



HAL
open science

Étude de l'interaction des plasmas hors-équilibre et des détonation : réduction de la largeur des cellules et longueur de transition.

Mhedine Ali Cherif

► **To cite this version:**

Mhedine Ali Cherif. Étude de l'interaction des plasmas hors-équilibre et des détonation : réduction de la largeur des cellules et longueur de transition.. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Institut Polytechnique de Paris, 2021. Français. NNT : 2021IPPAX097 . tel-03534426

HAL Id: tel-03534426

<https://theses.hal.science/tel-03534426>

Submitted on 19 Jan 2022

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Étude de l'interaction des plasmas hors-équilibre et des détonations : réduction de la largeur des cellules et longueur de transition

Thèse de doctorat de l'Institut Polytechnique de Paris
préparée à Ecole Polytechnique

École doctorale n°626 Institut Polytechnique de Paris (IP Paris)
Spécialité de doctorat: Optique, laser et plasma

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 30/11/2021, par

Mhedine Ali Chérif

Composition du Jury :

Laurent Catoire Professeur, ENSTA ParisTech, UCP	Président
Armelle Cessou Directrice de Recherche, Université de Rouen, Coria	Rapporteur
Matei Radulescu Professeur, Université d'Ottawa	Rapporteur
Deanna Lacoste Professeur, KAUST	Examineur
Guillaume Vanhove Maitre de conférences, Université de Lille, PC2A	Examineur
Svetlana Starikovskaia Directrice de recherche, Institut Polytechnique, LPP	Directeur de thèse
Pierre Vidal Chargé de recherche, ENSMA, Pprime	Co-Directeur de thèse
Hervy Franck Responsable Innovation, DGA	Invité

NNT : 2021IPPAX097

Thèse de doctorat



Remerciements

Je tiens à remercier ma directrice de thèse Mme Svetlana Starikovskaia pour m'avoir accueilli dans son équipe pour de nombreuses années et m'avoir fait confiance pour mener cette thèse.

Je tiens à remercier mon co-directeur de thèse M. Pierre Vidal pour les enseignements qu'il m'a apportés en combustion et détonique. Je le remercie également pour sa disponibilité et son soutien.

Je remercie Mme Dominique Fontaine de m'avoir accueilli comme doctorant dans le Laboratoire de Physique des Plasmas et M. Karl Joulain à l'institut Pprime.

Je remercie M. Cyril Drag, Mme Anne Bourdon pour leur gestion de l'équipe Plasma Froid et leur soutien apporté aux doctorants.

Je remercie Mme Cherifa Ighoud, Mme Marie Cannelle Eysseric, M. Edouard Bouchet, Mme Marilyne Bazin et Mme Catherine Jegu pour leur disponibilité et leur professionnalisme.

Je remercie M. Laurent Catoire pour les discussions scientifiques et son partage de connaissance en chimie de la combustion.

Je remercie M. Matei Radulescu et Mme Armelle Cessou d'avoir accepté de juger ce travail. Je remercie également Mme Deanna Lacoste, M. Laurent Catoire et M. Guillaume Vanhove de participer à son évaluation.

Je remercie MM. Pascal Pariset, Alain Claverie, Laurick Prouteau, Bruno Dufour et Garrett Curley pour leur expertise technique et leur aide pour mener à bien ce travail expérimental.

Je remercie la Direction Générale de l'Armement pour le financement de ma thèse et du projet à plus grand échelle d'interaction plasma-détonation (convention EP-DGA N2790). En particulier, je tiens à remercier M. Frank Hervy pour avoir assuré un suivi de ma thèse.

Je remercie également l'ensemble du personnel, permanents et doctorants du LPP et de l'institut PPrime pour avoir constitué un environnement de travail très sain et agréable. En particulier, mes camarades de bureau Mme Carolina Garcia et M. Emanuele Cazzola.

Je remercie chaleureusement ma famille pour m'avoir soutenu du début à la fin de cette thèse.

Résumé

La thèse présente une étude de l'interaction entre les plasmas froids nanosecondes et les ondes de combustion en vue d'améliorer la détonabilité de mélanges gazeux. La combustion assistée par plasma suscite un grand intérêt dû aux effets promoteurs des plasmas sur la réaction de combustion. On veut démontrer des effets similaires sur la dynamique des déflagrations et détonations. Les objectifs principaux sont d'initier une détonation par processus de transition déflagration-détonation (TDD) et d'améliorer la propagation de la détonation dans des conditions défavorables par l'aide de plasma. La détonabilité du mélange est le principal paramètre de l'étude. Elle peut être définie de deux manières. La première est la vitesse à laquelle une détonation est établie à partir d'une flamme, et est liée à la longueur de TDD. La seconde est la capacité pour une détonation à se propager dans un tube, cette dernière est liée à la largeur des cellules de détonation caractérisant l'instabilité intrinsèque de la zone de réaction. Une réduction de ces longueurs caractéristiques traduit une augmentation de la détonabilité du mélange pour des conditions données. Deux systèmes d'électrodes ont été conçus afin d'augmenter la détonabilité selon ses deux définitions. Dans le premier cas, le but est de fournir assez d'énergie pour que la décharge déclenche le processus de TDD. Une électrode multicanaux capable d'allumer le mélange en plusieurs points avec une énergie déposée jusqu'à 1 eV/particule a été conçue. La combinaison des effets de dissociation du mélange, de capillarité et de chauffage du gaz génère une flamme très turbulente dès ses premiers instants qui évolue vers une détonation CJ plus rapidement (temps et distance) qu'une flamme issue d'une bougie d'allumage pour les mêmes conditions (dans $\text{H}_2 : \text{O}_2$ aux pressions 200 mbar à 800 mbar). Dans le second cas, le but est de changer l'état initial devant le front de détonation. Les difficultés sont multiples : la synchronisation est rendue difficile par les échelles de temps caractéristiques très différentes (nanoseconde vs microseconde) et on ne veut pas allumer le mélange par effet du plasma. Deux électrodes dans la configuration plan-plan, séparées de 5 cm et longues 37 cm, produisant une décharge à basse énergie déposée $2 \cdot 10^{-3}$ eV/particule ont été conçues. L'application de plasma devant un front de détonation réduit la largeur des cellules de détonation autour d'un facteur 2 dans les mélanges $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar}$, $\text{H}_2 : \text{O}_2$, $\text{CH}_4 : \text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar}$ et $\text{CH}_4 : \text{O}_2 : \text{AR}$ pour des pressions allant de 100 à 200 mbar. Une étude numérique de l'effet de

la predissociation de l'état initial sur les profils ZND de la détonation et le temps d'induction a été effectuée. Une corrélation forte est observée entre les résultats expérimentaux de réduction de la taille des cellules et la réduction des longueurs d'induction dans le modèle ZND associé. Une causalité entre l'action du plasma, le temps d'induction et l'augmentation de la détonabilité est démontrée. Cette étude approfondit la compréhension du rôle des plasmas nanosecondes couplés aux ondes de combustion.

Mots clés : Plasma nanoseconde, détonation, déflagration, détonabilité, temps d'induction chimique.

Summary

This thesis presents a study of the interaction between nanosecond non-equilibrium plasma and combustion waves in gaseous mixtures. Plasma assisted ignition and combustion applications have been well-studied for their favourable effects of plasma on combustion reactions. This work aims to demonstrate similar effects on the dynamics of deflagration and detonation waves. The focus was directed towards initiating detonation through a deflagration-to-detonation process (DDT) and sustaining detonation in unfavorable conditions by the use of plasma. The detonability of the mixture was the main parameter of the study. It can be defined in two ways. The first is the speed at which a detonation wave is established from a flame, and is related to the length of the deflagration to detonation transition. The second is the capacity for a detonation wave to propagate under specific conditions of confinement, and is linked to the size of the detonation cell characterizing the intrinsic instability of the reaction zone. A reduction of these characteristic lengths indicates an increase of the detonability of the mixture. Two discharge setups were designed to investigate any enhancements in detonability based on these two definitions. In the first case, the goal was to provide enough energy to initiate the DDT process only by the discharge action. A multichannel nanosecond discharge capable of igniting the mixture at several points with a deposited energy of up to 1 eV/particle was designed. The combined discharge effects of dissociation of the mixture, geometry of the electrodes and thermal heating leads to a turbulent deflagration front that transitions to CJ detonation over shorter distances and times than a flame from a classical spark plug for the same conditions (in $\text{H}_2 : \text{O}_2$ mixtures and for pressures between 200 mbar and 800 mbar). In the second case, the goal was to change the initial state ahead of a detonation front. The difficulties of this experiment are that : two fields of physics with different characteristic timescales are involved (nanoseconds for the discharge and microseconds for the detonation propagation), and any thermal effects of the discharge were to be avoided. Thus, a high-volume 5 cm gap plane-to-plane nanosecond discharge with 370 mm long electrodes and low deposited energy up to $2 \cdot 10^{-3}$ eV/particle was designed. The application of a nanosecond plasma in front of an established detonation front decreases the detonation cell width by a factor 2 in $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar}$, $\text{H}_2 : \text{O}_2$, $\text{CH}_4 : \text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar}$ and $\text{CH}_4 : \text{O}_2 : \text{Ar}$ mixtures for an initial pressure bet-

ween 100 and 200 mbar. A numerical study on the effect of predissociation of the initial state on the detonation ZND profiles and the induction time was made. An important correlation is observed between the experimental results obtained in reducing the detonation cell size and the reduction in induction time predicted by the numerical simulations. A causality between plasma action, induction time and detonability is also demonstrated. This study improves the understanding of the role of nanosecond plasma in enhancing combustion waves. It also underlines the importance of proper coupling between plasma setups and detonation phenomenon.

Keywords : Nanosecond plasma, detonation, deflagration, detonability, chemical induction time.

Tables des matières

Tables des matières	ix
Liste des figures	xvii
Liste des tableaux	xix
1 Introduction	1
1.1 Revue de littérature	2
1.1.1 Le plasma et la combustion	2
1.1.2 La détonation pour la propulsion	8
1.1.3 Plasma pour l'amélioration de la détonation	13
1.2 Formulation du problème	19
1.3 Plan du mémoire	20
2 Détonation, déflagration, détonabilité	21
2.1 Détonation	22
2.1.1 Loi de bilan	23
2.1.2 Modèle Chapman-Jouguet	27
2.1.3 Modèle Zel'dovich-Von Neuman-Döring	29
2.1.4 Réalité expérimentale : la structure cellulaire	31
2.2 Déflagration	32
2.2.1 Modèle de propagation laminaire de la déflagration	33
2.2.2 Mécanismes d'accélération de la flamme	35
2.2.3 Transition déflagration-détonation	36
2.3 Détonabilité	37
2.3.1 La largeur moyenne des cellules de détonation	37
2.3.2 La longueur de transition déflagration-détonation	38
3 Plasma nanoseconde	41
3.1 Propriétés physiques des plasmas	41
3.1.1 Gaz faiblement ionisé : les électrons, acteurs de la chimie	41
3.1.2 Mobilité et diffusion électronique	43

3.1.3	Énergie des électrons dans un plasma	45
3.2	Fonction de distribution des électrons	47
3.2.1	Equation de Boltzmann et FDE	47
3.2.2	Termes de collisions	49
3.2.3	FDE à l'équilibre et hors équilibre thermodynamique	50
3.3	Production d'espèces chargées et d'un milieu excité	51
3.3.1	Distribution de l'énergie	51
3.3.2	Processus d'ionisation	52
3.3.3	Oxygène promoteur des réactions de combustion	53
4	Cinétiques chimiques et modélisations numériques	55
4.1	Étude 0D de décharge nanoseconde hors équilibre	56
4.1.1	Outils numériques	56
4.1.2	Schéma cinétique	58
4.1.3	Validité du schéma	59
4.1.4	Implémentation des résultats dans un code ZND	65
5	Réduction des cellules de détonation	67
5.1	Dispositif expérimental	68
5.1.1	Tube à détonation	69
5.1.2	Chambre de mesure	69
5.2	Méetrologie	70
5.2.1	Capteurs de pression	70
5.2.2	Enregistrement sur plaque recouverte d'un dépôt de carbone	72
5.2.3	Visualisation	73
5.2.4	Mesures de la tension, du courant et de l'énergie déposée.	74
5.2.5	Protocole expérimental et synchronisation	75
5.3	Résultats	79
5.3.1	O ₂ - CH ₄ - Ar (60%)	79
5.3.2	O ₂ - CH ₄ - H ₂ - Ar(60%)	84
5.3.3	O ₂ - H ₂ - Ar(40%)	88
5.3.4	O ₂ - H ₂	97
6	Réduction de la longueur de TDD	101
6.1	Dispositif expérimental	101
6.1.1	Tube à déflagration	102
6.1.2	Électrode plasma	103
6.2	Méetrologie	107
6.2.1	Strioscopie - ombroscopie	108
6.3	Résultats	109
6.3.1	Tube à déflagration opaque	109
6.3.2	Tube à déflagration avec hublots	112

7 Réduction du temps d'induction	119
7.1 Effets du plasma sur la détonabilité	120
7.1.1 Détonabilité et largeur des cellules	120
7.1.2 Détonabilité et TDD	124
7.2 Réduction du temps d'induction chimique	130
7.2.1 Création d'un milieu excité par le plasma	130
7.2.2 Effets thermiques potentiels	138
7.2.3 Profils ZND et temps d'induction	142
8 Conclusion	147
Bibliographie	151

Liste des figures

1.1	Utilisation d'une décharge micro-onde pour assister la combustion du propane dans un écoulement supersonique [1, 2]. a) Principe de fonctionnement de l'expérience : SS stream = écoulement d'air supersonique ; MW discharge = décharge micro-onde ; Fuel = propane ; P_{stag} et T_{stag} = pression et température de stagnation. b) Résultats pour des écoulements faible et fort.	3
1.2	Contrôle d'une flamme propane-air par une décharge nanoseconde de surface pour un brûleur [3]. a) Vitesse de la flamme à la sortir du brûleur avec différents paramètres de décharge et sans décharge. b) Spectre des espèces dans : A = la décharge ; B = la flamme et C= la flamme assistée par la décharge. c) Emission de la molécule OH dans la flamme avec et sans plasma.	4
1.3	Temps d'allumage mesuré vs. température du gaz pour un mélange $H_2 : O_2 : N_2 : Ar = 6 : 3 : 11 : 80$ [4]. 1 = allumage classique ; 2 = allumage assisté par plasma.	5
1.4	Température d'allumage pour divers mélanges en tube à choc [5]. Auto = sans plasma ; discharge = avec un plasma nanoseconde. . .	6
1.5	Évolution de la température d'un mélange éthylène-air stoechiométrique pour un allumage par une décharge nanoseconde pulsée (courbe rouge) et pour un allumage thermique (courbe noire et bleue) [6].	6
1.6	Calcul de l'évolution de la température et de la densité de certains composants d'un mélange H_2 :air stoechimétrique à 1 atm et $T_0=900$ K et 1% de $O_2(a^1\Delta_g)$ [7, 8].	8
1.7	Temps d'allumage pour un mélange $C_5H_{12} : O_2$ stoechiométrique dilué dans 90% d'argon. Les données sont numériques et expérimentales pour un allumage classique et un allumage par plasma[9]. . .	9
1.8	a) Principe de fonctionnement d'un RDE [10]. b) Photographie d'un RDE en fonctionnement, l'image est intégrée sur plusieurs rotations [11].	10
1.9	Photographie d'un front de détonation se propageant à la sortie d'un canal sans injection tangente et avec injection tangente [12]. .	11

1.10	Simulation 3D des conditions expérimentale de [12] pour un mélange pré-mixé et une injection séparée du mélange [13].	11
1.11	Trois exemples de gradients de richesse utilisés dans [14] parallèlement à la propagation de l'onde de détonation.	12
1.12	la largeur des cellules de détonation dans les trois cas présentés en figure 1.11 [14].	12
1.13	Montage expérimental d'un tube à détonation de 39 mm de diamètre avec un système d'électrode sur le chemin de la flamme [15].	14
1.14	Vitesse de propagation de la flamme sans et avec une décharge nanoseconde répétitive de 100 impulsions [15].	14
1.15	Configuration numérique 2D d'un tube à détonation se 60 mm de largeur et 3000 mm de longueur avec 6 à 7 obstacles [16]	15
1.16	Calcul numérique : taille de la cellule de détonation et vitesse du front de flamme pour des valeurs de dissociation de l'oxygène [16].	16
1.17	Photographies en strioscopie de l'allumage pour le cas de l'écoulement dans un mélange methane-air pour 5 impulsions de 22 kV à 2 kHz et 40 kHz [17].	16
1.18	Temps d'allumage vs richesse pour différents types de décharges dans un mélange avgas-air [17].	17
1.19	Schéma d'un concept d'électrodes multicanaux et image ICCD correspondant à l'émission dans l'air à 0.3 atm pour une décharge de 70 kV [18].	18
1.20	Vitesse de flamme pour des mélanges d'hydrocarbures avec plasma (symboles vides) et sans plasma (symboles pleins) [18].	18
2.1	Représentation des droites de Rayleigh (\mathcal{R}) et des polaires d'Hugoniot (\mathcal{H}) inerte et totalement réactive dans le plan (P,v). L'état initial est représenté dans la partie inférieure droite. Les points F, f et CJ correspondent aux solutions forte, faible et Chapman-Jouguet dans le cas où la discontinuité est totalement réactive.	28
2.2	Schéma de la structure ZND de la détonation plane [19].	29
2.3	Schéma de la zone de réaction dans le modèle ZND pour une détonation sonique et profils qualitatifs de la pression et la température correspondants.	31
2.4	Structure idéale 2D d'une cellule de détonation [20]. Pour une détonation multicellulaire on compte plusieurs cellules par section. . .	33
2.5	Schéma représentant la propagation d'une flamme dans le cas d'un tube fermé. L'état initial noté 0 est modifié par les ondes de compressions formées par le front de flamme. En général, la flamme et les ondes de compression se déplacent à des vitesses différentes. . .	34
2.6	Image en strioscopie pour une flamme tulipe se propageant vers la gauche dans un mélange $H_2 : O_2$ stoechiométrique à 600 mbar dans un tube de section $4cm^2$	36

3.1	Différence qualitative entre une distribution de Maxwell et de Druyvesteyn pour les électrons. [21]	51
3.2	Répartition de l'énergie dans les différents processus électroniques en fonction de du champ électrique réduit appliqué. [22]	52
3.3	Analyse numérique des différents chemins réactionnels pour a) la consommation de CH ₄ (en rouge le chemin dominant) b) la formation de OH c) la formation de O. [23]	54
4.1	Schéma du principe de fonctionnement de ZDPlasKin.	57
4.2	Section efficace de réaction pour O ₂ . Les collisions élastiques ainsi que les réactions utilisées dans le codes sont représentées en symboles pleins. 1 collision élastique; 2,3 vib; 4 excitation; 5,6 dissociation; 7 ionisation; 8 ionisation dissociative [24].	60
4.3	Section efficace de réaction pour Ar. Les collisions élastiques ainsi que les réactions utilisées dans le codes sont représentées en symboles pleins. 1 collision élastique; 2 excitation; 3 ionisation [25].	61
4.4	Section efficace de réaction pour H ₂ . Les collisions élastiques ainsi que les réactions utilisées dans le codes sont représentées en symboles pleins. 1 = collision élastique; 2,3 = vib; 4,5 = excitation; 6,7 = dissociation; 8 ionisation [26].	62
4.5	Champ électrique réduit (bleu) et courant(rouge) obtenus par BCS pour H ₂ :O ₂ :Ar à 150 mbar.	63
4.6	Puissance (vert), courant expérimental (rouge-trait plein) obtenus par BCS et courant calculé (rouge-pointillés) pour H ₂ :O ₂ :Ar à 150 mbar.	64
4.7	courant expérimental (rouge-trait plein) obtenu par BCS et courant calculé (rouge-pointillés) pour H ₂ :O ₂ à 150 mbar.	65
5.1	Photographie du banc expérimental.	68
5.2	Schéma des différentes géométries d'électrodes utilisées dans les expériences. La partie grise représente la face en acier inoxydable vissée à la chambre, l'isolant PEEK est représenté en orange et les électrodes en jaune : a) configuration circulaire, b) configuration rectangulaire courte, c) configuration rectangulaire longue.	70
5.3	Schéma de la disposition des capteurs de pression dans le tube.	72
5.4	Méthode expérimentale de mesure de la largeur des cellules de détonation à la position z.	73
5.5	Exemple d'un signal de haute-tension obtenu par back current shunt.	75
5.6	Schéma du banc expérimental et du système de synchronisation.	76
5.7	Configurations de la décharge : a) "slow rise", b) "burst".	77
5.8	Schema de l'expérience pour le régime "slow rise" les quatre figures présentent la synchronisation des décharges et de la propagation du front de détonation dans la chambre de mesure.	78

5.9	Largeur des cellules vs pression initiale pour le mélange stoechiométrique $O_2 : CH_4$ dilué dans 60% d'Argon.	80
5.10	Images ICCD (gate=100ns) de la décharge dans le mélange stoechiométrique $O_2 : CH_4$ dilué dans 60% d'Argon à 180 mbar pour plusieurs profondeurs de champ.	80
5.11	Représentation de la "zone plasma" marquant l'interaction entre le front de détonation et le gaz dont la composition est modifiée par le plasma. a) Le plasma est allumé avant que le front atteigne l'électrode, b) le plasma est allumé quand le front est à la position z.	81
5.12	Plaque obtenue à 180 mbar, la "zone plasma" ainsi que des zones en début (1) et fin (2) d'électrode sont indiquées.	82
5.13	Zooms sur une plaque obtenue à 180 mbar. 1 : Début de l'interaction ; 2 : fin de l'interaction. Les cellules sont marquées par des tirets blancs.	83
5.14	Modification de la régularité des cellules de détonation dans un mélange $O_2 - CH_4 - Ar(60\%)$ par ajout d'hydrogène.	84
5.15	Représentation des contraintes liées à la pression pour le mélange $O_2 - CH_4 - H_2 - Ar(60\%)$	85
5.16	Morphologie de la décharge pour le mélange $O_2 - CH_4 - H_2 - Ar(60\%)$ à 120 mbar : a) première impulsion ; b) deuxième impulsion.	86
5.17	Plaques obtenues à 120 mbar. a) Plaque de référence ; b) plaque plasma avec indications. La "zone plasma" et des zone au début (1) et à la fin (2) de l'électrode sont indiquées.	87
5.18	Zooms d'une plaque obtenue à 120 mbar. 1 : début de l'interaction ; 2 : fin de l'interaction. Les cellules sont marquées par des tirets blancs.	88
5.19	Largeur des cellules vs pression initiale pour le mélange stoechiométrique $O_2 : H_2$ dilué dans 40% d'Argon.	89
5.20	Images ICCD du plasma pour $O_2 : H_2$ dilué dans 40% d'Argon dans la configuration burst à 150 mbar. a) Première impulsion (150 ns gate) ; b) deuxième impulsion ; c) troisième impulsion ; d) décharge entière (500 ns gate).	91
5.21	Plaque obtenue à 150 mbar. a) Plaque de référence ; b) et c) plaque plasma avec indications. Les "zones plasma" sont indiquée ainsi qu'une zone sur la plaque de référence (1) et sur la plaque plasma (2).	93
5.22	Zoom et schéma des plaques pour les régions de la plaque de référence (1) et la plaque plasma (2) pour le mélange $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar.	94
5.23	Images ICCD du plasma pour $O_2 : H_2$ dilué dans 40% d'Argon dans la configuration burst à 200 mbar. a) Première impulsion (150 ns gate) ; b) deuxième impulsion ; c) troisième impulsion ; d) décharge entière (500 ns gate).	95
5.24	Plaque obtenue à 200 mbar. la "zone plasma" ainsi que des zones en dehors (1) et dans la zone (2) sont indiquées.	96

5.25	Largeur des cellules vs pression initiale pour le mélange stoechiométrique $O_2 : H_2$	97
5.26	Plaque obtenue à 120 mbar dans $O_2 - H_2$. a) Plaque de référence; b) plaque plasma.	98
5.27	Zoom et schéma des plaques pour les régions de la plaque de référence (1) et la plaque plasma (2) pour le mélange $H_2 : O_2$ à 120 mbar.	99
6.1	Photographie du banc expérimental.	102
6.2	Schéma du tube déflagration. La flèche représente le sens de propagation de la flamme, les tronçons sont numérotés de 1 à 7.	102
6.3	Coupe du système d'électrode inséré dans le tube.	103
6.4	Vue éclatée du système d'électrode : 1 = masse métallique; 2 = isolant en plexiglas; 3 = haute tension -pinules.	104
6.5	Dispositif d'électrode avec partie diélectrique centrale amovible permettant de modifier le nombres de canaux disponibles pour la décharge.	105
6.6	Schéma des trois configurations utilisées pour étudier le comportement du plasma : 1 = 52 canaux/52 pinules; 2 = 52 canaux/4 pinules; 3 = 4 canaux/4 pinules	105
6.7	Oscillogramme de la décharge pour une amplitude de 22,5 kV et aux pression 3, 50 et 100 mbar. Le comportement du plasma est qualitativement identique.	106
6.8	Image ICCD de la décharge pour une amplitude de 22,5 kV et à la pression de 50 mbar pour : a = image de référence; b = la configuration 1; c = la configuration 2. Temps d'exposition : 20 ns; gain=1/255	107
6.9	Image ICCD de la décharge pour une amplitude de 22,5 kV avec la configuration 3 pour : a = image de référence; b = 100 mbar; c = 3 mbar. Temps d'exposition : 20 ns; gain=1/255	107
6.10	Schéma du banc expérimental et du dispositif de striescopie.	108
6.11	Enregistrements sur plaques de la transition déflagration-détonation, gauche, et de la propagation de la détonation CJ, droite, à la pression de 200 mbar pour un allumage plasma.	109
6.12	Enregistrements sur plaques de la déflagration à la pression de 1400 mbar pour un allumage plasma.	110
6.13	Enregistrements sur plaques de la transition déflagration-détonation à la pression de 1400 mbar pour un allumage plasma.	110
6.14	Longueur de TDD en fonction de la pression initiale pour le plasma et la bougie.	111
6.15	Enregistrement en striescopie de l'allumage de la flamme par plasma à 600 mbar dans $H_2 : O_2$. Le temps $t=0$ représente la fin de la décharge.	113

6.16	Enregistrement en strioscopie de l'allumage de la flamme par bougie à 600 mbar dans $H_2 : O_2$. Le temps $t=0$ représente la fin de l'étincelle.	113
6.17	Enregistrements en strioscopie de la flamme issue de la bougie à 600 mbar dans $H_2 : O_2$. Le temps $t=0$ représente la fin de l'étincelle.	114
6.18	Enregistrement en strioscopie de la flamme par issue du plasma à 600 mbar dans $H_2 : O_2$. Le temps $t=0$ représente la fin de la décharge.	115
6.19	Enregistrement en strioscopie de l'onde issue de la bougie (gauche) et du plasma (droite) à 600 mbar dans $H_2 : O_2$.	116
6.20	Enregistrement en strioscopie de l'onde issue du plasma à 600 et 650 mbar dans $H_2 : O_2$.	116
6.21	Enregistrements en strioscopie de l'onde issue de la bougie entre 650 et 800 mbar dans $H_2 : O_2$.	117
7.1	Méthode de mesure du champ électrique réduit et énergie déposée pour la configuration : 2 impulsions -23 et -17 kV ; $H_2 : O_2 : CH_4 : Ar$; 180 mbar.	121
7.2	Champ électrique réduit et énergie déposée pour la configuration : 2 impulsions -23 et -17 kV ; $H_2 : O_2 : CH_4 : Ar$; 180 mbar.	121
7.3	Champ électrique réduit et énergie déposée pour la configuration : 3 impulsions -25 kV chacune ; $H_2 : O_2 : Ar$; 150 mbar.	122
7.4	Champ électrique réduit et énergie déposée pour la configuration : 3 impulsions -25 kV chacune ; $H_2 : O_2$; 150 mbar.	122
7.5	Champ électrique réduit et énergie déposée pour la configuration : 3 impulsions -25 kV chacune ; $H_2 : O_2$; 120 mbar.	123
7.6	Facteur de réduction de la largeur des cellules avec action du plasma (λ_p) et sans plasma (λ_{np}) pour différents mélanges en fonction de la pression.	124
7.7	Courant et énergie déposée pour une impulsion dans $H_2 : O_2$ stœchiométrique.	125
7.8	Nombre de canaux allumés en fonction de la pression pour 1 impulsion par chimiluminescence OH^* (308 nm) dans $H_2 : O_2$. Pour : a) référence ; b) 250 mbar ; c) 350 mbar ; d) 450 mbar. Gate 30 ns, retard 200 ns.	126
7.9	Énergie déposée par particule pour une impulsion dans $H_2 : O_2$.	127
7.10	Émission en chimiluminescence OH^* (308 nm) de la fin de la décharge et son afterglow dans $H_2 : O_2$. a) référence ; b) 800 mbar, 30 ns gate, retard 900 ns.	128
7.11	Émission en chimiluminescence OH^* (308 nm) de la fin de la décharge et son afterglow dans $H_2 : O_2$. a) 600 mbar, 30 ns gate, retard 900 ns ; b) 600 mbar, 30 ns gate, retard 2 μs .	128
7.12	Longueur de TDD estimée en fonction de la pression initiale pour le plasma et pour la bougie.	129

7.13 FDE pour $H_2 : O_2$ et $H_2 : O_2 : Ar(40\%)$ à 150 et 200 Td, l'énergie moyenne des électrons est indiquée.	130
7.14 FDE pour $H_2 : O_2$ et Ar à 150 et 200 Td, l'énergie moyenne des électrons est indiquée.	131
7.15 Energy loss fraction pour $H_2 : O_2 : Ar$	132
7.16 Energy loss fraction pour $H_2 : O_2$	132
7.17 Évolutions des espèces pour les 3 impulsions dans $H_2 : O_2$ à 120 mbar.	133
7.18 Évolutions des espèces pour les 3 impulsions dans $H_2 : O_2$ à 150 mbar.	134
7.19 Évolutions des espèces pour les 3 impulsions dans $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar.	135
7.20 Évolution de $[O]/[O_2]$ pour les 3 impulsions dans $H_2 : O_2$ à 120 mbar.	136
7.21 Évolution de $[O]/[O_2]$ pour les 3 impulsions dans $H_2 : O_2$ à 150 mbar.	136
7.22 Évolution de $[O]/[O_2]$ pour les 3 impulsions dans $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar.	137
7.23 Relaxation V-T pour $H_2 : O_2$ à 100 mbar.	139
7.24 Calculs de l'effet de la température sur λ pour plusieurs mélanges à pression constante (traits pleins) et à volume constant (pointillés) [19].	140
7.25 Effet d'augmentations de température et de pression initiales à volume constant sur les profils ZND et λ	141
7.26 Profils ZND de pression et température pour $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar.	142
7.27 Profils ZND de pression et temperature pour $H_2 : O_2$ à 120 mbar.	143
7.28 Dérivée temporelle de la température sans plasma pour $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar.	144
7.29 Dérivée temporelle de la température avec plasma pour $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar.	144
7.30 Dérivée temporelle de la température sans plasma pour $H_2 : O_2$ à 120 mbar.	145
7.31 Dérivée temporelle de la température avec plasma pour $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar.	145

Liste des tableaux

3.1	Caractéristiques tirées de la littérature pour des plasmas hors équilibre et à l'équilibre.	42
4.1	Schéma cinétique utilisé pour modéliser la création d'espèce actives dans une décharge H_2 : O_2 : Ar. La température électronique T_e est en Kelvin.	58

Chapitre 1

Introduction

L'étude conjointe des ondes de combustion et des plasmas a été initialement motivée par la propulsion. Très vite le propos est devenu fondamental et la communauté s'est intéressée à la réduction du temps d'allumage de mélanges combustibles par plasma. Récemment, les besoins pour des moteurs plus performants ont dirigé l'attention vers la détonation et de nouvelles difficultés ont émergé. Une solution envisagée est l'utilisation de plasmas nanosecondes. Leurs propriétés physiques permettent une dissociation efficace du milieu et améliore la détonabilité. La détonabilité peut être définie comme (1) la facilité pour la détonation à se propager dans des conditions données de confinement et (2) la rapidité avec laquelle la détonation s'établit à partir d'une flamme. La première définition est liée à la taille de la cellule de détonation caractérisant l'instabilité intrinsèque de sa zone de réaction établie. La deuxième est liée à la longueur de transition déflagration-détonation.

Sommaire

1.1	Revue de littérature	2
1.1.1	Le plasma et la combustion	2
1.1.2	La détonation pour la propulsion	8
1.1.3	Plasma pour l'amélioration de la détonation	13
1.2	Formulation du problème	19
1.3	Plan du mémoire	20

1.1 Revue de littérature

1.1.1 Le plasma et la combustion

Le premier moteur à combustion interne a été développé par Étienne Lenoir en 1860. Le moteur était composé d'une bougie d'allumage, produisant un plasma à l'équilibre thermique et utilisait du gaz de houille comme carburant. La grande efficacité de ce moteur à combustion interne a répandu son utilisation dans l'industrie depuis plus de 150 ans. Aujourd'hui, la grande majorité des véhicules faisant intervenir la combustion sont équipés de bougie d'allumage produisant des plasmas à l'équilibre thermique.

