,76	1,02	50	303	2366	9,61E-05	204,4	4,70E-02	391,9
9	2,14	50	303	1417	9,66E-05	93,7	1,03E-01	267,2
1,5	0,54	100	303	2401	4,84E-05	279,2	1,73E-02	786,2
2,33	0,71	100	303	2416	4,85E-05	263,2	1,84E-02	791,9
3,76	1,02	100	303	2392	4,86E-05	225,9	2,15E-02	789,4
9	2,14	100	303	1418	4,83E-05	84,8	5,69E-02	534,8
1	0,43	50	343	2386	1,18E-04	340,5	3,48E-02	343,3
1,5	0,54	50	343	2399	1,19E-04	323,9	3,66E-02	345,6
2,33	0,71	50	343	2413	1,19E-04	296,7	4,00E-02	348,2
3,76	1,02	50	343	2388	1,19E-04	255,5	4,64E-02	347,8
9	2,14	50	343	1451	1,18E-04	113,4	1,04E-01	240,1
1,5	0,54	100	343	2423	5,93E-05	336,5	1,76E-02	699,0
2,33	0,71	100	343	2437	5,94E-05	305,3	1,95E-02	704,0
3,76	1,02	100	343	2414	5,93E-05	268,9	2,20E-02	703,0
9	2,14	100	343	1442	5,93E-05	107,4	5,52E-02	477,8

Mélanges à N ₂ /O ₂ = 2,33								
X _{H2}	Richesse	P _{ini} (kPa)	T _{ini} (K)	T _F (K)	α (m ² /s)	S _L ^o (cm/s)	δ(mm) = α / S _L ^o	P _{AICC} (kPa)
0,1	0,19	50	303	1099	6,20E-05	XX	XX	210,7
0,2	0,42	50	303	1819	7,85E-05	96,0	8,18E-02	326,0
0,3	0,71	50	303	2388	9,57E-05	237,0	4,04E-02	394,4
0,4	1,11	50	303	2617	1,15E-04	339,3	3,38E-02	419,2
0,5	1,67	50	303	2463	1,35E-04	408,6	3,31E-02	406,7
0,6	2,50	50	303	2136	1,55E-04	358,2	4,34E-02	373,0
0,1	0,19	50	343	1144	7,66E-05	XX	XX	192,5
0,2	0,42	50	343	1851	9,70E-05	124,3	7,81E-02	289,9
0,3	0,71	50	343	2413	1,19E-04	296,7	4,00E-02	348,2
0,4	1,11	50	343	2629	1,41E-04	425,0	3,32E-02	371,0
0,5	1,67	50	343	2481	1,65E-04	479,0	3,43E-02	361,6
0,6	2,50	50	343	2171	1,90E-04	384,7	4,95E-02	332,4
0,1	0,19	100	303	1099	3,12E-05	XX	XX	419,3
0,2	0,42	100	303	1822	3,96E-05	101,1	3,92E-02	648,5
0,3	0,71	100	303	2416	4,85E-05	263,2	1,84E-02	791,9
0,4	1,11	100	303	2665	5,78E-05	384,6	1,50E-02	850,1
0,5	1,67	100	303	2488	6,77E-05	420,0	1,61E-02	822,8
0,6	2,50	100	303	2152	7,85E-05	377,4	2,08E-02	749,0
0,1	0,19	100	343	1135	3,84E-05	XX	XX	380,2
0,2	0,42	100	343	1855	4,86E-05	106,4	4,57E-02	580,8
0,3	0,71	100	343	2437	5,94E-05	305,3	1,95E-02	704,0
0,4	1,11	100	343	2677	7,06E-05	451,7	1,56E-02	753,6
0,5	1,67	100	343	2507	8,24E-05	505,1	1,63E-02	733,1
0,6	2,50	100	343	2181	9,56E-05	452,3	2,11E-02	668,5

Mélanges à N ₂ /O ₂ = 3,76								
X _{H2}	Richesse	P _{ini} (kPa)	T _{ini} (K)	T _F (K)	α (m ² /s)	S _L [°] (cm/s)	δ(mm) = α / S _L [°]	P _{AICC} (kPa)
0,1	0,26	50	303	1096	6,17E-05	XX	XX	211,0
0,2	0,60	50	303	1829	7,87E-05	96,0	8,19E-02	327,9
0,3	1,02	50	303	2366	9,61E-05	204,4	4,70E-02	391,9
0,4	1,59	50	303	2206	1,15E-04	263,9	4,34E-02	380,7
0,5	2,38	50	303	1939	1,35E-04	243,6	5,53E-02	346,9
0,6	3,57	50	303	1644	1,56E-04	177,4	8,81E-02	305,1
0,1	0,26	50	343	1141	7,65E-05	XX	XX	192,2
0,2	0,60	50	343	1859	9,71E-05	117,3	8,27E-02	292,1
0,3	1,02	50	343	2388	1,19E-04	255,5	4,64E-02	347,8
0,4	1,59	50	343	2235	1,41E-04	306,8	4,59E-02	338,1
0,5	2,38	50	343	1971	1,65E-04	286,8	5,75E-02	309,7
0,6	3,57	50	343	1677	1,91E-04	216,9	8,80E-02	273,5
0,1	0,26	100	303	1102	3,12E-05	XX	XX	420,8
0,2	0,60	100	303	1834	3,96E-05	95,3	4,15E-02	652,6
0,3	1,02	100	303	2392	4,86E-05	225,9	2,15E-02	789,4
0,4	1,59	100	303	2215	5,80E-05	290,9	1,99E-02	761,5
0,5	2,38	100	303	1942	6,79E-05	261,7	2,59E-02	690,8
0,6	3,57	100	303	1646	7,85E-05	196,2	4,00E-02	609,2
0,1	0,26	100	343	1135	3,84E-05	XX	XX	380,8
0,2	0,60	100	343	1860	4,85E-05	111,2	4,36E-02	584,6
0,3	1,02	100	343	2414	5,93E-05	268,9	2,20E-02	703,0
0,4	1,59	100	343	2243	7,07E-05	339,2	2,08E-02	679,7
0,5	2,38	100	343	1965	8,22E-05	312,0	2,64E-02	621,4
0,6	3,57	100	343	1673	9,54E-05	240,4	3,97E-02	546,3

Mélanges à N ₂ /O ₂ = 9								
X _{H2}	Richesse	P _{ini} (kPa)	T _{ini} (K)	T _F (K)	α (m ² /s)	S _L ^o (cm/s)	δ(mm) = α / S _L ^o	P _{AICC} (kPa)
0,1	0,56	50	303	1105	6,17E-05	XX	XX	213,6
0,2	1,25	50	303	1547	7,83E-05	79,2	9,87E-02	290,2
0,3	2,14	50	303	1417	9,66E-05	93,7	1,03E-01	267,2
0,4	3,33	50	303	1271	1,15E-04	Pas d'inflammation	XX	242,7
0,5	5,00	50	303	1121	1,35E-04	Pas d'inflammation	XX	216,7
0,6	7,50	50	303	965	1,56E-04	Pas d'inflammation	XX	188,3
0,1	0,56	50	343	1142	7,65E-05	XX	XX	192,6
0,2	1,25	50	343	1582	9,69E-05	99,0	9,78E-02	259,5
0,3	2,14	50	343	1451	1,18E-04	113,4	1,04E-01	240,1
0,4	3,33	50	343	1306	1,41E-04	Pas d'inflammation	XX	219,2
0,5	5,00	50	343	1156	1,64E-04	Pas d'inflammation	XX	196,4
0,6	7,50	50	343	1003	1,91E-04	Pas d'inflammation	XX	171,8
0,1	0,56	100	303	1113	3,14E-05	XX	XX	424,9
0,2	1,25	100	303	1564	3,97E-05	69,3	5,73E-02	580,1
0,3	2,14	100	303	1418	4,83E-05	84,8	5,69E-02	534,8
0,4	3,33	100	303	1272	5,76E-05	60,4	9,53E-02	485,9
0,5	5,00	100	303	1121	6,75E-05	Pas d'inflammation	XX	433,3
0,6	7,50	100	303	966	7,84E-05	Pas d'inflammation	XX	376,4
0,1	0,56	100	343	1143	3,84E-05	XX	XX	384,0
0,2	1,25	100	343	1585	4,87E-05	94,2	5,17E-02	517,7
0,3	2,14	100	343	1442	5,93E-05	107,4	5,52E-02	477,8
0,4	3,33	100	343	1300	7,03E-05	80,5	8,73E-02	436,1
0,5	5,00	100	343	1150	8,21E-05	Pas d'inflammation	XX	390,7
0,6	7,50	100	343	996	9,53E-05	Pas d'inflammation	XX	341,1

ANNEXE B : Comparaison entre les méthodes linéaires et non-linéaires de détermination de la vitesse de flamme

B-1 : Vitesses de flamme

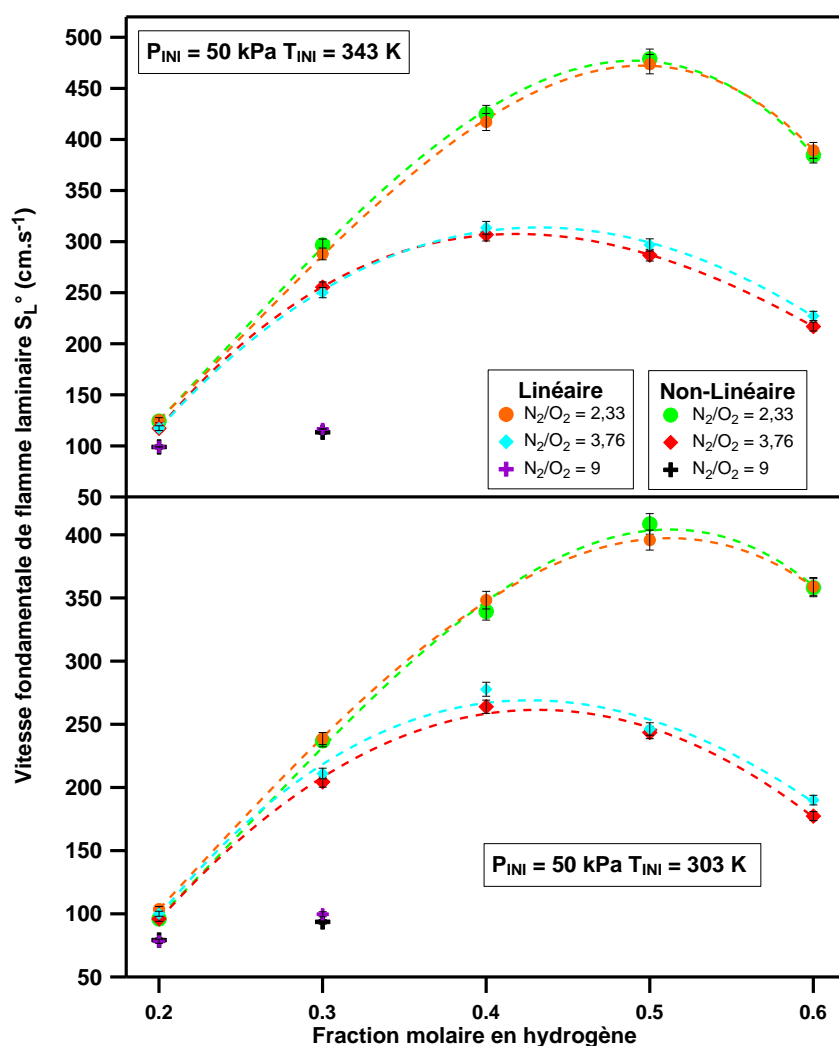


Figure B-1 : Comparaison entre les vitesses expérimentales fondamentales de flamme laminaire à étirement nul, S_L^0 , en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures initiales et pour une pression initiale de 50 kPa, pour deux méthodes différentes : linéaire et non-linéaire

B-2 : Longueurs de Markstein

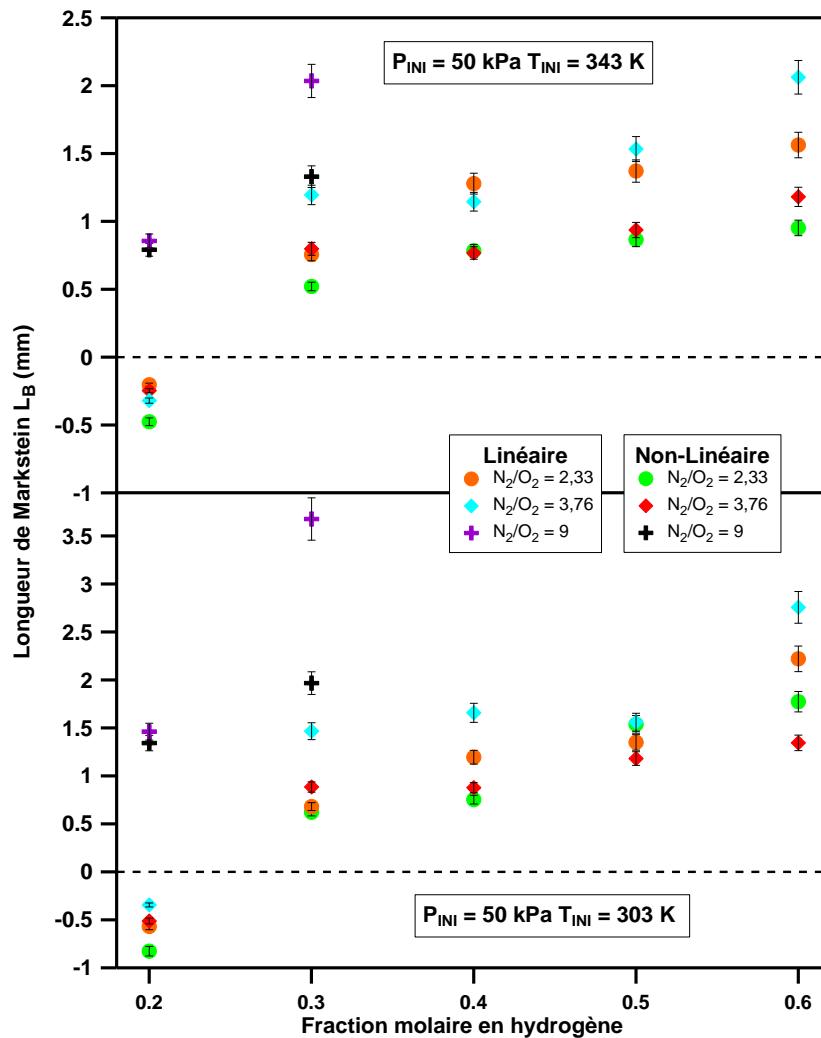


Figure B-2 : Comparaison entre les longueurs de Markstein, L_B , en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports molaires N_2/O_2 à différentes températures initiales et pour une pression initiale de 50 kPa, pour deux méthodes différentes : linéaire et non-linéaire