Les récents progrès dans l'aviation supersonique ont amené une série de problématiques qui ne peuvent être résolues par l'utilisation de bougie d'allumage standard. En particulier pour les statoréacteurs à combustion supersonique (scramjet), les conditions extrêmes de fonctionnement rendent difficile le mélange air-carburant, l'allumage, la stabilisation de la flamme et le contrôle de la température [27, 28]. Pour des nombres de Mach très élevés, le temps de résidence du fluide dans le moteur est court (0,5 ms) inférieur au temps typique d'allumage des carburants utilisés en propulsion (entre 1 et 2 ms) [29]. On rencontre le même problème lorsque la combustion est établie mais le temps de résidence du fluide dans le moteur est inférieur au temps nécessaire pour réaliser une réaction complète. On observe alors une perte d'énergie conséquente.

Un contrôle de l'allumage et de la combustion dans les moteurs s'est avéré nécessaire. La grande efficacité des plasmas pour améliorer la chimie a dirigé l'attention de la communauté vers l'étude de l'allumage et la combustion assistés par plasma. Plusieurs mécanismes entrent en jeu. Les effets thermiques comprennent le chauffage par effet Joule et la création de turbulences et de perturbations par chauffage inhomogène du gaz. Les effets non thermiques comprennent le vent ionique, l'excitation, la dissociation et l'ionisation du gaz par impact électronique, la création de gradients de concentration par les phénomènes de dérive électronique et ionique. Ces mécanismes combinés améliorent la combustion dans des conditions extrêmes de mélanges pauvres, écoulement à nombre de Mach élevé, d'allumage à basse pression.

L'étude de ce sujet depuis les 30 dernières années a donné lieu à plusieurs revues de littérature :

La première datant de 2006 [30] propose un état de l'art des travaux expérimentaux pour l'amélioration de l'allumage et de la combustion en utilisant des plasmas hors-équilibre. Une comparaison avec une initiation thermique de la combustion

est proposée. Trois types d'expériences sont répertoriés : l'allumage assisté par des décharges micro-ondes dans des écoulements à nombre de Mach élevé, l'allumage assisté par différents types de décharges pour des écoulements à nombre de Mach faible et les décharges dans des expériences de tube à choc. Les informations expérimentales sur la température du gaz et les densités d'espèces intermédiaires permettent d'établir les bases de l'étude cinétique des phénomènes. L'auteur exprime la nécessité d'étudier l'effet de chaque décharge car elles provoquent un impact différent sur la chimie de la combustion.

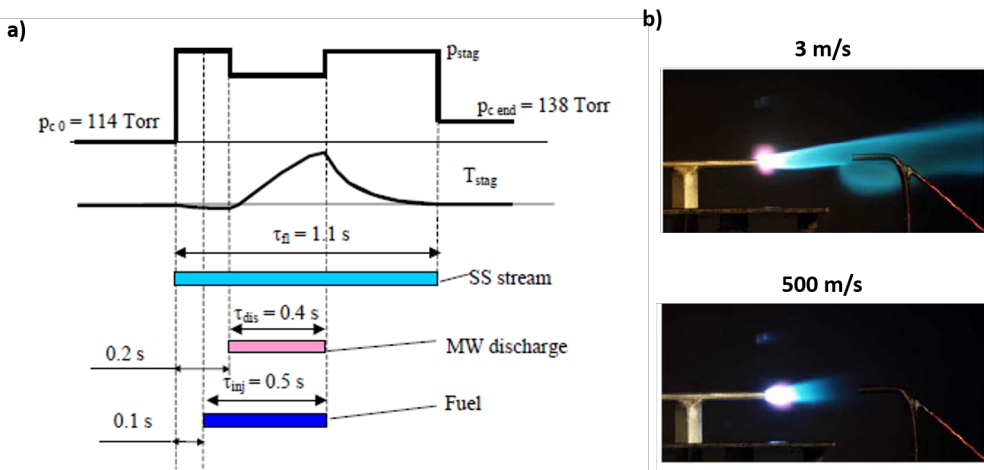


FIGURE 1.1 – Utilisation d'une décharge micro-ondes pour assister la combustion du propane dans un écoulement supersonique [1, 2]. a) Principe de fonctionnement de l'expérience : SS stream = écoulement d'air supersonique ; MW discharge = décharge micro-ondes ; Fuel = propane ; P_{stag} et T_{stag} = pression et température de stagnation. b) Résultats pour des écoulements faible et fort.

La figure 1.1 présente les travaux de la combustion assistée par décharge micro-ondes pour des mélanges à base de propane dans des écoulements supersoniques [1, 2]. Une décharge micro-ondes est initiée à la base de l'injection du propane dans un écoulement d'air supersonique. La décharge est maintenue pendant toute l'injection du carburant. Une flamme est observée à des vitesses d'écoulement allant jusqu'à 500 m/s (Mach=2). Les auteurs affirment qu'avec une masse de propane proche de la stoechiométrie et des vitesses d'écoulement jusqu'à 200 m/s la combustion est effectuée avec une efficacité jusqu'à 60% pour une puissance dépensée par la décharge de 200 W.

La figure 1.2 présente l'influence d'une décharge de surface nanoseconde pulsée à pression atmosphérique sur les caractéristiques d'une flamme pré-mélangée propane-air [3]. Il a été démontré expérimentalement que la vitesse de la flamme en

sortie du brûleur est augmentée par un facteur 2 avec le plasma. Une production efficace d'espèces excitées due au plasma a été observée par spectroscopie. Enfin le profil de l'émission de la molécule OH le long de la flamme est observé. Les mesures permettent d'affirmer que l'oxygène atomique est le principal responsable de l'accélération de la flamme.

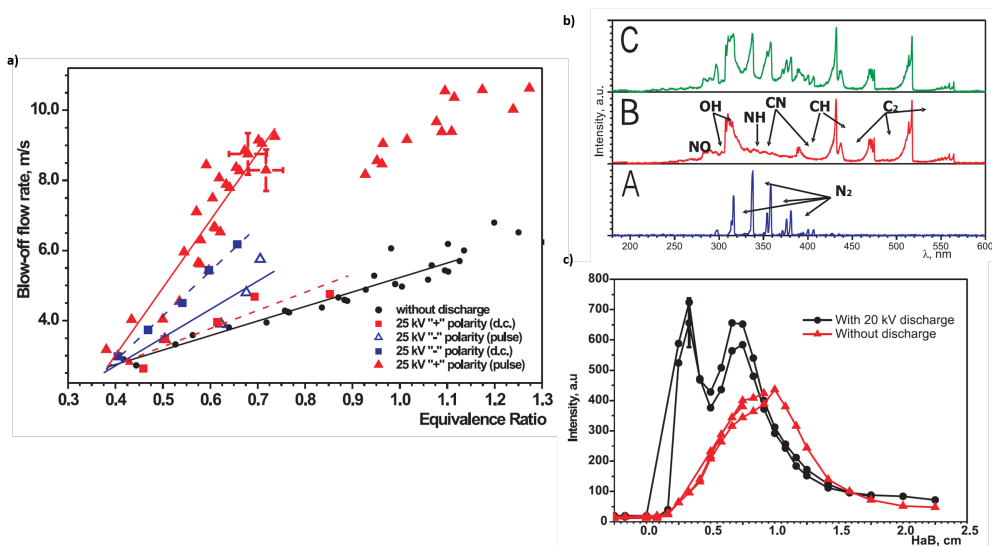


FIGURE 1.2 – Contrôle d'une flamme propane-air par une décharge nanoseconde de surface pour un brûleur [3]. a) Vitesse de la flamme à la sortie du brûleur avec différents paramètres de décharge et sans décharge. b) Spectre des espèces dans : A = la décharge ; B = la flamme et C= la flamme assistée par la décharge. c) Emission de la molécule OH dans la flamme avec et sans plasma.

La figure 1.3 présente un résultat d'une étude effectuée pour des mélanges à base de H₂ et CH₄ dans des tubes à choc [4]. L'utilisation d'un plasma nanoseconde pour la réduction du temps d'allumage a été étudiée numériquement et expérimentalement. Les paramètres électriques optimums de la décharge ont été étudiés en détail et les résultats pour le mélange H₂ :O₂ :N₂ :Ar=6 :3 :11 :80 sont présentés (figure 1.3). À haute température le temps d'allumage est réduit de deux ordres de grandeur de 100 μ s à 1 μ s.

L'utilisation de décharges nanosecondes pour l'allumage assisté par plasma a été suggérée en 1996 [31]. Une revue du travail de ce groupe a été publiée en 2009 [5]. Leurs travaux se concentrent sur l'utilisation de plasma nanoseconde dans des expériences de tubes à choc. Des simulations numériques de la combustion dans les tubes avec et sans plasma sont proposées. Les expériences correspondantes sont réalisées pour plusieurs mélanges avec des hydrocarbures allant de l'hydrogène

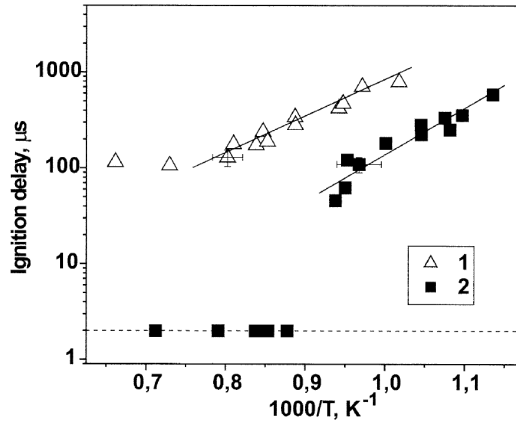


FIGURE 1.3 – Temps d’allumage mesuré vs. température du gaz pour un mélange $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{N}_2 : \text{Ar} = 6 : 3 : 11 : 80$ [4]. 1 = allumage classique ; 2 = allumage assisté par plasma.

au pentane. Ces travaux montrent qu’à haute température initiale, on observe une diminution du temps d’induction chimique de plusieurs ordres de grandeur qui s’explique par une dissociation du mélange par la décharge et son afterglow entraînant une importante production d’oxygène atomique. La table ci-dessous répertorie les mélanges étudiés 1.4. Pour la grande variété de mélanges étudiés on voit que l’allumage se produit à des températures en moyenne plus basses.

Une revue comparant les effets thermiques et non-thermiques dans les processus d’allumage assisté par plasma pour des écoulements contrôlés a également été publiée en 2009 [6]. Les auteurs étudient les effets d’une décharge nanoseconde répétitive (jusqu’à 1000 impulsions de 20 kV à des fréquences de 20 à 50 kHz) et d’une décharge RF produisant un arc thermique. Le paramètre d’étude est le temps d’allumage pour différentes vitesses d’écoulement. En comparant les résultats expérimentaux avec les modèles, les auteurs concluent que les réactions en chaîne de radicaux libres réduisent le temps d’induction chimique de deux ordres de grandeur et la température d’allumage de 300 K pour le plasma nanoseconde. En particulier, la figure 1.5 montre l’évolution de la température d’un mélange éthylène-air stoechiométrique pour un allumage par une décharge nanoseconde pulsée (courbe rouge) et pour un allumage thermique (courbe noire et bleue). Deux cas de figure sont illustrés. Pour un même temps d’allumage le plasma allume le mélange à plus basse température (940 K au lieu de 1240 K) et pour une même température, le plasma allume le mélange beaucoup plus tôt (6 msec au lieu de 0.6 sec).

No.	Mixture composition	T , K	
		auto	discharge
1	$\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{N}_2 : \text{Ar} = 6 : 3 : 11 : 80$	975–1510	880–1400
2	$\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar} = 12 : 6 : 82$	883–1390	830–1360
3	$\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{He} = 12 : 6 : 82$	–	750–920
4	$\text{CH}_4 : \text{O}_2 : \text{N}_2 : \text{Ar} = 1 : 4 : 15 : 80$	1610–2225	1100–1840
5	$\text{CH}_4 : \text{O}_2 : \text{N}_2 : \text{Ar} = 1 : 4 : 15 : 80$	–	1150–1920
6	$\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{N}_2 = 1 : 1 : 4$	840–1100	780–1100
7	$\text{CH}_4 : \text{O}_2 : \text{Ar} = 3 : 7 : 90$	1750–1970	1230–1720
8	$\text{C}_2\text{H}_6 : \text{O}_2 : \text{Ar} = 2 : 7 : 81$	1380–1700	1200–1550
9	$\text{C}_3\text{H}_8 : \text{O}_2 : \text{Ar} = 1 : 5 : 54$	1490–1850	1300–1535
10	$\text{C}_4\text{H}_{10} : \text{O}_2 : \text{Ar} = 2 : 13 : 135$	1400–1650	1180–1440
11	$\text{C}_5\text{H}_{12} : \text{O}_2 : \text{Ar} = 1 : 8 : 81$	1400–1600	1230–1550

FIGURE 1.4 – Température d’allumage pour divers mélanges en tube à choc [5]. Auto = sans plasma ; discharge = avec un plasma nanoseconde.

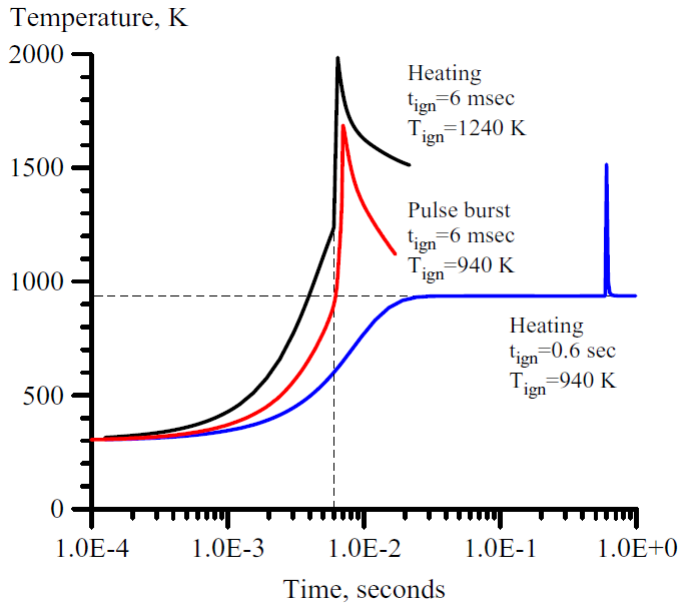


FIGURE 1.5 – Évolution de la température d’un mélange éthylène-air stoechiométrique pour un allumage par une décharge nanoseconde pulsée (courbe rouge) et pour un allumage thermique (courbe noire et bleue) [6].

Un ensemble d'articles [7, 8, 32, 33] propose un modèle cinétique de l'action de la décharge sur différent gaz. Les papiers s'appuient sur les données numériques et expérimentales obtenues par d'autres auteurs. Les principaux résultats comprennent :

- la création d'un modèle décrivant l'influence d'une décharge nanoseconde sur des mélanges H_2 :air [32]. Les processus dominants sont l'excitation, la dissociation et l'ionisation par impact électronique et les échanges de charge entre ions et molécules. Les calculs sont effectués pour plusieurs valeurs de champ électrique réduit. Pour des valeurs de champ fortes et à haute température, le temps d'induction est réduit de façon significative par la production d'atome par la décharge. Pour des températures basses, le processus dominant pour la réduction du temps d'induction est le chauffage du gaz par la recombinaison non radiative.
- L'étude de l'effet de la production du terme $O_2(a^1\Delta_g)$ de la molécule d'oxygène dans un mélange H_2 : O_2 [7, 8]. L'auteur affirme que l'état à faible valeur énergétique (0.98 eV) est facilement "quenché" et n'intervient pas directement dans les réactions en chaîne de la combustion. Par contre, une très faible densité relative d'oxygène atomique (jusqu'à 10^{-4}) influence grandement la cinétique de la réaction. Les décharges à champs électriques forts sont plus avantageuses.
- Enfin, la notion de "fast gas heating" et son importance dans les réactions de combustion est discutée dans [33].

La figure 1.6 présente des résultats de calculs de l'évolution de la température et de la densité de certains composants d'un mélange H_2 :air stoechiométrique à 1 atm et $T_0=900$ K. Pendant le processus d'allumage, la concentration en $O_2(a^1\Delta_g)$ est réduite de deux ordres de grandeur. Cette molécule réagit rapidement avec HO_2 qui est produit en abondance dans un mélange H_2 : O_2 .

Les revues [34, 35, 36, 23] proposent une analyse complète et compréhensive de l'état de l'art dans les domaines de l'allumage et de la combustion assistés par plasma. La revue [35] présente des résultats expérimentaux obtenus pour des écoulements supersoniques et des mélanges au repos. Une analyse de la fonction de distribution électronique et de la répartition de l'énergie pour différentes décharges est proposée. La revue [36] s'intéresse particulièrement à l'utilisation de plasma nanoseconde pour l'amélioration de l'allumage et de la combustion pour plusieurs conditions expérimentales.

La figure 1.7 montre le temps d'allumage pour un mélange C_5H_{12} : O_2 stoechiométrique dilué dans 90% d'argon [9]. Les données sont numériques et expérimentales pour un allumage classique et un allumage par plasma. L'effet de la décharge entraîne une réduction très importante de ce temps d'allumage et permet d'allumer les mélanges à plus basse température et densité. Un lien entre l'observation expérimentale de la réduction du temps d'allumage et la production consécutive d'espèces excitée par la décharge est proposé par le biais de simulations numériques. En conclusion, la chimie apportée par le plasma semble être le facteur clé dans ces

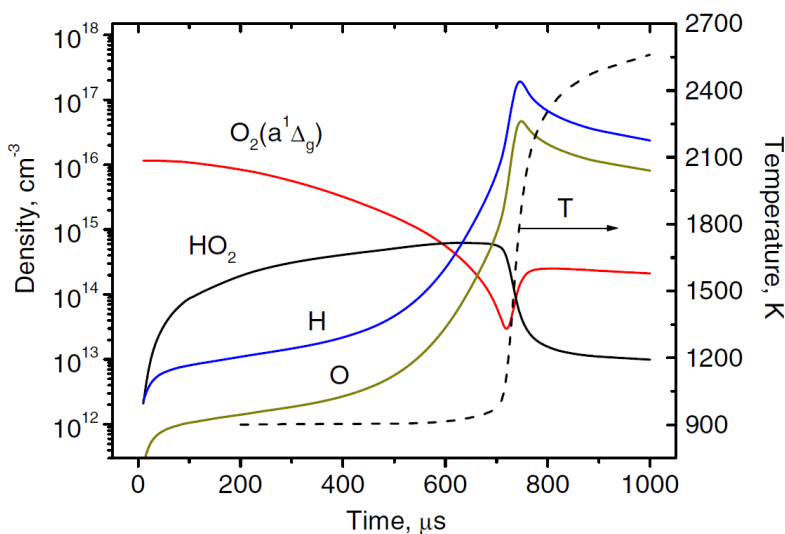


FIGURE 1.6 – Calcul de l'évolution de la température et de la densité de certains composants d'un mélange H₂ :air stoechiométrique à 1 atm et T₀=900 K et 1% de O₂(a¹Δ_g) [7, 8].

expériences.

Enfin, la revue [23] met l'accent sur la chimie et sur la métrologie moderne pour l'étude de la combustion assistée par plasma. Plusieurs types de décharge hors équilibre ont été étudiées, mais les décharges nanoseconde sont particulièrement populaires. En effet, ces décharges sont uniformes à pression modérée et elles produisent une quantité importante d'espèces excitées à des échelles de temps inférieures à celles de la combustion.

1.1.2 La détonation pour la propulsion

Les premières suggestion de l'utilisation de la détonation comme mode de combustion dans les systèmes propulsifs aéronautiques et spatiaux datent de 70 ans. Deux concepts de moteurs ont été proposés, le premier dans lequel la détonation est générée de manière pulsée dans un tube droit (PDE) [37, 38] et le second dans lequel la détonation se propage de manière continue dans une cavité circulaire (RDE) [39]. Leur avantage est de pouvoir fonctionner pour des vitesses subsoniques et supersoniques et leur appareillage est simple et compact. En effet, les longueurs et temps caractéristiques associés à la détonation sont très courts et le front de détonation génère par lui-même de très hautes pressions et températures, sans qu'il soit nécessaire d'ajouter à la chambre un système de pré-compression du

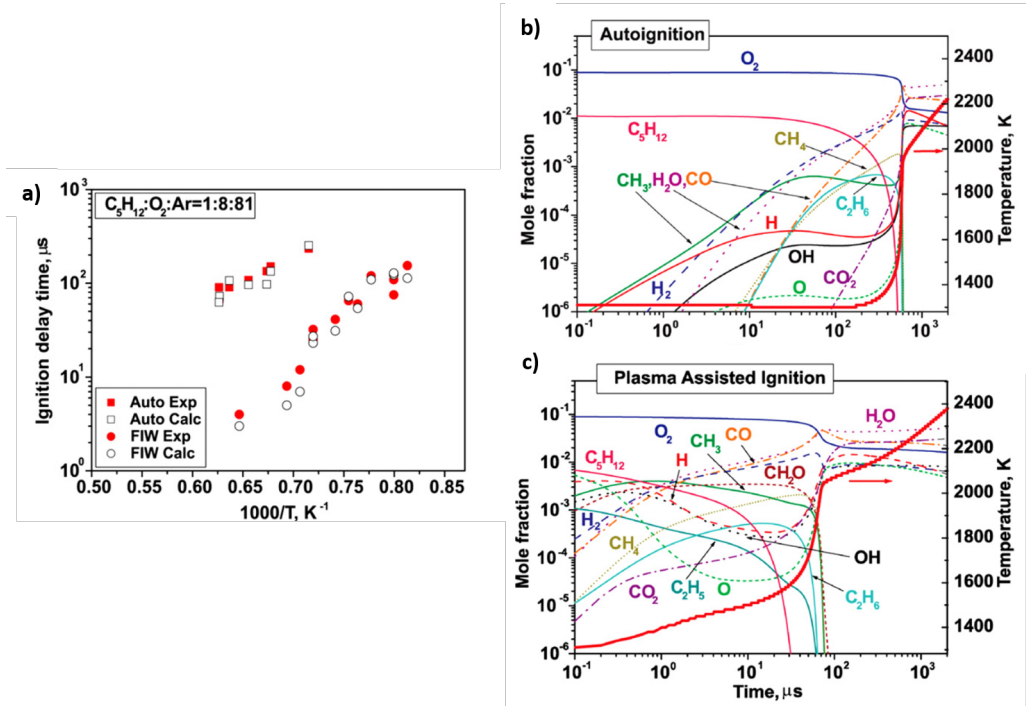


FIGURE 1.7 – Temps d’allumage pour un mélange $C_5H_{12}:O_2$ stoechiométrique dilué dans 90% d’argon. Les données sont numériques et expérimentales pour un allumage classique et un allumage par plasma[9].

mélange combustible. La figure 1.8 présente une photographie d’un RDE en fonctionnement et un schéma du principe de la génération de la poussée. Les études expérimentales fondamentales butent sur l’interaction de nombreux phénomènes génériques individuellement complexes.

Dans ces moteurs, les comburants et combustibles sont injectés séparément pour des raisons de sécurité et de technologie et ne sont donc pas distribués uniformément. De plus, la présence des gaz brûlés dans le réacteur augmente le volume de gaz inerte et diminue la qualité du mélange réactif. Ces inconvénients rendent le processus de détonation plus difficile et augmentent ses temps caractéristiques. Ces problèmes d’uniformité constituent une des origines des différences entre les performances prédites et observées des moteurs à détonation [40, 41, 42, 43]. Le contrôle de la détonation dans des conditions défavorables est d’un intérêt certain et celui-ci passe par deux phénomènes, la facilité à obtenir une détonation d’une part, et la facilité à maintenir une détonation d’autre part.

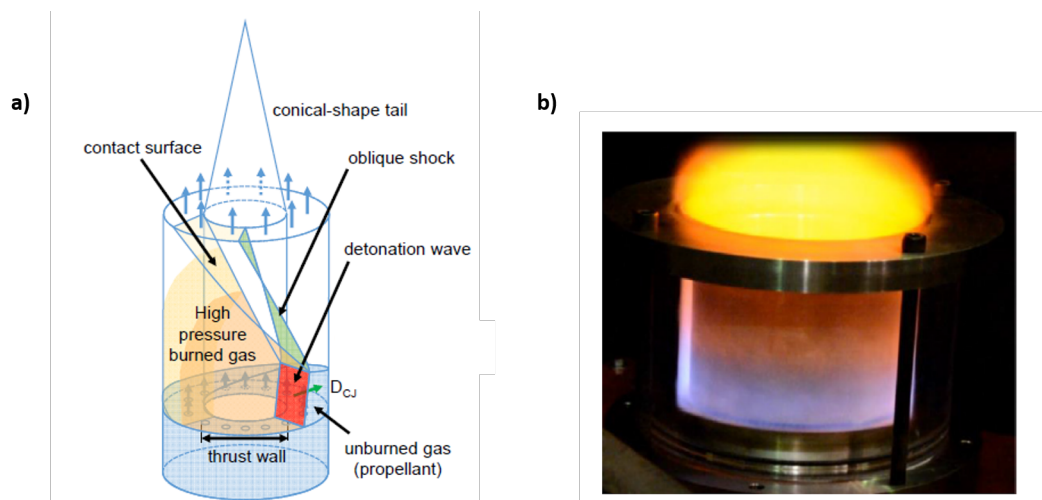


FIGURE 1.8 – a) Principe de fonctionnement d'un RDE [10]. b) Photographie d'un RDE en fonctionnement, l'image est intégrée sur plusieurs rotations [11].

Maintien de la détonation

Le manque d'uniformité constitue une cause d'extinction de la détonation dans les moteurs à détonation. L'influence d'une distribution non uniforme de la composition sur les performances d'un PDE a été étudiée dans [44]. Les auteurs ont montré que les impulsions du moteur sont moins efficaces si la richesse du mélange est inférieure à la stoechiométrie. Des études similaires ont été effectuées dans [12] pour un système analogue à un RDE. Une onde de détonation se propage dans un tube droit équipé d'injecteurs tangents d'hydrogène et d'oxygène. La figure 1.9 présente deux photographies de l'expérience sans et avec injection d'hydrogène et d'oxygène sur la trajectoire de l'onde à la sortie d'un canal. Les auteurs rapportent plusieurs mécanismes d'instabilités d'extinction de la détonation dans les conditions avec l'injection.

Une simulation numérique 3D reprenant la géométrie de cette expérience a été présentée dans [13]. Les calculs prennent en compte le mélange, les turbulences et la cinétique détaillée en mettant l'accent sur l'injection. La figure 1.10 présente les différences en terme d'instabilité pour la propagation du front dans des conditions idéales (mélange pré-mélangé) et des conditions réalistes (injection des réactifs séparée). Les auteurs concluent le propos en proposant les meilleures conditions d'injection séparée.

Une étude fondamentale et expérimentale du comportement dynamique de la détonation au travers de gradients de composition est rapportée dans [14] et dans

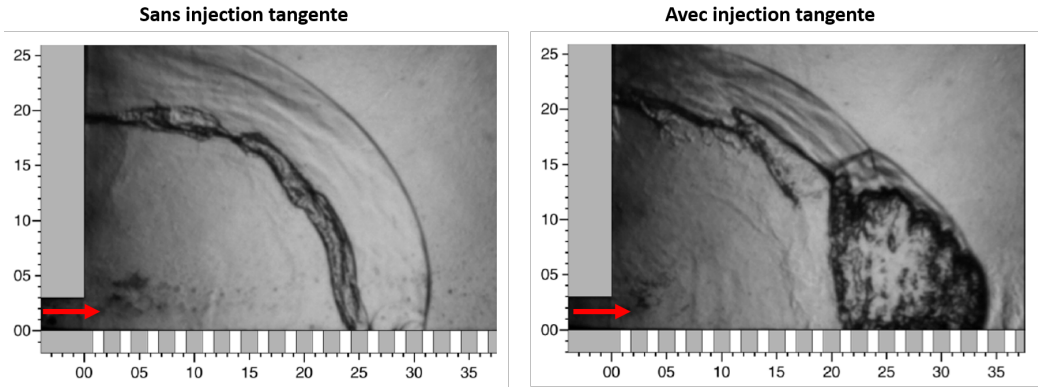


FIGURE 1.9 – Photographie d’un front de détonation se propageant à la sortie d’un canal sans injection tangente et avec injection tangente [12].

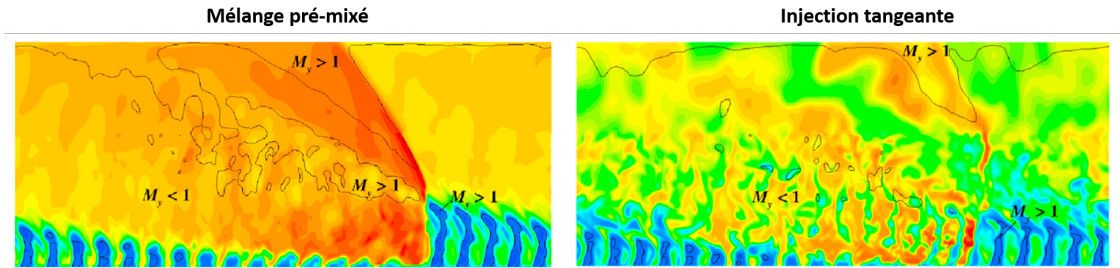


FIGURE 1.10 – Simulation 3D des conditions expérimentale de [12] pour un mélange pré-mixé et une injection séparée du mélange [13].

[45, 46, 47]. Des gradients de richesses sont établis dans la direction parallèle à la propagation de l’onde de détonation et la variation la largeur moyenne de la cellule de détonation est utilisée comme paramètre dynamique de la modification de la détonabilité du mélange.

La figure 1.11 présente trois exemples de gradients de richesse utilisés dans [14]. La taille de la cellule de détonation présente une forme en U avec le minimum autour de la stoechiométrie on s’attend à retrouver les cellules les plus petites pour des richesses proches de 1. L’effet de la pente du gradient est aussi très intéressant pour analyser la rapidité du front à s’adapter à des changements de composition. La figure 1.12 présente la largeur des cellules de détonation dans les trois cas. Les cellules sont les plus petites proches des conditions idéales pour la combustion (à la stoechiométrie) et le front de détonation s’adapte instantanément sans distinction pour des gradients faibles et forts. La détonation peut se propager de manière idéale si on parvient à présenter des conditions favorables devant le front de manière instantanée. Avec un plasma par exemple.

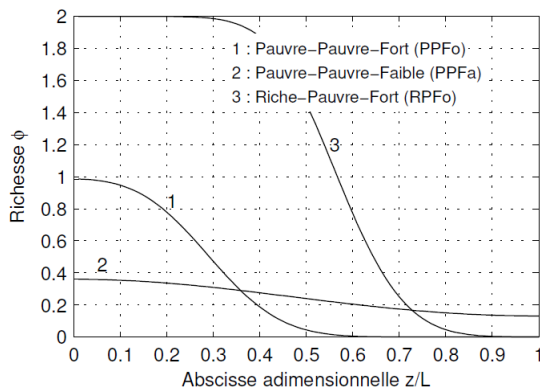


FIGURE 1.11 – Trois exemples de gradients de richesse utilisés dans [14] parallèlement à la propagation de l’onde de détonation.

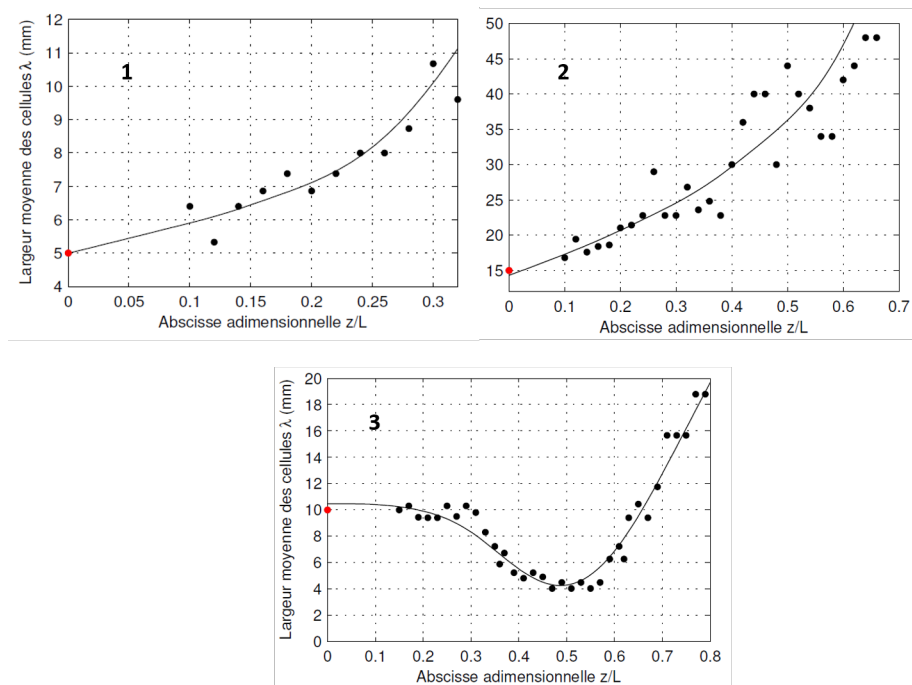


FIGURE 1.12 – la largeur des cellules de détonation dans les trois cas présentés en figure 1.11 [14].

Amorçage de la détonation

Il est plus intéressant d’un point de vue énergétique d’obtenir une détonation à partir d’une flamme que d’initier directement une détonation. Ainsi une étape

inévitabile est la transition de la flamme d'un régime de déflagration vers un régime de détonation. La transition déflagration-détonation est un sujet de grande importance dans la communauté, e.g. [48, 19]. Le phénomène de transition dépend fortement des conditions expérimentales et l'ajout d'obstacles ou d'énergie sur la trajectoire de la flamme a pour effet de modifier la longueur de transition. La présence d'obstacles peut être très contraignante dans des conditions extrêmes en raison de leur complexité ou de leur usure rapide. On préfère considérer l'ajout d'énergie à la flamme. Un moyen simple d'injecter localement de l'énergie à des temps plus court que la dynamique de la combustion est le plasma.

1.1.3 Plasma pour l'amélioration de la détonation

L'utilisation du plasma pour améliorer le processus de transition déflagration-détonation peut s'effectuer de deux manières différentes. On peut allumer un plasma sur la trajectoire d'une flamme déjà établie ou alors on peut allumer le mélange par l'intermédiaire du plasma. De plus, les décharges nanosecondes se sont imposées au sein de la communauté pour la TDD assisté par plasma. Leur haute énergie déposée sur des temps très courts est très avantageuse.

Plasma sur la trajectoire de la flamme

La figure 1.13 présente le montage expérimental utilisé dans [15] afin d'améliorer le processus de TDD. Le tube est composé d'un système d'allumage classique et d'un système d'électrode sur le chemin de la flamme produisant une décharge nanoseconde répétitive. Le mélange étudié est H_2 :air à la stoechiométrie à 1 bar dans un tube de diamètre 39 mm. Pour ce mélange et à cette pression, les cellules de détonation mesurent environ 10 mm. Le système d'allumage n'a pas été étudié mais il a été varié pour correspondre en ordre de grandeur à l'énergie déposée par la décharge nanoseconde répétitive.

Un exemple des résultats obtenus pour une décharge de 100 impulsions est présenté en figure 1.14. La vitesse de la flamme instantanée est mesurée en utilisant les sondes de pression/ionique positionnées à intervalles réguliers le long du tube. Les auteurs observent que sans décharge plasma, la flamme accélère très faiblement et on observe jamais de détonation. Pour le cas avec plasma la flamme évolue souvent vers le régime de détonation. Pour la dernière position enregistrée la transition est systématique.

Des calculs numériques reprenant les mêmes conditions expérimentales ont été effectués dans [16]. Les auteurs s'intéressent à l'effet d'un plasma hors équilibre sur le chemin d'une flamme, cet effet est simulé par une concentration locale en oxygène atomique. Un schéma du dispositif expérimental simulé est donné en figure 1.15. Les dimensions du tube sont 60 mm de largeur pour 3000 mm de

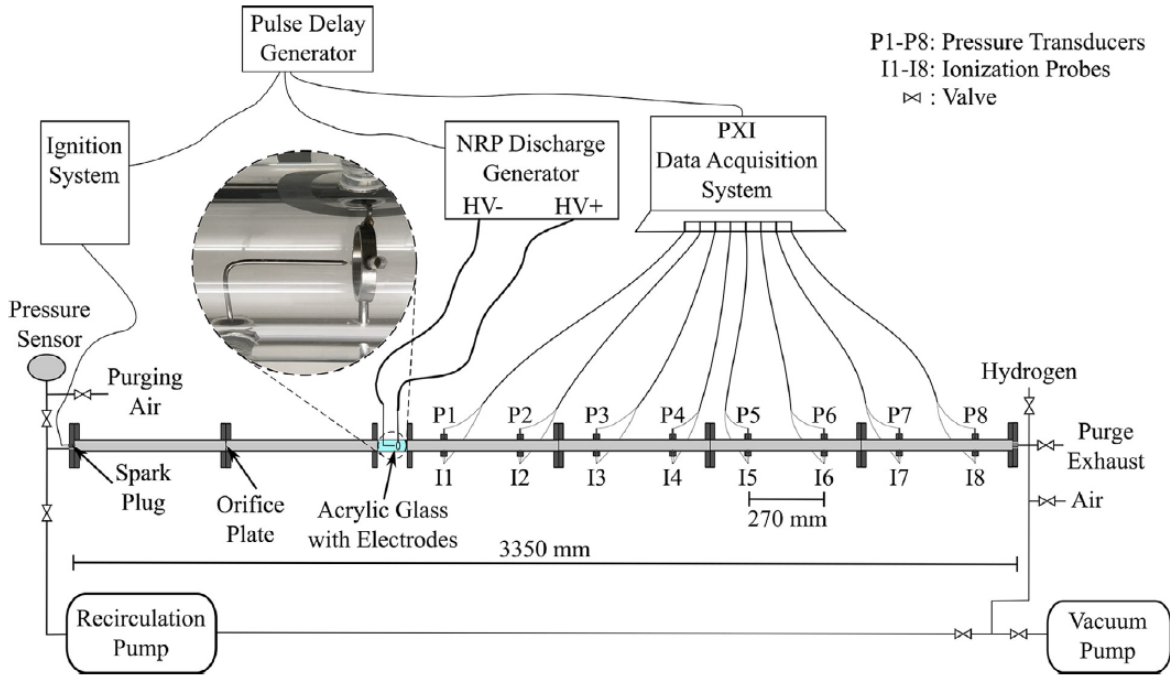


FIGURE 1.13 – Montage expérimental d'un tube à détonation de 39 mm de diamètre avec un système d'électrode sur le chemin de la flamme [15].

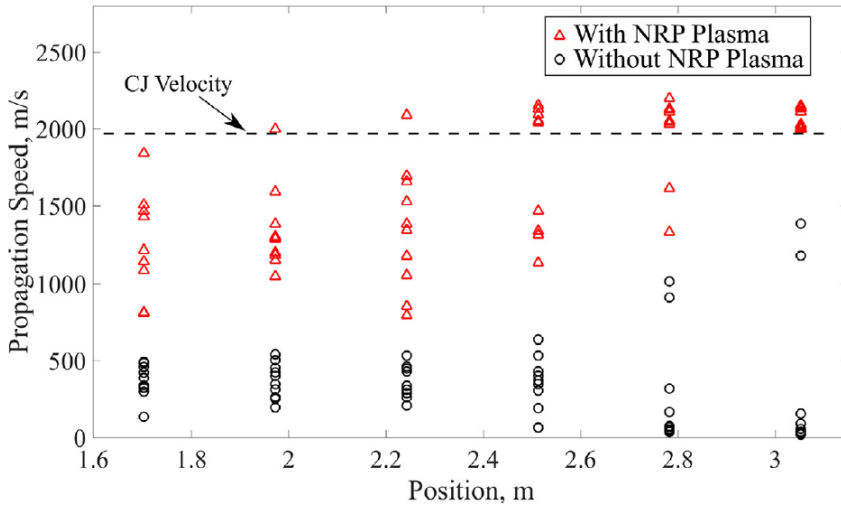


FIGURE 1.14 – Vitesse de propagation de la flamme sans et avec une décharge nanoseconde répétitive de 100 impulsions [15].

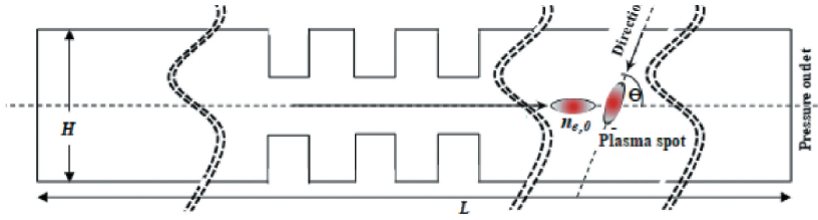


FIGURE 1.15 – Configuration numérique 2D d'un tube à détonation se 60 mm de largeur et 3000 mm de longueur avec 6 à 7 obstacles [16]

longueur et un mélange H_2 :air à la stoechiométrie à 1 bar.

Les résultats sont présentés en figure 1.16 pour différentes valeurs de dissociation de l'oxygène. La taille des cellules de détonation et la vitesse du front de flamme sont données. La tendance observée est qu'avec l'augmentation de la concentration d'oxygène la vitesse de la flamme augmente et la largeur des cellules diminue. La tendance observée est cohérente avec notre propos mais la nature des résultats obtenus induit un questionnement, en particulier la taille de cellule calculée. En effet, la largeur des cellules de détonation est une caractéristique qui ne dépend que de l'état initial devant le front et non des origines de la détonation. En d'autres mots la taille observée des cellules de détonation CJ ne peut pas dépendre des événements précédant la détonation. Si on modifie l'énergie associée à une flamme, les cellules en début de processus à caractère transitoire vont être impactées. Ces cellules ne déterminent pas la détonation. Il ne s'agit alors de la mesure que d'un état transitoire qui dépend fortement des conditions marginales de l'expérience. Il serait très intéressant d'étudier une modification de l'état initial devant le front par un plasma pour observer un changement du comportement dynamique d'une détonation déjà initiée.

Plasma à l'origine de la flamme

Une décharge nanoseconde répétitive a été étudiée pour réduire le temps d'allumage dans un tube avec écoulement et dans un PDE [17]. Le diamètre des cylindres du PDE est de 5 cm pour des mélanges éthylène-air et méthane-air. Des photographies en strioscopie de l'allumage sont proposées en figure 1.17 pour le cas de l'écoulement dans un mélange méthane-air pour 5 impulsions de 22 kV à deux fréquences. Pour des fréquences de répétition lente (0-5 KHz) les noyaux de combustion formés par la décharge sont déplacés avant l'arrivée de la prochaine impulsion. Dans le cas d'une fréquence de répétition rapide (10 kHz et plus), plusieurs impulsions sont couplées et forment un seul noyau de combustion beaucoup plus important permettant une transition plus rapide.

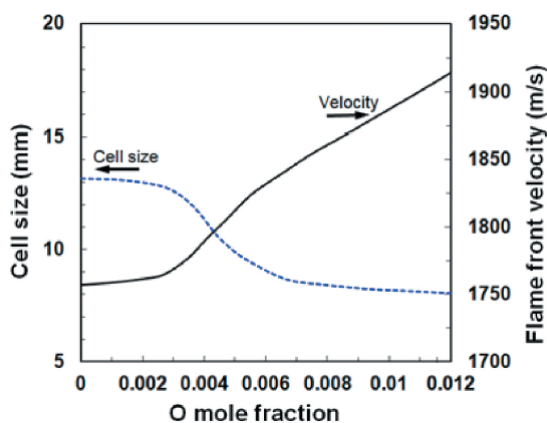


FIGURE 1.16 – Calcul numérique : taille de la cellule de détonation et vitesse du front de flamme pour des valeurs de dissociation de l’oxygène [16].

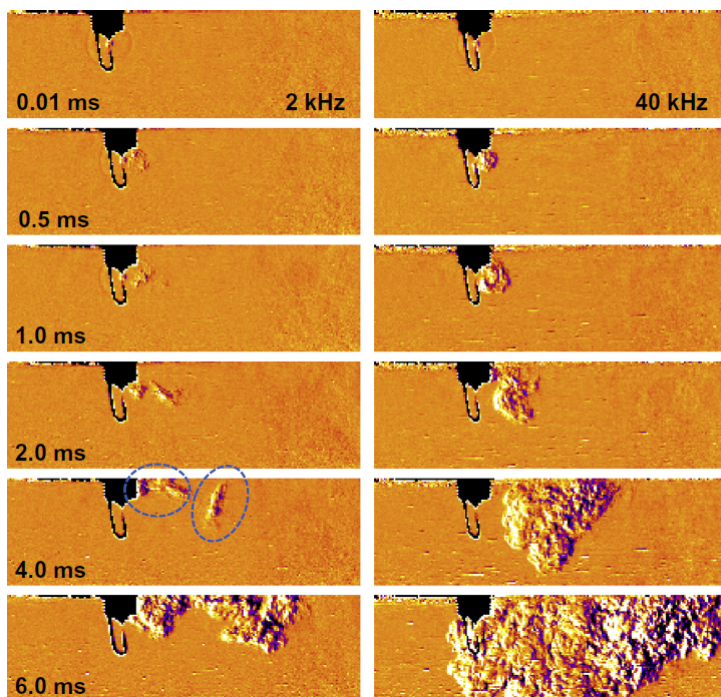


FIGURE 1.17 – Photographies en strioscopie de l’allumage pour le cas de l’écoulement dans un mélange méthane-air pour 5 impulsions de 22 kV à 2 kHz et 40 kHz [17].

Les résultats sur la réduction du temps d’allumage en fonction de la richesse

dans le PDE pour un mélange avgas-air sont présentés en fig. 1.18 pour la décharge nanoseconde et une décharge classique milliseconde. On observe une diminution du temps d'allumage autour de la valeur 1.2 de richesse, cette diminution est d'autant plus marquée qu'on a d'impulsion nanoseconde. Les auteurs ne fournissent pas d'informations sur la longueur de transition qui suit l'allumage. On sait qu'on a intérêt à accumuler les décharge nanoseconde afin d'obtenir les meilleurs résultats, mais l'expérience n'a été effectuée que pour une application localisée de plasma générant un seul noyau. On peut se demander quel est l'effet de plusieurs noyaux générés simultanément.

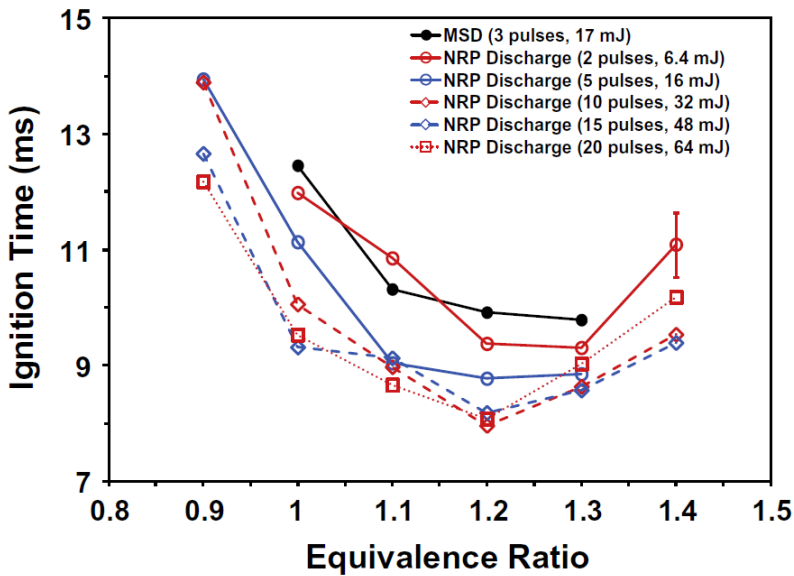


FIGURE 1.18 – Temps d'allumage vs richesse pour différents types de décharges dans un mélange avgas-air [17].

Des géométries d'électrodes permettant de développer la décharge en plusieurs points de l'espace ont été imaginés; un exemple est donné en figure 1.19. La modification de la vitesse de la flamme, et donc de la transition, en fonction de la pression initiale est donnée en figure 1.20. Les symboles pleins sont obtenus pour un allumage milliseconde dans des mélanges d'hydrocarbures, le mélange représenté par des carrés est dilué dans l'argon. Les symboles vides représentent les mêmes mélanges allumés par plasma. On voit qu'on atteint le régime de détonation beaucoup plus tôt dans le cas sans dilution et cet effet est accentué par l'allumage plasma. Dans le cas avec dilution, l'allumage par plasma est nécessaire pour observer la transition. Les dimensions des dispositifs dans cette expérience ne permettent pas de s'exprimer sur l'effet du plasma sur la longueur de transition car celle-ci dépend fortement des conditions aux limites. Il serait donc très intéressant

de réaliser une expérience similaire dans des tubes beaucoup plus longs et plus larges pour limiter les effets de bords.

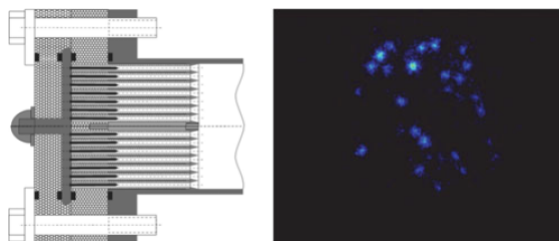


FIGURE 1.19 – Schéma d'un concept d'électrodes multicanaux et image ICCD correspondant à l'émission dans l'air à 0.3 atm pour une décharge de 70 kV [18].

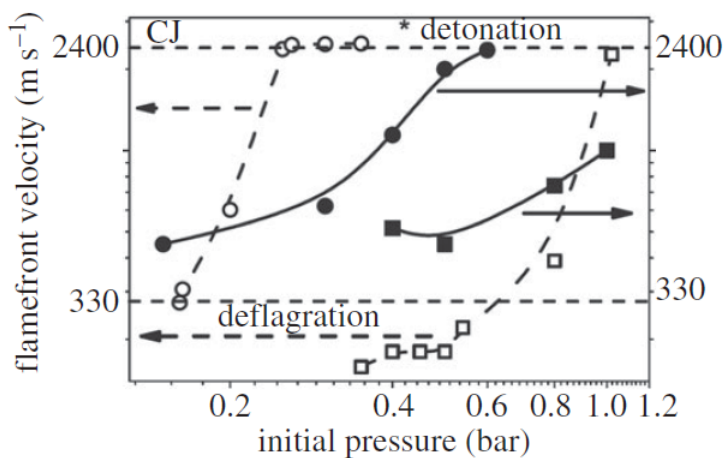


FIGURE 1.20 – Vitesse de flamme pour des mélanges d'hydrocarbures avec plasma (symboles vides) et sans plasma (symboles pleins) [18].

1.2 Formulation du problème

Ainsi, la combustion pour les moteurs a toujours été associée à des plasmas et que récemment l'attention s'est portée sur les plasma hors-équilibre plus avantageux d'un point de vue énergétique et dans des conditions extrêmes. L'utilisation de plasma hors-équilibre s'est avérée particulièrement intéressante dans de nombreuses études où il a été démontré qu'il était plus facile d'allumer une flamme avec un plasma hors équilibre et que la flamme pouvait être stabilisée. L'explication principale proposée est que le plasma permet de générer dans le gaz la formation d'espèces réactives, principalement de l'oxygène qui améliore grandement les processus chimiques de la combustion. En particulier, on a vu que les plasmas nanosecondes se sont imposés dans ce domaine pour leur rapidité et pour la possibilité de générer des champs électriques très forts. Plus le champ est fort, plus la création d'espèces très réactives l'est aussi.

On a vu que des systèmes de propulsion utilisant la détonation pourraient grandement améliorer ceux actuellement utilisés. Cette possibilité requiert néanmoins de comprendre le comportement des ondes de détonation en présence d'inhomogénéités et de mauvais mélanges des réactifs. Une amélioration de ces procédés permettrait de se rapprocher au mieux des valeurs théoriques optimale du fonctionnement de ces moteurs. Un ensemble de processus d'amélioration de la détonation a été étudié, tant par modification de l'état initial devant le choc que par création d'une détonation à partir d'une flamme améliorée. Ces études nous font conclure qu'il serait possible d'améliorer la propagation de la détonation en utilisant un plasma nanoseconde devant le front d'une détonation établie ou alors pour créer une flamme qui va évoluer rapidement vers le régime de détonation. L'avantage des plasmas nanoseconde par rapport à la détonation réside dans leur instantanéité et leur dépôt d'énergie élevé.

Finalement on s'intéresse aux travaux réalisés à l'interface des deux domaines. Dans l'intégralité des cas on s'aperçoit que le plasma est utilisé soit pour démarrer la flamme, soit sur le chemin de la flamme. La vitesse de la flamme créée/supportée par plasma est systématiquement modifiée par rapport aux flammes créées par les systèmes habituels. Cependant, aucune expérience ne s'intéresse à l'application d'un plasma devant un front de détonation déjà établie. En particulier, on se demande si le niveau de dissociation atteint sera suffisant pour modifier la structure dynamique d'une détonation CJ établie. Dans les papiers cités, la largeur des cellules de détonation n'est pas étudiée et dans le cas où celle-ci est mentionnée il n'est pas évident d'affirmer que ce n'est pas un régime transitoire. Pourtant la mesure de la largeur des cellules de détonation constitue une mesure fondamentale du comportement de la détonation et permet d'affirmer si un changement physique de l'état initial devant le choc a eu un effet sur la détonation.

Dans le cadre de la transition déflagration-détonation, les expériences réalisées pour un allumage par plusieurs décharges simultanément montrent que la flamme accélère et évolue vers le régime de détonation plus facilement que pour un allumage classique. Cependant, dans ces expériences la longueur de transition est mal définie car celle-ci est dépendante des conditions aux bords et les dimensions de l'expérience ne permettent pas d'affirmer que les bords ne jouent pas un rôle très important dans les résultats obtenus.

Dans la présente thèse, on se fonde sur les travaux effectués dans les articles cités pour améliorer la compréhension de l'interaction de deux phénomènes. Une première expérience consiste à observer l'effet d'un plasma nanoseconde sur un front de détonation déjà établi. La seconde expérience consiste à comparer la longueur de transition déflagration-détonation pour une électrode multi-canaux et une bougie d'allumage classique dans un tube avec de grande dimensions devant la taille de la cellule de détonation. Les deux expériences proposées constituent une possible amélioration de la détonabilité par application d'un plasma nanoseconde.

1.3 Plan du mémoire

Dans un premier temps, nous revenons sur les notions liées aux ondes de combustion dans le chapitre 2 et sur celles liées à la dissociation des espèces dans un plasma dans le chapitre 3. Puis, nous introduisons les méthodes numériques et les schémas cinétiques associés dans le chapitre 4. Les chapitres 5 et 6 présentent les résultats obtenus pour les expériences de réduction de taille de cellule et de réduction de longueur de TDD. Enfin, dans le chapitre 7, nous revenons sur les résultats de la thèse et nous proposons une synthèse du lien de causalité entre plasma, détonabilité et temps d'induction chimique.

Chapitre 2

Détonation, déflagration, détonabilité

On distingue deux ondes de combustion en milieu réactif pré-mélangé : les déflagrations et les détonations. Elles se distinguent l'une de l'autre par leur vitesse de propagation relativement à la célérité des perturbations acoustiques du milieu vers lequel elles se déplacent. La déflagration est ainsi subsonique et la détonation supersonique (1800 à 2500 m/s). Elles transforment les réactifs en produits libérant l'énergie potentielle contenue dans les liaisons chimiques des molécules constituant le gaz frais. Cette énergie est convertie en énergie thermique et cinétique des produits de la combustion. L'énergie libérée produit au voisinage de l'onde des changements des propriétés thermodynamiques.

Sommaire

2.1	Détonation	22
2.1.1	Loi de bilan	23
2.1.2	Modèle Chapman-Jouguet	27
2.1.3	Modèle Zel'dovich-Von Neuman-Döring	29
2.1.4	Réalité expérimentale : la structure cellulaire	31
2.2	Déflagration	32
2.2.1	Modèle de propagation laminaire de la déflagration	33
2.2.2	Mécanismes d'accélération de la flamme	35
2.2.3	Transition déflagration-détonation	36
2.3	Détonabilité	37
2.3.1	La largeur moyenne des cellules de détonation	37
2.3.2	La longueur de transition déflagration-détonation	38

2.1 Détonation

La détonation est l'onde de combustion supersonique par rapport à l'état initial. Elle est composée d'un choc soutenu par une zone de réactions chimiques. Dans son mode de propagation autonome, le domaine de dépendance du choc est essentiellement limité à la zone de dégagement d'énergie chimique avec un blocage sonique vers la fin de la zone de réaction. Le modèle Chapman-Jouguet (CJ) décrit la détonation en négligeant l'épaisseur chimique de sa zone de réaction : elle est ainsi vue une discontinuité plane, totalement réactive et sonique. Ce modèle est en fait le sous-produit de l'écoulement auto-semblable pour la détente de Taylor-Zel'dovich des produits de la détonation. Ces hypothèses permettent de calculer la célérité D_{CJ} de l'onde et les propriétés en fin de zone de réactions (P_{CJ}, T_{CJ}, u_{CJ} , etc.). Le modèle de Zel'dovich-Von Neumann-Döring (ZND) considère une zone de réaction d'épaisseur non nulle. La détonation autonome est constituée d'un choc inerte soutenu d'une zone de réaction stationnaire dans laquelle l'état évolue vers les conditions CJ. Ces hypothèses permettent de calculer les profils des variables de l'écoulement dans cette zone de réaction et donc, ses longueurs et temps chimiques caractéristiques.

Les propriétés CJ sont déterminées par les lois de bilan à travers une discontinuité, l'équation d'état des produits de détonation, l'annulation des affinités chimiques et les conditions de sonicité. Les paramètres initiaux de l'étude sont la composition à l'équilibre chimique, de la pression et la température initiales du mélange étudié. Pour le modèle ZND, les profils et évolutions des variables dans la zone de réaction sont obtenus par résolution des lois bilan unidimensionnelles (planes) et stationnaires couplées à un schéma de cinétique chimique. Dans les gaz homogènes, les vitesses de réactions élémentaires sont décrites par des lois de type Arrhenius. De petites fluctuations des températures post-choc entraînent ainsi de fortes instabilités de cette zone de réaction, si bien que le modèle ZND n'est pas observé. Les expériences montrent que le front de détonation possède une structure tridimensionnelle constituée d'ondes de choc et de combustion à propagations transversale et longitudinale. Les interactions de ces ondes projetées sur une surface forment des points triples qui se déplacent dans la direction de propagation. Les trajectoires des points triples dessinent des motifs en forme de diamants appelés cellule de détonation. Une largeur moyenne de la cellule de détonation, λ , peut être défini dans les cas où ces motifs pavent la surface de manière assez régulière. Les expériences montrent, en première approximation, une corrélation entre λ et la longueur d'induction chimique de la zone de réaction du modèle ZND. Elles montrent également que le rapport de λ et de la dimension transverse du tube détermine la capacité de la détonation à se propager pour un

mélange, cette capacité est d'autant plus grande que le rapport est petit. Les modèles CJ et ZND donnent des propriétés moyennes d'une détonation multicellulaire.

La simulation numérique des structures cellulaires reste un défi : le résultat dépend fortement du schéma de cinétique utilisé et de la finesse du maillage nécessaire à une résolution suffisante. À ce jour, les temps de calcul restent longs. Par ailleurs, les schémas de cinétiques détaillées sont mal connus pour les conditions de fonctionnement d'une détonation (hautes température et pression). Les longueurs caractéristiques de la dynamique de la détonation restent ainsi très sensibles au choix de ce schéma cinétique. Une approche simplifiée utilisant une loi globale, de type Arrhenius dans les gaz, permet d'approcher certains comportements dynamiques de la détonation. Cependant, un étalonnage des constantes de la loi à partir de résultats expérimentaux est nécessaire. Les expériences restent donc l'approche la plus fiable pour déterminer la capacité d'un mélange à accepter le régime de détonation dans un système donné. Les comportements dynamiques des détonations sont en effet, en première approximation, auto-semblables par rapport à λ . Les expériences doivent donc être réalisées dans des conditions initiales et de géométrie permettant d'établir des lois d'échelles pour prédire les comportements dynamiques des détonations par extrapolation à d'autres conditions.

2.1.1 Loi de bilan

Les régimes de détonations sont très rapides, typiquement 1,5-2,5 km/s. Le modèle de fluide adapté est celui de l'hydrodynamique, c'est-à-dire le fluide homogène, parfait, non visqueux et non conducteur de chaleur en évolution adiabatique. Le système est donc régi par les équations d'Euler pour les bilans de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie (Premier principe de la Thermodynamique). On ferme ce système par les formes fonctionnelles de l'équation d'état du fluide réactif e et par les vitesses d'évolution des espèces chimiques \mathbf{w} ,

$$\frac{dv}{dt} - v \operatorname{div}(\mathbf{u}) = 0 \quad (2.1)$$

$$\frac{d\mathbf{u}}{dt} + v \nabla P = 0 \quad (2.2)$$

$$\frac{de}{dt} + P \frac{dv}{dt} = 0 \quad (2.3)$$

$$e = e(P, v, \mathbf{Y}) \quad (2.4)$$

$$\frac{d\mathbf{Y}}{dt} = \mathbf{w}(P, v, \mathbf{Y}) \quad (2.5)$$

où dg/dt désigne la dérivée matérielle d'une quantité g , \mathbf{u} la vitesse matérielle, P la pression, t le temps, v le volume interne spécifique, e l'énergie interne spécifique

et $\mathbf{Y}(Y_k)$ le vecteur des fractions massiques des espèces $k = 1, K$ chimiques. Ce système est fermé il comprend $6 + K$ équations pour $6 + K$ inconnues, $v, P, e, u, \mathbf{Y}(Y_k)$ et D .

Le modèle minimal de fluide réactif comprend deux composants ("espèces", $k=1$), les réactifs R et les produits B selon la transformation globale $R \rightarrow B$. Dans les gaz, la vitesse d'évolution pour ce modèle minimal est donnée par une loi d'Arrhenius, par exemple,

$$w = \frac{dY}{dt} = A \left(\frac{\rho}{\rho^*} \right)^n (1 - Y)^m e^{-\frac{E_a}{RT}} \quad (2.6)$$

où Y est la fraction massique des produits et donc l'avancement de la réaction, $\rho = 1/v$ la masse volumique du mélange et T la température. Les nombres n et m , A est une constante homogène à l'inverse d'un temps, ρ^* est une masse volumique de référence et E_a est l'énergie d'activation de la réaction globale de combustion. Dans le cas du gaz parfait réactif, on a

$$T = \frac{MPv}{R} \quad (2.7)$$

$$\frac{1}{M} = \frac{1 - Y}{M_R} + \frac{Y}{M_B} \quad (2.8)$$

où M, M_R, M_B représentent les masses molaires du mélange, des réactifs et des produits respectivement. Si, de plus, les réactifs et les produits sont des gaz idéaux, leurs capacités calorifiques sont constantes et leurs formes différentielles, soit $de_R = c_{vR}dT$ et $de_B = c_{vB}dT$, s'intègrent pour déterminer l'équation d'état $e = (1 - Y)e_R + Ye_B$ (2.4) de leur mélange

$$e(T, Y) = e_0 + c_v(T - T_0) - YQ_{v0} \quad (2.9)$$

$$c_v(Y) = Yc_{vB} + (1 - Y)c_{vR} \quad (2.10)$$

$$e(P, v, Y) = e_0 + \frac{Pv - (1 + \mu Y)P_0v_0}{\gamma - 1} - YQ_{v0} \quad (2.11)$$

Les grandeurs γ et μ représentent le rapport des capacités calorifiques du mélange et la variation relative des masses molaires de R et B

$$\gamma = \frac{(1 - Y)c_{pR} + Yc_{pB}}{(1 - Y)c_{vR} + Yc_{vB}} \quad (2.12)$$

$$\mu = \frac{M_R}{M_B} - 1 \quad (2.13)$$

On peut également utiliser la forme de l'enthalpie spécifique $h = e + Pv$ pour définir l'équation d'état

$$h(T, Y) = h_0 + c_p(T - T_0) - YQ_{p0} \quad (2.14)$$

$$c_p(Y) = Yc_{pB} + (1 - Y)c_{pR} \quad (2.15)$$

$$h(P, v, Y) = h_0 + \frac{\gamma(Pv - (1 + \mu Y)P_0v_0)}{\gamma - 1} - YQ_{p0} \quad (2.16)$$

Les quantités Q_{v0} et Q_{p0} représentent les chaleurs de réaction à volume et pression constants, respectivement, soit la différence d'énergie interne spécifique (resp. d'enthalpie) entre les réactifs et les produits, ces derniers étant ramenés à la même pression et température initiale que les réactifs.

Le système 2.1-2.3 admet des solutions continues par morceaux ; Il existe trois type de discontinuités :

- la ligne de glissement : continuité de la pression et de la direction de la vitesse matérielle,
- la discontinuité faible : saut des dérivées, mais continuité des variables,
- la discontinuité forte : discontinuités des variables et des dérivées.