ANNEXE C : Comparaison entre les vitesses de flamme obtenues expérimentalement et celles simulées

C-1 : Pour une teneur en hydrogène constante

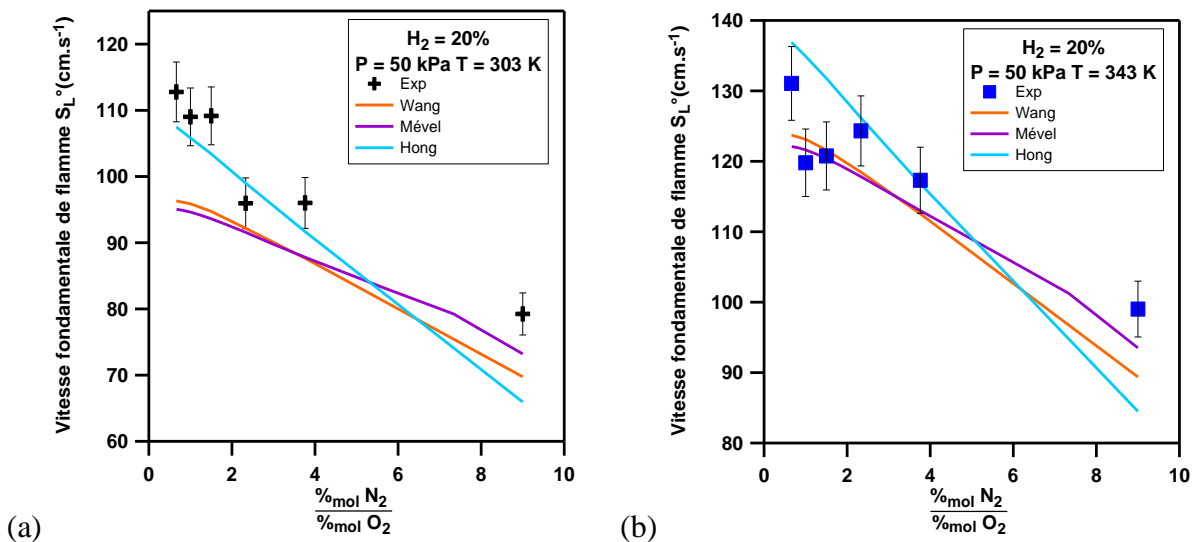


Figure C-1 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges H₂/O₂/N₂ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol pour différentes conditions initiales : (a) P_{INI} = 50 kPa ; T_{INI} = 303 K (b) P_{INI} = 50 kPa ; T_{INI} = 343 K

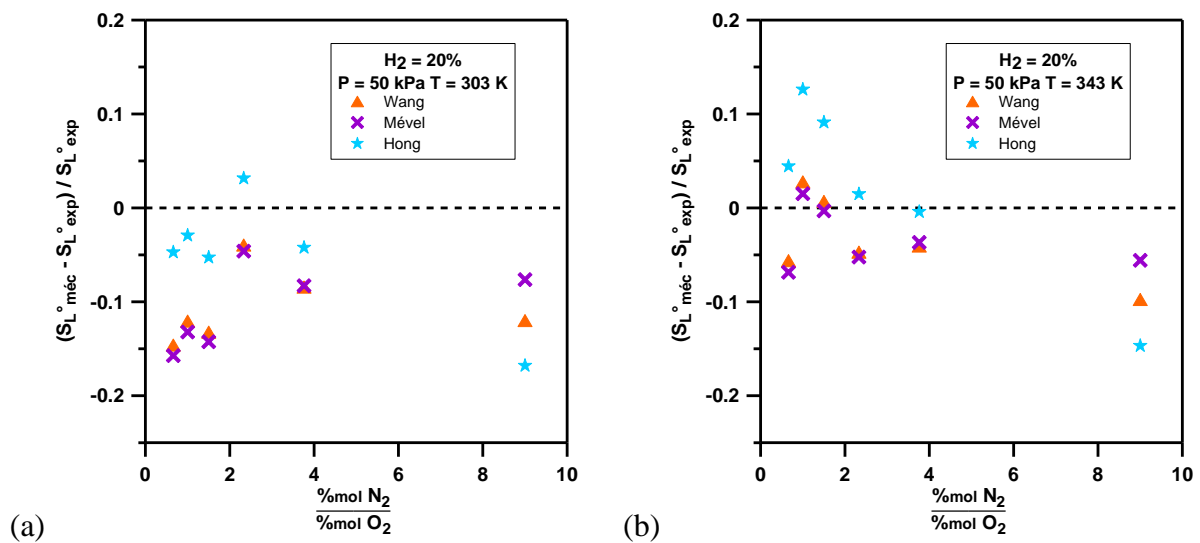
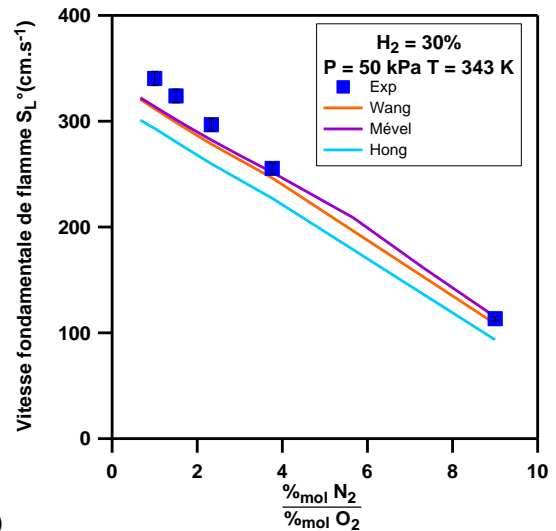
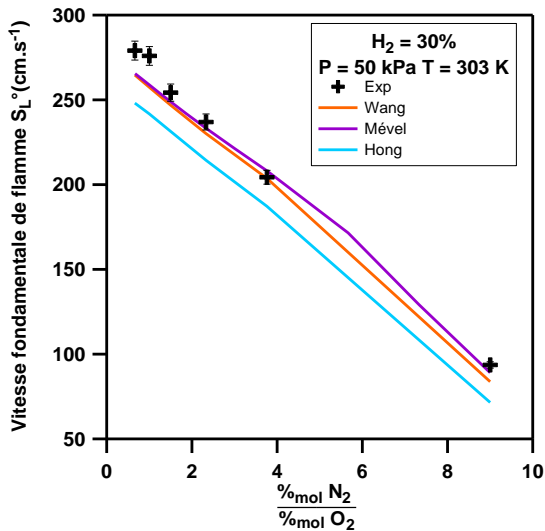


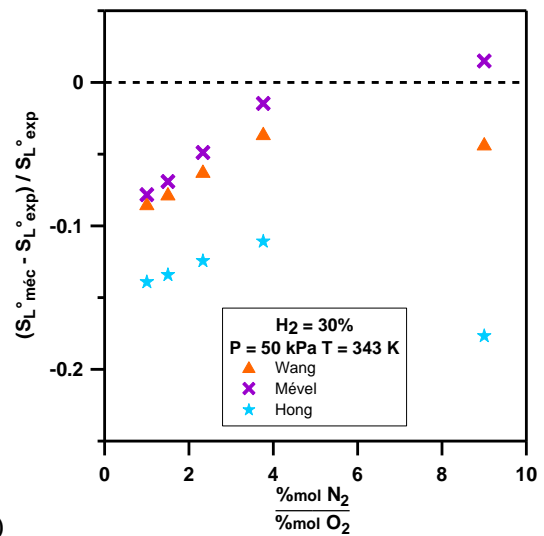
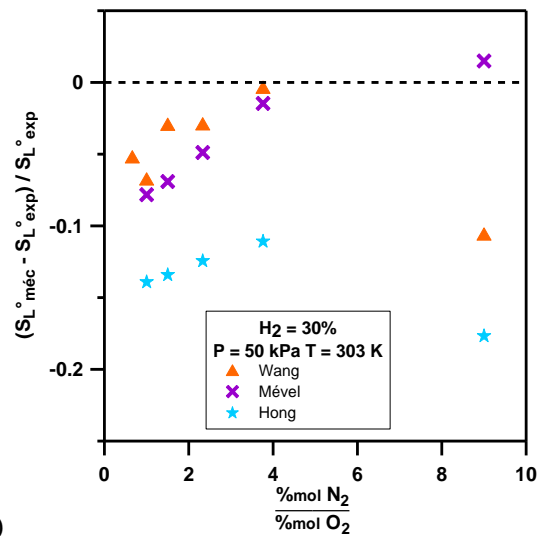
Figure C-2 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges H₂/O₂/N₂ avec une teneur en hydrogène de 20 %mol pour différentes conditions initiales : (a) P_{INI} = 50 kPa ; T_{INI} = 303 K (b) P_{INI} = 50 kPa ; T_{INI} = 343 K



(a)

(b)

Figure C-3 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 50 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 303 \text{ K}$
 (b) $P_{INI} = 50 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 343 \text{ K}$



(a)

(b)

Figure C-4 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec une teneur en hydrogène de 30 %mol pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 50 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 303 \text{ K}$ (b) $P_{INI} = 50 \text{ kPa}$; $T_{INI} = 343 \text{ K}$

C-2 : Pour un rapport N_2/O_2 constant

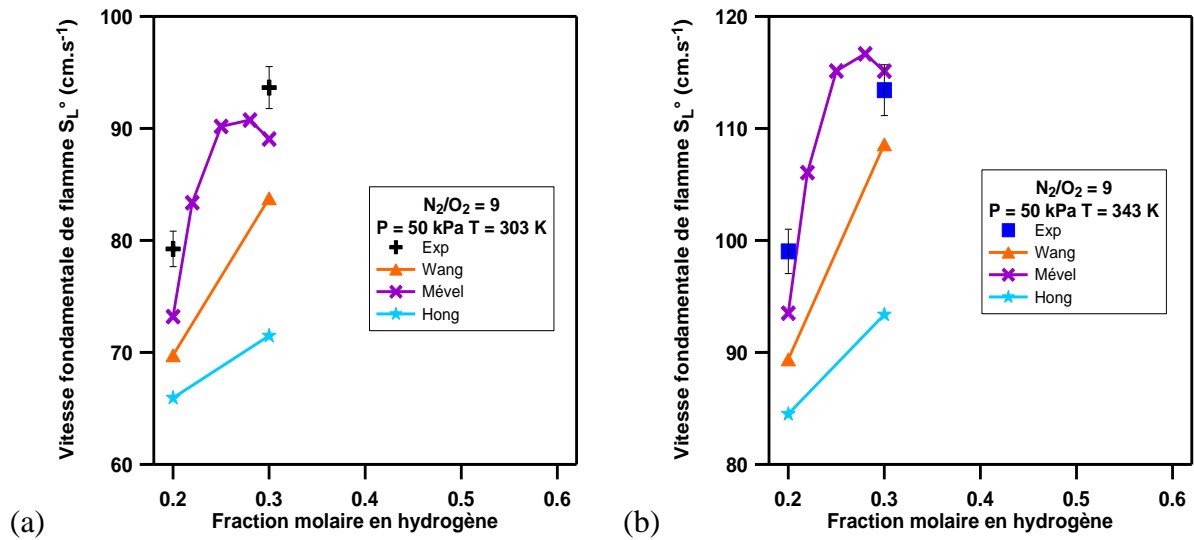


Figure C-5 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=9$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K