Les lois de bilan en tout point d'une telle surface de discontinuité (forte) sont les relations de Rankine-Hugoniot

$$\rho_1(D_n - u_{n1}) = \rho_0(D_n - u_{n0}) \quad (2.17)$$

$$P_1 + \rho_1(D_n - u_{n1})^2 = P_0 + \rho_0(D_n - u_{n0})^2 \quad (2.18)$$

$$e_1 + \frac{P_1}{\rho_1} + \frac{1}{2}(D_n - u_{n1})^2 = e_0 + \frac{P_0}{\rho_0} + \frac{1}{2}(D_n - u_{n0})^2 \quad (2.19)$$

où l'indice n désigne la direction normale à la surface de discontinuité, les indices 0 et 1 désignent les états limites de part et d'autre d'une discontinuité de célérité D_n . Dans cette étude, nous n'avons besoin que de considérer des discontinuités planes et nous omettons l'indice n . De la même manière elles se propagent toutes dans un milieu initial au repos ($u_0 = 0$),

L'existence de discontinuités physiques, c'est-à-dire observable requiert de compléter les relations de Rankine-Hugoniot 2.17-2.19 par la condition d'évolution de l'entropie $s > s_0$ (second principe de la thermodynamique). Cette condition de l'admissibilité physique des discontinuités est équivalente à la condition de déterminabilité mathématique (unicité et dépendance continue de la solution à 2.17-2.19-2.4 à ces conditions aux limites). On montre que cette condition est satisfaite si la condition d'évolution dite subsonique-supersonique est satisfaite, à savoir

$$u_1 + c_1 > D > u_0 + c_0 \quad \mathcal{M} < 1 < \mathcal{M}_0, \quad (2.20)$$

En d'autres termes, la discontinuité doit se propager plus vite que les perturbations acoustiques de même direction devant elle ($D > u_0 + c_0$, i.e. $\mathcal{M}_0 > 1$) et les perturbations de même direction derrière la discontinuité doivent se propager plus vite que celle-ci ($D < u_1 + c_1$, i.e. $\mathcal{M} < 1$).

Les solutions aux relations de Rankine-Hugoniot admettent une représentation pratique dans le plan (P, v) sous la forme de l'intersection de la droite de Rayleigh et de la courbe d'Hugoniot. La première s'obtient en éliminant u_1 du bilan de quantité de mouvement à l'aide du bilan de masse. Elle montre la dépendance linéaire de la pression P au volume spécifique v pour une vitesse de choc D donnée. La seconde s'obtient en éliminant la vitesse matérielle et la vitesse du choc de l'équation de la conservation de l'énergie en utilisant le bilan de masse et de quantité de mouvement

$$P_1 = P_{\mathcal{R}}(v_1; D, P_0, v_0) = P_0 + \rho_0^2 D^2 (v_0 - v_1) \quad (2.21)$$

$$e_1(P_1, v_1; P_0, v_0) = e_0(P_0, v_0) + \frac{1}{2}(P + P_0)(v_0 - v) \quad (2.22)$$

C'est la relation d'Hugoniot. Combinée avec l'équation d'état du milieu dans son état final $e_1 = e(v_1, P_1, Y_1)$, elle donne les polaires d'Hugoniot (\mathcal{H}). Dans le cas du gaz idéal, les polaires pour une discontinuité inerte ($Y=0$, $Q_{p0}=0$, $\mu=0$) ou totalement réactive ($Q_{p0} \neq 0$ et $\mu \neq 0$) s'écrivent

$$P_1 = P_{\mathcal{H}}(v, P_0, v_0) = P_0 \times \frac{1 - \frac{\gamma_1 - 1}{\gamma_1 + 1} \frac{v}{v_0}}{\frac{v}{v_0} - \frac{\gamma_1 - 1}{\gamma_1 + 1}} \quad (2.23)$$

$$P_1 = P_{\mathcal{H}}(v, P_0, v_0) = P_0 \times \frac{1 - \frac{\gamma_1 - 1}{\gamma_1 + 1} \frac{v}{v_0} + 2 \frac{\gamma_1 - 1}{\gamma_1 + 1} \frac{Q_{p0}}{P_0 v_0} \left(1 + \mu \frac{\gamma_1}{\gamma_1 - 1} \frac{P_0 v_0}{Q_{p0}}\right)}{\frac{v}{v_0} - \frac{\gamma_1 - 1}{\gamma_1 + 1}} \quad (2.24)$$

La polaire pour la discontinuité inerte est représentée en bleu, elle correspond à un état final de même composition que l'état initial, non brûlé, noté 0. Cette polaire passe par le pôle 0 (P_0, v_0). Elle représente l'ensemble des états susceptible d'être réalisé par choc adiabatique sans modification de la composition chimique. La polaire pour la discontinuité complètement réactive est représentée en rouge, elle caractérise l'ensemble des états finaux à l'équilibre chimique réalisable par transformation adiabatique contraint par 2.17-2.19. Du fait de la transformation chimique la courbe rouge ne passe pas par le pôle 0.

Les droites de Rayleigh sont à pentes négatives selon le paramètre D . s'agissant des discontinuités totalement réactives (courbe rouge), on distingue deux types d'onde, l'une compressive ou détonation idéale ($P_1 > P_0$), l'autre expansive ou déflagration ($v_1 > v_0$).

- Si on détend l'état initial, les intersections correspondent aux solutions pour la déflagration décrite comme une discontinuité forte. La déflagration CJ_x décrite dans le modèle n'est pas observable mais correspond à la limite physique des vitesses autorisées pour une déflagration. Ces solutions sont situées sur la portion inférieure de la polaire d'Hugoniot pour des vitesses $D < D_{CJx}$.

- Si on comprime l'état initial, les intersections correspondent aux solutions pour la détonation décrite comme une discontinuité. Pour des valeurs $D < D_{CJ}$, il n'y a pas d'intersection. Pour des valeurs $D > D_{CJ}$ il y a deux intersections. La solution forte F, qui correspond à un état subsonique du choc par rapport à l'état 1 $D < u_1 + c_1$. La solution faible f, qui correspond à un état supersonique du choc par rapport à l'état 1. L'intersection faible ne correspond pas à une solution physique. Pour $D = D_{CJ}$, la droite de Rayleigh est tangente à la polaire d'Hugoniot, cette solution correspond à l'onde détonation la plus "lente" transformant les réactifs en produit à l'équilibre chimique. Les équations de Rankine-Hugoniot sont valides pour toute discontinuité forte et peuvent décrire en théorie à la fois la compression (détonation) et l'expansion (déflagration) des réactifs en produits.

2.1.2 Modèle Chapman-Jouguet

Dans ce modèle le front de détonation est décrit comme une discontinuité hydrodynamique, unidimensionnelle plane et totalement réactive qui sépare les réactifs des produits brûlés à l'équilibre chimique. La détonation CJ est celle dont la célérité D est égale à celle des perturbations acoustiques $u + c$ des produits derrière la discontinuité, ainsi

$$u_{CJ} + c_{CJ} = D_{CJ} \quad (2.25)$$

où u_{CJ} est la vitesse des gaz brûlés dans le repère du laboratoire et c_{CJ} la vitesse du son dans le même milieu. Cette condition assure l'autonomie du front, en d'autres mots son indépendance par rapport aux perturbations qui remontent de l'écoulement vers le front. Elle ferme le système 2.17-2.19-2.4 et permet donc de calculer l'état final CJ et la célérité D_{CJ} , lesquels ne dépendent que de l'état initial et de la forme fonctionnelle de l'équation d'état des produits 2.4. Pour le cas du gaz idéal,

$$D_{CJ} = D_* \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{1 + 4 \frac{\gamma_1}{\gamma_0} \left(\frac{c_0}{D_*} \right)^2} \right) \quad (2.26)$$

$$D_*^2 = 2(\gamma_1^2 - 1) Q_{p0} \times \left(1 + \mu \frac{\gamma_1/\gamma_0}{\gamma_1 - 1} \frac{c_0^2}{Q_{p0}} \right) \quad (2.27)$$

avec, si l'on considère les approximations $\mu \ll 1$ et $c_0^2 \ll D_{CJ}^2$,

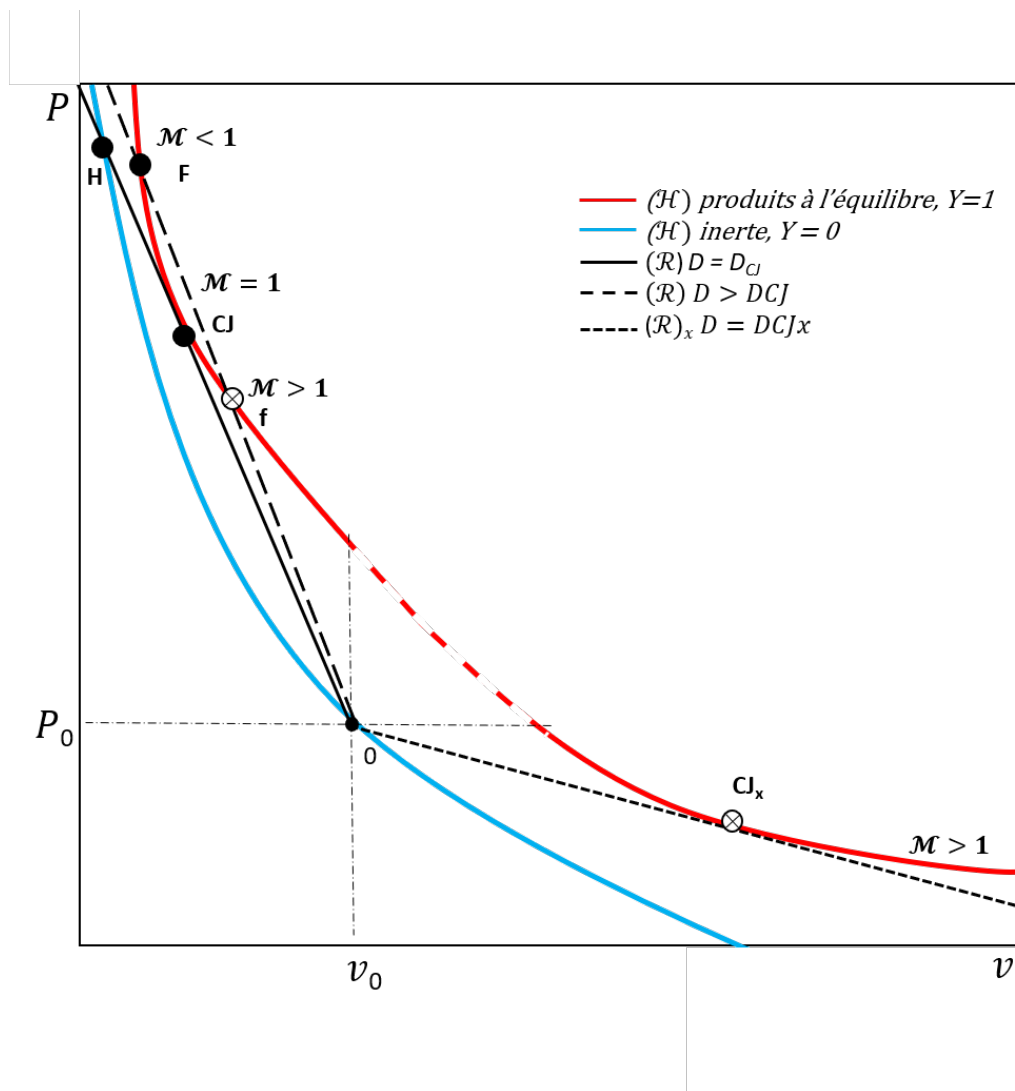


FIGURE 2.1 – Représentation des droites de Rayleigh (\mathcal{R}) et des polaires d’Hugoniot (\mathcal{H}) inerte et totalement réactive dans le plan (P,v) . L’état initial est représenté dans la partie inférieure droite. Les points F , f et CJ correspondent aux solutions forte, faible et Chapman-Jouguet dans le cas où la discontinuité est totalement réactive.

$$D_{CJ} \simeq \sqrt{2(\gamma_1^2 - 1)Q_{p0}} \quad (2.28)$$

et

$$\frac{v_0 P_{CJ}}{D_{CJ}^2} \simeq \frac{u_{CJ}}{D_{CJ}} \simeq \frac{1}{\gamma_1 + 1}, \quad \frac{v_{CJ}}{v_0} \simeq \frac{c_{CJ}}{D_{CJ}} \simeq \frac{\gamma_1}{\gamma_1 + 1}. \quad (2.29)$$

2.1.3 Modèle Zel'dovich-Von Neuman-Döring

La détonation plane est modélisée comme un choc inerte soutenu par une zone de réaction unidimensionnelle plane stationnaire d'épaisseur non-nulle. Les réactifs sont comprimés adiabatiquement par le choc de l'état initial 0 vers l'état choqué H (Figure 2.1). Puis, les réactifs dans cet état H évoluent dans la zone de réactions vers l'équilibre thermochimique (Figure 2.2).

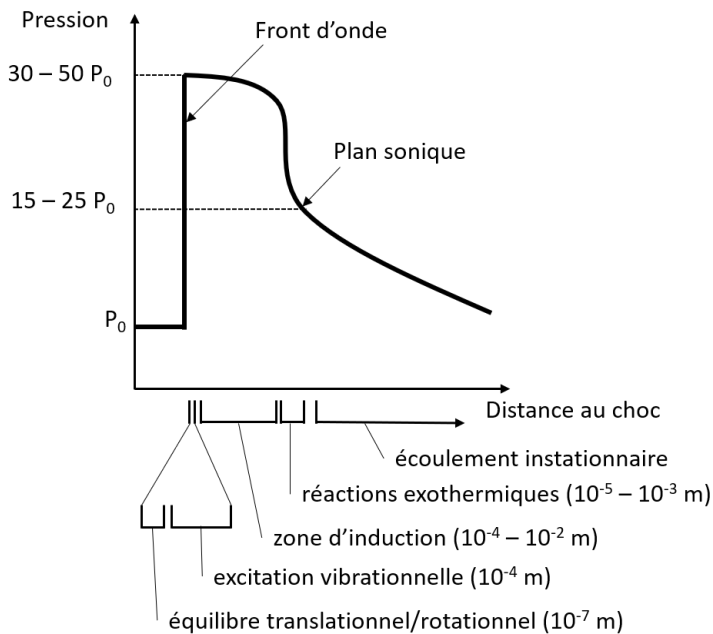


FIGURE 2.2 – Schéma de la structure ZND de la détonation plane [19].

Les équilibres de translation et de rotation sont établis très vite derrière le choc. L'équilibre des vibrations est plus long mais reste rapide par rapport au temps caractéristique de la zone de réaction. Cette zone est ainsi d'abord dominée par un processus thermiquement neutre d'initiation (ou induction) pendant lequel des espèces réactives radicalaires sont produites. Elle est ensuite le siège de réactions très exothermiques de recombinaison vers les produits finaux (H_2O , CO_2 , CO , ...). Pour la détonation CJ cet équilibre chimique est réalisé au point sonique (Figure

2.1).

L'hypothèse fondamentale du modèle ZND est la stationnarité de la zone de réactions, les variables g de cet écoulement sont uniquement fonctions de la distance au choc z soit

$$g(x, t) = g(z) \quad (2.30)$$

$$z = \int_0^t D dt - x \quad (2.31)$$

Cette hypothèse permet de réduire le système d'équations aux dérivées partielles 2.1-2.5 à un système d'équations différentielles ordinaires. En prenant la distance au choc z comme variable indépendante on a ainsi

$$\frac{du}{dz} = -\frac{\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{w}}{1 - \mathcal{M}^2} \quad (2.32)$$

$$\frac{dP}{dz} = -\frac{D - u}{v} \frac{\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{w}}{1 - \mathcal{M}^2} \quad (2.33)$$

$$\frac{dv}{dz} = \frac{v}{D - u} \frac{\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{w}}{1 - \mathcal{M}^2} \quad (2.34)$$

$$\frac{dY}{dz} = \frac{\mathbf{w}}{D - u} \quad (2.35)$$

$$\frac{dt}{dz} = \frac{1}{D - u} \quad (2.36)$$

avec $\boldsymbol{\sigma}$ le vecteur des coefficients de thermicité, $\mathcal{M} = (D - u)/c$ le nombre de Mach de l'écoulement et t le temps nécessaire à un élément fluide pour arriver à la position z . C'est un système de $3 + K$ équations (avec K le nombre d'espèces indépendantes dans le schéma cinétique considéré) à $3 + K$ inconnues indépendantes u, P, v, t, \mathbf{Y} et 1 paramètre, la célérité D , soit

$$\frac{d\mathbf{g}}{dz} = \mathbf{G}(\mathbf{g}, D) \quad (2.37)$$

$$\mathbf{g}(z = 0) = \mathbf{g}_H(D) \quad (2.38)$$

avec $\mathbf{g}=(u, P, v, t, \mathbf{Y})$ ou H désigne l'état choqué mais non brûlé.

Une contrainte supplémentaire est donc nécessaire pour fermer ce système. La célérité D_{CJ} est la valeur particulière de D obtenue par intégrations successives et dichotomie jusqu'à la satisfaction simultanée des conditions de sonicité ($u + c = D$) et de thermicité ($\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{w} = 0$) cette dernière provenant des dérivées infinies au point sonique.

Ce modèle permet d'obtenir des longueurs et temps chimiques de référence comme la longueur d'induction l_i . La figure 2.3 présente un schéma de la zone de réaction du modèle ZND plan pour la détonation sonique. Les profils qualitatifs de la pression et la température sont également présentés.

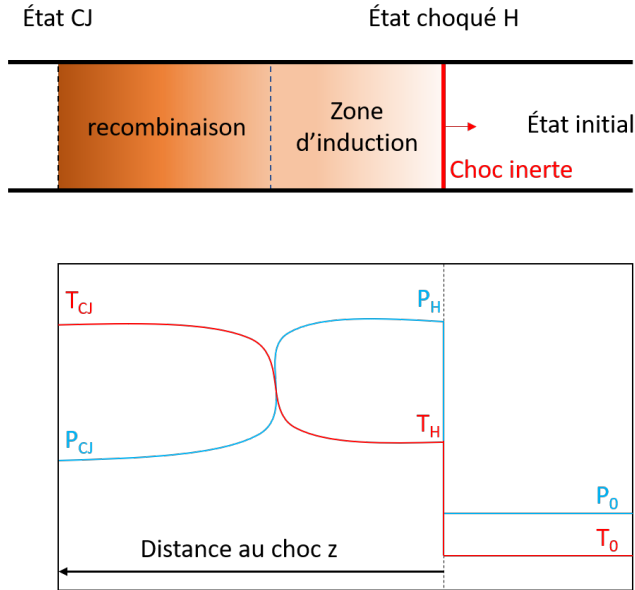


FIGURE 2.3 – Schéma de la zone de réaction dans le modèle ZND pour une détonation sonique et profils qualitatifs de la pression et la température correspondants.

2.1.4 Réalité expérimentale : la structure cellulaire

Dans les milieux gazeux homogènes, les propriétés de la zone de réaction sont très sensibles aux variations infinitésimales de l'état thermodynamique, en particulier de la température post-choc (état H) qui détermine le processus d'initiation. En effet, la température post-choc est directement proportionnelle à la célérité D telle que $T_H \propto D^2$. Le temps caractéristique d'induction chimique peut être relié, en première approximation, à T_H , la température post-choc selon une loi de type Arrhenius, soit,

$$t_i \propto e^{\frac{E_a}{RT_H}} \quad (2.39)$$

La variation relative du temps d'induction par rapport à celle de la célérité du choc D est donnée par

$$\frac{\delta T_H}{T_H} = 2 \frac{\delta D}{D} \longrightarrow \frac{\delta t_i}{t_i} = 2 \frac{E_a}{RT_H} \frac{\delta D}{D} \quad (2.40)$$

Compte tenu des grandes valeurs de l'énergie d'activation réduite E_a/RT_H (15-50), une petite perturbation de D (1%) conduit à de très grandes variations relatives des temps (longueurs) chimiques caractéristiques de la zone de réaction ZND. La détonation ZND est donc instable, et de fait les expériences montrent que le front de détonation dans les gaz n'est pas une surface lisse. Il est constitué d'ondes de chocs à propagations longitudinales et transversales. Cette structure cellulaire est une caractéristique universelle des détonations gazeuses, elle constitue la signature expérimentale du couplage choc-combustion. Une méthode privilégiée pour l'étude de cette dynamique est de placer une plaque recouverte d'un dépôt de carbone parallèlement à la direction de propagation de la détonation. Cette méthode offre une représentation bidimensionnelle du phénomène. Dans cette représentation l'interaction des cellules de détonation avec la plaque montre des points triples dont le mouvement dessine des motifs en forme de diamants appelés. La figure 2.4 est un schéma de cette projection. Ce phénomène est périodique, chaque cellule débute par la collision de deux points triples qui génère localement une explosion très forte de $D \simeq 1.8D_{CJ}$. Puis, progressivement, la zone de réaction se découple du choc dont la célérité diminue jusqu'à $D \simeq 0.6D_{CJ}$ avant la collision de deux nouveaux points triples. Dans cette représentation, on utilise un paramètre fondamental lorsque la régularité des cellules le permet, à savoir, λ , la largeur de la cellule. En particulier, λ est utilisé pour caractériser le comportement dynamique des détonations, souvent constaté auto-semblable par rapport à λ , en première approximation. Elle permet aussi de caractériser la détonabilité d'un mélange : pour un système donné la détonabilité sera d'autant plus grande que la cellule est petite par rapport à la dimension transverse de ce système.

2.2 Déflagration : de la vitesse fondamentale aux modes d'accélération

La déflagration est l'onde de combustion subsonique par rapport à l'état initial. Contrairement à la détonation, elle modifie donc son état initial. Ses mécanismes de propagation sont la diffusion de chaleur et de matière. Le gradient de température et de densité dans le front résulte en un transport de chaleur et d'espèces réactives de la zone de réaction vers le gaz frais. Sa vitesse étant proportionnelle à sa surface, une déflagration accélère continûment jusqu'à une transition abrupte en détonation. Cette accélération est provoquée par plusieurs mécanismes tels que : des instabilités spécifiques, la turbulence, les phénomènes de rétroaction et interactions acoustiques. Leurs prédominances respectives dépendent du moment de l'évolution du phénomène. Prédire la forme et la vitesse d'une déflagration à chaque instant de son développement est impossible théoriquement et actuellement inaccessible à la simulation numérique. Nous présentons un modèle de propagation laminaire de la déflagration, une synthèse qualitative de ses mécanismes d'accélé-

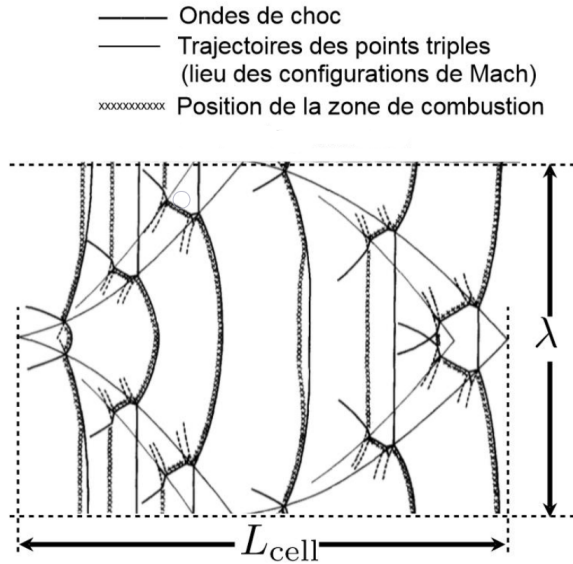


FIGURE 2.4 – Structure idéale 2D d'une cellule de détonation [20]. Pour une détonation multicellulaire on compte plusieurs cellules par section.

ration et de sa transition à la détonation.

2.2.1 Modèle de propagation laminaire de la déflagration

La déflagration CJ décrite comme une discontinuité faisant l'interface entre l'état initial 0 et l'état final 1 ne permet pas la satisfaction de la condition d'accroissement de l'entropie, elle n'est donc pas observable. La modification de l'état initial 0 lors de la propagation subsonique de la déflagration nécessite d'introduire un nouvel état initial 0' séparant l'état initial 0 au repos et l'état final 1. La séparation entre 0 et 0' et le front de la première onde acoustique généré par la propagation de la détonation (2.5). Le front de déflagration se propage donc sur un état initial 0' comprimé. Dans le plan (P, v) le pôle de la déflagration vu comme une discontinuité n'est donc plus le point 0. Cette configuration est présentée en figure 2.5 dans le cas d'un tube fermé.

Le modèle pour cette configuration permet de déterminer l'état pré-comprimé 0' et la vitesse "limite" maximale de propagation de l'onde D_{CJx} qui correspond à la déflagration décrite par le modèle CJ (Fig. 2.1).

La vitesse de l'écoulement des particules devant la flamme peut être déterminée en effectuant le bilan de masse pour le front de flamme

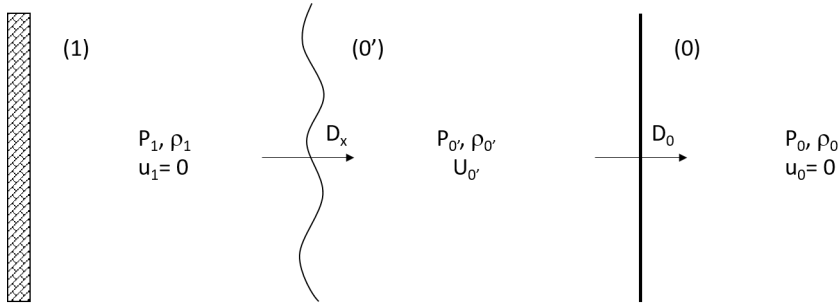


FIGURE 2.5 – Schéma représentant la propagation d'une flamme dans le cas d'un tube fermé. L'état initial noté 0 est modifié par les ondes de compressions formées par le front de flamme. En général, la flamme et les ondes de compression se déplacent à des vitesses différentes.

$$\rho_{0'}(D_x - u_{0'}) = \rho_1 D_x \longrightarrow u_{0'} = \left(1 - \frac{\rho_1}{\rho_{0'}}\right) D_x \quad (2.41)$$

Les équations de conservation de masse pour les discontinuités 0'-1 et 0-0 sont

$$\rho_{0'}(D_x - u_{0'}) = \rho_1 D_x \quad (2.42)$$

$$\rho_0 D_0 = \rho_{0'}(D_0 - u_{0'}) \quad (2.43)$$

pour les fronts de flamme et de compression, respectivement, d'où

$$(D_0 - u_{0'}) \left(\frac{1}{\rho_0} - \frac{1}{\rho_{0'}} \right) = (D_x - u_{0'}) \left(\frac{1}{\rho_1} - \frac{1}{\rho_{0'}} \right) \quad (2.44)$$

Les nombres de Mach pour la flamme et l'écoulement

$$\mathcal{M}_x = \frac{D_x - u_{0'}}{c_{0'}}, \quad \mathcal{M}_c = \frac{D_0 - u_{0'}}{c_{0'}} \quad (2.45)$$

permettent d'écrire 2.44 comme

$$\mathcal{M}_c \left(\frac{\rho_{0'}}{\rho_0} - 1 \right) = \mathcal{M}_x \left(\frac{\rho_{0'}}{\rho_1} - 1 \right) \quad (2.46)$$

Le rapport de masse spécifique pour un choc est donné par

$$\frac{\rho_{0'}}{\rho_0} = \frac{(\gamma + 1) \mathcal{M}_0^2}{2 + (\gamma - 1) \mathcal{M}_0^2} \quad (2.47)$$

où $\mathcal{M}_0 = D_0/c_0$ peut être écrit en fonction du nombre de Mach de l'écoulement

$$\mathcal{M}_0^2 = \frac{2 + (\gamma - 1) \mathcal{M}_c^2}{2\gamma \mathcal{M}_c^2 - (\gamma - 1)} \quad (2.48)$$

d'où le rapport de masse spécifique

$$\frac{\rho_{0'}}{\rho_0} = 1 + \frac{2}{\gamma + 1} \left(\frac{1}{\mathcal{M}_c^2} - 1 \right) \quad (2.49)$$

Si on s'intéresse à la solution CJ pour la déflagration ($\mathcal{M}_f = \mathcal{M}_{CJ}$). Le rapport de masse spécifique s'écrit

$$\frac{\rho_{0'}}{\rho_1} = \frac{\gamma \mathcal{M}_{CJ}^2 + 1}{(\gamma + 1) \mathcal{M}_{CJ}^2} \quad (2.50)$$

d'où, finalement

$$\frac{\mathcal{M}_c^2 - 1}{\mathcal{M}_c} = \frac{1}{2} \frac{\mathcal{M}_{CJ}^2 - 1}{\mathcal{M}_{CJ}}. \quad (2.51)$$

En négligeant $1/\mathcal{M}$ devant \mathcal{M}

$$\frac{\mathcal{M}_c}{\mathcal{M}_{CJ}} \simeq \frac{1}{2}. \quad (2.52)$$

Dans ce modèle, le nombre de Mach de l'écoulement dans l'état 0' pour une déflagration CJ est donc approximativement égal à la moitié du nombre de Mach pour une détonation CJ dans le même mélange.

Cette vitesse limite n'est observable que dans des cas particuliers où la flamme n'accélère que très légèrement sur de longues distances. En général, les conditions aux bords, les instabilités et la turbulence déclenchent une transition vers le régime de détonation avant que ces conditions d'observation ne soient satisfaites.

2.2.2 Mécanismes d'accélération de la flamme

Dans le cas d'un tube sans obstacle, une flamme accélère en raison de la mise en mouvement du fluide devant elle par l'expansion des produits. Cet écoulement induit des instabilités de type Landau-Darrius, et mène à une augmentation de la surface de la flamme et donc à une augmentation de sa vitesse effective de propagation (la vitesse de la flamme est proportionnelle à sa surface).

La présence de bords a des effets dominants sur la surface de la flamme et donc sur sa vitesse. La vitesse du fluide est nulle aux bords, l'expansion des produits crée ainsi des gradients latéraux de vitesse d'écoulement qui déforment la flamme. On observe alors une forme transitoire appelée "flamme tulipe" présentée en figure 2.6 avec la partie centrale de la flamme en retard par rapport aux bords.

Des instabilités supplémentaires s'ajoutent à celle de Landau-Darrius et influent sur la surface et la vitesse de la flamme. En particulier les instabilités de Kelvin-Helmholtz et de Rayleigh-Taylor peuvent influencer la surface de la flamme :

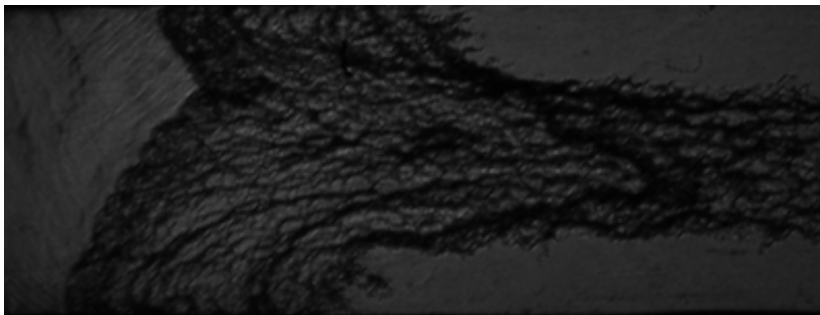


FIGURE 2.6 – Image en strioscopie pour une flamme tulipe se propageant vers la gauche dans un mélange $H_2 : O_2$ stoechiométrique à 600 mbar dans un tube de section 4cm^2 .

L'instabilité de Kelvin-Helmholtz se développe à l'interface de deux fluides de vitesse différentes. Le cisaillement visqueux induit des structures périodiques dans le fluide le plus rapide. L'instabilité de Rayleigh-Taylor se développe quand un fluide léger est poussé dans un fluide plus lourd. Des polypes du premier dans le second sont alors observés. La combinaison de ces instabilités crée une rétroaction entre la dynamique du front de flamme et son état initial qu'elle modifie jusqu'à des vitesses soniques permettant d'atteindre les conditions de sa transition à la détonation.

2.2.3 Transition déflagration-détonation

Les réactions chimiques dans une déflagration sont contrôlées par la diffusion thermique et les ondes de compression dans le milieu initial sont soutenues par l'expansion des produits. Pour une détonation, les réactions sont déclenchées par le choc.

La transition de la déflagration à la détonation s'effectue de manière abrupte. Lors des processus d'accélération de la flamme, les ondes de compression finissent par coalescer et former un choc précurseur devant le front de déflagration, donnant naissance localement à une détonation entre la flamme et le choc. Cette détonation de vitesse $D > D_{CJ}$ rattrape le choc précurseur puis relaxe vers la détonation régime CJ. Ce pré-conditionnement peut être dû à des turbulences, des instabilités, des effets géométriques de bord ou à l'effet des ondes de compression sur le fluide en amont. En pratique l'apparition de la détonation survient à la paroi du tube selon les poids respectifs de :

- l'initiation directe par choc,
- l'existence de gradients de température dans la couche de turbulence,
- les gradients de densité dus à la turbulence,
- ...

Dans ce contexte, une composante fondamentale sur l'émergence du phénomène de détonation est le mécanisme des gradients de temps d'induction proposé par Zel'dovich. L'onde de combustion se propage alors selon les directions de plus petits temps d'induction. La vitesse de propagation de cette onde est ainsi donnée par

$$D = \frac{1}{\nabla t_i} \quad (2.53)$$

où t_i est le temps d'induction. Une détonation stable peut être initiée si l'onde de combustion se couple au choc.

2.3 Détonabilité

La détonabilité d'un mélange réactif peut être définie comme la mesure de la capacité du mélange à accepter la détonation pour une géométrie donnée. Dans cette étude nous avons cherché à quantifier cette grandeur dans deux cas :

- lors de la modification par action du plasma sur l'état initial devant une détonation déjà établie.
- lors de l'allumage d'une flamme avec ou sans plasma.

Le premier cas considère une détonation déjà existante, nous avons étudié son paramètre dynamique représenté par la largeur moyenne des cellules de détonation. Le second cas considère une détonation en devenir. Nous avons choisi comme paramètre celui lié à sa formation, soit la longueur de transition déflagration-détonation.