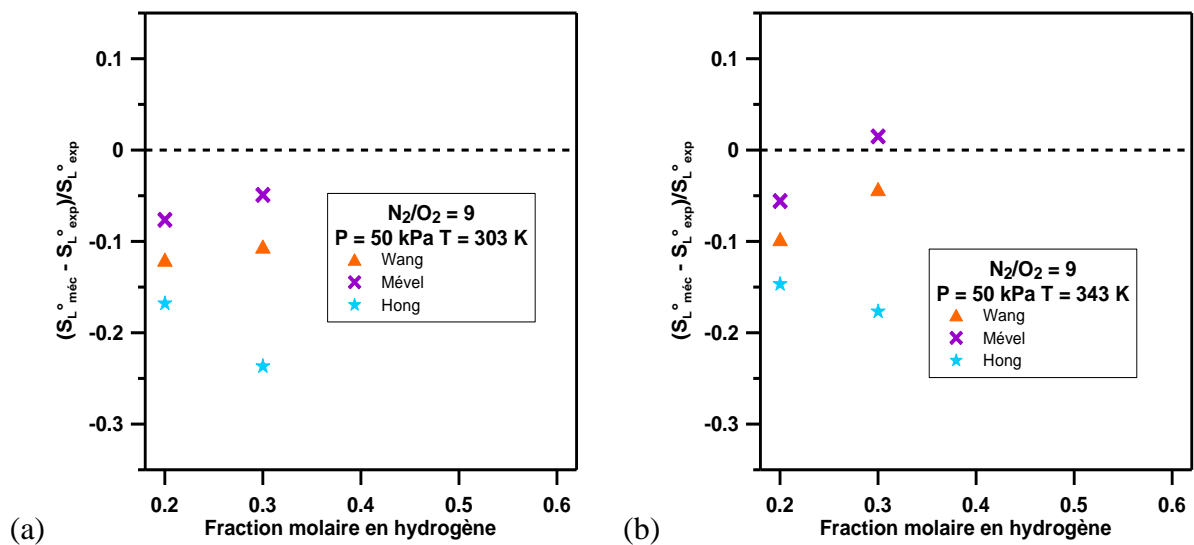


Figure C-6 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=9$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K

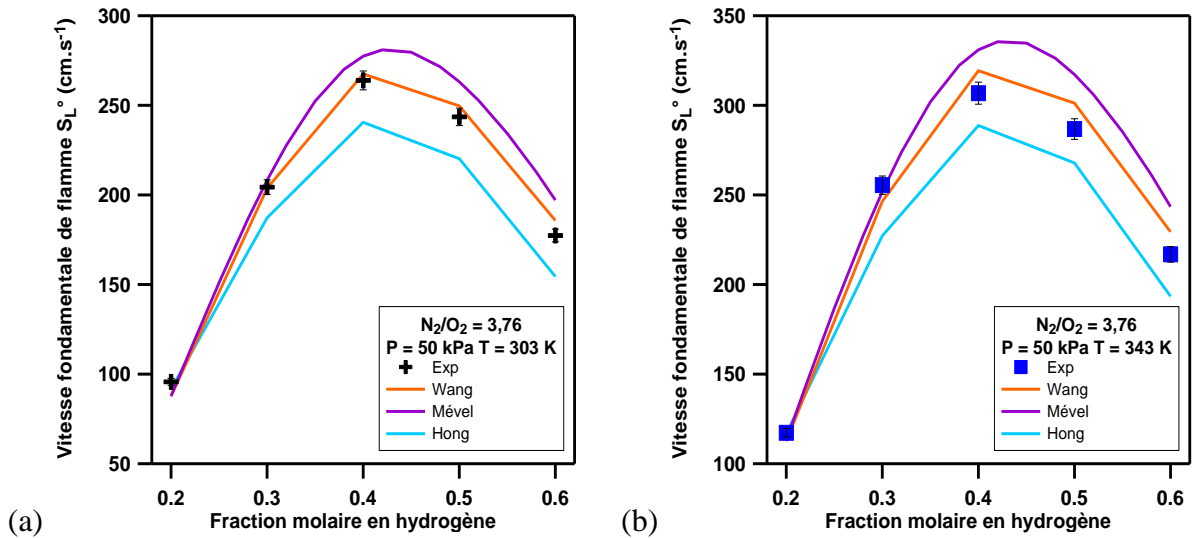


Figure C-7 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=3,76$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K

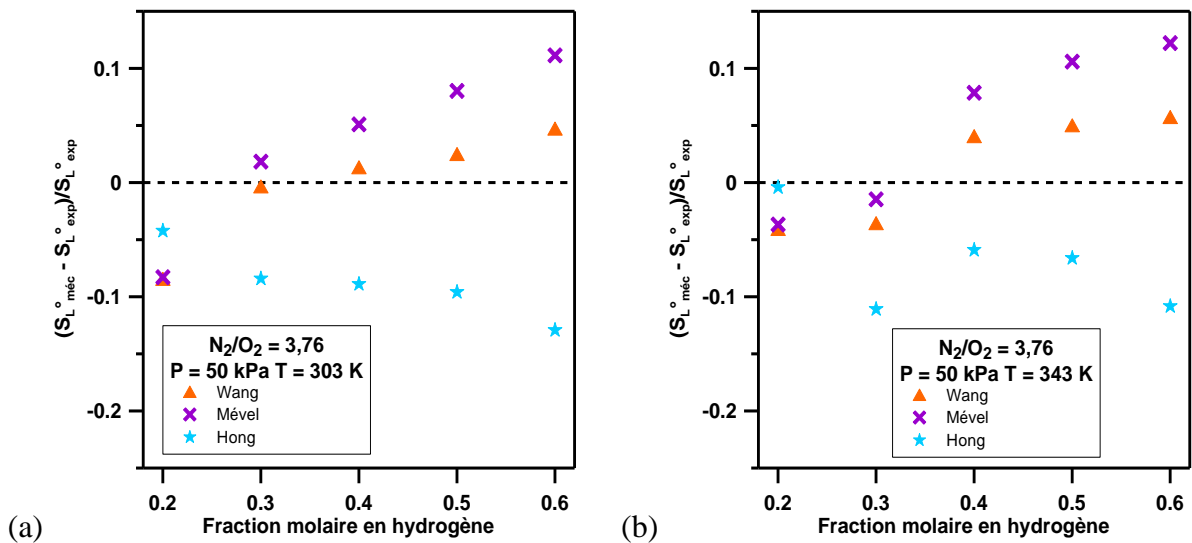


Figure C-8 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=3,76$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K

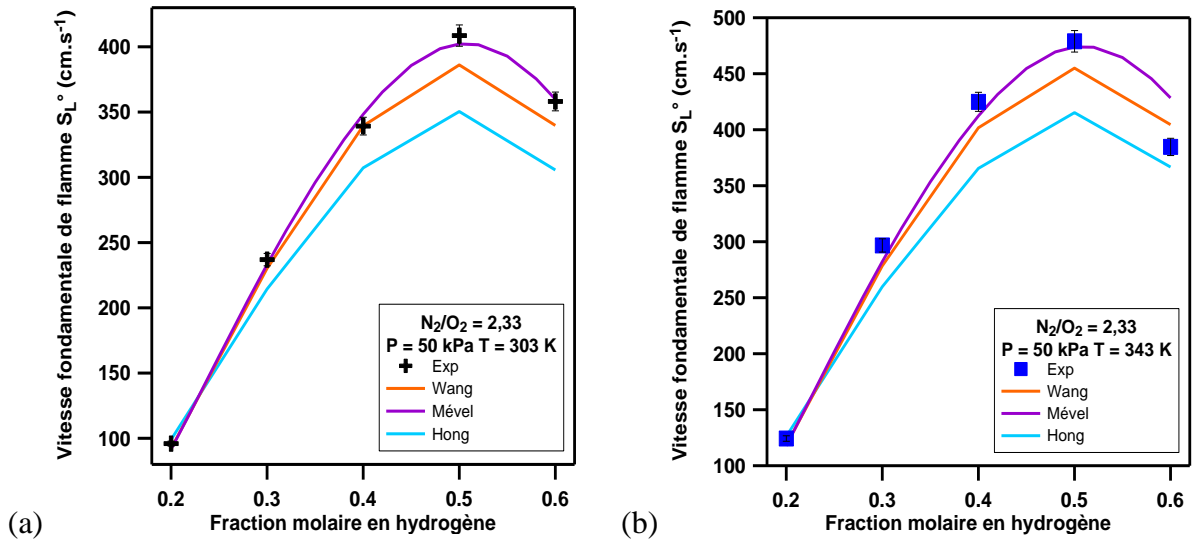


Figure C-9 : Vitesses fondamentales de flammes laminaires expérimentales et tirées de la modélisation en fonction de la richesse pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=2,33$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K

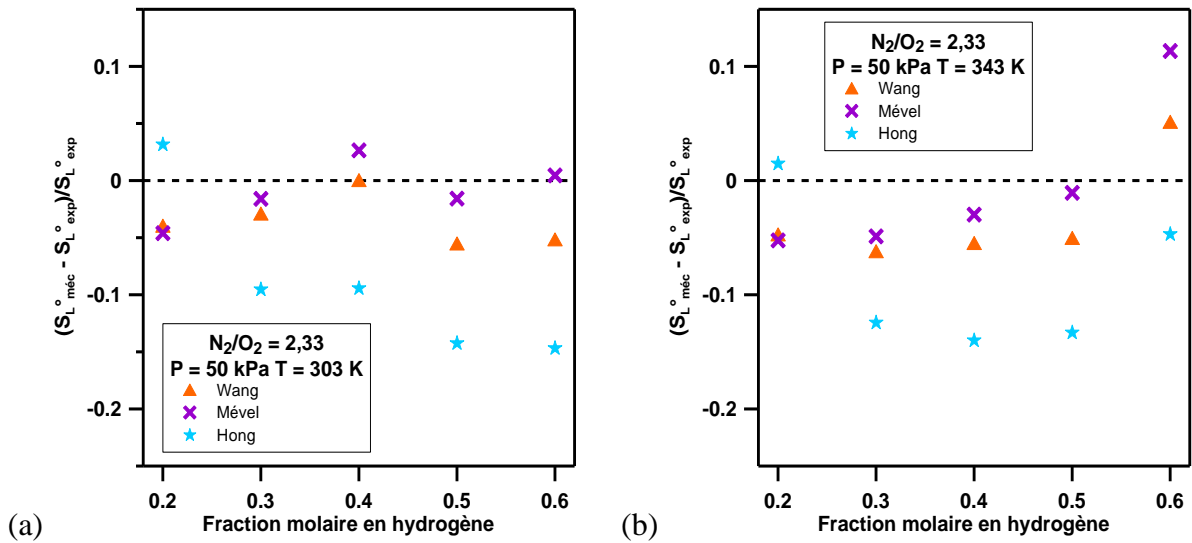


Figure C-10 : Erreurs associées aux différents mécanismes cinétiques par rapport aux valeurs expérimentales pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport $N_2/O_2=2,33$ pour différentes conditions initiales : (a) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 303$ K (b) $P_{INI} = 50$ kPa ; $T_{INI} = 343$ K

ANNEXE D : Évaluation des énergies d'activation et des nombres de Zel'dovich des mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour des rapports N_2/O_2 constants

D-1 : Énergies d'activation

La figure D-1 représente les énergies d'activation des mélanges $H_2/O_2/N_2$ en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour six différents rapports N_2/O_2 à différentes conditions initiales. Les énergies d'activation, pour des N_2/O_2 allant de 0,66 à 3,76, évoluent avec une courbe en forme de cloche en fonction de la fraction molaire en hydrogène, avec des maxima différents pour chaque rapport N_2/O_2 , contrairement aux mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 9 pour lequel les énergies d'activation suivent une forme exponentielle avec la teneur en hydrogène, ceci étant dû à une quantité d'oxygène de plus en plus faible dans le milieu initial (pour une teneur en hydrogène de 60 %mol, la fraction molaire d'oxygène dans le milieu est de 4 %mol).

Il est difficile de quantifier l'impact de la température initiale sur les énergies d'activation des mélanges $H_2/O_2/N_2$ mis à part pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 9, pour lesquels une augmentation de la température initiale de 303 à 343 K induit une baisse de l'énergie d'activation, cette diminution étant de plus en plus marquée avec l'augmentation de la quantité d'hydrogène dans le milieu.

Comme pour les mélanges précédents, l'impact de la pression initiale est plus marqué. Sur tout le domaine en teneurs en hydrogène des mélanges avec des rapports N_2/O_2 égaux à 3,76 et 9, une augmentation de la pression initiale de 50 à 100 kPa conduit à une augmentation de l'énergie d'activation. Cette augmentation étant très importante pour les mélanges avec un N_2/O_2 de 9, quand les quantités en hydrogène dans le milieu deviennent élevées. Pour les autres mélanges (rapport molaire N_2/O_2 compris entre 0,66 et 2,33), l'effet de la pression initiale sur les énergies d'activation se fait ressentir principalement pour les mélanges avec une teneur en hydrogène inférieure à 30 %mol et une augmentation de la pression de 50 à 100 kPa induit une augmentation de l'énergie d'activation.

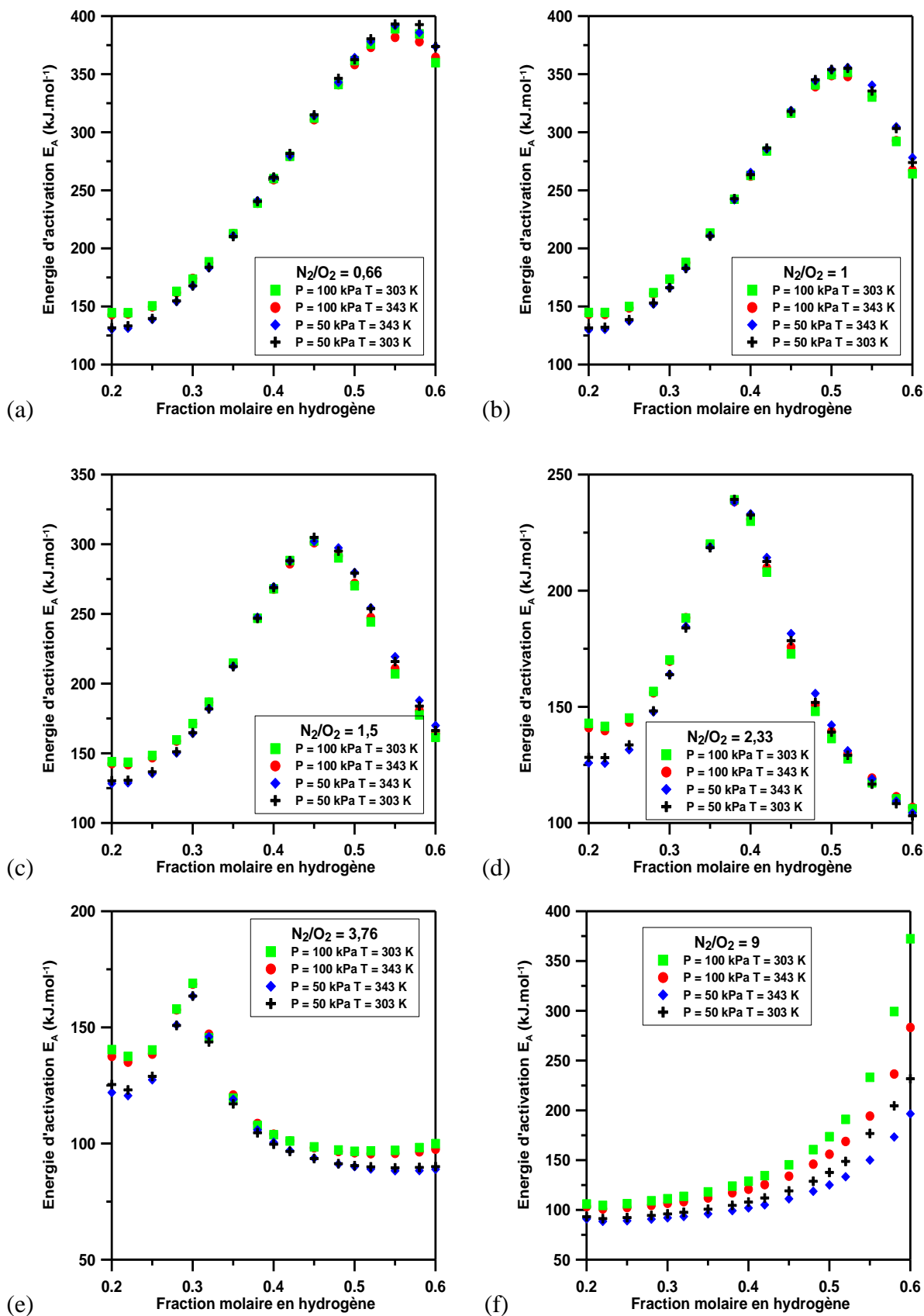


Figure D-1 : Énergies d'activation E_A , en fonction de la fraction en hydrogène pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports N_2/O_2 : (a) $N_2/O_2 = 0,66$; (b) $N_2/O_2 = 1$; (c) $N_2/O_2 = 1,5$; (d) $N_2/O_2 = 2,33$; (e) $N_2/O_2 = 3,76$; (f) $N_2/O_2 = 9$.

Une corrélation a été réalisée pour les énergies d'activation des mélanges à rapport molaire N_2/O_2 constant. Cette corrélation est valable pour un domaine de pression allant de 50 à 100 kPa et un domaine de température de 303 à 343 K. L'équation de cette corrélation est la suivante et les résultats sont donnés dans le tableau C-1.

$$E_A = (a_1 \cdot XH_2^3 + a_2 \cdot XH_2^2 + a_3 \cdot XH_2 + a_4) \cdot \left(\frac{P_{ini}}{P_{ref}}\right)^{a_5} \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}}\right)^{a_6} \quad Eq .D.1$$

avec : $P_{ref} = 100$ kPa et $T_{ref} = 303$ K.

Rapport N_2/O_2	Domaine de validation XH_2	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5	a_6
0,66	[0,2 - 0,6]	-12378,0	14721,0	-4755,0	603,0	0,0	0,0
1	[0,2 - 0,6]	-19154,0	21430,0	-6866,0	814,0	0,0	0,0
1,5	[0,2 - 0,45]	-18580,0	20099,0	-6214,0	728,0	0,0	0,0
1,5	[0,45 - 0,6]	60753,0	-97550,0	50954,0	-8413,0	0,0	0,0
2,33	[0,2 - 0,38]	-25818,0	25884,0	-7700,0	850,0	0,0	0,0
2,33	[0,38 - 0,6]	8675,0	-10487,0	3311,0	22,0	0,0	0,0
3,76	[0,2 - 0,3]	-46927,0	40909,0	-11178,0	1112,0	0,0	0,0
3,76	[0,3 - 0,6]	-8239,0	12700,0	-6486,0	1194,0	0,0	0,0
9	[0,2 - 0,6]	8204,3	-7760,5	2469,1	-138,6	0,4	-1,1

Tableau D-1 : Coefficients obtenus lors de la corrélation pour les énergies d'activation des mélanges $H_2/O_2/N_2$, avec un rapport molaire N_2/O_2 constant.

Pour certains mélanges, deux corrélation ont été réalisées au lieu d'une seule afin de coller le mieux possible aux valeurs obtenues pour le mécanisme de Mével. On remarque que l'impact de la température et de la pression initiale est nul pour tous les mélanges à l'exception du mélange avec un rapport N_2/O_2 égal à 9 pour lequel une augmentation de la pression entraîne une augmentation d' E_A (a_5 positif) à l'inverse d'une augmentation de la température initiale (a_6 négatif).

D-2 : Nombres de Zel'dovich

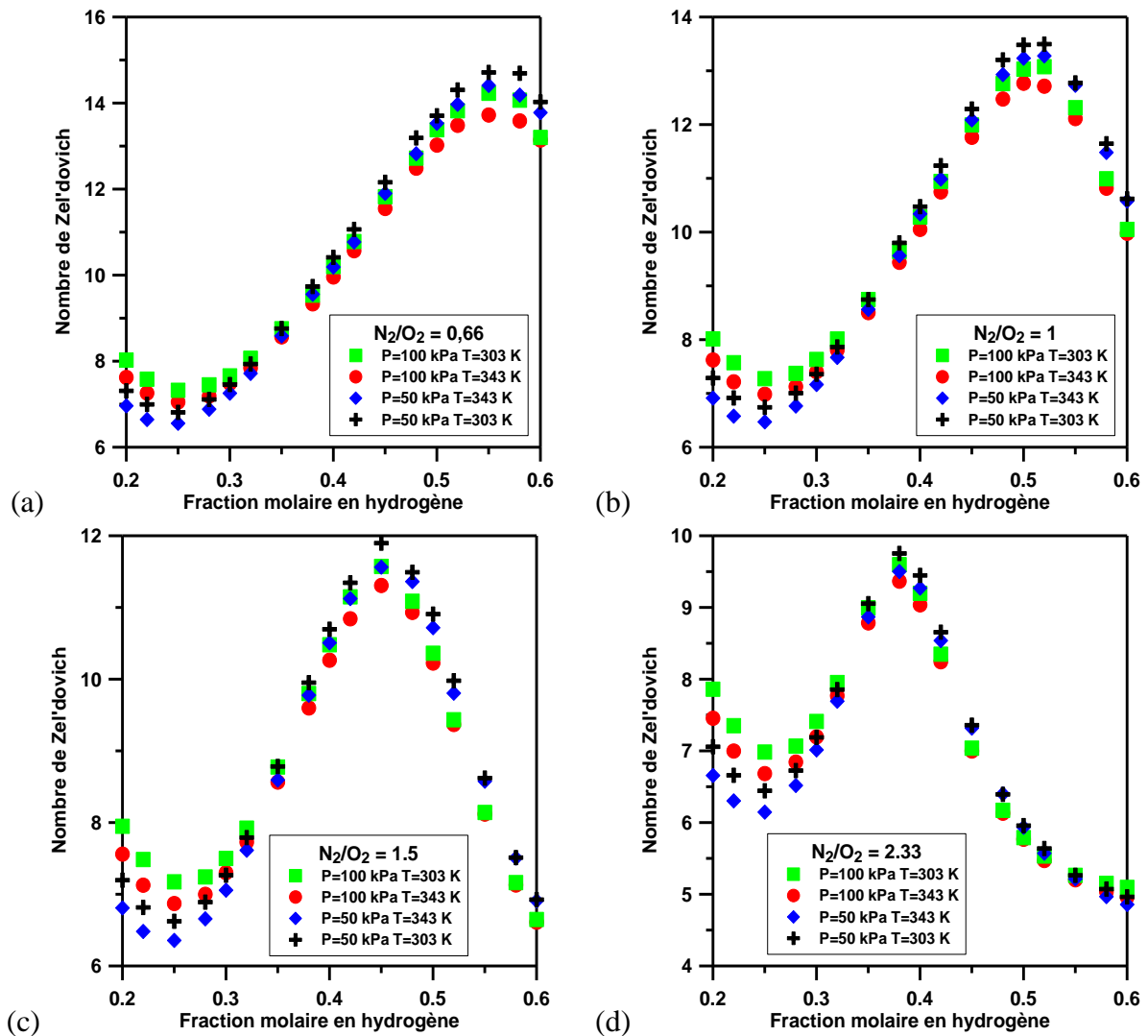
La figure D-2 représente les nombres de Zel'dovich des mélanges $H_2/O_2/N_2$ en fonction de la fraction molaire en hydrogène pour six différents rapports N_2/O_2 à différentes conditions initiales.

Sur tous les mélanges étudiés ici, une augmentation de la température initiale de 303 à 343 K induit une diminution du nombre de Zel'dovich.

L'effet de la pression initiale, lui, est plus complexe. Pour les mélanges à $N_2/O_2 = 3,76$ et 9, une augmentation de la pression initiale de 50 à 100 kPa conduit à une augmentation du

nombre de Zel'dovich sur tout le domaine. Pour les autres mélanges (N_2/O_2 compris entre 0,66 et 2,33), cet effet n'est valable que pour des fractions molaires en hydrogène allant jusqu'à 0,32. Au-delà pour des mélanges plus riches en hydrogène (teneur en hydrogène supérieure à 32 %mol), cette tendance s'inverse et une augmentation de la pression initiale de 50 à 100 kPa induit une baisse du nombre de Zel'dovich.

On remarque que pour tous les rapports molaires N_2/O_2 (à l'exception du rapport $N_2/O_2 = 9$), il existe un minimum local des nombres de Zel'dovich pour une fraction molaire en hydrogène de 0,25.



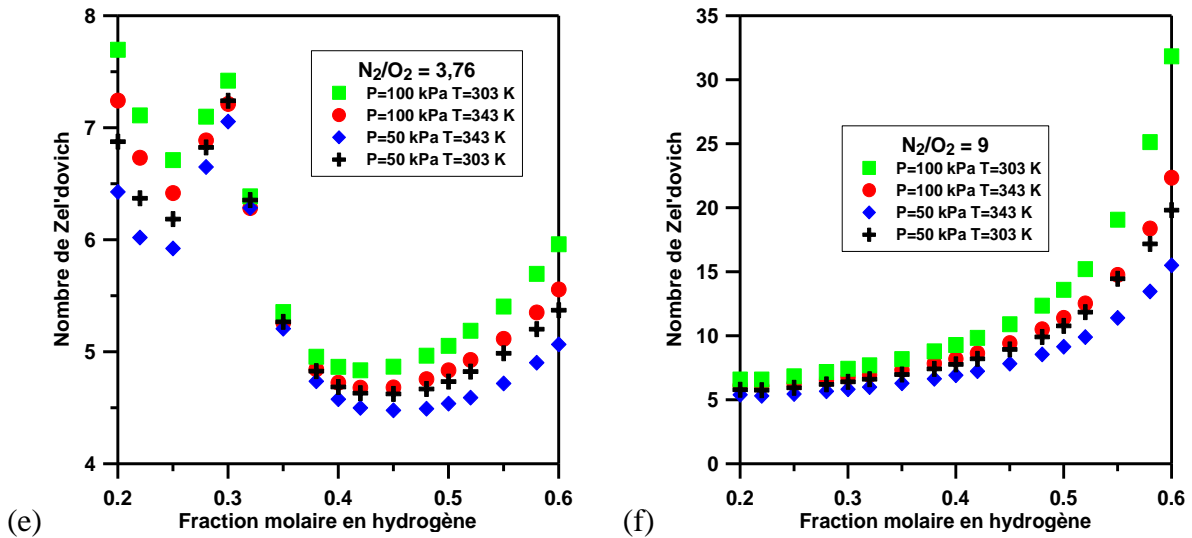


Figure D-2 : Nombres de Zel'dovich, β , en fonction de la fraction en hydrogène X_{H_2} pour différents mélanges $H_2/O_2/N_2$ pour différents rapports N_2/O_2 : (a) $N_2/O_2 = 0,66$; (b) $N_2/O_2 = 1$; (c) $N_2/O_2 = 1,5$; (d) $N_2/O_2 = 2,33$; (e) $N_2/O_2 = 3,76$; (f) $N_2/O_2 = 9$,

Une expression a été créée afin de corréler les nombres de Zel'dovich pour les mélanges $H_2/O_2/N_2$ avec un rapport molaire N_2/O_2 constant. Cette corrélation est valable pour un domaine de pression allant de 50 à 100 kPa et un domaine de température de 303 à 343 K. Les résultats sont présentés dans le tableau C-2 et l'expression de la corrélation est la suivante :

$$\beta = (a_1 \cdot X_{H_2}^3 + a_2 \cdot X_{H_2}^2 + a_3 \cdot X_{H_2} + a_4) \cdot \left(\frac{P_{ini}}{P_{ref}} \right)^{a_5} \cdot \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}} \right)^{a_6} \quad Eq D-2$$

avec : $P_{ref} = 100$ kPa et $T_{ref} = 303$ K.