2.3.1 La largeur moyenne des cellules de détonation

La largeur moyenne λ des structures cellulaires est mesurée sur les traces longitudinales dessinées par le front de détonation sur une feuille recouverte d'un dépôt de carbone. C'est une mesure de la sensibilité à la détonation d'un mélange réactif considéré. Le mélange est sensible quand sa largeur de cellule est petite devant les dimensions transversales du tube dans lequel l'onde se propage. La détonabilité est d'autant plus importante que les cellules sont petites. Cette largeur λ dépend de la nature du mélange, de la stoechiométrie, de la dilution, de la présence d'espèces radicalaires ou d'ions et des conditions initiales de pression et température. En particulier, pour de nombreux mélanges une dépendance de λ sur pression initiale P_0 est approximativement

$$\lambda = AP_0^{-n}, 1.1 < n < 1.3. \quad (2.54)$$

De nombreux travaux, à la suite de Shchelkin et Troshin, ont abouti à une corrélation linéaire entre λ et la longueur d'induction associée au modèle ZND plan, très approximative mais robuste,

$$\lambda = kl_i, k \simeq 15 - 50 \quad (2.55)$$

L'hypothèse principale est que les réactions d'induction chimiques sont limitantes par rapport à la recombinaison du processus de combustion. A ce jour il n'est pas possible de prédire la largeur moyenne des cellules en fonction des conditions initiales de composition, de pression et de température. Pour notre part nous avons utilisé nos mesures et celles compilées dans la base de données en ligne, Caltech. Par ailleurs, la notion de largeur moyenne est en elle-même un concept critiquable en raison du caractère 3D des structures cellulaires de détonation.

2.3.2 La longueur de transition déflagration-détonation

La longueur de transition déflagration-détonation sépare le point d'allumage du mélange réactif de celui point où l'on observe l'apparition de la détonation avant l'établissement de la détonation auto-soutenue.

La détonabilité d'un mélange pour des conditions données est d'autant plus élevée que la longueur de transition est petite. Cette longueur est dépendante de plusieurs facteurs : nature du mélange, stoechiométrie, dilution, conditions initiales de pression et de température, présence d'obstacles, longueur du tube, nature de l'allumage. En l'état actuel des moyens de simulation elle n'est accessible que par l'expérience. Elle permet de mesurer les variations de la détonabilité lorsque l'on fait varier un seul paramètre. Par exemple, elle sera plus courte à mesure que la pression augmente.

Dans ce travail, nous avons réalisé une étude comparative de deux allumages du mélange. Il ne s'agit plus de modifier l'état initial dans lequel la détonation va se propager mais de chercher les conditions initiales les plus favorables à formation de la détonation. La réduction de la longueur de transition selon la nature de l'allumage peut résulter de plusieurs facteurs :

- l'énergie déposée dans le gaz,
- le nombre de points d'allumage,
- le volume de la source d'énergie,
- la durée du dépôt d'énergie ...

Nous avons donc étudié les différences entre un allumage conventionnel par bougie automobile (allumage thermique) et un allumage par plasma nanoseconde (allumage avec pre-dissociation du gaz). Les différences de longueur de transition

selon le mode d'allumage indiquent une variation de la détonabilité du mélange.

Il est possible d'amorcer directement une onde de détonation sans transition. Cependant, une quantité importante d'énergie déposée est alors nécessaire (plusieurs Joules) en particulier à très haute pression initiale. Il est plus facile d'agir sur la longueur de TDD.

Chapitre 3

Plasma nanoseconde hors-équilibre, promoteur de la chimie

Sommaire

3.1 Propriétés physiques des plasmas	41
3.1.1 Gaz faiblement ionisé : les électrons, acteurs de la chimie	41
3.1.2 Mobilité et diffusion électronique	43
3.1.3 Énergie des électrons dans un plasma	45
3.2 Fonction de distribution des électrons	47
3.2.1 Equation de Boltzmann et FDE	47
3.2.2 Termes de collisions	49
3.2.3 FDE à l'équilibre et hors équilibre thermodynamique . .	50
3.3 Production d'espèces chargées et d'un milieu excité .	51
3.3.1 Distribution de l'énergie	51
3.3.2 Processus d'ionisation	52
3.3.3 Oxygène promoteur des réactions de combustion	53

3.1 Propriétés physiques des plasmas

3.1.1 Gaz faiblement ionisé : les électrons, acteurs de la chimie

Le terme plasma est utilisé pour décrire un gaz dont une partie ou la totalité des atomes sont ionisés tout en restant électriquement neutre à l'échelle macroscopique. Le résultat est un milieu excité qui admet des effets collectifs des particules chargées notamment en présence de champ électrique ou magnétique extérieur. Il

existe une grande variété de plasmas et ils peuvent être répertoriés selon plusieurs critères. En particulier, on distingue les plasmas à l'équilibre des plasmas hors équilibre. Les plasmas à l'équilibre ont leurs températures électroniques, rotationnelles et vibrationnelles à l'équilibre avec en plus la température du gaz et la densité électronique qui sont très élevées. C'est par exemple le cas des plasmas solaires. Les plasmas hors équilibre ont leurs températures électroniques, rotationnelles et vibrationnelles très différentes avec une température du gaz relativement faible, souvent la température ambiante, et une densité électronique faible également. C'est par exemple le cas des plasmas nanosecondes, des décharges RF, DBD, etc.

Le choix du type de plasma dépend alors des besoins expérimentaux et se justifie par les conditions initiales. La table 3.1.1 présente les caractéristiques habituelles pour des plasmas à l'équilibre (de type arc et spark) et hors-équilibre (nanoseconde, DBD et streamer). Ainsi, on voit que l'énergie pour chauffer le gaz dans le cas d'un plasma à l'équilibre (jusqu'à 10^4 K) nécessite des valeurs de courant très importante. C'est pourquoi on envisage de plus en plus des décharges alternatives pouvant opérer à des conditions atmosphériques en étant compétitives avec les décharges à l'équilibre. Ces décharges ont une température électronique élevée et sont ainsi beaucoup plus actives chimiquement. En effet, on observe une production importante d'espèces radicalaires et excitées par des processus électroniques, de dissociation et d'excitation. Tous ces processus sont dépendants de l'énergie des électrons du plasma qui sont gouvernés par le champ électrique réduit E/N . Ainsi le champ électrique extérieur appliqué et la pression initiale définissent la fonction de distribution électronique (FDE). Il convient de l'étudier pour comprendre pourquoi les électrons sont les principaux acteurs de la chimie dans un plasma hors équilibre.

	Arc	Nanoseconde	DBD	Streamer	Spark
Pression(atm)	10-20	10^{-3} -20	10^{-3} -1	0.1-1	10-20
Courant(A)	$1-10^5$	50-1000	10^{-4} - 10^{-3}	10^{-4} - 10^{-3}	$1-10^5$
Voltage(kV)	0.01-0.2	1-100	1-10	10-100	10-100
T_g (K)	$3000-10^4$	300-600	300-500	300-500	$500-2 \cdot 10^4$
T_e (K)	0.5-2	5-30	1-5	1-3	1-5
Référence	[49]	[30, 50]	[30]	[49]	[49]

TABLE 3.1 – Caractéristiques tirées de la littérature pour des plasmas hors équilibre et à l'équilibre.

3.1.2 Mobilité et diffusion électronique

Dans un gaz faiblement ionisé, la trajectoire des électrons est induite par un mouvement aléatoire et un mouvement de dérive qui les accélère le long des lignes de champ électrique \mathbf{E} . Chaque collision modifie sans direction préférentielle la trajectoire des électrons qui sont par la suite à nouveau accélérés par le champ. La plupart des collisions sont réalisées avec les espèces neutres du gaz à cause du faible taux d'ionisation.

Mouvement moyen des électrons

Pour trouver l'équation régissant le mouvement moyen des électrons, on s'intéresse au mouvement d'un électron pour lequel le temps de collision avec les espèces neutres est très court devant le temps entre deux collisions. Dans ce cas, on écrit l'équation du mouvement telle que

$$m\dot{\mathbf{v}}_e = e\mathbf{E} + \sum_i m\Delta\mathbf{v}_i\delta(t - t_i) \quad (3.1)$$

où $\Delta\mathbf{v}_i = \mathbf{v}_e' - \mathbf{v}_e$ correspond aux changements du vecteur vitesse pour la collision i à l'instant t_i et δ est la fonction delta de Dirac. Pour passer du mouvement d'un électron au mouvement des électrons il faut moyenner l'équation 3.1 en décomposant le vecteur vitesse en une partie parallèle v_{\parallel} et une partie perpendiculaire v_{\perp} à la vitesse moyenne avant la collision. Par des arguments de symétrie on a $\langle\Delta\mathbf{v}_{\perp}\rangle = \langle\Delta\mathbf{v}'_{\perp}\rangle = 0$ parce que les particules sont orientées sans directions préférentielles après une collision. La masse des électrons étant très faible comparée à celle des neutres (facteur 1/2000 pour l'hydrogène) la norme de la vitesse est pratiquement inchangée lors d'une collision élastique (collisions les plus fréquentes), ainsi

$$\langle\Delta\mathbf{v}_{\parallel}\rangle = \langle\Delta\mathbf{v}'_{\parallel}\rangle - \mathbf{v} = \mathbf{v} \langle\cos\theta\rangle - \mathbf{v} = -\mathbf{v}(1 - \overline{\cos\theta}) \quad (3.2)$$

où $\overline{\cos\theta}$ représente la moyenne du cosinus de l'angle après une collision. La forme moyennée sur la vitesse, l'angle de collision et le moment de collision t_i de 3.1 est donnée par

$$m\dot{\mathbf{v}} = e\mathbf{E} + m\nu\nu_m, \quad \nu_m = \nu_c(1 - \overline{\cos\theta}) \quad (3.3)$$

où $\nu_c = Nv\sigma_c$ représente la fréquence de collisions des électrons avec les neutres, N la densité de particules par cm^3 et σ_c la section efficace de collision. La fréquence σ_m est appelée fréquence de collision effective pour le transfert de quantité de mouvement et dans le cas d'un gaz isotrope on a $\sigma_m = \sigma_c$

Mouvement de dérive associé au champ \mathbf{E}

En présence d'un champ électrique externe, les électrons sont accélérés dans la direction du champ électrique dans le sens opposé au vecteur \mathbf{E} . Pour déterminer la vitesse de dérive associée à ce mouvement il faut intégrer l'équation 3.3 sur un temps suffisamment long.

$$\mathbf{v}(\mathbf{t}) = -(e\mathbf{E}/m\nu_m)(1 - e^{-\nu_m t}) + \mathbf{v}(\mathbf{0})e^{-\nu_m t} \quad (3.4)$$

Les termes exponentiels tendent vers zéro pour un temps long, ainsi, après plusieurs collisions, la vitesse moyenne des électrons devient

$$\mathbf{v}_d = -e\mathbf{E}/m\nu_m \quad (3.5)$$

La vitesse peut alors être calculée mais, il est nécessaire de souligner que la fréquence de collision (ou section efficace) à une dépendance non linéaire avec l'énergie des électrons. Il est alors nécessaire d'appliquer une approche statistique de la cinétique des électrons.

Mobilité électronique

La mobilité électronique est définie comme le coefficient de proportionnalité entre la vitesse de dérive des électrons et le champ électrique.

$$\mu_e = \frac{e}{m\nu_m}, \quad v_d = \mu_e E \quad (3.6)$$

L'énergie moyenne des électrons dépend du champ électrique appliqué et de la pression initiale, la vitesse v_d n'est pas une fonction linéaire de E . Pour avoir une valeur exacte de la mobilité il faut alors considérer les sections efficaces des processus électroniques dans le plasma et leur dépendance à l'énergie des électrons ou E/N .

La mobilité des ions est négligeable devant celle des électrons, dans le cadre de notre étude ils ne participent donc que très peu au courant. Pour un plasma faiblement ionisé, avec $n_e = n_+$, la densité de courant j et la conductivité σ associée sont données par

$$j = -en_e \nu_e E = \sigma E \quad (3.7)$$

$$\sigma = e\nu_e n_e = \frac{e^2 n_e}{m\nu_m}. \quad (3.8)$$

Ainsi, la conductivité d'un plasma faiblement ionisé est déterminée par son degré d'ionisation n_e/N . Dans le cas où ce degré d'ionisation est élevé, les collisions entre électrons doivent être considérées. Ces collisions ont la particularité de

globalement accélérer les électrons dans la direction du champ électrique. On parle alors de Maxwellisation de la distribution en vitesse (ou en énergie).

3.1.3 Énergie des électrons dans un plasma

Energie gagnée après une collision

L'énergie d'un électron est définie en considérant sa vitesse comme la somme de sa vitesse aléatoire après une collision et sa vitesse de dérive telle que $\mathbf{v}_e = \mathbf{v} + \mathbf{v}_d$. Jusqu'à la prochaine collision on a

$$\Delta\epsilon_E = \frac{eE v_d}{\nu_m} = m v_d^2 \quad (3.9)$$

L'électron, entre chaque collision, acquiert une énergie cinétique dont la norme est fortement dépendante du champ électrique appliqué. Lors d'une collision, l'énergie peut être transférée et le processus recommence. Immédiatement après la collision, la vitesse de l'électron est aléatoire, ainsi la moyenne de cette vitesse est un vecteur $\mathbf{0}$.

Ce résultat se généralise aisément pour un grand nombre d'électrons. En effet, les électrons peuvent être accélérés ou décélérés en fonction de la direction de leur vitesse aléatoire v après une collision. Il suffit alors de considérer des paires d'électrons, pour chaque électron de vitesse v après une collision, il existe un électron de vitesse $-v$ qui se dirige dans la même direction mais avec un sens opposé. Leurs énergies cinétiques initiales sont alors identiques, et, ils subissent le même effet du champ électrique tel que

$$\Delta\epsilon_+ = \frac{m(v + v_d)^2}{2} - \frac{mv^2}{2} = m v v_d + \frac{m v_d^2}{2} \quad (3.10)$$

$$\Delta\epsilon_- = \frac{m(-v + v_d)^2}{2} - \frac{mv^2}{2} = -m v v_d + \frac{m v_d^2}{2} \quad (3.11)$$

$$\Delta\epsilon_+ + \Delta\epsilon_- = m v_d^2 \quad (3.12)$$

L'énergie gagnée après une collision est toujours positive et ne dépend pas de v . La vitesse de dérive v_d est très faible en norme devant la vitesse aléatoire moyennée \bar{v} . Ainsi, le gain d'énergie dû au champ après une collision reste faible et on a

$$\Delta\epsilon_E \ll \Delta\epsilon_+ \ll \bar{\epsilon} = m \bar{v}^2 / 2 \quad (3.13)$$

avec $\bar{\epsilon}$ qui représente l'énergie cinétique moyenne des électrons.

Équation de l'énergie

Pour pouvoir ioniser le gaz les électrons doivent avoir une énergie suffisante afin de réaliser le processus d'ionisation par impact électronique. Ainsi, dans un plasma hors équilibre la température électronique T_e doit être relativement élevée. D'autre part, la densité de courant étant généralement faible, le chauffage par effet Joule est aussi très faible, le gaz ne chauffe que très peu. Ainsi, la température du gaz T est souvent assimilable à la température ambiante. Ainsi, on observe souvent $T_e \gg T$. Lorsque les électrons font des collisions ils transmettent une partie de leur énergie aux atomes et molécules. Ce processus ne s'effectue alors que dans une seule direction des électrons vers le gaz. Si $T_e = T$ alors le processus s'effectuerait dans les deux directions.

Pour une collision élastique, la quantité de mouvement perdue par l'électron correspond à celle gagnée par l'atome ou la molécule. Ainsi, l'énergie gagnée par le neutre est $(m\Delta v)^2/2M$. En moyenne un électron perd alors l'énergie

$$\Delta\epsilon = (m^2/2M) \langle (\Delta v)^2 \rangle \quad (3.14)$$

$$\langle (\Delta v)^2 \rangle = \langle (\mathbf{v}' - \mathbf{v})^2 \rangle = v^2 - 2v^2 \overline{\cos\theta} + v^2 = 2v^2(1 - \overline{\cos\theta}). \quad (3.15)$$

Cette énergie correspond à une fraction de l'énergie totale de l'électron $\epsilon = mv^2/2$ pour une collision élastique. On nomme le rapport de masse $\alpha = 2m/M$, et on écrit l'équation de variation de l'énergie pour un électron après une collision élastique

$$\frac{d\epsilon}{dt} = (\Delta\epsilon_E - \alpha\epsilon)\nu_m \quad (3.16)$$

L'énergie moyenne des électrons $\bar{\epsilon}$ peut être calculée exactement en considérant la fonction de distribution de l'énergie des électrons (ou de vitesse). Celle-ci est faible comparée aux potentiels élevés des réactions d'ionisation, et les pertes d'énergie sont faibles. Le gaz est principalement ionisé par les électrons "super-énergétiques" qui sont très rares. Le principal mécanisme de transfert de l'énergie des électrons aux neutres se fait via les collisions élastiques. Dans un gaz moléculaire, l'énergie est aussi transférée au gaz par l'excitation des niveaux vibrationnels et rotationnels mais dans ce cas le coefficient α prend une forme moins triviale. Lorsque le champ électrique est arrêté, il n'y a plus de source externe qui maintient le plasma. Les électrons dissipent alors leur énergie aux neutres à la fréquence $\nu_u = \alpha\nu_m$ (le temps nécessaire à un électron pour dissiper son énergie est $\tau_u = \tau_m/\alpha$).

3.2 Fonction de distribution des électrons

3.2.1 Equation de Boltzmann et FDE

Il est possible d'obtenir un calcul approximatif de grandeurs du plasma comme la conductivité, l'effet Joule des électrons et la permittivité avec une approche particulière pour les électrons. Cette approche devient inefficace lorsqu'on souhaite analyser des effets plus complexes comme l'ionisation, l'excitation des atomes, l'excitation des molécules, etc. Pour ce faire il faut construire la fonction de distribution des électrons (en vitesse ou en énergie) qui permet de décrire les interactions des électrons avec les neutres mais aussi avec le champ électrique appliqué.

La fonction de distribution en vitesse $f(t, \mathbf{r}, \mathbf{v})$ est définie comme une densité de probabilité dans le modèle statistique classique. La quantité $f d\mathbf{r} d\mathbf{v}$ exprime le nombre d'électrons à un moment t se trouvant dans l'élément de volume $d\mathbf{r}$ autour du point \mathbf{r} et se trouvant dans l'élément de volume $d\mathbf{v}$ autour du point \mathbf{v} dans l'espace des phases associé. La situation présente une direction préférentielle, celle du vecteur \mathbf{E} , il est alors naturel d'adopter un système de coordonnées sphériques autour de cette direction. On a $d\mathbf{v} = v^2 dv d\Omega$ avec $d\Omega = \sin\psi d\psi d\phi$ un élément d'angle solide. Il est par la suite aisé de passer de la distribution en vitesse $f(\mathbf{v})$ à la distribution en norme des vitesses $\Phi(v)$ et à celle en énergie $n(\epsilon)$ ($\epsilon = mv^2/2$).

$$v^2 dv \int f(\mathbf{v}) d\Omega = \Phi(v) dv = n(\epsilon) d\epsilon \quad (3.17)$$

La connaissance de la fonction de distribution permet de calculer les grandeurs qui caractérisent les électrons dans un plasma. Intégrer la fonction avec toutes les composantes du vecteur vitesse nous donne l'information sur la densité locale $n_e(t, \mathbf{r})$. On peut alors par exemple déterminer la densité de courant comme

$$\mathbf{j}(t, \mathbf{r}) = -e \int \mathbf{v} f(\mathbf{v}) d\mathbf{v} \quad (3.18)$$

Équation de Boltzmann

On considère un élément de volume de l'espace des phases autour des points \mathbf{r} et \mathbf{v} . On dénote le volume $d\mathbf{r} d\mathbf{v} = d\Gamma$ qui contient $f d\Gamma$ particules. Le nombre de particules dans ce volume change naturellement (sans collisions), les particules avec la vitesse \mathbf{v} modifient leur position et si une force extérieure est appliquée elles sont accélérées et leur vitesse change également. De façon identique, des particules peuvent entrer ou sortir de ce volume suite à une collision par gain/perte de vitesse ou création/destruction. Pour obtenir la variation du nombre de particules il faut considérer un volume à 6 dimensions (et de manière imagée 12 faces). Le nombre de particules pénétrant dans le volume par une face est donné par $(f v_z)_z dx dy dz dv_z dv_y dv_x$. Le nombre de particules sortant du volume par la face

opposée est donné par $(fv_z)_{z+dz}dx dy dz dv_x dv_y dv_z$. La différence des deux donne l'accumulation des particules dans le volume pour cette coordonnée.

$$[(fv_z)_z - (fv_z)_{z+dz}]dx dy dz dv_x dv_y dv_z = -[\partial(fv_z)/\partial t]d\Gamma \quad (3.19)$$

Cette opération peut être réalisée pour les 6 coordonnées, et en considérant les variations temporelles on obtient une équation pour l'évolution du nombre de particules dans le volume $d\Gamma$. Les collisions contribuent à cette évolution et peuvent être traitées de façon indépendante.

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(fv_x) + \dots + \frac{\partial}{\partial v_x}(fw_x) + \dots = \left(\frac{df}{dt}\right)_{col} \quad (3.20)$$

Les coordonnées sont indépendantes les unes des autres, les dérivées de type $\partial v_i/\partial i$ sont donc nulles et de la même façon l'accélération dans un champ électrique ne dépend que de la position telle que $\partial w_i/\partial v_i=0$. En considérant la dérivée hydrodynamique on peut alors écrire 3.20 comme

$$\frac{df}{dt} = \left(\frac{df}{dt}\right)_{col} \quad (3.21)$$

Électrons dans un champ électrique

On se place dans la situation d'un champ électrique extérieur appliqué aux électrons. La force appliquée $\mathbf{F} = -e\mathbf{E}$ permet d'écrire 3.21 telle que

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla f - \frac{e\mathbf{E}}{m} \cdot \nabla_v f = \left(\frac{df}{dt}\right)_{col} \quad (3.22)$$

Le système de coordonnées adapté est sphérique. Si le champ appliqué est uniforme dans l'espace, la dépendance de f aux coordonnées spatiales est réduite aux régions près des murs. On peut ignorer cette dépendance en considérant un espace totalement uniforme.

$$\frac{\partial f}{\partial t} - \frac{eE}{m}(\cos\psi \frac{\partial f}{\partial v} + \frac{\sin^2\psi}{v} \cdot \frac{\partial f}{\partial(\cos\psi)}) = \left(\frac{df}{dt}\right)_{col} \quad (3.23)$$

Partie symétrique et asymétrique de la fonction de distribution

La présence d'un champ électrique produit une anisotropie et la fonction de distribution a une dépendance en ψ qui représente l'angle entre le vecteur vitesse des particules et le vecteur champ. Le champ accélère les électrons et produit ainsi un excès d'électrons dans une direction privilégiée ce qui crée des asymétries dans la fonction de distribution.

En présence d'un champ électrique modéré, les anisotropies causées sont faibles et on peut les considérer comme des corrections au terme symétrique de la fonction.

On peut exprimer la fonction de distribution comme les deux premiers termes d'un polynôme de Legendre telle que

$$f = f_0 + f_1 \cos \psi \quad (3.24)$$

Le sens physique de ces fonctions est tel que f_0 représente la fonction de distribution en énergie et la partie asymétrique $f_1 \cos \psi$ le courant électrique. Cette approximation est valide uniquement si $f_1 \ll f_0$ c'est-à-dire pour des champs électriques modérés.

3.2.2 Termes de collisions

Pour un gaz faiblement ionisé on néglige les collisions des électrons avec des électrons et des ions. Cette hypothèse permet de considérer uniquement les collisions avec les neutres, au repos, qui n'ont pas de fonction de distribution. On sépare le terme collisionnel en une partie élastique et une partie inélastique. Le terme inélastique contient tous les processus d'excitation d'atome ou de molécule, de gain ou perte d'électrons par ionisation ou recombinaison. Ces processus sont réalisés par les électrons les plus énergétiques (très peu nombreux) et sont donc moins fréquents que les processus élastiques. La fonction de distribution est construite en majorité par les collisions élastiques.

$$\left(\frac{df}{dt}\right)_{col} = \left(\frac{df}{dt}\right)_{el} + \left(\frac{df}{dt}\right)_{inel} \quad (3.25)$$

Intégrale de collision

L'intégrale de collision désigne le terme des collisions élastiques. Avec l'hypothèse que les neutres sont au repos et que leur masse est infiniment grande devant celle des électrons on considère que la vitesse et l'énergie des électrons sont conservées lors d'une collision. En réalité, ces collisions sont accompagnées d'un petit transfert d'énergie qu'il est possible d'ajouter après avoir résolu le problème sans perte.

Cette intégrale prend en compte le nombre d'électrons avec la vitesse \mathbf{v} qui change vers la vitesse \mathbf{v}' suite à une collision élastique. La norme du vecteur étant conservée on ne s'intéresse qu'au changement de direction $\mathbf{\Omega}$. On peut écrire $f(\mathbf{v}) = f(v, \mathbf{\Omega})$ et on dénote $f(\mathbf{\Omega})d\Omega\nu_c(v)$ le nombre d'électrons sortant de l'angle solide $d\Omega$ autour de la direction $\mathbf{\Omega}$ par seconde. On note $q(v, \mathbf{\Omega}, \mathbf{\Omega}')d\Omega'$ la probabilité pour un électron de passer de $\mathbf{\Omega}$ à $\mathbf{\Omega}'$ après une collision. Les nombres d'électrons sortant et pénétrant dans le volume $d\Omega$ sont donnés par

$$\nu_c \int_{\Omega'} f(\mathbf{\Omega})d\Omega q(\mathbf{\Omega}, \mathbf{\Omega}')d\Omega' \quad (3.26)$$

$$\nu_c \int_{\Omega'} f(\Omega') d\Omega' q(\Omega', \Omega) d\Omega \quad (3.27)$$

La différence des deux nous donne la valeur de l'intégrale des collision élastiques en précisant que la probabilité de déviation d'une direction vers l'autre ne dépend pas de la direction initiale ou finale mais de l'angle relatif θ entre celles-ci.

$$\left(\frac{df}{dt}\right)_{el} = \nu_c(v) \int_{\Omega'} (f(\Omega') - f(\Omega)) q(\theta) d\Omega'. \quad (3.28)$$

3.2.3 FDE à l'équilibre et hors équilibre thermodynamique

Distribution Maxwellienne

Dans le cas d'un équilibre thermodynamique $(\partial f_0/\partial t) = 0$ et si on néglige les collisions inélastiques l'énergie des électrons gagnées par le champ est perdue dans les collisions élastiques pour chaque tranche d'énergie ϵ . **La fonction de distribution f_0 admet alors une solution pour un champ électrique continu et si on suppose que la fréquence de collision $\nu_m(v) = cst$.**

$$f_0 = C e^{(-\frac{3m^3}{Me^2 E^2} \int_0^v v \nu_m^2 dv)} \longrightarrow f_0 = C e^{(-\epsilon/KT_e)} \quad (3.29)$$

La fonction de distribution f_0 présente une distribution Maxwellienne qui quantifie la répartition des vitesses/énergies dans un gaz homogène à l'équilibre. L'hypothèse principale est que la fonction de distribution est construite par les collisions élastiques et seulement les électrons très énergétiques (très peu nombreux par rapport au nombre total d'électrons) font des collisions inélastiques. Ils n'ont alors d'effet que sur la queue de la fonction. Pour maintenir cette queue, il faut alors considérer les collisions de type électron-électron qui "repeuplent" les hautes énergies de la distribution. Les limites de la distribution Maxwellienne sont donc données par un équilibre thermodynamique et un degré d'ionisation relativement élevé.

Distribution de Druyvesteyn

$$f_0 = C_D e^{(-3m\epsilon^2/M(eEl)^2)} \quad (3.30)$$

Dans le cas où le degré d'ionisation est faible (champ électrique réduit faible) la distribution de Maxwell ne décrit plus correctement les électrons du plasma. Les collisions inélastiques dépeuplent les tranches les plus énergétiques de la distribution de façon irréversible (pas de collision électron-électron). La distribution est alors construite uniquement par les collisions élastiques et la queue de la fonction est beaucoup moins étalée que dans le cas d'une Maxwellienne. **Ce n'est plus la fréquence de collision qui est considérée constante mais c'est la section**

efficace de collision (ou le libre parcours moyen l). Un exemple qualitatif de la différence des distributions est présenté en figure

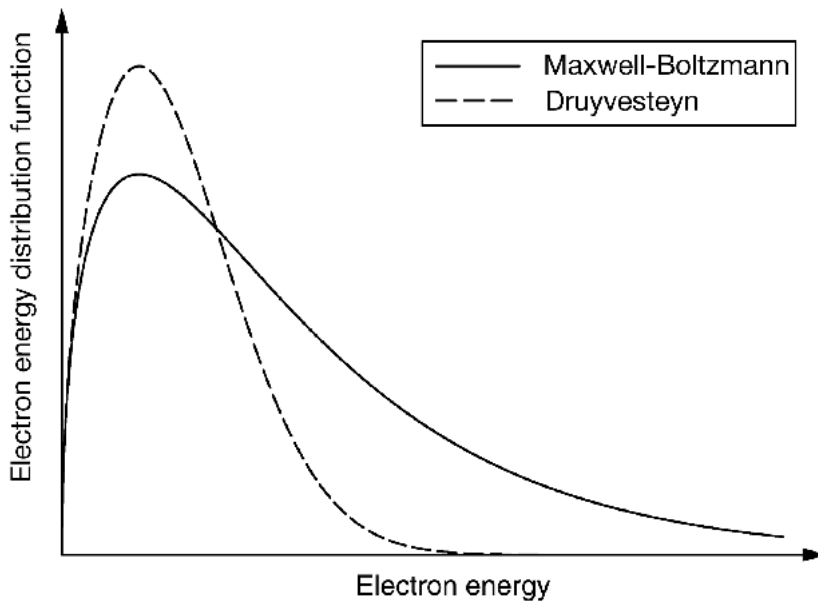


FIGURE 3.1 – Différence qualitative entre une distribution de Maxwell et de Druyvesteyn pour les électrons. [21]

3.3 Production d'espèces chargées et d'un milieu excité

3.3.1 Distribution de l'énergie

La résolution de l'équation de Boltzmann permet d'obtenir la fonction de distribution électronique en utilisant comme input les différentes sections efficaces de collision des processus considérés. La fonction de distribution permet par la suite de calculer la répartition de l'énergie pour les différents processus électroniques dans le plasma en fonction du champ électrique extérieur. La figure 3.2 présente la répartition de l'énergie pour un plasma d'azote (N_2). Pour des champs faibles la majorité de l'énergie va dans l'excitation rotationnelle/translotionnelle pour les atomes et vibrationnelle pour les molécules. À partir de 100 Td, l'énergie est dirigée vers l'excitation électronique des molécules qui mène à une dissociation et à la création de radicaux libres. Le processus d'ionisation, nécessaire à l'existence du plasma devient prédominant à partir de 1000 Td.

Les plasmas nanoseconde permettent d'obtenir, pour un court instant, des champs électroniques réduits très importants (200 à 1000 Td). Ces champs forts permettent alors d'avoir accès aux processus d'excitation et d'ionisation du gaz comme processus dominants. L'ionisation importante génère d'autant plus d'électron qui vont à leur tour faire des collisions avec d'autre électrons et peupler la queue de la Maxwellienne augmentant ainsi le nombre de collisions inélastiques. On observe une boucle de rétroaction positive. Le deuxième avantage réside dans le fait qu'en quelques nanosecondes le chauffage du gaz par effet Joule est négligeable et on a un milieu où seuls les électrons participent à la chimie. Quand le champ électrique est arrêté, de nombreux processus de recombinaison prennent lieu à des niveaux beaucoup moins importants.