Rapport N_2/O_2	Domaine de validation X_{H_2}	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5	a_6
0,66	[0,2-0,6]	-479,02	584,44	-202,87	28,60	-0,03	-0,21
1	[0,2-0,6]	-720,46	826,15	-279,60	36,27	-0,02	-0,17
1,5	[0,2-0,45]	-830,88	913,34	-300,22	37,75	0,01	-0,23
1,5	[0,45-0,6]	2169,30	-3466,40	1802,40	-295,30	-0,10	-0,10
2,33	[0,2-0,38]	-1234,20	1255,30	-393,50	45,90	0,10	-0,30
2,33	[0,38-0,6]	276,35	-303,86	74,18	10,24	-0,03	-0,12
3,76	[0,2-0,3]	-2226,70	2004,00	-577,30	60,60	0,10	-0,40
3,76	[0,3-0,6]	-363,43	570,06	-290,13	52,98	0,07	-0,29
9	[0,2-0,6]	776,84	-739,50	239,96	-17,82	0,41	-1,77

Tableau D-2 : Coefficients obtenus lors de la corrélation pour des nombres de Zel'dovich des mélanges $H_2/O_2/N_2$, avec un rapport molaire N_2/O_2 constant.

Pour certains mélanges, deux corrélations ont été réalisées. Celles-ci ne sont faites que dans le cas où une seule expression ne permet pas de corrélérer avec une faible marge d'erreur (inférieure à 10 %) sur toutes les valeurs du domaine étudié.

L'impact de la température initiale sur les nombres de Zel'dovich est négatif sur ces mélanges. Tous les coefficients a_6 sont négatifs. Ce qui montre qu'une augmentation de la température initiale conduit à une diminution du nombre de Zel'dovich des mélanges. Cet impact de la température initiale est cependant beaucoup plus prononcé pour les mélanges avec les quantités en hydrogène les plus faibles (pour des $N_2/O_2 = 1,5, 2,33$ et $3,76$) et pour les mélanges à $N_2/O_2 = 9$.

Le coefficient a_5 montre l'effet de la pression initiale sur les nombres de Zel'dovich. Celle-ci n'a que peu d'impact sur le nombre de Zel'dovich car pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 compris entre $0,66$ et $3,76$, le coefficient a_5 est compris entre $-0,10$ et $0,10$. Cependant pour les mélanges à $N_2/O_2 = 1,5, 2,33$ et $3,76$, on remarque comme vu précédemment que pour les mélanges avec les quantités les plus faibles en hydrogène, la pression joue un rôle positif, son augmentation provoquant une augmentation du nombre de Zel'dovich. Ce comportement s'inversant avec l'augmentation de la quantité d'hydrogène dans le milieu.

Il n'y a que pour les mélanges avec un rapport N_2/O_2 égal à 9 , où la pression initiale joue un rôle plus important ($a_5 = 0,41$), confirmant le fait qu'une élévation de la pression induit une augmentation du nombre de Zel'dovich.

ANNEXE E : Caractéristiques thermocinétiques des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite

Conditions Initiales			Mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /Graphite		Mélanges sans Graphite : H ₂ /O ₂ /N ₂					Mélanges sans H ₂ : Graphite/O ₂ /N ₂	
T _{ini} (K)	[Graphite] (g/m ³)	P _{ini} (kPa)	P _{AICC} (kPa)	T _F (K)	T _F (K)	α (m ² /s)	S _L ^o (cm/s)	δ (mm) = α / S _L ^o	P _{AICC} (kPa)	T _F (K)	P _{AICC} (kPa)
10 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 3,76											
298	0	51,0	222,4	1125	1124	6,01E-05	15,9*	3,78E-01	222,4	298	51,0
299	17,5	52,0	340,0	1839	1125	5,93E-05	15,9*	3,73E-01	226,1	1212	237,9
299	51,25	53,0	389,3	2184	1125	5,82E-05	15,7*	3,70E-01	230,5	2296	392,1
299	111,25	52,0	257,8	1398	1125	5,93E-05	15,9*	3,73E-01	226,1	1471	270,3
10 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 2,33											
299	0	51,0	220,9	1122	1121	6,04E-05	XX	XX	220,8	299	51,0
299	37,5	51,0	391,4	2392	1121	6,04E-05	XX	XX	220,8	2051	354,6
298	111,25	51,0	360,1	2128	1121	6,00E-05	XX	XX	221,4	2304	382,4
20 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 3,76											
298	0	100,7	680,9	1871	1871	3,88E-05	107,1	3,62E-02	680,9	298	100,7
297	25	101,7	784,7	2285	1870	3,82E-05	106,7	3,58E-02	689,8	1061	415,6
298	73,75	102,7	751,5	2115	1871	3,81E-05	107,3	3,55E-02	694,4	2178	746,0
297	83,75	101,7	720,5	2025	1870	3,82E-05	106,7	3,58E-02	689,8	2298	762,5
297	96,25	101,7	687,7	1917	1870	3,82E-05	106,7	3,58E-02	689,8	2293	766,8
298	166,25	103,7	511,7	1404	1871	3,77E-05	107,4	3,51E-02	701,1	1563	566,5
298	211,25	102,7	481,4	1310	1871	3,81E-05	107,3	3,55E-02	694,4	1448	532,1

20 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 2,33											
299	0	101,7	680,2	1864	1863	3,86E-05	110,1	3,51E-02	680,1	299	101,7
298	98,75	102,7	849,8	2627	1862	3,80E-05	109,6	3,47E-02	688,9	2496	807,5
299	203,75	101,7	661,0	1908	1863	3,86E-05	110,1	3,51E-02	680,1	2223	742,6
30 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 3,76											
300	0	103,7	828,0	2390	2390	4,58E-05	226,6	2,02E-02	828,1	300	103,7
299	25	102,7	798,5	2269	2389	4,60E-05	225,4	2,04E-02	822,6	1150	448,6
298	48,75	102,7	747,0	2072	2389	4,58E-05	224,3	2,04E-02	825,3	1806	659,5
298	88,75	102,7	638,5	1730	2389	4,58E-05	224,3	2,04E-02	825,3	2264	768,9
298	162,5	102,7	465,0	1294	2389	4,58E-05	224,3	2,04E-02	825,3	1488	538,9
299	208,75	102,7	450,5	1232	2389	4,60E-05	225,4	2,04E-02	822,6	1417	524,3
30 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 2,33											
300	0	103,7	830,2	2411	2410	4,58E-05	256,9	1,78E-02	830,1	300	103,7
299	77,5	102,7	844,4	2551	2409	4,60E-05	255,5	1,80E-02	824,7	2391	785,9
299	201,25	103,7	591,3	1636	2410	4,55E-05	255,7	1,78E-02	832,8	2015	696,4

Les vitesses de flamme de ces mélanges sont calculées à partir de la corrélation obtenue par l'équation 3-2 et des coefficients du Tableau 3-7.

Les valeurs de vitesses de flammes suivies de * ont été calculées via la corrélation donnée par Malet [58]. Son équation est la suivante :

$$S_L^0 = (1,44 * \phi^2 + 1,07 * \phi - 0,29) * (1 - Y)^4 * \left(\frac{P_{ini}}{P_{ref}} \right)^{-0,5} * \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}} \right)^{2,2}$$

Y signifie la fraction de diluant dans le milieu initialement ; P_{ref} = 100 kPa et T_{ref} = 298 K

Son domaine de validité est le suivant : Φ = [0,24 - 0,7] ; P_{ini} (kPa) = [100 - 500] ; T_{ini} (K) = [298 - 353] ; Y = [0 - 0.4]

ANNEXE F : Paramètres d'explosivité des mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$

F-1 : Pression maximale de combustion (P_{MAX})

Les pressions maximales de combustion, P_{MAX} , des mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en hydrogène de 10 %mol sont présentées en fonction de la concentration en graphite dans le milieu sur la figure F-1. Une augmentation de la concentration en particules de graphite dans le milieu conduit à une baisse de la pression maximale comme observé sur la Figure 4-3, le graphite jouant le rôle de puits de chaleur. Par exemple, pour les mélanges à 100 kPa avec un rapport N_2/O_2 égal à 3,76, une augmentation de la concentration en graphite dans le milieu de 0 à 23,2 puis à 96,6 g/m^3 conduit à une baisse de la valeur de P_{MAX} de 407 à 403 puis à 393 kPa.

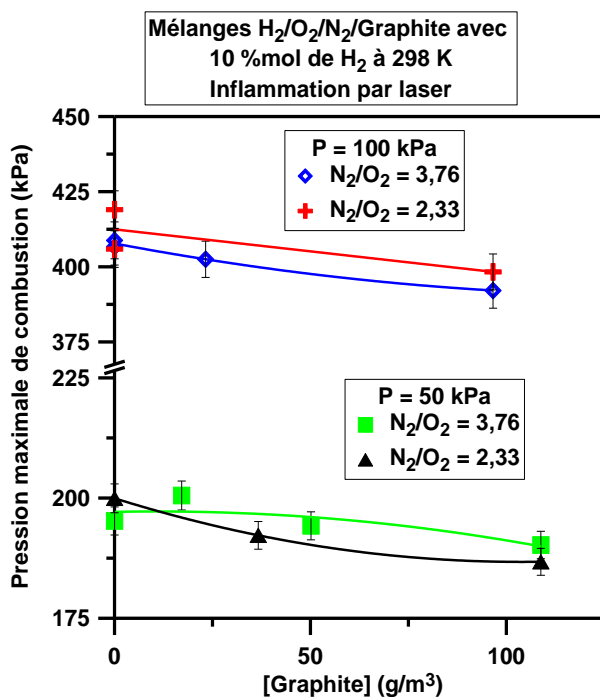


Figure F-1 : Pression maximale d'explosion, P_{MAX} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges $H_2/O_2/N_2/Graphite$ avec une teneur en H_2 de 10 %mol, enflammés par claquage laser, pour différents rapports N_2/O_2 et différentes pressions initiales

L'impact de la source d'inflammation pour ces mêmes mélanges montre une dispersion dans les valeurs (Figure F-2). En effet, comme vu dans la Figure 4-1, la répétabilité des expériences est limitée et est fonction de l'énergie introduite dans le milieu. De manière générale, pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol, une augmentation de l'énergie d'inflammation conduit à une baisse du temps de combustion induisant par la même une faible augmentation de la pression maximale de combustion.

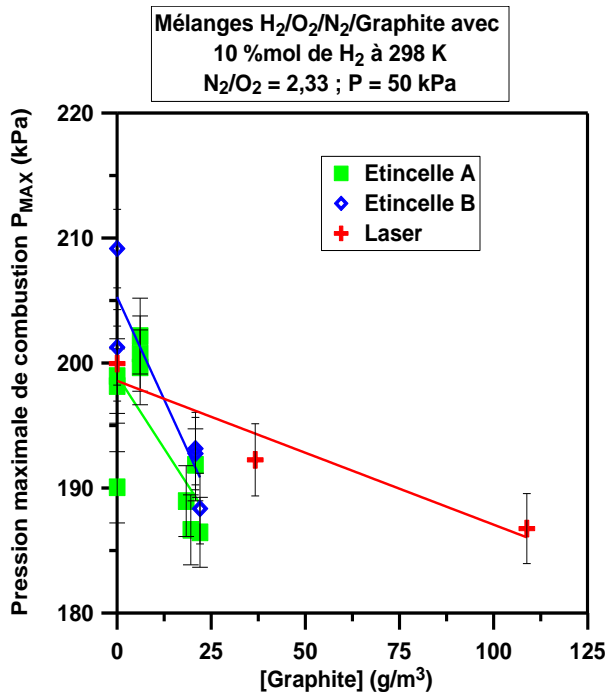


Figure F-2 : Pression maximale d'explosion, P_{MAX} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 10 %mol, enflammés par différents systèmes, avec un rapport N₂/O₂ = 2,33, à 50 kPa et à 298 K

L'effet de la présence de particules sur les pressions maximales d'explosion des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 %mol montre que l'augmentation de leur teneur conduit sur une grande partie du domaine à l'augmentation de la pression maximale de combustion (Figure F-3). Par exemple, pour les mélanges avec une pression initiale de 50 kPa et un rapport N₂/O₂ = 2,33, la pression maximale d'explosion augmente de 332 à 348 kPa quand la concentration en particules de graphite dans le milieu augmente de 0 à 152,9 g/m³.

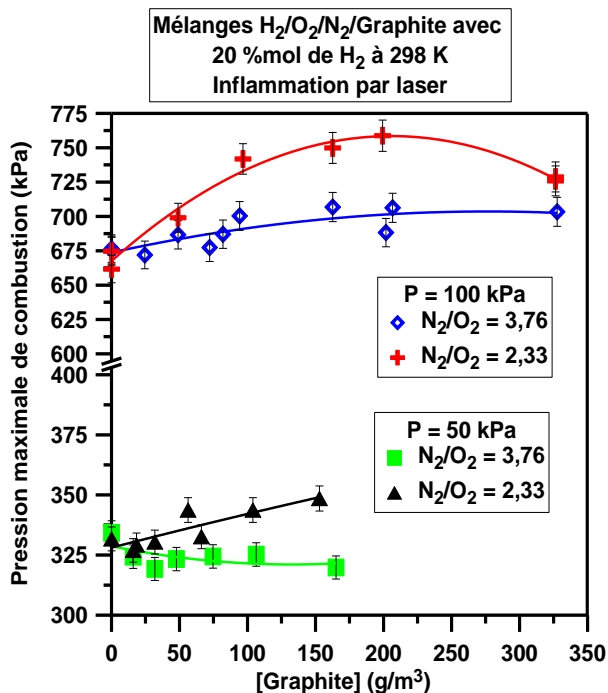


Figure F-3 : Pression maximale d'explosion, P_{MAX} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 20 %mol, enflammés par claquage laser, pour différents rapports N₂/O₂ et différentes pressions initiales à 298 K

L'impact de la source d'inflammation sur ces mêmes mélanges, lui, est présenté sur la figure F-4. Comme observé sur la Figure 4-6, l'utilisation de sources d'énergies différentes conduit à des valeurs semblables de pressions maximales de combustion.

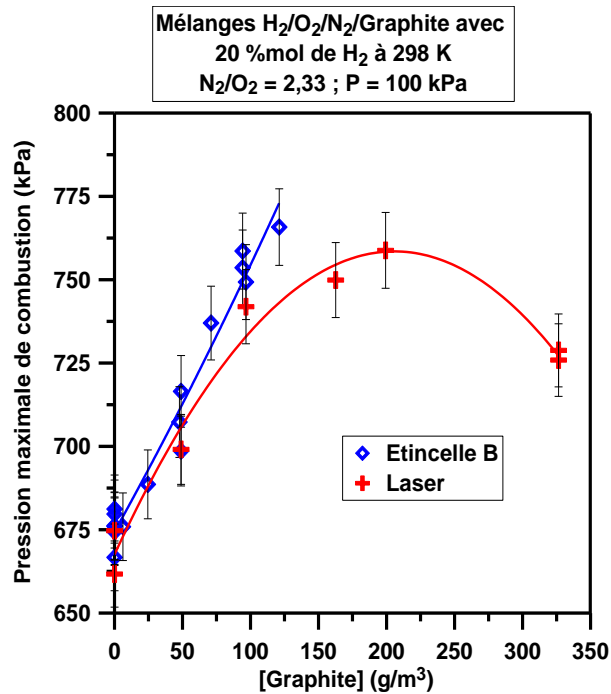


Figure F-4 : Pression maximale d'explosion, P_{MAX} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 20 %mol, enflammés par différents systèmes, avec un rapport N₂/O₂ = 2,33, à 100 kPa et à 298 K

La pression maximale de combustion, P_{MAX} des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 30 %mol sont présentés en fonction de la concentration en graphite dans le milieu sur la figure F-5. Pour les mélanges avec un rapport N₂/O₂ égal à 3,76, une augmentation de la quantité de graphite dans le milieu conduit à des valeurs quasi-identiques de P_{MAX} . Pour les mélanges à 100 kPa et avec un rapport N₂/O₂ égal à 2,33, P_{MAX} évolue en forme de cloche avec un maximum pour une concentration en graphite de 157,7 g/m³.

L'impact de la source d'inflammation (figure F-6), comme expliqué sur la Figure 4-9, conduit à des valeurs quasi-identiques sur les maxima de pression. On observe moins de 4 % d'écart sur les valeurs de P_{MAX} entre les différents systèmes d'inflammation.

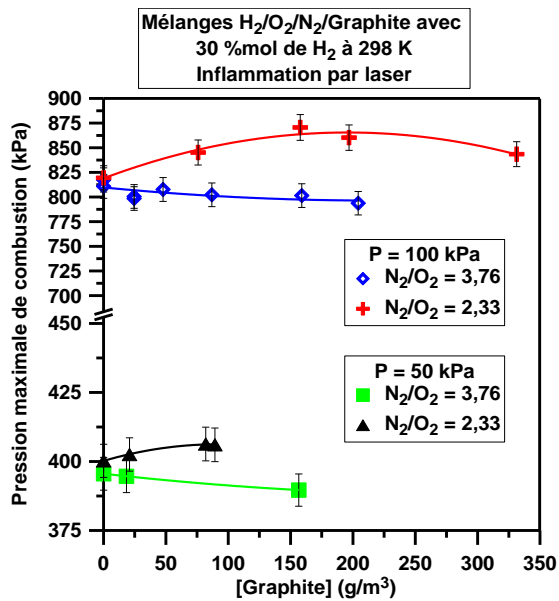


Figure F-5 : Pression maximale d'explosion, P_{MAX} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 30 %mol, enflammés par claquage laser, pour différents rapports N₂/O₂ et différentes pressions initiales à 298 K

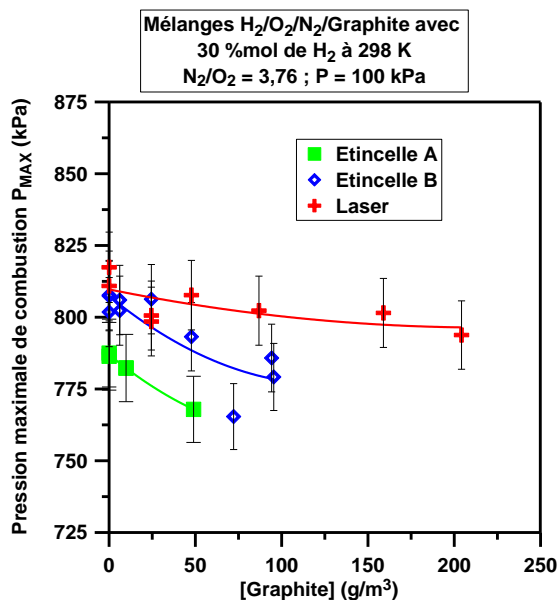


Figure F-6 : Pression maximale d'explosion, P_{MAX} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 30 %mol, enflammés par différents systèmes, avec un rapport N₂/O₂ = 3,76, à 100 kPa et à 298 K

F-2 : Le temps de combustion (t_C)

Les temps de combustion (t_C) des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 10 % sont représentés sur la figure F-7. Comme observé sur la Figure 4-3, une augmentation de la concentration en graphite dans le milieu conduit à une baisse du temps de combustion, la présence de particules créant de la turbulence ce qui conduit à une accélération de la flamme. Cependant, quand la concentration en particules devient trop importante, leur présence conduit à des perturbations trop importantes et la flamme ralentit à nouveau. Par exemple, pour les mélanges à 100 kPa et N₂/O₂ = 3,76, le temps de combustion est de 267, 214 puis de 224 ms quand la concentration en graphite augmente de 0 à 23,2 puis à 96,6 g/m³ respectivement.

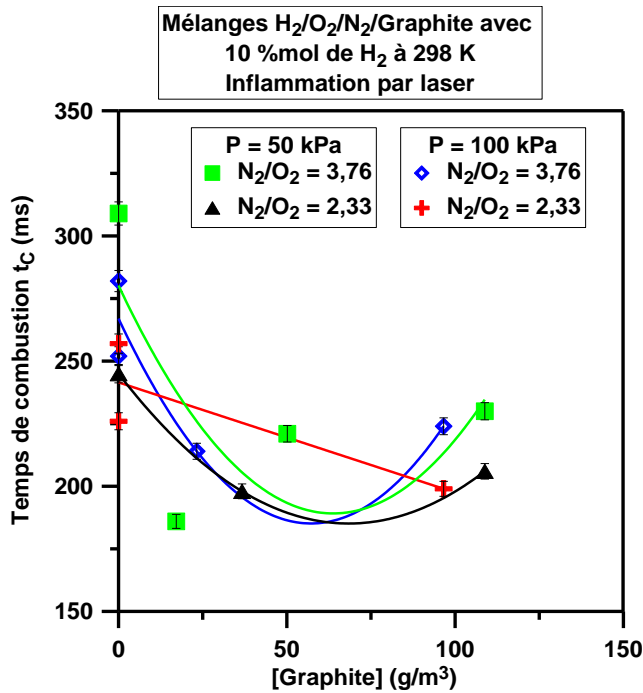


Figure F-7 : Temps de combustion, t_c , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 10 %mol, enflammés par claquage laser, pour différents rapports N₂/O₂ et différentes pressions initiales à 298 K

La figure F-8 présente l'impact de la source d'inflammation sur le temps de combustion de ces mélanges. Pour ces mélanges, une augmentation de l'énergie d'inflammation conduit à une baisse du temps de combustion. Cependant, la répétabilité assez limitée des résultats, notamment pour les mélanges enflammés à l'aide de l'étincelle A, rend assez difficile le fait de dégager toute tendance.

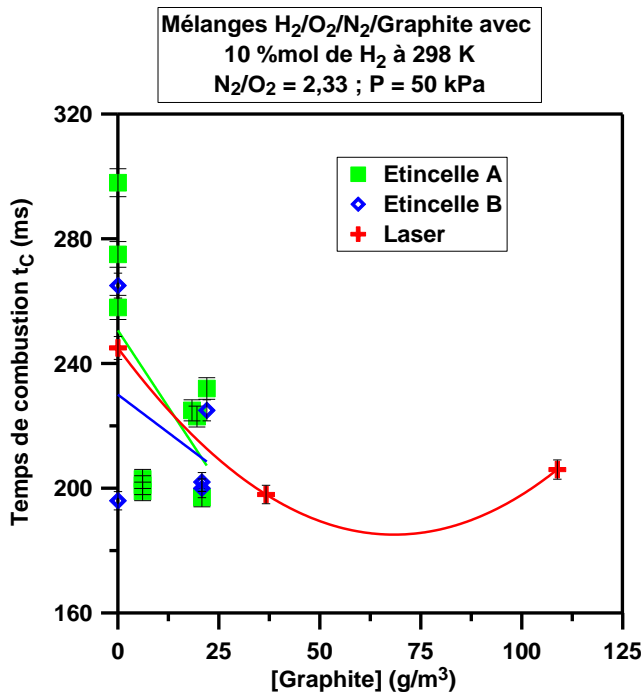


Figure F-8: Temps de combustion, t_c , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 10 %mol, enflammés par différents systèmes, avec un rapport N₂/O₂ = 2,33, à 50 kPa et à 298 K

L'impact de la concentration en particules pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 %mol est présenté sur la figure F-9. À l'exception des mélanges à 50 kPa et pour un rapport N_2/O_2 de 2,33, l'augmentation de la concentration en particules de graphite dans le milieu conduit à une augmentation du temps de combustion. En effet, comme on a pu le constater sur la Figure 4-7 avec le signal de pression, la combustion des particules est initiée en fin de propagation et elles mettent plus de temps à brûler augmentant ainsi le temps de combustion.

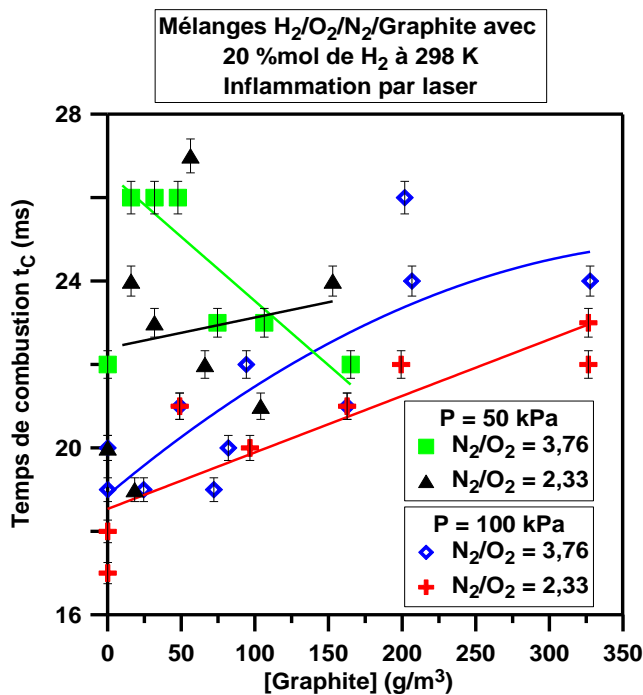


Figure F-9 : Temps de combustion, t_c , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en H_2 de 20 %mol, enflammés par claquage laser, pour différents rapports N_2/O_2 et différentes pressions initiales à 298 K

L'utilisation de différentes sources d'inflammation (Figure F-10), conduit à des valeurs de temps de combustion similaires. Contrairement aux mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol, la flamme d'hydrogène se propage de manière suffisamment rapide pour que l'impact de l'énergie d'inflammation se fasse moins ressentir (Figure 4-6).