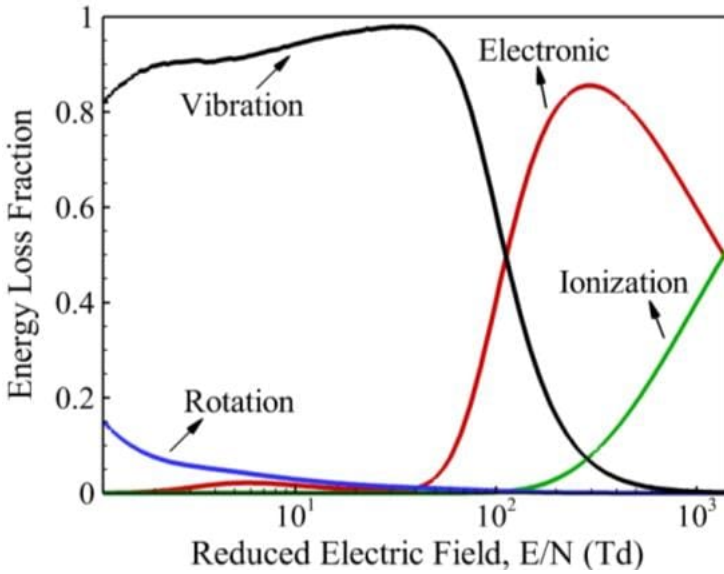


FIGURE 3.2 – Répartition de l'énergie dans les différents processus électroniques en fonction de du champ électrique réduit appliqué. [22]

3.3.2 Processus d'ionisation

Fréquence d'ionisation

L'ionisation par impact électronique est le processus dominant pour la génération d'électrons dans le plasma. La vitesse de ce processus est exprimée par $(dn_e/dt)_i = \nu_i n_e$. Le processus est dépendant de la fréquence d'ionisation ν_i qui est le nombre d'ionisations produites par les électrons par seconde à laquelle on associe $\sigma_i(v)$ la section efficace d'ionisation d'un atome dans son état fondamental.

$$\nu_i = N \langle v \sigma_i(v) \rangle \quad (3.31)$$

3.3. PRODUCTION D'ESPÈCES CHARGÉES ET D'UN MILIEU EXCITÉ 53

La fréquence d'ionisation est donc dépendante de la densité de neutre N , de l'énergie des électrons et de la section efficace du processus d'ionisation (qui dépend aussi de l'énergie). Dans le cas d'une distribution Maxwellienne, la fréquence d'ionisation est directement déterminée par la température électronique. Cette température est toujours plus basse que le potentiel d'ionisation I mais les atomes sont ionisés par les électrons super-énergétiques contenus dans la queue de la distribution. La fréquence d'ionisation est donnée par

$$\nu_i = N\bar{\nu}C_i(I + 2kT_e)e^{-I/kT_e}. \quad (3.32)$$

Processus d'ionisation secondaires

On dénombre d'autres processus d'ionisation dans les plasmas mais ils sont beaucoup moins importants :

- La photoionisation se produit lorsque des photons sont assez énergétiques pour arracher un électron à un atome neutre. Ce processus permet par exemple de fournir des électrons aux premiers instants d'une avalanche électronique dans le cas de la naissance et la propagation d'un streamer.
- L'ionisation par désexcitation d'atome est en principe possible mais elle nécessite des atomes dont le temps de vie dans un état excité est assez long pour qu'ils puissent réaliser des collisions avant de perdre leur énergie. C'est le cas des métastables. Les sections efficaces de ces processus restent faibles devant celle d'ionisation par impact électronique.
- La génération d'électrons sur les parois et les électrodes aussi appelée émission secondaire est très peu conséquente dans un plasma hors équilibre où le courant est très faible. Ces électrons sont arrachés aux atomes par des impacts cinétiques. Si le volume du plasma est grand devant la surface des électrons, ce qui est souvent le cas, cette émission est négligeable.

3.3.3 Oxygène promoteur des réactions de combustion

Le plasma nanoseconde favorise la production d'espèces excitées et d'ions par les électrons super-énergétiques. Dans le domaine de la combustion assistée par plasma on génère des plasmas dans des mélanges O_2 :Fuel :Diluant. La dilution est souvent effectuée dans un gaz rare, inerte du point de vue de la combustion. La présence d'une telle espèce dans le plasma, l'argon par exemple, permet d'obtenir des niveaux atomiques excités qui vont relaxer leur énergie dans le gaz par la suite, agissant comme une espèce intermédiaire transformant l'énergie cinétique des électrons en énergie chimique. Dans un tel contexte on observe une production importante des espèces excitées de l'oxygène, en particulier des radicaux O et OH. Les espèces radicalaires sont, par définition, des atomes ou molécules possédant un électron non-appareillé. En présence de radicaux libres, des réactions d'oxydation en chaîne se produisent et les grosses molécules du mélange sont détruites. La

figure 3.3 présente des résultats de simulation numérique des effets d'un plasma nanoseconde sur la génération de O et OH et la consommation de CH₄ effectuée pour 72 Torr et des fractions molaires $X_{fuel}=0.16$ et $X_{O_2}=0.34$ dilués dans l'hélium.

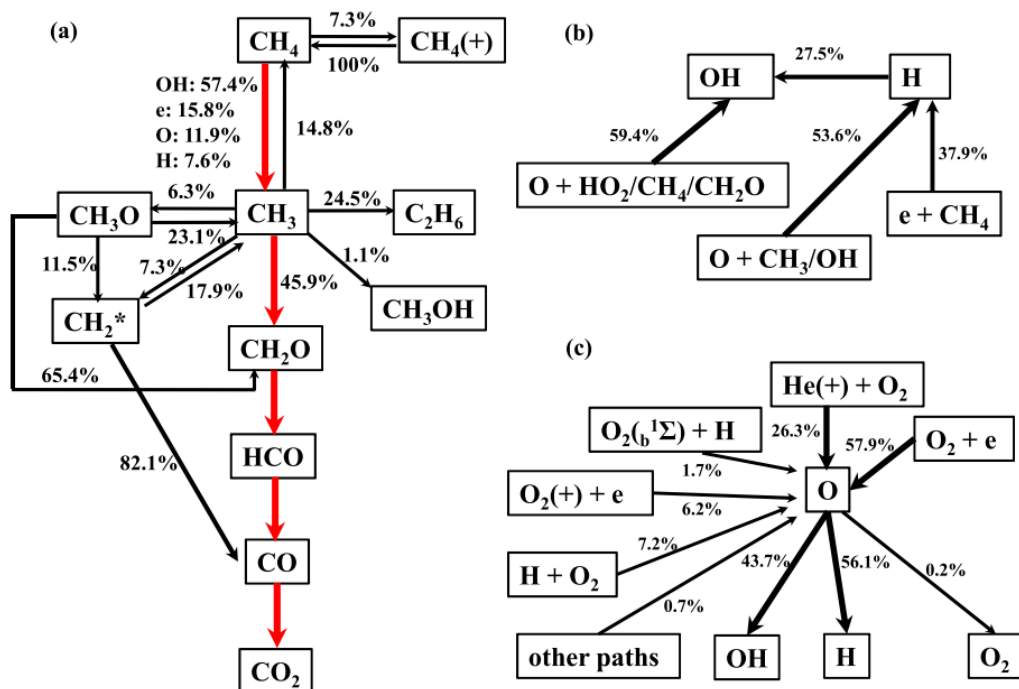


FIGURE 3.3 – Analyse numérique des différents chemins réactionnels pour a) la consommation de CH₄ (en rouge le chemin dominant) b) la formation de OH c) la formation de O. [23]

L'oxygène est majoritairement formé par dissociation par impact électronique ou par désexcitation des ions d'hélium He⁺. La molécule de OH est par la suite formée en combinant l'oxygène atomique à des morceaux d'hydrocarbures. La molécule de CH₄ est détruite principalement par OH, e ou O pour former CH₃. La production de radicaux par le plasma favorise un chemin de réaction pour lequel les réactions limitantes de brisage de chaînes sont raccourcies. Une quantité importante de petit fragments d'hydrocarbures est créée rapidement, et, les flèches ne vont que dans un sens signifiant que les processus inverses sont négligeables. La réactivité chimique du milieu est accrue par les effets du plasma.

Chapitre 4

Cinétiques chimiques et modélisations numériques

Dans ce chapitre on étudie le lien entre la cinétique du plasma nanoseconde hors-équilibre avec la cinétique de la réaction globale de combustion. La chimie impliquée dans les deux phénomènes est différente. Dans un plasma nanoseconde la chimie est dominée par des processus électroniques et la présence d'un champ électrique à forte valeur. Le résultat est un milieu excité à la réactivité chimique très importante. Dans une réaction de combustion, la chimie est dominée par des processus moléculaires de brisage de chaîne et de recombinaison en produits de la combustion (H_2O et CO_2 principalement). Les réactions limitantes sont souvent celles d'initiation ou induction qui produisent des espèces radicalaires. On veut étudier l'effet d'une pré-dissociation d'un gaz par le plasma sur les temps et longueurs caractéristiques des réactions de combustion dans un front de détonation. Pour ce faire, on a travaillé avec deux schémas cinétiques pour le plasma et pour la combustion et des codes de résolutions des équations de Boltzmann pour le plasma et des profils ZND pour la combustion. L'idée consiste à utiliser des résultats obtenus pour le plasma comme paramètres initiaux des calculs ZND.

Sommaire

4.1	Étude 0D de décharge nanoseconde hors équilibre . .	56
4.1.1	Outils numériques	56
4.1.2	Schéma cinétique	58
4.1.3	Validité du schéma	59
4.1.4	Implémentation des résultats dans un code ZND	65

4.1 Étude 0D de décharge nanoseconde hors équilibre

4.1.1 Outils numériques

Pour résoudre la cinétique chimique du plasma nous avons utilisé le module ZD-PlasKin développé par S. Pancheshnyi et. al [51]. Le code combiné à un solveur des équations de Boltzmann (BOLSIG+) permet de résoudre l'évolution de la densité des espèces dans un plasma hors équilibre et d'obtenir les valeurs des coefficients de transports des électrons pour des distributions électroniques non-Maxwelliennes.

Un schéma résumant le principe de fonctionnement du module ZDPlasKin et du solveur BOLSIG+ est présenté en figure 4.1. Les données sont :

- les conditions initiales de l'expérience. Si la densité électronique a été mesurée expérimentalement il est possible de l'ajouter. Sinon, il est suffisant de donner une densité électronique initiale et de vérifier les résultats obtenus en faisant un fit de courants.
- Un schéma cinétique comprenant une liste de réactions qui correspondent au type de plasma (durée, longueur, intensité) et aux conditions initiales (pression, température). Par exemple, les réactions à trois corps deviennent très importantes à pression atmosphérique. Les constantes de vitesse des réactions doivent aussi être spécifiées. Pour les réactions à impact électronique, les vitesses de réactions sont calculées par BOLSIG+ avec le fichier de sections efficaces fourni par l'utilisateur.
- Le champ électrique expérimental qui permet de calculer la fonction de distribution électronique et de résoudre l'équation de Boltzmann.

Il est possible de considérer l'évolution de la température du gaz en résolvant l'équation du transport de chaleur (approximation adiabatique isométrique). Dans notre cas, on considère que la température du gaz reste constante à l'échelle de la dizaine de nanosecondes. Il est également possible de considérer les collisions électron-électron à partir d'une certaine densité électronique. Ces collisions modifient la forme de la fonction de distribution et peuvent ainsi influencer sur les résultats. Dans notre cas la densité électronique est calculée à chaque itération. On définit le ratio $n_e/N = 10^{-3}$ comme la limite basse à partir de laquelle on considère les collisions électron-électron.

En sortie, on obtient l'évolution de la densité des espèces du plasma le temps de la décharge, l'évolution des constantes de vitesse, la température électronique et la fonction de distribution électronique en fonction du champ électrique réduit.

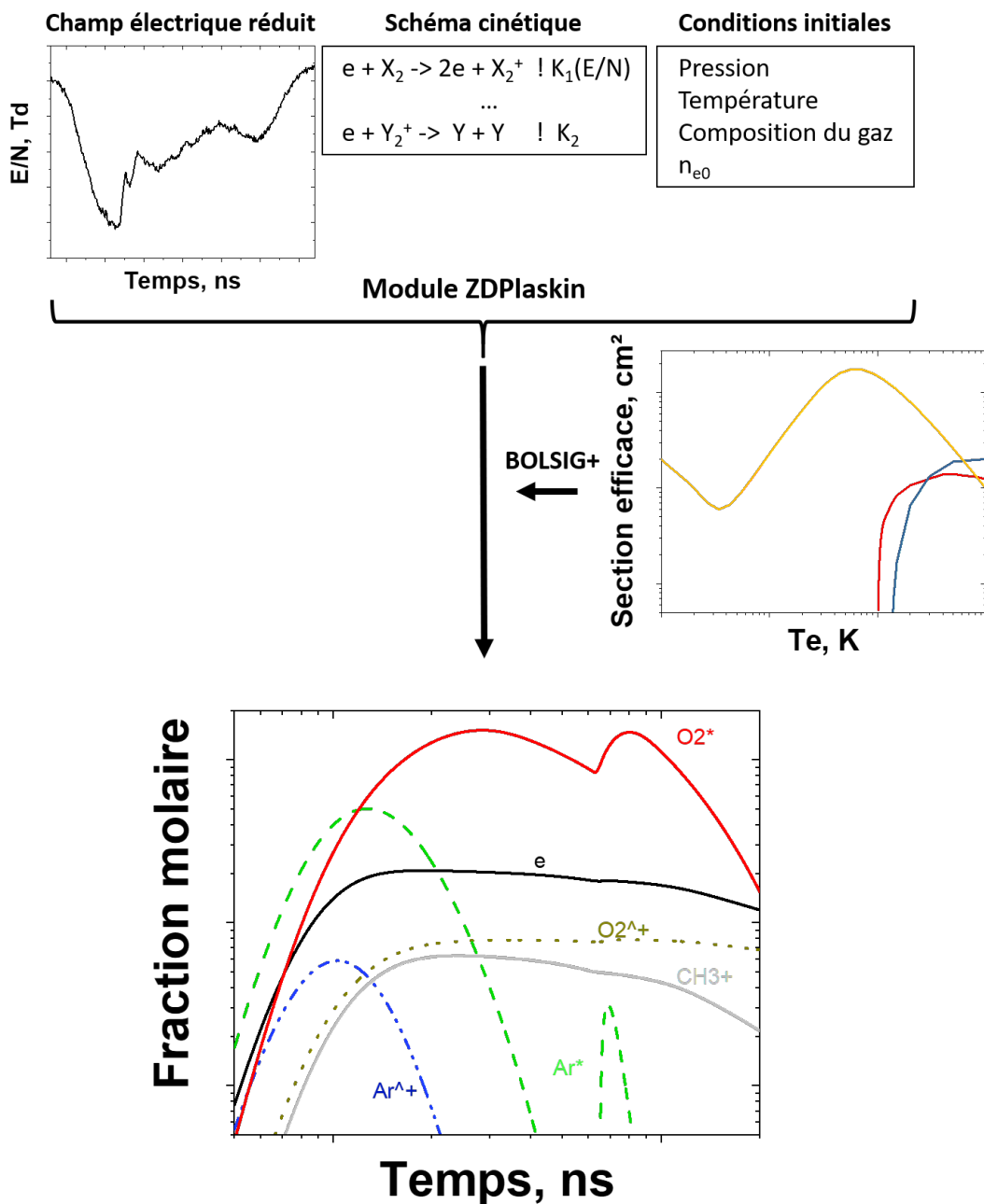


FIGURE 4.1 – Schéma du principe de fonctionnement de ZDPlasKin.

4.1.2 Schéma cinétique

Numero	Reaction	vitesse, cm^3s^{-1}	Ref
Dissociation			
R1	$e + \text{H}_2 \rightarrow e + 2\text{H}$	$f(E/N)$	texte
R2	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + 2\text{O}$	$f(E/N)$	texte
Excitation			
R3	$e + \text{O}_2 \rightarrow e + \text{O}_2^*$	$f(E/N)$	texte
R4	$e + \text{Ar} \rightarrow e + \text{Ar}^*$	$f(E/N)$	texte
Ionisation			
R5	$e + \text{H}_2 \rightarrow 2e + \text{H}_2^+$	$f(E/N)$	texte
R6	$e + \text{O}_2 \rightarrow 2e + \text{O}_2^+$	$f(E/N)$	texte
R7	$e + \text{Ar} \rightarrow 2e + \text{Ar}^+$	$f(E/N)$	texte
Quenching			
R8	$\text{O}_2^* + \text{H}_2 \rightarrow \text{O}_2 + 2\text{H}$	10^{-10}	[52]
R9	$\text{Ar}^* + \text{H}_2 \rightarrow \text{Ar} + 2\text{H}$	7.10^{-11}	[53]
R10	$\text{Ar}^* + \text{O}_2 \rightarrow \text{Ar} + 2\text{O}$	2.10^{-10}	[53]
Échange de charge			
R11	$\text{H}_2^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{H}_3^+ + \text{H}$	$2,1.10^{-9}$	[32]
R12	$\text{H}_2^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{HO}_2^+ + \text{H}$	$1,9.10^{-9}$	[32]
R13	$\text{H}_3^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{HO}_2^+ + \text{H}_2$	6.10^{-10}	[32]
R14	$\text{HO}_2^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{H}_3^+ + \text{O}_2$	3.10^{-10}	[32]
R15	$\text{O}_2^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{HO}_2^+ + \text{H}$	4.10^{-11}	[32]
R16	$\text{Ar}^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{Ar} + \text{H}_2^+$	7.10^{-10}	[54]
R17	$\text{Ar}^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{Ar} + \text{O}_2^+$	10^{-10}	[54]
Recombinaison			
R18	$e + \text{H}_2^+ \rightarrow \text{H} + \text{H}$	$2,3.10^{-7}(300/T_e)^{0,4}$	[55]
R19	$e + \text{H}_3^+ \rightarrow \text{H} + \text{H} + \text{H}$	$2,8.10^{-7}(300/T_e)^{0,8}$	[55]
R20	$e + \text{HO}_2^+ \rightarrow \text{H} + \text{O}_2$	$7.10^{-7}(300/T_e)^{0,72}$	[55]
R21	$e + \text{O}_2^+ \rightarrow \text{O} + \text{O}$	$2,4.10^{-7}(300/T_e)^{0,7}$	[55]

TABLE 4.1 – Schéma cinétique utilisé pour modéliser la création d'espèce actives dans une décharge $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar}$. La température électronique T_e est en Kelvin.

La table 4.1.2 présente les réactions utilisées ainsi que leur coefficient de vitesse pour simuler la génération d'espèces excitées dans le plasma et l'afterglow. Les processus pris en compte sont : la dissociation, l'excitation et l'ionisation par impact électronique ainsi que le quenching des espèces excitées, l'échange de charge ion-neutre et la recombinaison électron-ion. Les constantes de vitesse pour les réactions non électroniques sont issues de la littérature. Les constantes de vitesse pour les réactions électroniques sont calculées à partir de BOLSIG+ et du champ électrique réduit. Uniquement les espèces initiales sont considérées, à savoir : H_2 ,

O₂ et Ar. Les espèces neutres formées pendant la réaction ne sont pas prises en compte dans la résolution de l'équation.

Il est nécessaire de fournir un set de sections efficaces auto-suffisant pour déterminer la FDE. Les sections efficaces pour les processus électroniques sont regroupées dans la base de données LXCat (<https://us.lxcat.net/>). Plusieurs sets de sections efficaces sont disponibles pour une même espèce. Les sets ont été testés pour choisir ceux qui offriraient la meilleure corrélation des courants expérimentaux et numériques.

Les réactions R3 et R4 produisent des états excités O₂* et Ar*. Ces états sont en réalité des méta-états composés de tous les états excités dont l'énergie minimale est celle nécessaire pour dissocier la molécule H₂ et dont l'énergie maximale est celle de l'ionisation pour Ar (15,8 eV) et la dissociation pour O₂ (supérieur à 4.5 eV).

Les sections efficaces de réactions sont présentées en figures 4.2, 4.3 et 4.4 pour l'oxygène, l'argon et l'hydrogène respectivement. Cet ensemble de sections permet de construire la fonction de distribution des électrons. En particulier, les sections efficaces de collisions élastiques sont représentées par des carrés noirs pour les trois espèces. Les autres réactions sont répertoriées en deux catégories : les réactions utilisées dans le schéma cinétique représentées par des triangles pleins et les réactions non-utilisées dans le schéma cinétique représentées par des triangles vides. Les trois ensembles de sections efficaces sont ainsi complets.

On voit que seules les réactions électroniques les plus énergiques sont considérées dans le schéma cinétique. C'est naturel dans le cas d'un plasma nanoseconde car le champ électrique atteint de très hautes valeurs et produit une quantité significative d'électrons super-énergétiques qui favorisent ces procédés. Une fois que l'impulsion est terminée, le champ électrique chute et les processus de recombinaison dominant.

4.1.3 Validité du schéma

Pour s'assurer de la validité du schéma cinétique, des sections efficaces, de la densité initiale d'électron choisie et des constantes de vitesses on réalise une comparaison du courant obtenu expérimentalement avec le courant obtenu par l'intermédiaire du code. Des oscillogrammes de la décharge ont été mesurés dans les conditions expérimentales par la technique du courant de retour (BCS). Les détails de cette technique sont fournis dans la section 5.2 du chapitre 5.

La figure 4.5 présente un exemple de champ électrique réduit (bleu) et de courant (rouge) obtenus pour un mélange H₂ :O₂ :Ar à 150 mbar. Le pic de champ électrique (à 200 Td) correspond à la préionisation du gaz pendant le breakdown.

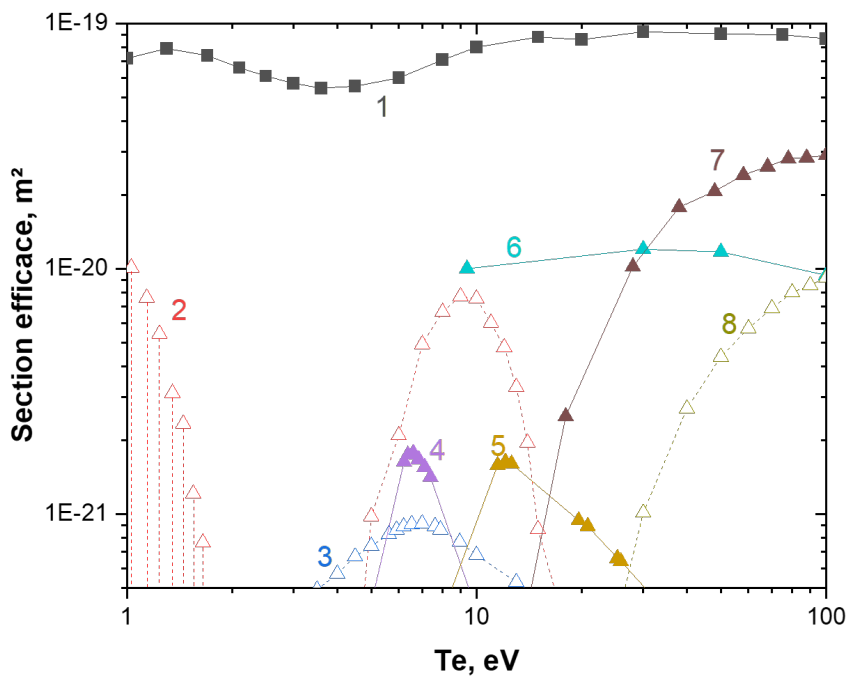


FIGURE 4.2 – Section efficace de réaction pour O_2 . Les collisions élastiques ainsi que les réactions utilisées dans les codes sont représentées en symboles pleins. 1 collision élastique ; 2,3 vib ; 4 excitation ; 5,6 dissociation ; 7 ionisation ; 8 ionisation dissociative [24].

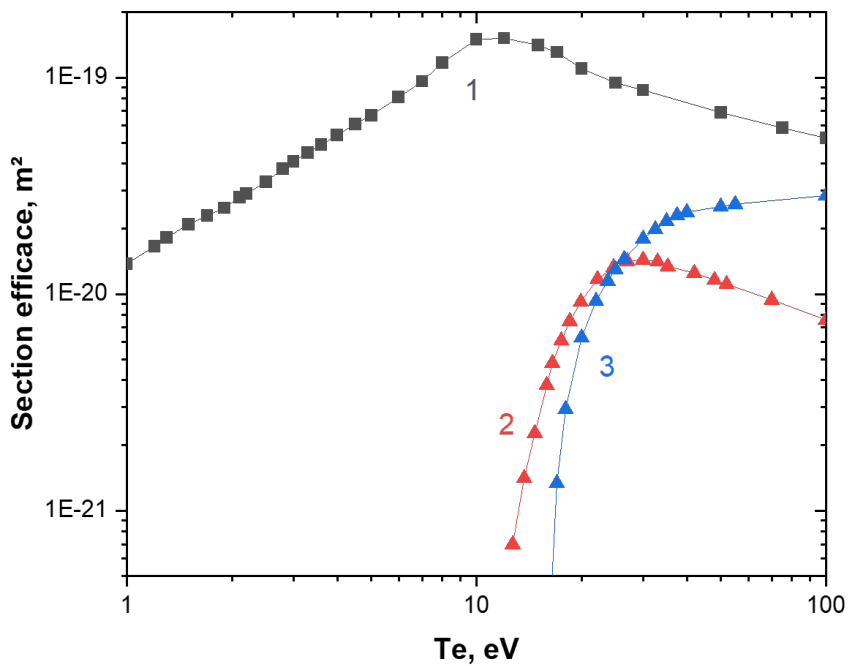


FIGURE 4.3 – Section efficace de réaction pour Ar. Les collisions élastiques ainsi que les réactions utilisées dans le codes sont représentées en symboles pleins. 1 collision élastique ; 2 excitation ; 3 ionisation [25].

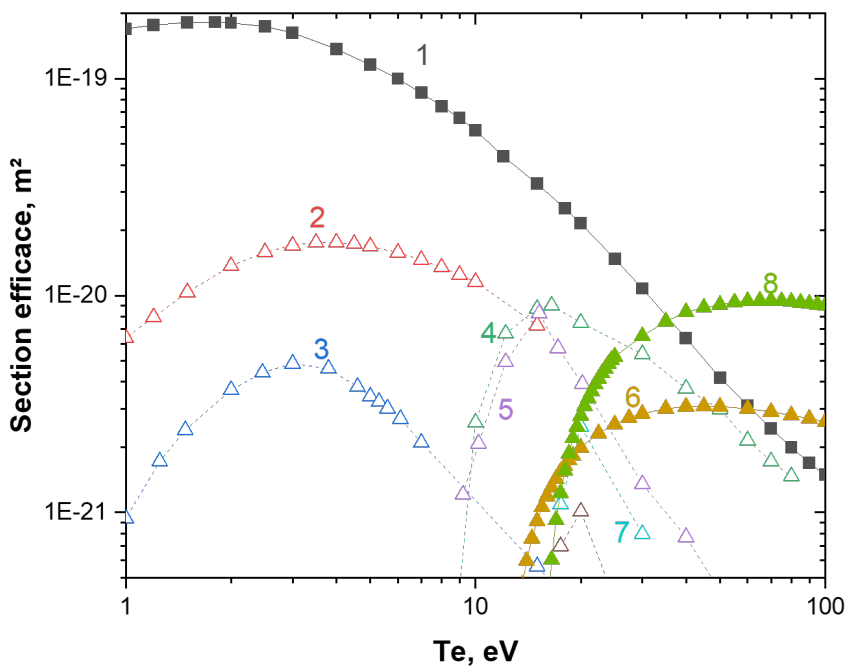


FIGURE 4.4 – Section efficace de réaction pour H_2 . Les collisions élastiques ainsi que les réactions utilisées dans le codes sont représentées en symboles pleins. 1 = collision élastique ; 2,3 = vib ; 4,5 = excitation ; 6,7 = dissociation ; 8 ionisation [26].

À partir de 10 ns, le courant est établi entre les électrodes pendant le reste de la décharge. Un courant de 600 A est très important mais on fait l'hypothèse que celui-ci est réparti de manière homogène sur toute la surface des électrodes. On considère également que le champ électrique est homogène en tout point à tout instant.

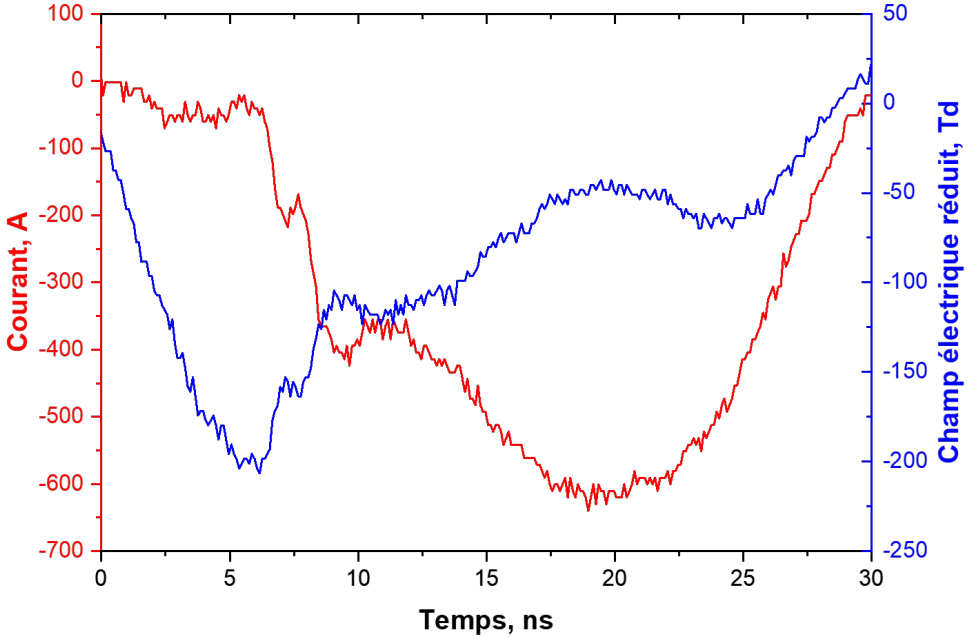


FIGURE 4.5 – Champ électrique réduit (bleu) et courant(rouge) obtenus par BCS pour $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar.

Pour déterminer la densité électronique initiale on veut faire correspondre le maximum du courant expérimental avec celui d'un courant que l'on calcule comme

$$I_{calc} = en_e \mu ES \quad (4.1)$$

où e est la charge élémentaire, n_e le profil de la densité électronique obtenue avec le code, μ la mobilité électronique obtenue avec BOLSIG+, E le champ électrique obtenu par BCS et S la surface des électrodes.

La seule grandeur variable dans ce calcul est le profil temporel de la densité électronique qui dépend de la densité initiale d'électron et du schéma cinétique établi. Des modifications de l'un ou de l'autre permettent de changer l'amplitude ou la forme du courant calculé. La figure 4.6 présente les résultats obtenus pour les courants expérimental et calculé (avec $n_{e0} = 5.10^9 \text{ cm}^{-3}$) ainsi que la puissance

déposée dans le temps. Le profil du courant calculé est cohérent avec les résultats observés expérimentalement. En particulier, lorsque la puissance déposée est maximale, la correspondance des deux courbes est excellente. Les mêmes courbes ont été réalisées pour toutes les conditions expérimentales en faisant varier la pression et en mettant la concentration d'argon à zéro pour correspondre à une partie des données dans $\text{H}_2 : \text{O}_2$ pur. Les résultats obtenus pour $\text{H}_2 : \text{O}_2$ pur sont présentés en figure 4.7. La correspondance des courants est bonne, le schéma est aussi valide sans argon.

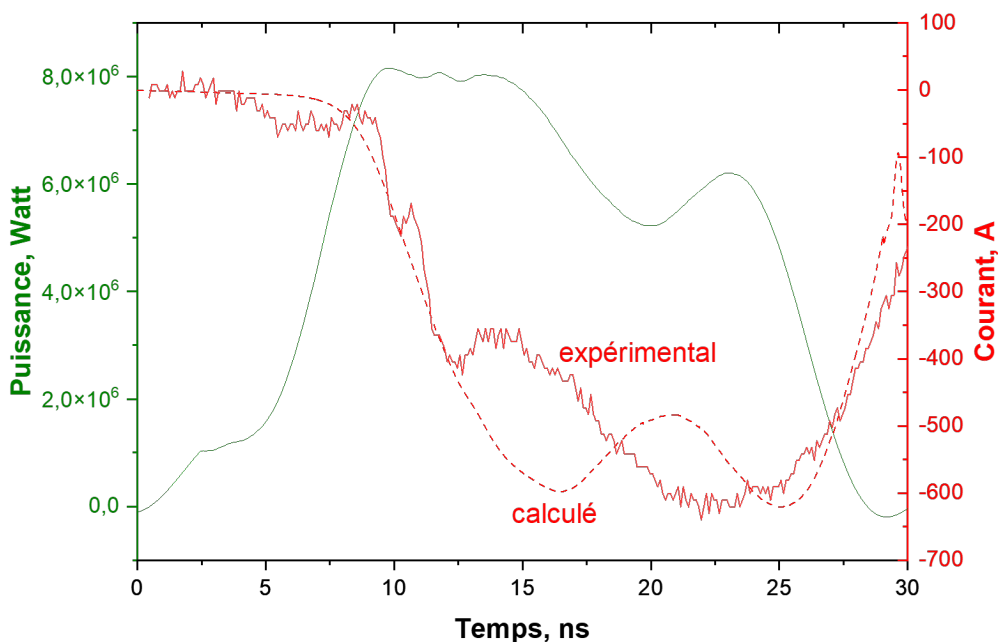


FIGURE 4.6 – Puissance (vert), courant expérimental (rouge-trait plein) obtenus par BCS et courant calculé (rouge-pointillés) pour $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar}$ à 150 mbar.

Ces comparaisons de courant nous donnent une vérification de notre schéma cinétique, des sections efficaces de collision choisies et de la densité électronique initiale estimée. Dans la suite de la thèse, nous considérons donc que nos calculs numériques de la cinétique chimique du plasma sont valides dans la limite des hypothèses effectuées (champ électrique uniforme, calcul 0D, plasma faiblement ionisé)

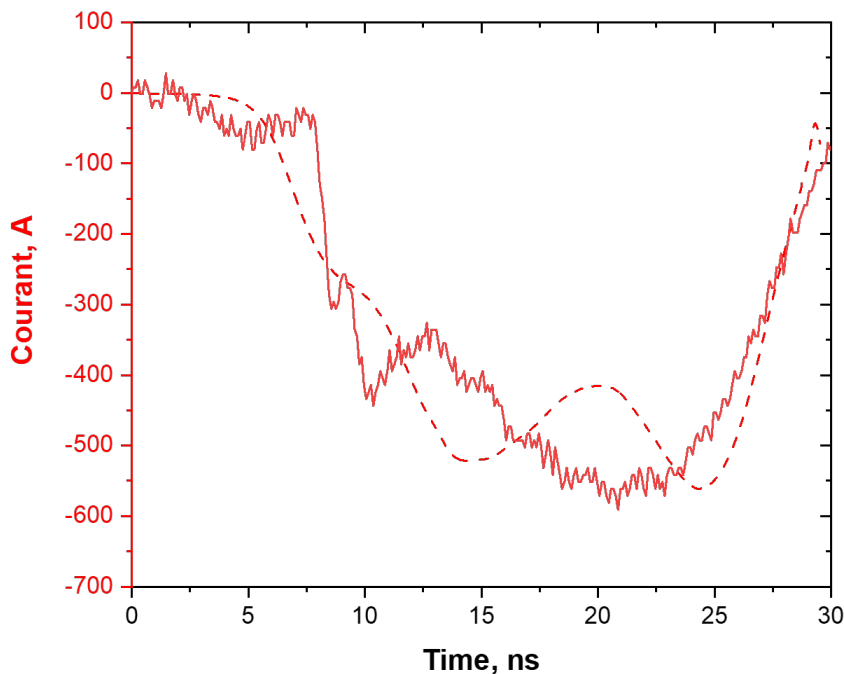


FIGURE 4.7 – courant expérimental (rouge-trait plein) obtenu par BCS et courant calculé (rouge-pointillés) pour $H_2 : O_2$ à 150 mbar.

4.1.4 Implémentation des résultats dans un code ZND

Par commodité les résultats des calculs ZND sont présentés en chapitre 7.

Les profils ZND dans le cas de la détonation CJ sont obtenus par résolution du système d'équations différentielles ordinaires exposé dans la section 2.1.3. La valeur propre cherchée est la célérité D de l'onde de détonation puisque celle-ci détermine les conditions initiales de l'intégration, c'est-à-dire l'état post-choc. Les caractéristiques de l'état initial devant le choc, sont les paramètres de contrôle du calcul (P_0, T_0 , composition). On procède par intégrations successives et dichotomie jusqu'à obtenir une valeur de D pour laquelle on satisfait à la fois la condition de sonicité $u + c = D$ et la condition de thermicité $\sigma \cdot w = 0$. Nous avons utilisé un code ZND (VIDAL-2018) et un schéma cinétique de combustion [56] existants. Nous avons utilisé les résultats obtenus par la cinétique 0D du plasma dans les calculs des profils ZND en faisant correspondre la composition finale du gaz résultant du plasma à la composition initiale du gaz devant le choc ZND. En effet, la prédissociation du gaz par le plasma est vue comme instantanée pour la détonation.

Chapitre 5

Réduction de la largeur moyenne des cellules de détonation

Ce chapitre est dédié à la présentation des expériences destinées à établir l'existence d'effets promoteurs d'un plasma nanoseconde sur une onde de détonation déjà établie par une modification instantanée de l'état du gaz devant l'onde. On y présente le dispositif expérimental et les techniques de mesure utilisés puis les résultats obtenus pour des mélanges de compositions différentes à plusieurs pressions initiales.

Sommaire

5.1	Dispositif expérimental	68
5.1.1	Tube à détonation	69
5.1.2	Chambre de mesure	69
5.2	Métrologie	70
5.2.1	Capteurs de pression	70
5.2.2	Enregistrement sur plaque recouverte d'un dépôt de carbone	72
5.2.3	Visualisation	73
5.2.4	Mesures de la tension, du courant et de l'énergie déposée.	74
5.2.5	Protocole expérimental et synchronisation	75
5.3	Résultats	79
5.3.1	O ₂ - CH ₄ - Ar (60%)	79
5.3.2	O ₂ - CH ₄ - H ₂ - Ar(60%)	84
5.3.3	O ₂ - H ₂ - Ar(40%)	88
5.3.4	O ₂ - H ₂	97

5.1 Dispositif expérimental

Le dispositif pour les expériences en détonation a été conçu et fabriqué à l'Institut Pprime au cours d'une thèse précédente. Nous l'avons modifié pour y adapter le système de décharge permettant la génération de plasmas. Ce système a été conçu au sein du Laboratoire de Physique des Plasma, puis modifié et optimisé au cours de notre thèse.

La figure 5.1 donne une vue d'ensemble du dispositif expérimental. Il est constitué de deux parties principales : (1) le tube à détonation, horizontal, où une détonation au régime Chapman-Jouguet est établie et (2) la chambre de mesure, verticale, où sont générées les décharges afin de produire un plasma nanoseconde.

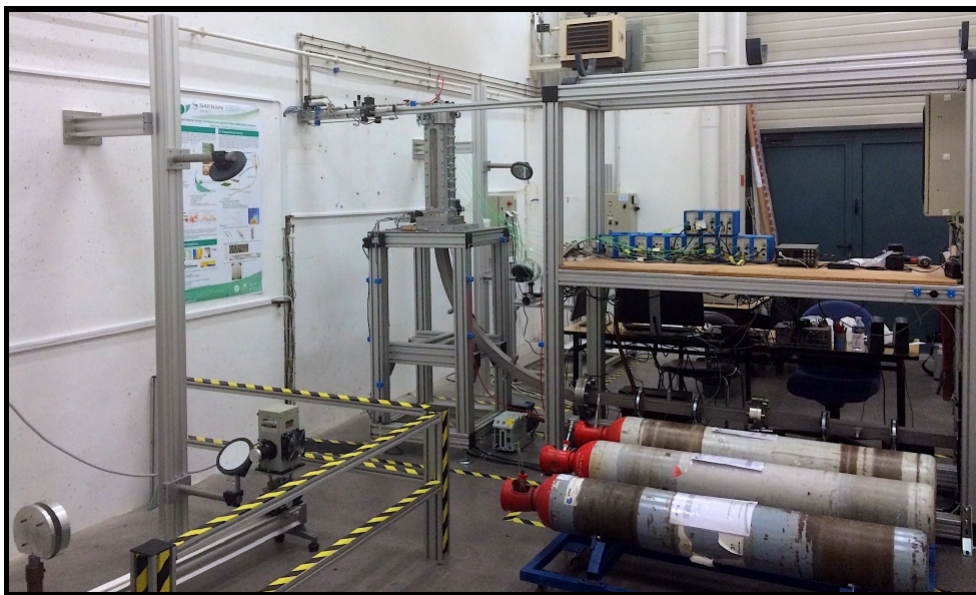


FIGURE 5.1 – Photographie du banc expérimental.

5.1.1 Tube à détonation

Le tube à détonation a une section carrée de $50 \times 50 \text{ mm}^2$. Il est constitué de quatre plaques d'acier inoxydable d'épaisseur 8 mm assemblées par soudure à haute pression. Sa longueur totale est de 3570 mm, celle-ci est suffisante pour qu'une détonation autonome (régime CJ) soit établie avant d'entrer dans la chambre. Le tube comporte un tronçon droit et horizontal de 2 m de long suivi d'un tronçon coudé à 90° de 1 m de rayon de courbure permettant une connexion à la chambre de mesure. La configuration "coudée" permet un positionnement de la chambre à une hauteur commode pour l'assemblage et le désassemblage de chaque tir. Cette courbure est suffisamment faible pour ne pas influencer la propagation de la détonation dans les mélanges d'amorçage considérés : afin de vérifier l'autonomie de la détonation avant son entrée dans la chambre de mesure, une mesure de la célérité à l'aide de capteurs de pression répartis sur les parois du tube d'amorçage est effectuée.

Une bougie de type automobile positionnée en début de tube génère une étincelle dont l'énergie déposée (environ 50 mJ) initie une déflagration. La déflagration est accélérée vers la détonation par une "spirale de Shchelkin" par mécanisme de TDD. La longueur du tube permet la relaxation de la détonation forte résultant de la TDD vers le régime CJ [14] avant l'entrée dans la chambre de mesure.

5.1.2 Chambre de mesure

La chambre de mesure est une enceinte verticale de même section carrée $50 \times 50 \text{ mm}^2$ que le tube à détonation et de longueur 665 mm, en acier inoxydable. Les quatre faces de la chambre peuvent être désassemblées permettant ainsi plusieurs configurations d'études. En particulier, la face en vis-à-vis du système d'électrode peut contenir des capteurs de pression dynamique ou une plaque à dépôt de carbone. Les deux autres faces sont munies de hublots offrant une zone de visualisation de longueur 500 mm et de largeur 50 mm. Ces hublots ont une épaisseur de 25 mm et sont réalisés en BK7. Enfin, une épaisseur de PEEK (polyétheréthercétone) est vissée sur la face accueillant le système de haute-tension. L'électrode vient s'insérer dans le PEEK permettant l'isolation électrique de l'électrode par rapport à la chambre. La décharge se développe alors entre les deux faces en vis-à-vis. La figure 5.2 présente un schéma des géométries d'électrodes étudiées et comparées. Afin d'observer un effet du plasma sur les cellules de détonation, il est important que la zone de recouvrement de la décharge soit grande devant la longueur moyenne d'une cellule. La configuration rectangulaire longue est la plus avantageuse car elle permet l'interaction entre le plasma et le front de détonation à plusieurs endroits dans l'espace en respectant la condition précédemment citée.

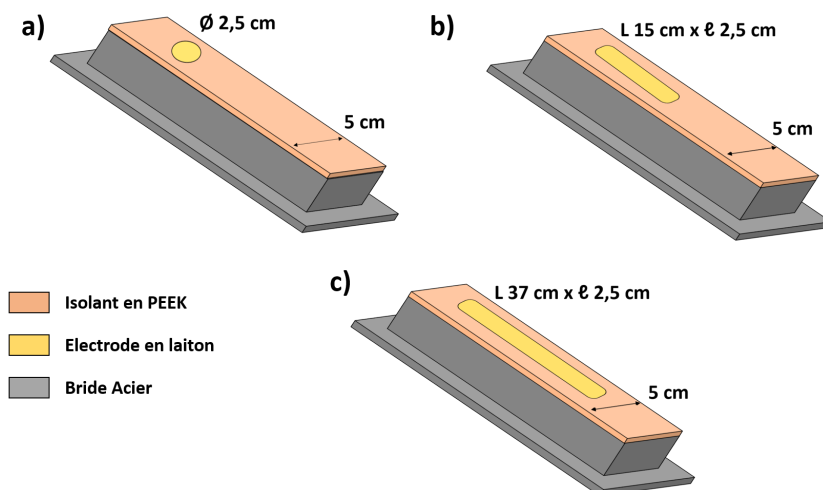


FIGURE 5.2 – Schéma des différentes géométries d'électrodes utilisées dans les expériences. La partie grise représente la face en acier inoxydable vissée à la chambre, l'isolant PEEK est représenté en orange et les électrodes en jaune : a) configuration circulaire, b) configuration rectangulaire courte, c) configuration rectangulaire longue.

5.2 Métrologie

Plusieurs techniques ont été utilisées pour caractériser la dynamique de l'onde de détonation et les paramètres du plasma dans la chambre d'étude. En particulier nous avons mis en œuvre des capteurs de pression dynamique, des traces sur dépôt de carbone et de l'imagerie nanoseconde ICCD (Intensified Charge Couple Device). Un effort particulier a été porté au protocole expérimental relatif à la synchronisation des phénomènes de propagation de l'onde de détonation (μs) et du temps d'existence du plasma (ns).

5.2.1 Capteurs de pression

Des capteurs de pression piézo-électriques Kistler 603B à compensation d'accélération présentant un temps de réponse de $1 \mu\text{s}$ sont utilisés afin d'enregistrer le passage du front d'onde (de détonation ou de déflagration). Ces derniers ont une amplitude de mesure de 200 bars pour des températures allant jusqu'à 200°C , leur fréquence naturelle est de $\sim 300 \text{ kHz}$. Chaque capteur est couplé à un amplificateur de charge Kistler 5018A de bande passante 200 kHz convertissant la sollicitation mécanique en signal électrique (entre 0 et 10 V) dont l'acquisition est réalisée par l'intermédiaire d'un module Graphtec Hard Disk Logger GL1100

avec 16 voies d'entrées. La surface active des capteurs est de diamètre 5 mm et ces derniers sont montés dans des supports en Téflon. Le Téflon permet d'amortir les petites vibrations parasites générées lors de la propagation de la détonation avant d'arrivée au niveau du capteur. Ces vibrations se propagent dans les parois métalliques du tube, elles ont alors une célérité de l'ordre de celle du son dans l'acier, à savoir ~ 5 km/s, très élevée par rapport à la propagation d'une onde de détonation dans le gaz, ~ 2 km/s. La surface active des capteurs est recouverte d'une fine couche de silicone, de 1 mm d'épaisseur, destinée à protéger les capteurs des chocs thermiques au passage de l'onde. La figure 5.3 présente un schéma simplifié de la disposition des capteurs de pression dynamiques le long du tube ainsi qu'un exemple des signaux obtenus lors d'un tir. Par souci de lisibilité, les capteurs de pressions P5, P7, P9, P11 et P12 situés le long de la chambre de mesure ne sont pas indiqués.

Les signaux de pression permettent d'avoir des informations sur la nature de l'onde tout au long du tube. En particulier, une montée brusque de la pression suivie par une détente présentant des oscillations à hautes fréquences et amplitudes témoigne d'une détonation multicellulaire au régime CJ. Les capteurs de pressions sont positionnés tout au long du tube dont un au niveau du tronçon droit principal (P1), un à l'entrée du tronçon coudée (P2) et deux en vis-à-vis à l'entrée de la chambre (P2 et P4). Cette disposition permet de s'assurer que l'onde de détonation se propageant dans le tube d'amorçage n'est pas perturbée par la courbure du tube pour les conditions initiales choisies, et, qu'à l'entrée de la chambre, la détonation se propage au régime autonome CJ. Préalablement à chaque tir avec du plasma, des mesures de vitesse de propagation longitudinale de l'onde dans la chambre ont été effectuées en positionnant huit capteurs de pression espacés de 58 mm le long de la chambre d'étude (P5 à P12).

L'instant d'arrivée de l'onde est repérable par la discontinuité abrupte engendrée au passage de l'onde longitudinale. Il est ainsi possible d'obtenir une vitesse moyenne longitudinale de l'onde en parois,

$$D_{i+1} = \frac{\Delta z}{\Delta t} = \frac{z_{i+1} - z_i}{t_{i+1} - t_i}, \quad (5.1)$$

où t_i représente l'instant d'arrivée du choc à la position z_i . On peut alors déterminer l'incertitude δD sur la mesure de la vitesse à partir des incertitudes sur la localisation d'un capteur δz et sur l'instant d'arrivée de l'onde sur ce capteur δt :

$$\frac{\delta D}{D} = \frac{\delta z}{\Delta z} + \frac{\delta t}{\Delta t} \quad (5.2)$$

En considérant le temps de réponse des capteurs ($\delta t = 1 \mu s$), la tolérance d'usinage $\delta z = \pm 0,2$ mm et la vitesse d'onde d'environ 2000 m/s, l'incertitude

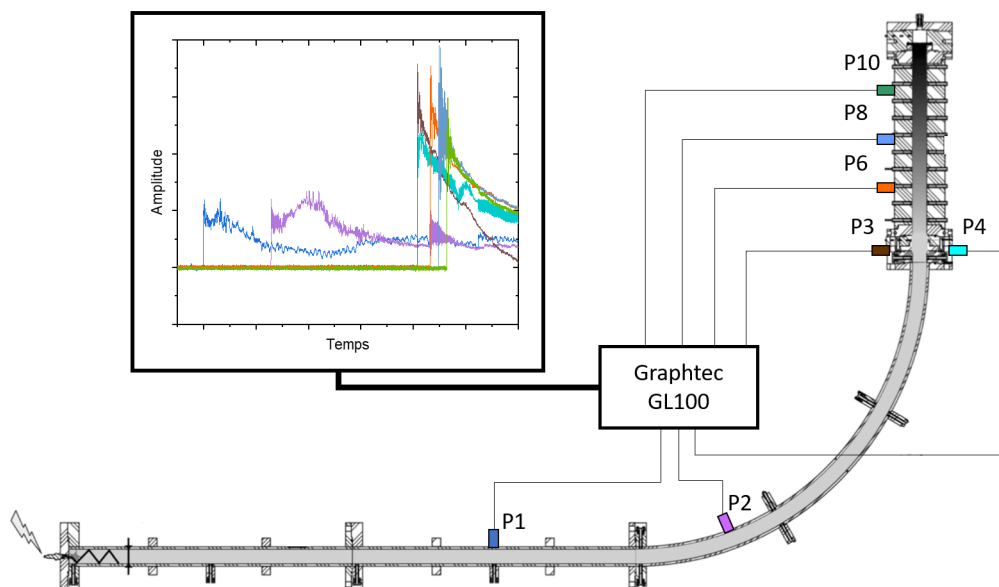


FIGURE 5.3 – Schéma de la disposition des capteurs de pression dans le tube.

typique sur la vitesse moyenne de l'onde est ~ 80 m/s et l'incertitude relative est $\sim 4\%$. En pratique les vitesses expérimentales de détonation dans les gaz pour notre étude sont entre 1600 m/s et 2000 m/s. Il est donc réaliste de considérer que l'erreur maximale sur la mesure de la vitesse est de 4%.

5.2.2 Enregistrement sur plaque recouverte d'un dépôt de carbone

L'enregistrement sur plaque recouverte d'un dépôt de carbone est une technique classique permettant d'acquérir simplement et précisément les trajectoires des lieux d'interaction d'ondes de choc. Cette méthode est mise en oeuvre en détonique depuis longtemps pour identifier la structure cellulaire des détonations dans les gaz [57].

Des plaques en acier poli-miroir d'épaisseur 1 mm et de longueur 550 mm ont été fixées sur la paroi interne de la chambre de mesure, en face de l'électrode. Le dépôt de carbone est effectué au moyen d'une flamme d'acétone dont la combustion avec l'air ambiant recouvre la plaque d'une couche de suie très fine.

Le dépôt de carbone est érodé par l'interaction des points triples du front de

détonation avec la surface de la plaque. Leurs trajectoires sur la surface dessinent un pavage constitué de losanges dont le motif est communément appelé cellule de détonation. La largeur des cellules de détonation λ est d'un intérêt pratique car les comportements dynamiques des détonations sont auto-semblables par rapport à λ . En particulier, la mesure de la largeur des cellules de détonation le long d'une section donne une indication sur la détonabilité du mélange à la position z (Figure 5.4). La largeur locale des cellules de détonation $\lambda(z)$ est estimée de la façon suivante (figure 5.4) :

$$\lambda(z) = \frac{2h}{N(z)} \quad (5.3)$$

où h est la largeur d'une plaque et $N(z)$ le nombre d'intersections de trajectoires de points triples avec la normale à la direction de propagation, à la position z considérée.

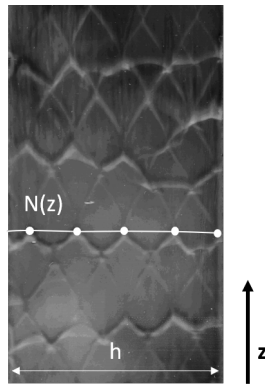


FIGURE 5.4 – Méthode expérimentale de mesure de la largeur des cellules de détonation à la position z .

5.2.3 Visualisation

Nous avons utilisé une caméra ICCD PI-Max2 (Princeton Instruments) pour étudier la structure spatiale de la décharge et le développement du front de détonation dans le temps. Les images sont intégrées dans le temps (entre 150 et 500 ns d'ouverture de la caméra) afin de capturer le développement des deux phénomènes. La caméra est déclenchée extérieurement par un générateur de retard un certain temps après que le front de l'onde déclenche le capteur de pression P1. La caméra possède un retard interne de 31 ns. Ce retard n'est pas à prendre en compte devant le retard de plusieurs μs du déplacement du front d'onde à la position souhaitée par rapport au déclenchement.

5.2.4 Mesures de la tension, du courant et de l'énergie déposée.

L'amplitude et le profil du courant dans le câble de haute-tension sont mesurés par la technique de Back Current Shunt. Pour ce faire, une section de la gaine du câble est remplacée par 13 résistances de 2,2 Ohm positionnées en parallèle. En connectant un câble aux deux extrémités du système de résistances on mesure ainsi le courant de retour, égal en amplitude au courant circulant dans la partie centrale du câble mais de signe opposé. Le courant ainsi mesuré peut être utilisé pour calculer la tension,

$$U_{HV}(t) = Z_0 \cdot I_{HV}(t) \quad (5.4)$$

$$U_{BCS}(t) = Z_{BCS} \cdot I_{HV}(t) \quad (5.5)$$

$$Z_{BCS} = \frac{Z_r}{N} \quad (5.6)$$

$$I_{HV}(t) = U_{BCS} \cdot \frac{N}{Z_r} \quad (5.7)$$

où $U_{HV}(t)$ et $I_{HV}(t)$ sont l'amplitude et le courant dans le câble de haute tension, $U_{BCS}(t)$ est la tension mesurée aux bornes du BCS, Z_R est l'impédance d'une seule résistance composant le BCS et N le nombre de résistances composant le BCS. Un exemple de signal typique issu du back current shunt est présenté en figure 5.5. L'impulsion haute-tension à valeur négative traverse une première fois le câble pour être en partie absorbée dans la décharge et réfléchiée par l'électrode. Le positionnement du BCS et la longueur du câble de haute-tension sont très importants afin de pouvoir résoudre dans le temps les deux impulsions sans chevauchement. La condition suivante doit être respectée :

$$L > \frac{c_{câble}\tau}{2} \quad (5.8)$$

où L représente la distance entre le BCS et la fin du câble, τ représente la durée d'une impulsion et $c_{câble}$ la célérité de l'onde électromagnétique dans le coaxial (0.2 m/ns pour le polyéthylène).

L'énergie déposée dans la décharge peut être calculée à partir des données obtenues par le BCS. En effet, l'énergie de l'impulsion incidente est dirigée vers la décharge, et seules les énergies réfléchiée et perdue en rayonnement RF ne participent pas à la décharge. Il est raisonnable de considérer que tout le reste de l'énergie est consommé par le plasma. L'énergie W_i déposée dans le plasma par l'impulsion i peut être calculée en soustrayant l'énergie de l'impulsion incidente à celle de l'impulsion réfléchiée :

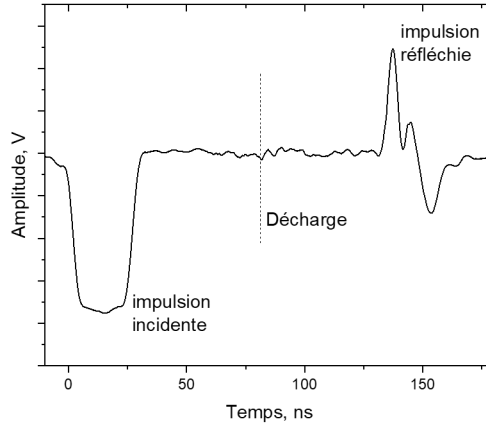


FIGURE 5.5 – Exemple d'un signal de haute-tension obtenu par back current shunt.

$$W_{i,BCS} = \frac{1}{Z_0} \int_{t'=t_i}^{t_i+T_{dec}} (U_{i,inc}^2(t') - U_{i,ref}^2(t')) dt' \quad (5.9)$$

où t_i caractérise l'instant 10 ns avant que l'impulsion "i" atteigne la moitié de la valeur de son amplitude maximale et T_{dec} est le temps nécessaire pour que les impulsions incidente et réfléchie descendent sous 5% de leur valeur maximale.

Il est aussi possible d'estimer une valeur moyenne du champ électrique en considérant le plasma comme une colonne de conductivité constante. Le potentiel de l'électrode de haute tension est la somme des potentiels des impulsions incidente et réfléchie. La distance entre les deux électrodes ($d_0 = 5$ cm) étant connue, l'estimation du champ électrique est obtenue à partir de

$$E_{i,BCS}(t) = (U_{i,inc}(t) + U_{i,ref}(t))/d_0. \quad (5.10)$$

5.2.5 Protocole expérimental et synchronisation

Avant chaque tir :

- Le tube est purgé pendant 10 minutes à l'aide d'un flux d'air comprimé.
- Une nouvelle plaque de dépôt de carbone est vissée sur la face interne opposée à celle de l'électrode de la chambre de mesure.
- Le bon fonctionnement de la bougie d'allumage est testé.
- Le vide est effectué à l'aide d'une pompe primaire.

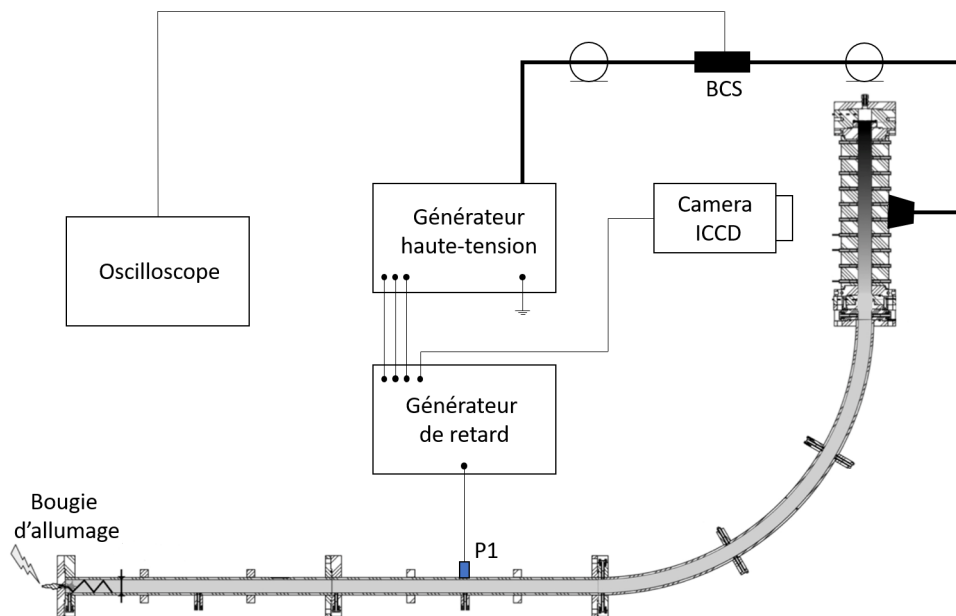


FIGURE 5.6 – Schéma du banc expérimental et du système de synchronisation.

- Le prémélange est injecté.
- Le tir est effectué dans les plus brefs délais.

Un schéma du banc expérimental est présenté en figure 5.6. La séquence de synchronisation débute avec le déclenchement du capteur de pression P1 qui détecte le front de l'onde et transmet un signal à un générateur de retard. En effet, pour nos considérations, la détonation CJ est établie à la position de ce capteur, ou avant. La position relative du front d'onde par rapport aux décharges est alors sélectionnée en considérant les résultats obtenus pour les tirs réalisés avec les capteurs de pression dynamique (Fig 5.3). La longueur des câbles et le temps de réponse des différents appareils électroniques sont pris en compte dans le calcul du retard. La haute répétabilité de l'expérience donne une incertitude sur la position du front d'onde inférieure au centimètre. Il est alors aisé de situer le front d'onde dans la chambre selon l'expérience que l'on souhaite effectuer.

Le générateur de retard possède quatre sorties permettant de déclencher une caméra ICCD PI-MAX2 (PI, 200-800 nm) et trois impulsions d'un générateur de haute-tension FPG 25-001NM2C2 (FID GmbH). Ces impulsions sont négatives, réglables en amplitude (2-25 kV dans le câble) et avec une possibilité d'être espacées les unes des autres de 200 ns à 2 ms. Le générateur permet ainsi une grande variété de régimes. La figure 5.7 présente les cas des régimes de "slow rise" avec deux impulsions espacées de 10 μ s et de "burst" avec trois impulsions successives à amplitude maximale et rapprochée dans le temps (200 ns). Le choix du régime

de travail s'effectue en prenant en compte la composition du mélange étudié et la longueur moyenne des cellules de détonation. Toutefois, un compromis entre l'énergie déposée et l'allumage involontaire du mélange par la décharge est à déterminer préalablement.

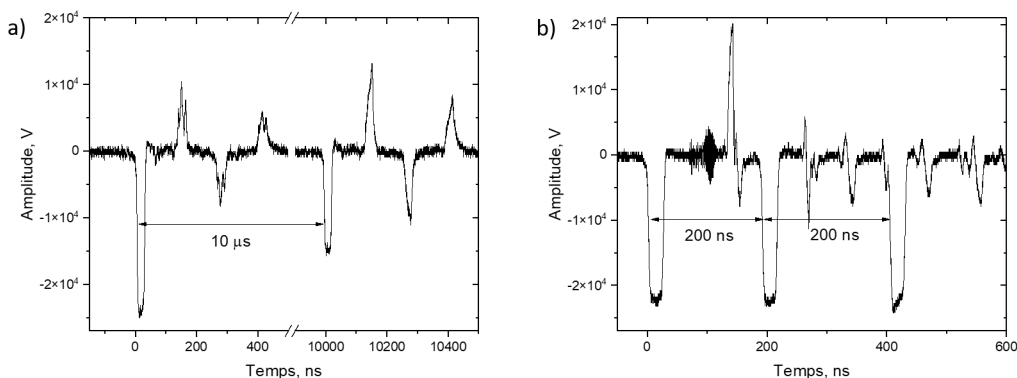


FIGURE 5.7 – Configurations de la décharge : a) "slow rise", b) "burst".

La figure 5.8 donne un schéma de l'expérience pour le régime "slow rise". La chambre de mesure est représentée à quatre instants successifs. L'électrode de haute tension dans sa configuration rectangulaire-longue est représentée en jaune, à droite, et la plaque de dépôt de carbone est représentée en gris, à gauche. Le front de détonation est représenté en orange, la flèche indique son sens de propagation et les gaz brûlés sont représentés en orange clair. Enfin, le plasma est schématisé en violet. L'expérience se déroule de la manière suivante :

- a) Le front de détonation entre dans la chambre à la vitesse CJ, il se propage dans un état initial non pré-dissocié laissant ainsi des traces de "référence" sur la plaque à gauche.
- b) A l'instant où le front arrive à la position souhaitée, la première décharge est déclenchée pour une durée de 25 ns FWHM. L'évènement est instantané comparativement au temps caractéristique de propagation du front d'onde.
- c) Le front d'onde se propage dans un milieu pré-dissocié formant ainsi des traces "modifiées" sur la plaque à gauche. En pratique, on souhaite observer une réduction de la largeur moyenne des cellules de détonation sur les plaques.
- d) Une seconde décharge est déclenchée avec le retard souhaité. Dans le cas du régime "slow rise", le front de détonation à une vitesse moyenne égale à 2 km/s, ainsi le front se déplace de 2 cm en 10 microsecondes. Cet intervalle est court par rapport à la longueur de la chambre et on s'intéresse en particulier à la modification sur la plaque à partir de la deuxième impulsion.

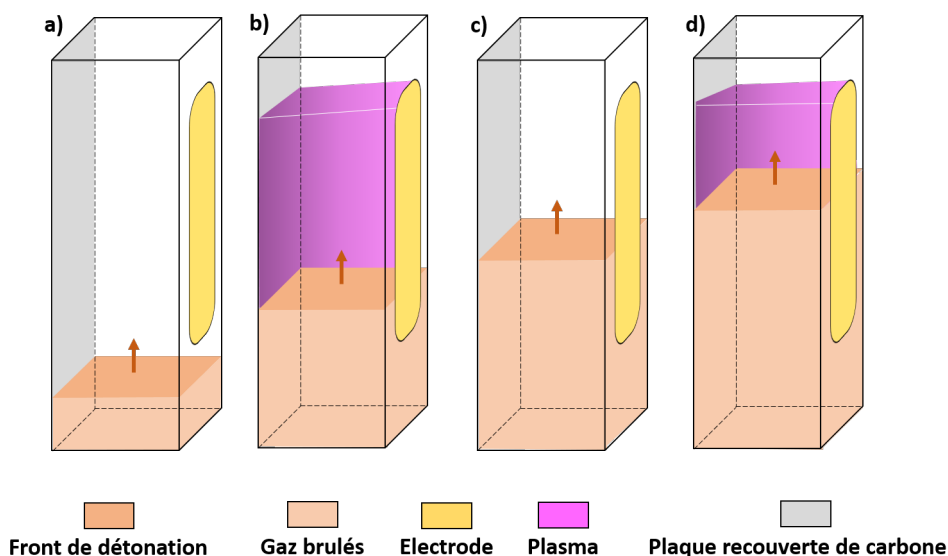


FIGURE 5.8 – Schema de l'expérience pour le régime "slow rise" les quatre figures présentent la synchronisation des décharges et de la propagation du front de détonation dans la chambre de mesure.

Le principe de fonctionnement est le même pour tous les régimes. Néanmoins, dans la configuration "burst", le temps entre les impulsions est très court (200 ns), et on considère donc que le front d'onde ne se déplace pas entre les trois impulsions.