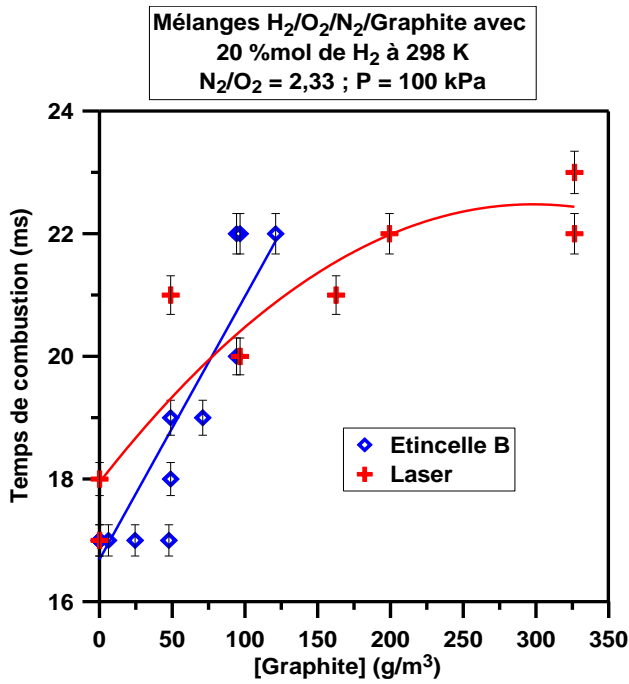


Figure F-10 : Temps de combustion, t_C , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 20 %mol, enflammés par différents systèmes, avec un rapport N₂/O₂ = 2,33, à 100 kPa et à 298 K

L'impact de la présence de graphite dans le milieu conduit à une baisse du temps de combustion des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite par rapport aux mélanges sans graphite avec une teneur en hydrogène de 30 %mol sans poussières (Figure F-11). Cependant, dès que le graphite est présent dans le milieu, le temps de combustion reste identique. Ce phénomène a été observé sur la Figure 4-11.

L'utilisation de différentes sources d'inflammation pour ces mélanges conduit, comme pour les mélanges avec une teneur de 20 %mol en hydrogène, à des valeurs similaires de temps de combustion sur l'ensemble du domaine testé (Figure F-12).

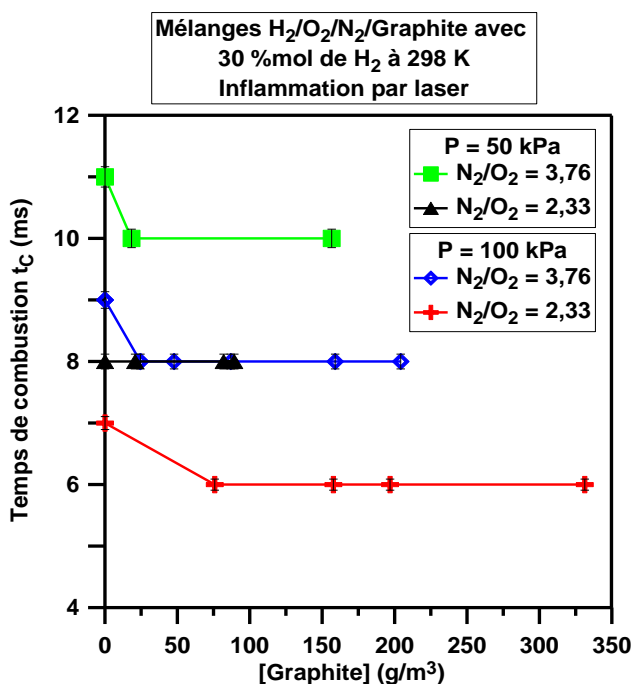


Figure F-11 : Temps de combustion, t_C , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 30 %mol, enflammés par claquage laser, pour différents rapports N₂/O₂ et différentes pressions initiales à 298 K

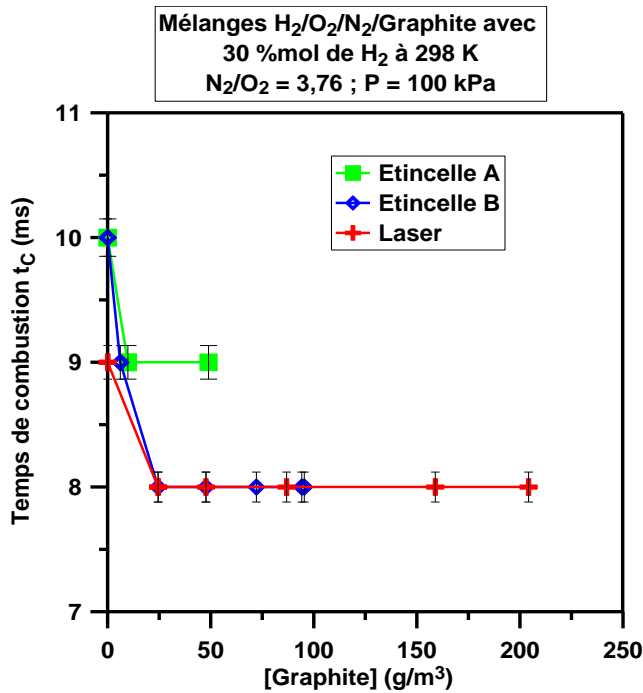


Figure F-12 : Temps de combustion, t_C , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 30 %mol, enflammés par différents systèmes, avec un rapport N₂/O₂ = 3,76, à 100 kPa et à 298 K

F-3 : L'indice d'explosivité (K_{ST})

L'impact de la concentration en graphite dans le milieu pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 10 %mol est donné sur la figure F-13. L'impact de la concentration en particules de graphite dans le milieu n'induit aucune variation importante de l'indice de déflagration. Par exemple, pour les mélanges à 50 kPa, K_{ST} oscille entre 400 et 600 kPa.m.s⁻¹.

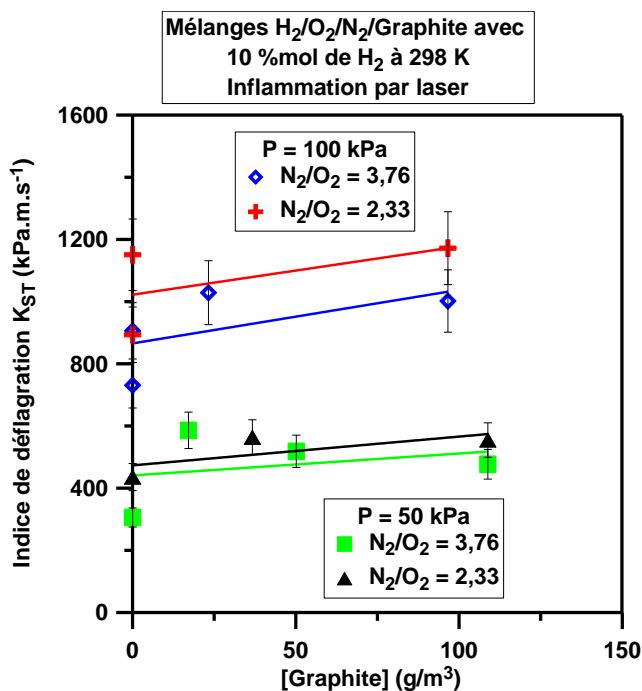


Figure F-13 : Indice de déflagration, K_{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 10 %mol, enflammés par claquage laser, pour différents rapports N₂/O₂ et différentes pressions initiales à 298 K

L'impact de la source d'inflammation sur ces mêmes mélanges est représenté sur la Figure F-14. L'utilisation d'une source d'inflammation délivrant une énergie plus importante conduit à des valeurs de K_{ST} plus importantes. En effet, pour les mélanges avec une teneur en hydrogène de 10 %mol, une énergie d'inflammation plus importante induit des temps de combustion plus faibles et des maxima de pression plus élevés (Figure 4-1). Il en résulte des indices de déflagration plus élevés.

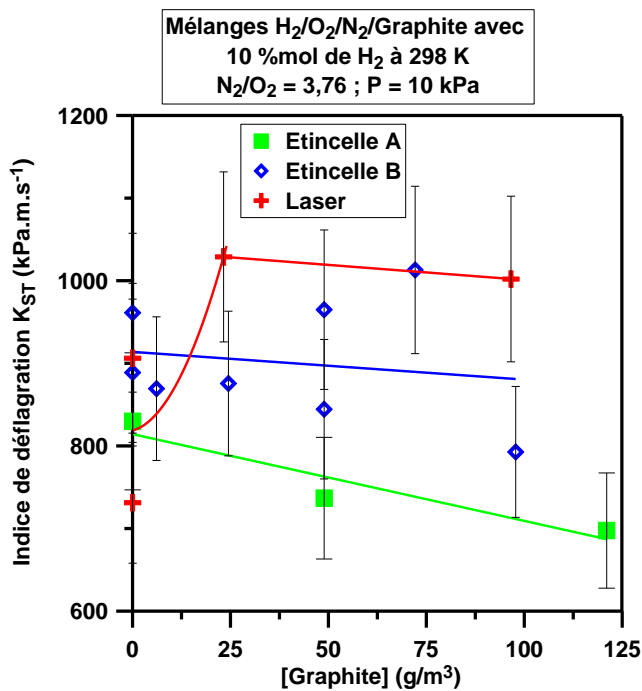


Figure F-14 : Indice de déflagration, K_{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 10 %mol, enflammés par différents systèmes, avec un rapport N₂/O₂ = 3,76, à 100 kPa et à 298 K

L'impact de la concentration en graphite dans le milieu pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 %mol est donné sur la figure F-15. La présence de particules de graphite influe peu sur les valeurs de l'indice de déflagration. Par exemple, pour les mélanges à 100 kPa et avec un rapport N₂/O₂ égal à 3,76, K_{ST} varie entre 30 et 40 MPa.m.s⁻¹. Pour ces mélanges, une diminution du rapport N₂/O₂ de 3,76 à 2,33 induit une augmentation de K_{ST} .

L'impact de la source d'inflammation pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 20 %mol est donné sur la figure F-16. L'énergie d'inflammation utilisée pour l'inflammation des mélanges influe peu sur les valeurs d'indices de déflagration obtenues. Pour les mélanges à 100 kPa et pour un rapport N₂/O₂ de 3,76, K_{ST} oscille entre 30 et 40 MPa.m.s⁻¹.

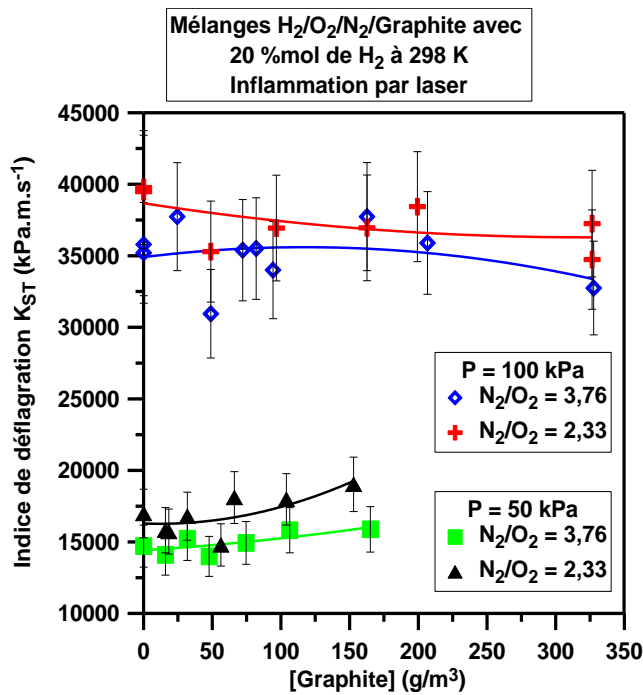


Figure F-15 : Indice de déflagration, K_{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 20 %mol, enflammés par claquage laser, pour différents rapports N₂/O₂ et différentes pressions initiales à 298 K

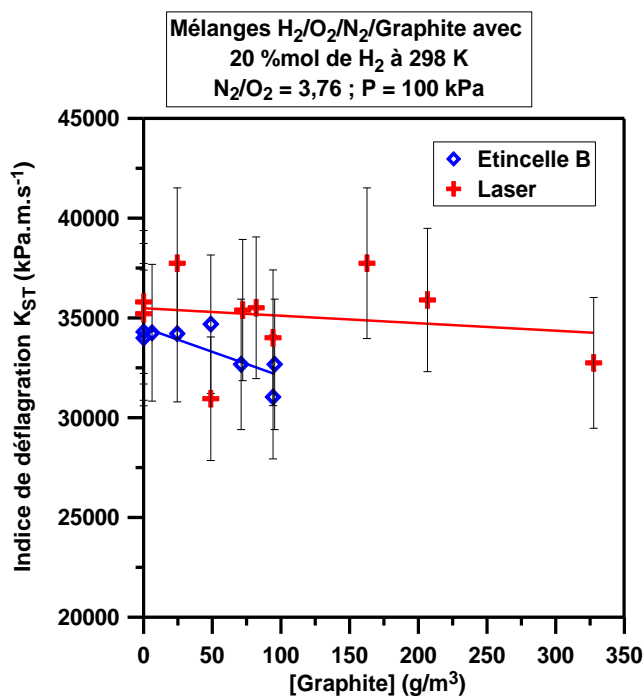


Figure F-16 : Indice de déflagration, K_{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en H₂ de 20 %mol, enflammés par différents systèmes, avec un rapport N₂/O₂ = 2,33, à 100 kPa et à 298 K

L'impact de la concentration en graphite dans le milieu pour les mélanges H₂/O₂/N₂/Graphite avec une teneur en hydrogène de 30 %mol est donné sur la figure F-17. Pour les mélanges à 100 kPa, l'indice de déflagration augmente avec l'augmentation de la quantité de particules de graphite dans le milieu. Par exemple, pour les mélanges à 100 kPa avec un rapport N₂/O₂ de 3,76 K_{ST} augmente de 92 à 119 MPa.m.s⁻¹ quand la concentration en graphite dans le milieu augmente de 0 à 204,2 g/m³. Pour ces mêmes mélanges, l'impact de la source d'inflammation est présenté sur la figure F-18. Pour les mélanges à 100 kPa et avec un

rapport N_2/O_2 de 3,76, l'utilisation de différentes sources d'inflammation n'influe pas sur les résultats de K_{ST} .

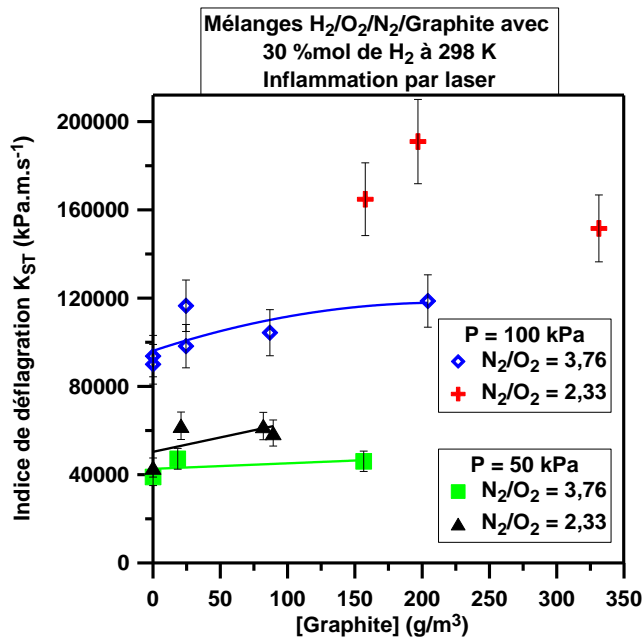


Figure F-17: Indice de déflagration, K_{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en H_2 de 30 %mol, enflammés par claquage laser, pour différents rapports N_2/O_2 et différentes pressions initiales à 298 K

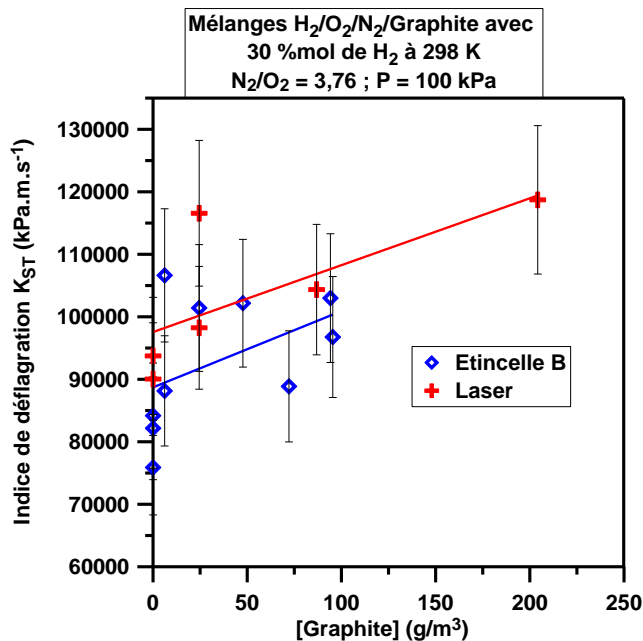


Figure F-18: Indice de déflagration, K_{ST} , en fonction de la concentration en graphite pour des mélanges $H_2/O_2/N_2$ /Graphite avec une teneur en H_2 de 30 %mol, enflammés par différents systèmes, avec un rapport $N_2/O_2 = 3,76$, à 100 kPa et à 298 K

ANNEXE G : Caractéristiques thermocinétiques des mélanges H₂/O₂/N₂/Tungstène

Conditions Initiales			Mélanges H ₂ /O ₂ /N ₂ /W		Mélanges sans W : H ₂ /O ₂ /N ₂					Mélanges sans H ₂ : W/O ₂ /N ₂	
T _{ini} (K)	[W] _{ini} (g/m ³)	P _{ini} (kPa)	P _{AICC} (kPa)	T _F (K)	T _F (K)	α (m ² /s)	S _L ^o (cm/s)	δ(mm) = α / S _L ^o	P _{AICC} (kPa)	T _F (K)	P _{AICC} (kPa)
10 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 3,76											
298	0	102	456,1	1159	1158	3,04E-05	13,7*	2,22E-03	456,3	298	102,0
300	41,25	104	498,1	1278	1159	3,02E-05	13,8*	2,19E-03	462,6	460	175,7
298	50	103	506,7	1303	1158	3,02E-05	13,6*	2,21E-03	460,7	494	190,7
300	132,5	104	579,8	1526	1159	3,02E-05	13,8*	2,19E-03	462,6	791	314,5
298	226,25	100	655,9	1777	1158	3,11E-05	13,8*	2,24E-03	447,3	1118	437,9
299	433,75	102	774,5	2224	1159	3,06E-05	13,8*	2,22E-03	455,0	1695	627,5
10 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 2,33											
298	0	102	454,2	1155	1154	3,04E-05	XX	XX	454,1	298	102,0
298	41,25	102	496,2	1276	1154	3,04E-05	XX	XX	454,1	461	176,1
298	66,25	103	519,5	1344	1154	3,01E-05	XX	XX	458,6	554	216,6
298	121,25	102	568,8	1496	1154	3,04E-05	XX	XX	454,1	755	300,0
299	217,5	103	641,4	1736	1155	3,03E-05	XX	XX	457,3	1069	419,4
299	420	103	764,9	2174	1155	3,03E-05	XX	XX	457,3	1643	616,0
20 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 3,76											
299	0	103	691,3	1886	1885	3,84E-05	111,1	3,46E-02	696,3	299	103,0
299	31,25	104	711,5	1961	1885	3,81E-05	111,2	3,42E-02	703,1	436	164,9
299	62,5	104	730,4	2033	1885	3,81E-05	111,2	3,42E-02	703,1	568	223,1
299	130	103	767,5	2182	1885	3,84E-05	111,1	3,46E-02	696,3	841	334,3

299	173,75	104	787,4	2266	1885	3,81E-05	111,2	3,42E-02	703,1	997	393,6
299	415	103	856,5	2529	1885	3,84E-05	111,1	3,46E-02	696,3	1770	656,0
20 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 2,33											
299	0	102	685,8	1877	1876	3,88E-05	113,4	3,42E-02	684,0	299	102,0
298	32,5	101	706,6	1956	1876	3,89E-05	112,7	3,45E-02	679,4	444	168,6
299	66,25	102	726,4	2033	1876	3,88E-05	113,4	3,42E-02	684,0	588	231,3
299	122,5	104	755,2	2150	1876	3,80E-05	113,6	3,35E-02	697,4	806	319,9
299	188,75	103	786,2	2281	1876	3,84E-05	113,5	3,38E-02	690,7	1053	413,8
299	272,5	101	812,7	2432	1876	3,91E-05	113,2	3,46E-02	677,3	1353	513,2
30 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 3,76											
300	0	103	816,1	2387	2387	4,62E-05	225,3	2,05E-02	819,5	300	103,0
299	30	103	821,8	2408	2387	4,59E-05	224,3	2,05E-02	822,2	449	170,7
298	48,75	103	824,4	2416	2386	4,57E-05	223,2	2,05E-02	824,9	538	210,1
299	72,5	103	826,9	2421	2387	4,59E-05	224,3	2,05E-02	822,2	650	257,5
298	252,5	102	829,4	2408	2386	4,61E-05	223,0	2,07E-02	816,8	1385	529,7
299	406,25	104	833,7	2387	2387	4,55E-05	224,5	2,03E-02	830,3	1876	687,2
30 %mol H ₂ ; N ₂ /O ₂ = 2,33											
300	0	102	817,7	2404	2404	4,66E-05	254,7	1,83E-02	812,9	300	102,0
299	33,75	102	829,9	2457	2403	4,63E-05	253,5	1,83E-02	815,5	468	179,2
299	60	103	838,0	2495	2404	4,59E-05	253,8	1,81E-02	823,6	591	232,6
299	101,25	103	850,1	2549	2404	4,59E-05	253,8	1,81E-02	823,6	778	309,1
298	185	103	869,4	2640	2403	4,56E-05	252,6	1,81E-02	826,3	1120	438,0
298	321,25	104	908,7	2739	2403	4,52E-05	252,8	1,79E-02	834,4	1598	607,9

Les vitesses de flamme de ces mélanges sont calculées à partir de la corrélation obtenue par l'équation 3-2 et des coefficients du Tableau 3-7.

Les valeurs de vitesses de flammes suivies de * ont été calculées via la corrélation donnée par Malet [58]. Son équation est la suivante :

$$S_L^0 = (1,44 * \phi^2 + 1,07 * \phi - 0,29) * (1 - Y)^4 * \left(\frac{P_{ini}}{P_{ref}} \right)^{-0,5} * \left(\frac{T_{ini}}{T_{ref}} \right)^{2,2}$$

Y signifie la fraction de diluant dans le milieu initialement ; $P_{ref} = 100$ kPa et $T_{ref} = 298$ K

Son domaine de validité est le suivant : $\Phi = [0,24 - 0,7]$; P_{ini} (kPa) = [100 - 500] ; T_{ini} (K) = [298 - 353] ; $Y = [0 - 0,4]$

Jérémy SABARD

Étude de l'explosion de mélanges diphasiques hydrogène et poussières

Cette étude s'inscrit dans le cadre de la sûreté de l'installation ITER. En effet, des études d'accidentologie concernant cette installation ont permis de mettre à jour un risque d'explosion de mélanges à base d'hydrogène et de poussières. L'objectif de la thèse est d'acquérir les données fondamentales caractérisant l'explosion de ces mélanges diphasiques permettant ainsi d'évaluer les pressions générées par une éventuelle explosion des poussières qu'elle soit concomitante ou non à celle de l'hydrogène. Pour se faire, des expériences, en bombe sphérique, ont été réalisées concernant des mélanges gazeux hydrogène - oxygène - azote. Les expériences ont été accomplies pour des températures de 303 et 343 K et des pressions de 50 et 100 kPa pour différentes concentrations en hydrogène et différents rapports N_2/O_2 dans le mélange. Les paramètres de caractérisation de l'explosion de ces mélanges ont été déterminés tels que la pression maximale de combustion (P_{MAX}), l'indice de déflagration (K_G ou K_{ST}), le temps de combustion (t_C), la vitesse fondamentale de flamme (S_L°) et la longueur de Markstein (L_B). Une modélisation cinétique de la vitesse de flamme utilisant le code COSILAB a été réalisée, permettant de déduire la vitesse fondamentale de flamme sur la base de trois mécanismes cinétiques détaillés de la littérature. Celle-ci a permis l'évaluation de l'énergie d'activation globale sur la base du modèle cinétique présentant le meilleur accord avec l'expérience. De plus des calculs thermodynamiques à l'équilibre ont été réalisés afin de comparer les pressions maximales de combustion aux valeurs théoriques. Pour les mélanges diphasiques, un nouveau système d'introduction des poussières a été mis en place et des expériences caractérisant les paramètres d'explosion de ces mélanges ont été réalisées dans la bombe sphérique. Celles-ci ont permis de mettre en exergue le fait qu'une explosion de poussières, sous certaines conditions peut-être concomitante à une explosion d'hydrogène.

Mots clés : combustion, sûreté nucléaire, bombe sphérique, mélanges diphasiques, vitesse fondamentale de flamme, pression maximale de combustion, indice de déflagration

Hydrogen and dusts two-phase mixtures explosion study

The context of the study is the safety of the ITER installation. Indeed, studies have shown that it exists a risk for two-phase mixtures of hydrogen and dust can explode and create a safety risk for the ITER installation. This aims to obtain the fundamental data which characterize the explosion of these mixtures and to evaluate the pressure loads they can generate. To do so, experiments in spherical bomb have been carried out for hydrogen - oxygen - nitrogen mixtures at two initial temperatures (303 and 343 K) and pressures (50 and 100 kPa) for different hydrogen concentrations and different N_2/O_2 ratios. Explosion parameters like maximum combustion pressures (P_{MAX}), deflagration indexes (K_G or K_{ST}), combustion times (t_C), fundamental flame speeds (S_L°) and Markstein lengths have been determined. A kinetic modelling of the flame speed, using the COSILAB software was performed based on three detailed kinetic models available in the literature 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. Moreover equilibrium calculations were achieved to compare P_{MAX} to the theoretical values. For two-phase mixtures, a new introduction device was tested and set up and experiments characterizing the explosions parameters of the two-phase mixtures have been performed in the spherical bomb. They were able to stress out the fact that, under some circumstances, dust explosion can be concomitant to a hydrogen explosion.

Keywords: combustion, nuclear safety, spherical bomb, two-phase mixtures, fundamental flame speed, maximum combustion pressure, deflagration index.



Laboratoire ICARE, UPR 3021
Institut de Combustion, Aérothermique,
Réactivité et Environnement
1C Avenue de la recherche scientifique
45071 Orléans Cedex 2