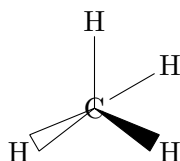
Les signaux électriques sont récupérés par l'intermédiaire d'un BCS (fig 5.6) et envoyés vers un oscilloscope WaveRunner 4Xi-A 600-MHz (LeCroy). La morphologie de la décharge est enregistrée à l'aide de la caméra ICCD dans la région UV-visible. Enfin, après chaque tir, la chambre de mesure est ouverte pour récupérer et analyser la plaque de dépôt de carbone.

5.3 Résultats

Les résultats obtenus sont présentés pour chaque mélange à différentes pressions initiales.

5.3.1 O₂ - CH₄ - Ar (60%)

Nous avons débuté notre étude avec le mélange stoechiométrique à base de méthane et d'oxygène dilué dans 60% d'argon étant spectateur dans la réaction de combustion globale :



Le méthane est intéressant en raison sa structure tétraédrique parfaite à haut degré de symétrie. Des mesures par diffraction des électrons montrent que le méthane dispose d'une longueur de liaison C - H de 108.7 pm contre 108.9 pm pour l'éthane. Ainsi, le méthane dispose de la liaison C - H la plus forte parmi les hydrocarbures saturés, avec un point d'auto-inflammation dans l'air à 540°C contre 500°C pour l'éthane. Ces propriétés participent à l'explication de la difficulté relative de sa réaction de combustion par rapport aux autres hydrocarbures. On cherche à faciliter le processus en cassant les liaisons C - H de la molécule par l'intermédiaire du plasma avant la réaction de combustion.

Pour apprécier cet effet de prédissociation, on s'intéresse à la modification de la largeur des cellules de détonation. La pression initiale est choisie en considérant la largeur moyenne des cellules dans un cas sans plasma. La figure 5.9 présente la largeur moyenne des cellules de détonation pour plusieurs pressions initiales. Dans un premier temps, on se place dans des conditions défavorables pour la combustion et l'existence d'une détonation. On choisit alors naturellement de travailler à basse pression où on compte une seule cellule pour largeur de plaque. Ainsi, pour ce mélange nous avons choisi de travailler pour ce mélange entre 120 et 200 mbar.

La figure 5.10 présente la morphologie de la décharge à 180 mbar. Les trois images correspondent à différentes profondeurs de champ. Les images ont été obtenues en modifiant la mise au point de la caméra soit au niveau des fenêtres de la chambre pour (a) et (c), soit et au centre de la chambre pour (b). On ne constate pas de différence de mise au point entre les trois cas. Par la suite, toutes les images ICCD ont été donc prises dans la configuration (b). La décharge est répartie dans

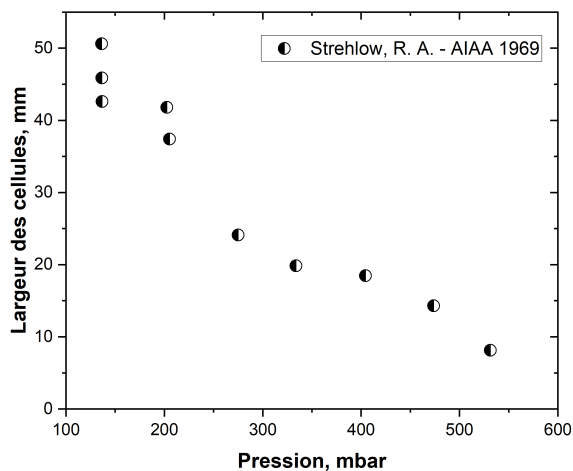


FIGURE 5.9 – Largeur des cellules vs pression initiale pour le mélange stoechiométrique $O_2 : CH_4$ dilué dans 60% d'Argon.

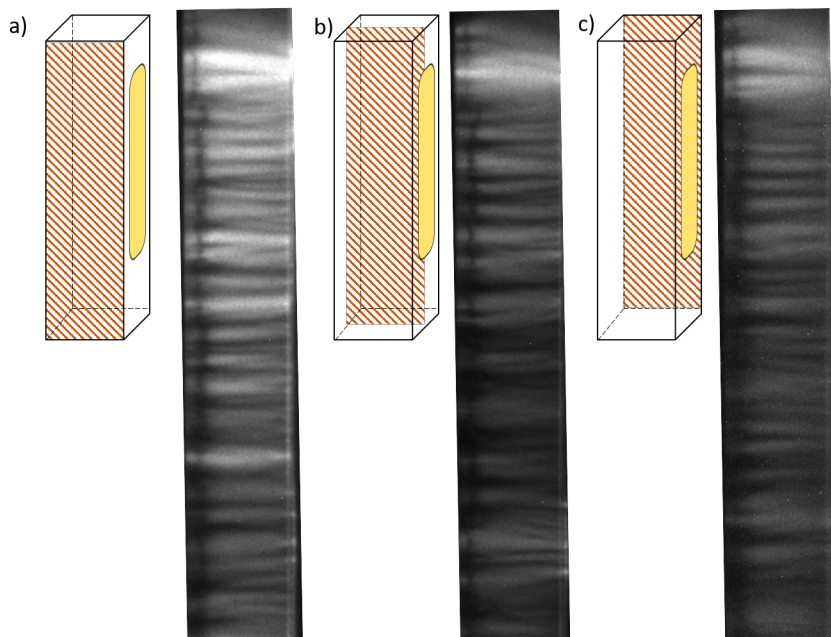


FIGURE 5.10 – Images ICCD (gate=100ns) de la décharge dans le mélange stoechiométrique $O_2 : CH_4$ dilué dans 60% d'Argon à 180 mbar pour plusieurs profondeurs de champ.

le volume de la chambre, on observe des faisceaux de plasma allant de l'électrode de haute tension vers la masse avec une émission uniforme. On a alors considéré que le plasma agit effectivement dans tout le volume de gaz compris entre les deux électrodes.

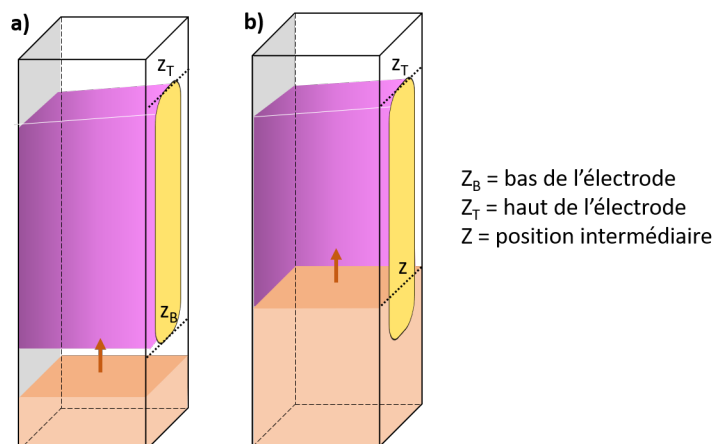


FIGURE 5.11 – Représentation de la "zone plasma" marquant l'interaction entre le front de détonation et le gaz dont la composition est modifiée par le plasma. a) Le plasma est allumé avant que le front atteigne l'électrode, b) le plasma est allumé quand le front est à la position z .

Dans la suite de ce chapitre, nous analysons des plaques de dépôt de carbone. Il est nécessaire de bien définir ce que l'on appelle la "zone plasma", c'est-à-dire le volume de la chambre dans lequel il y a une interaction entre le front de détonation et le gaz dont la composition est modifiée par la décharge nanoseconde. On considère deux cas :

- Le plasma est allumé avant que le front de détonation n'atteigne l'électrode de haute tension. Ici, la "zone plasma" est simplement le volume délimité par la surface comprise entre la limite basse, z_B , et la limite haute, z_T , de l'électrode de haute tension.
- Le plasma est allumé quand le front de détonation est à la position z . La "zone plasma" est alors le volume délimité par la surface comprise entre z et la limite haute, z_T , de l'électrode de haute tension.

La figure 5.11 synthétise ces deux situations. On voit que l'on peut choisir exactement le début de la "zone plasma" sur la plaque de dépôt de carbone en réglant la synchronisation du front avec la décharge. Cette information facilite l'analyse des résultats obtenus, en particulier, quand on modifie la position z afin de mettre en évidence l'adaptation instantanée du comportement du front.

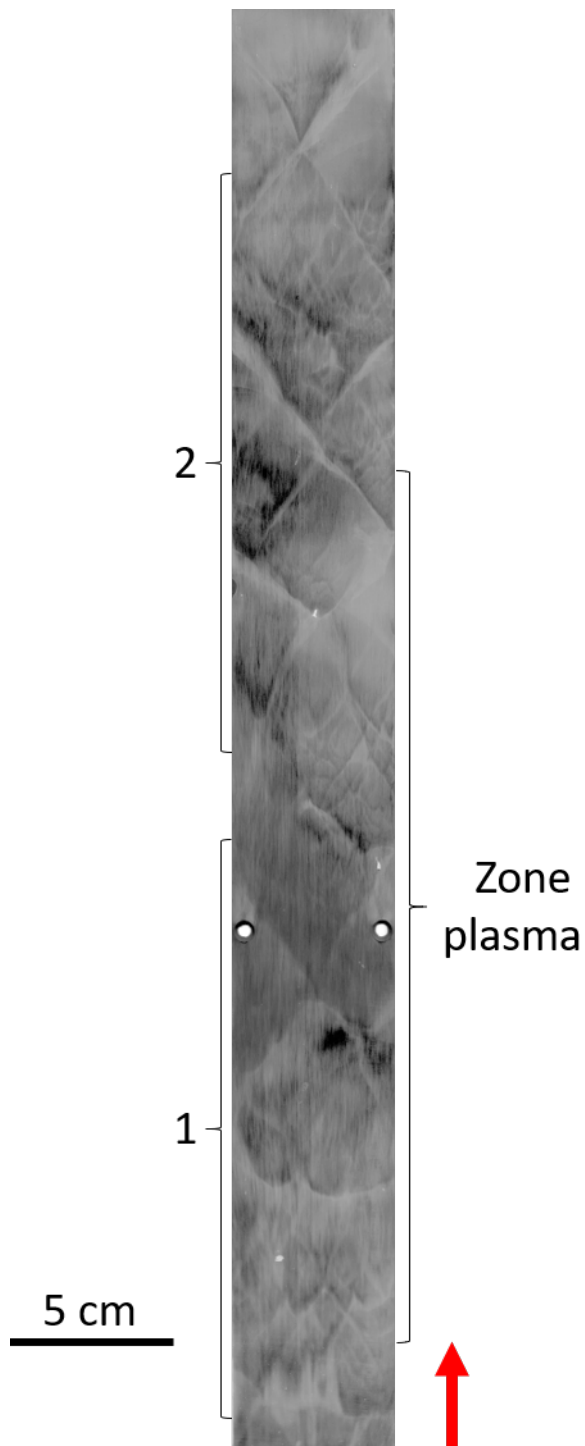


FIGURE 5.12 – Plaque obtenue à 180 mbar, la "zone plasma" ainsi que des zones en début (1) et fin (2) d'électrode sont indiquées.

La figure 5.12 présente une plaque obtenue à 180 mbar et une décharge dans le régime "slow rise". La plaque est présentée avec l'indication de la "zone plasma" et les zones en début (1) et en fin d'électrode (2) sont marquées. La figure 5.13 est un zoom sur les deux zones où les cellules de détonations sont indiquées par des tirets blancs.

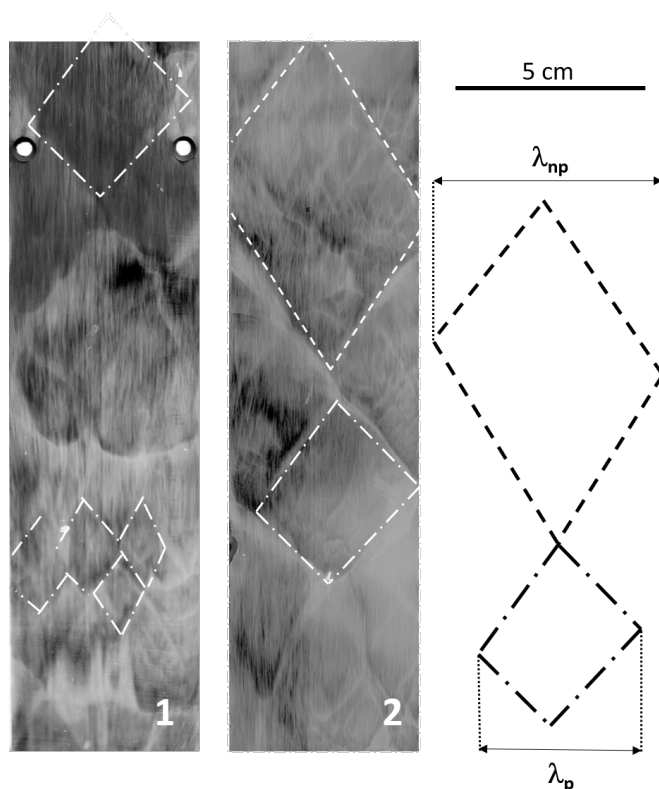


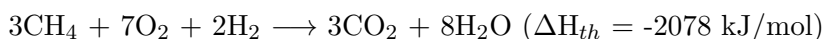
FIGURE 5.13 – Zooms sur une plaque obtenue à 180 mbar. 1 : Début de l'interaction ; 2 : fin de l'interaction. Les cellules sont marquées par des tirets blancs.

La plaque montre plusieurs cellules de tailles différentes. Globalement les cellules sont irrégulières. On observe cependant une nette augmentation de leur largeur entre la zone avec plasma et la zone sans plasma (2). Une comparaison de cette largeur est fournie en figure 5.13. La largeur des cellules dans la zone plasma, λ_p , est inférieure à celle des cellules en dehors de la zone, λ_{np} . En particulier la zone (1) montre des très petites cellules. Ce qui s'explique par l'interaction locale du front avec la décharge nanoseconde. Pour aller plus loin il faut établir une statistique et s'assurer de la reproductibilité des résultats. Nous avons ainsi cherché à produire des cellules plus régulières. En effet, l'irrégularité est une caracté-

téristique bien connue des cellules de détonation dans les mélanges comprenant du méthane. Une solution est d'ajouter un gaz qui a tendance à produire des cellules de détonation plus régulières.

5.3.2 O₂ - CH₄ - H₂ - Ar(60%)

Nous avons choisi d'ajouter 20% d'hydrogène au mélange O₂ :CH₄ :Ar(60%) pour former un mélange stoechiométrique aux propriétés physico-chimiques proches mais qui présentera des cellules plus régulières. La réaction de combustion globale est alors



L'observation du phénomène de réduction de la largeur des cellules est limitée par deux facteurs. Ce nouveau mélange atténue ces contraintes :

- La nature du combustible peut rendre le traitement des plaques difficile : le méthane produit des cellules de détonation irrégulières. La figure 5.14 présente le changement de régularité des cellules de détonation pour le mélange précédent, sans hydrogène, et un mélange avec une addition d'hydrogène. Il est ainsi plus facile de définir les limites des cellules.

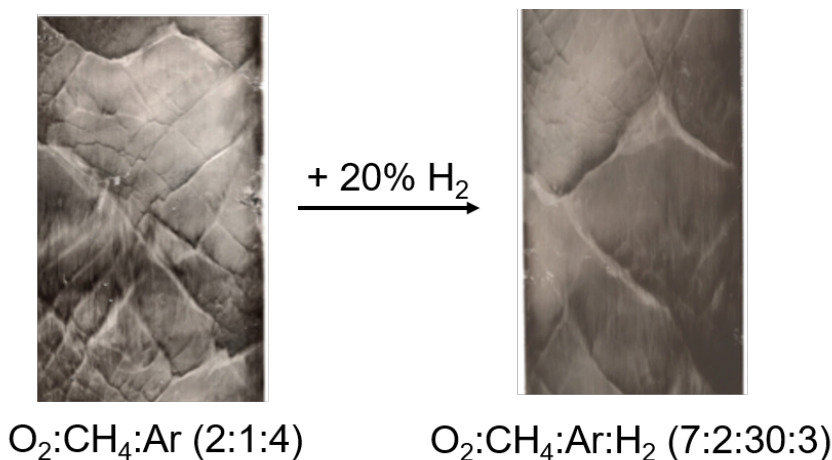


FIGURE 5.14 – Modification de la régularité des cellules de détonation dans un mélange O₂ - CH₄ - Ar(60%) par ajout d'hydrogène.

- La pression initiale conditionne l'observabilité de la détonation. Les perturbations hydrodynamiques caractérisant une détonation marginale peuvent masquer la réduction de la taille des cellules. Les ondes transverses prédominent lorsque la section de la chambre est du même ordre de grandeur que la taille des cellules. Il est

alors préférable d'augmenter la pression de travail, néanmoins, il faut considérer le plasma et les conditions idéales pour son existence. L'importance de l'homogénéité est discutée par la suite, mais nous pouvons déjà affirmer qu'il est intéressant que le plasma soit réparti sur tout le volume d'étude. Les contraintes de pression sont résumées sur la figure 5.15 pour le mélange $O_2 - CH_4 - H_2 - Ar(60\%)$. Il est important de noter que le comportement qualitatif du plasma est peu dépendant du mélange : on aura toujours une transition d'un régime diffus à filamentaire en augmentant la pression, seule la valeur de la pression "treshold" sera différente. On retrouve alors des comportements très similaires pour des mélanges avec plus ou moins d'hydrogène ajouté.

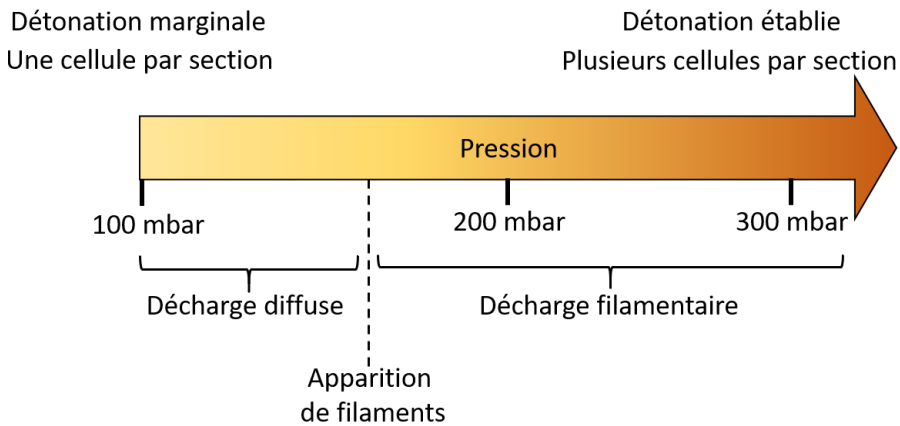


FIGURE 5.15 – Représentation des contraintes liées à la pression pour le mélange $O_2 - CH_4 - H_2 - Ar(60\%)$.

À partir de 200 mbar, on observe des filaments beaucoup plus intenses et localisés qui consomment une grande partie du courant de décharge en un point restreint de l'espace, situation à éviter. Dans la suite nous présentons des résultats entre 120 et 200 mbar. En particulier, on s'intéresse au développement de la décharge à basse pression avec l'hypothèse que la nécessité de l'homogénéité est due à la grande taille des cellules pour ce mélange. En d'autres mots, localement, on veut que la longueur de la "zone plasma" soit du même ordre de grandeur que la longueur de quelques cellules.

La figure 5.16 présente la morphologie de la décharge à 120 mbar pour les deux impulsions. On voit que la décharge est diffuse par partie pour la première impulsion et se contracte lors de la deuxième impulsion. Ces images nous montrent qu'après $10 \mu s$ on a encore un effet de la première décharge sur le gaz et donc sur la dissociation. Ce sont des conditions intéressantes pour notre étude.

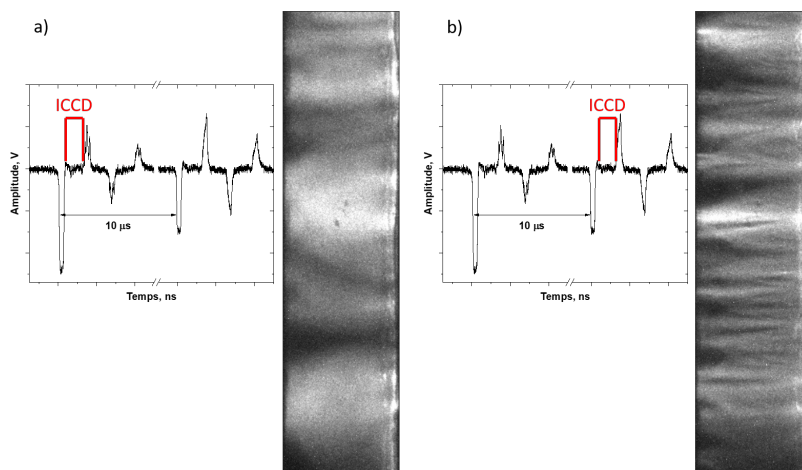


FIGURE 5.16 – Morphologie de la décharge pour le mélange $O_2 - CH_4 - H_2 - Ar(60\%)$ à 120 mbar : a) première impulsion ; b) deuxième impulsion.

Les résultats obtenus à 120 mbar sont présentés en figure 5.17 pour un tir de référence (a), c'est-à-dire un tir sans plasma, et un tir avec plasma (b). La plaque plasma (b) est présentée la position où le plasma a été appliqué, "zone plasma", et les zones en début (1) et fin (2) d'électrode sont indiquées. La plaque de référence montre des cellules larges qui occupent toute la largeur du tube, ce sont donc des conditions de détonation marginale. La plaque plasma montre, dans la zone d'étude, des cellules plus petites on en compte entre 1,5 et 2 par section. En dehors de la "zone plasma" les deux plaques présentent la même largeur de cellule, le comportement de la détonation est auto-semblable pour les mêmes conditions.

On s'intéresse à présent à la comparaison des résultats avec et sans hydrogène. En particulier aux deux zones (1) et (2) marqués sur les figures 5.12 et 5.17. Le zoom sur ces zones sont présentées en figure 5.18 pour le mélange à base d'hydrogène et en figure 5.13 pour le mélange sans hydrogène. On retrouve sur les deux figures les mêmes caractéristiques :

- dans la zone 1, on observe une perturbation hydrodynamique très marquée où la cellule en cours de formation est interrompue. On observe par la suite des cellules de petite taille, mal définie et un caractère marginal,
- dans la zone 2, on observe une différence de taille entre les cellules dans la "zone plasma" et les cellules à la fin de la "zone plasma". Cette démarcation est nette, confirmant le caractère d'adaptation instantané du front de détonation aux changements de composition du gaz devant lui.

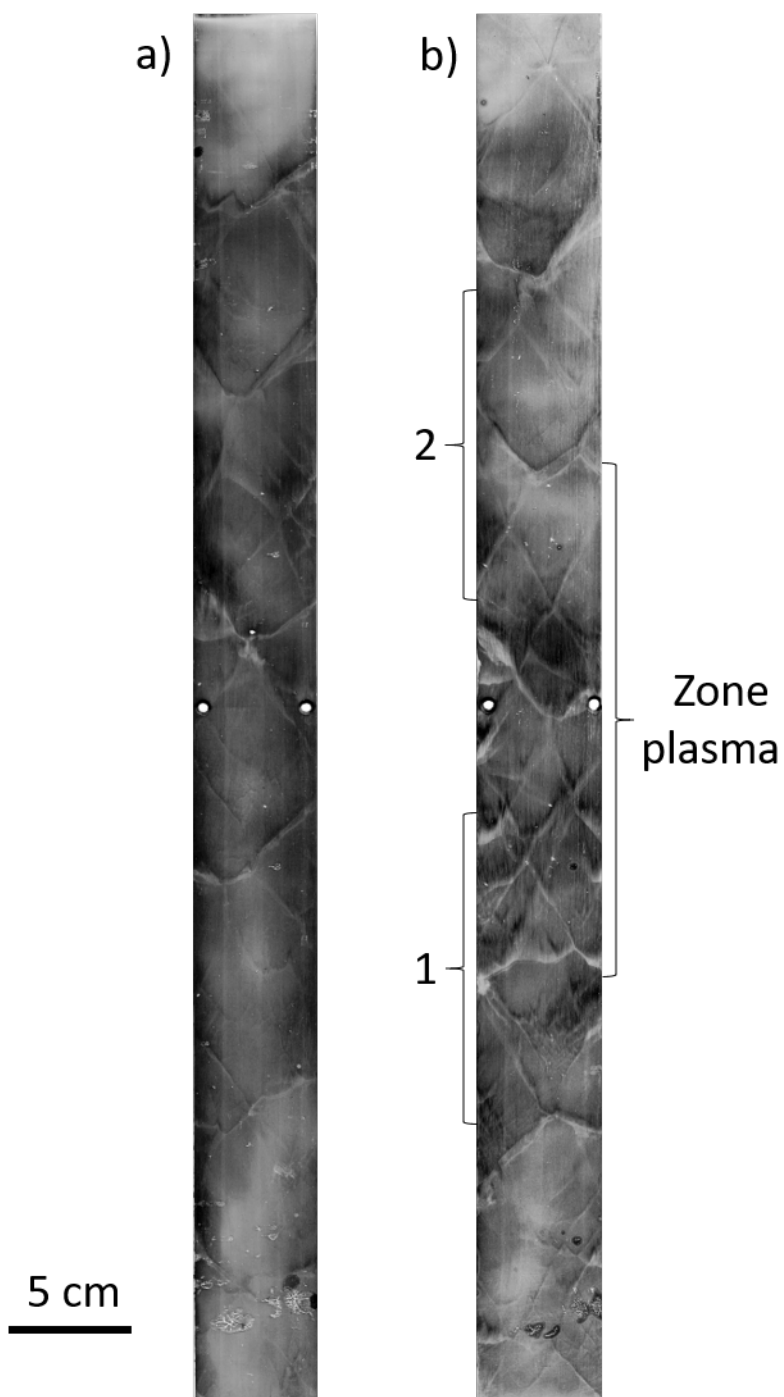


FIGURE 5.17 – Plaques obtenues à 120 mbar. a) Plaque de référence ; b) plaque plasma avec indications. La "zone plasma" et des zone au début (1) et à la fin (2) de l'électrode sont indiquées.

L'ajout d'une petite quantité d'hydrogène permet de régulariser la structure des cellules sans s'éloigner de l'idée première de tester l'efficacité du plasma sur le méthane, molécule difficile à rompre. Les résultats sont nets mais l'observabilité de l'effet est limitée par la nature du mélange. On cherchera par la suite à avoir un effet du plasma plus consistant sur une même plaque et pour plusieurs tirs. Il est alors nécessaire de travailler avec plusieurs cellules sur une même section pour une pression voisine et avec un caractère plus régulier. On s'oriente ainsi naturellement vers l'hydrogène comme unique combustible, et dans un premier temps dilué dans l'argon.

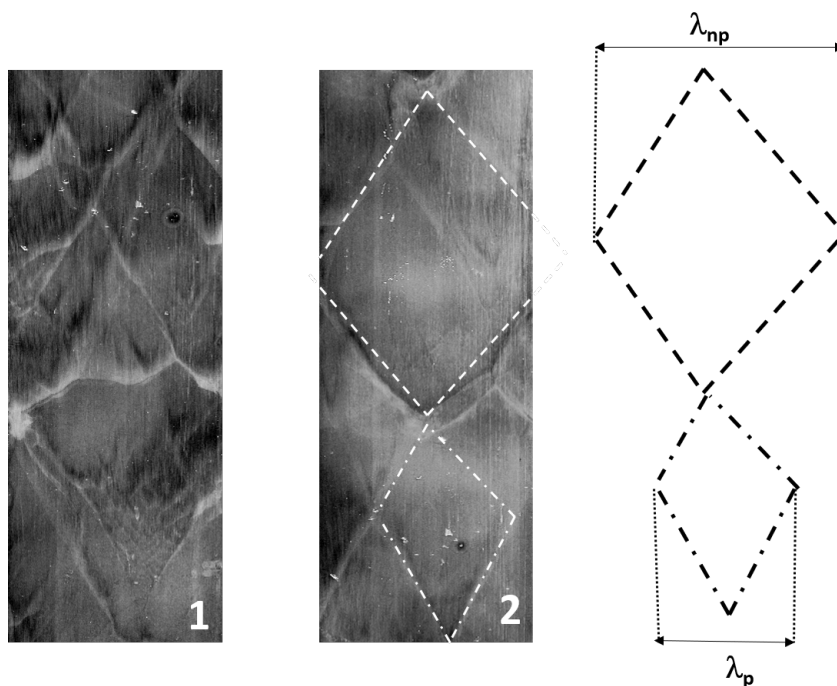
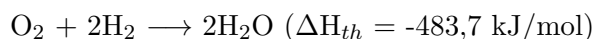


FIGURE 5.18 – ZOOMS d'une plaque obtenue à 120 mbar. 1 : début de l'interaction ; 2 : fin de l'interaction. Les cellules sont marquées par des tirets blancs.

5.3.3 O₂ - H₂ - Ar(40%)

On s'intéresse maintenant à l'effet du plasma sur la molécule d'hydrogène prise comme seul combustible dans le mélange stoechiométrique O₂ - H₂ dilué avec 40% d'argon. La réaction de combustion globale est :



La nature du mélange ayant changé par rapport aux expériences précédentes nous nous assurons de la taille des cellules de détonation pour différentes pressions

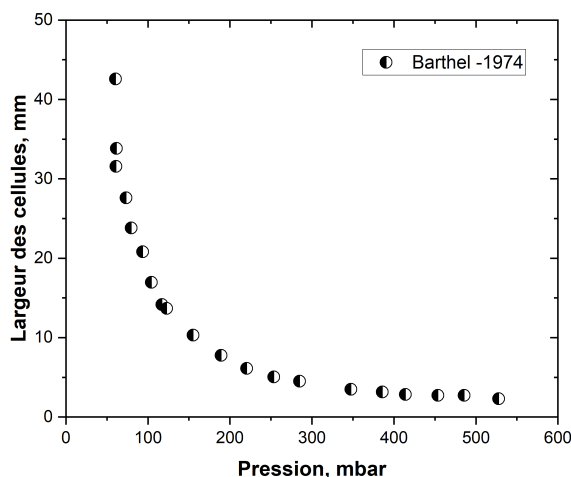


FIGURE 5.19 – Largeur des cellules vs pression initiale pour le mélange stoechiométrique $O_2:H_2$ dilué dans 40% d'Argon.

dans ce mélange. La figure 5.19 présente la largeur des cellules de détonation dans le mélange étudié en fonction de la pression initiale. Dans la gamme de pression étudiée, les cellules sont plus petites que pour le méthane ($\lambda < 15\text{mm}$) ce qui rapproche le processus de détonation du régime CJ. Pour ce mélange nous avons favorisé le mode "burst" pour le dépôt d'énergie. En effet, la réactivité plus haute de l'hydrogène par rapport au méthane oblige à déposer l'énergie plus rapidement pour éviter des départs de combustion entre impulsions. Dans ce mode, l'énergie est déposée en moins de 500 ns.

On s'intéresse pour ce mélange, plus particulièrement à la morphologie de la décharge et on se demande, dans quelle mesure l'homogénéité du plasma joue un rôle dans l'observation de la réduction de la largeur des cellules. On veut établir la possible existence d'un lien entre l'effet du plasma et sa morphologie spatiale. Dans la section précédente nous avons souligné, en première hypothèse, la nécessité que les zones d'effets du plasma soient au moins aussi étendues que la longueur moyenne des cellules. En d'autres mots, il faut que la dissociation du gaz soit présente au moins sur toute la longueur de la cellule, et idéalement sur plusieurs cellules. La figure 5.20 présente la morphologie de la décharge, dans la configuration "burst", à 150 mbar pour les trois impulsions séparément (150 ns gate) et pour la somme des trois impulsions (500 ns gate). On observe que pour la première impulsion qui constitue le breakdown de la décharge, on a une émission du plasma sur tout le volume avec une intensité variable. On remarque aussi la présence de faisceaux plus intenses qui produisent une striation de l'espace. Les impulsions

suivantes rencontrent un milieu déjà excité et le plasma a une structure beaucoup plus homogène. Au total, la combinaison des trois impulsions qui produit une décharge avec des zones très lumineuses. On peut considérer ces zones comme les endroits où le champ électrique est le plus fort lors du breakdown, i.e. où la densité d'espèces excitées est la plus importante. En dehors du breakdown, l'émission est diffuse et peut être associée à des processus répartis uniformément dans l'espace. Par la suite, on utilisera deux termes pour décrire la morphologie du plasma, soit faisceau et filament, le premier désigne des portions de plasma homogène où la décharge reste diffuse et le second désigne des portions de plasma de très faibles diamètres avec une émission lumineuse très importante et un courant élevé.

L'intensité lumineuse perçue par imagerie ICCD dépend de plusieurs facteurs tels que : la FDE, la densité d'espèces excitées, la présence de filtres, les coefficients de quenching et le temps de vie des niveaux excités. On ne cherche pas à résoudre le problème quantitativement mais plutôt à définir qualitativement l'effet de l'homogénéité de la décharge sur les résultats observés. En particulier, on veut savoir si la présence de zones plus lumineuses sur le parcours de la détonation entraîne une réduction plus forte de la largeur des cellules localement..

A cet effet, la figure 5.21 présente deux plaques obtenues à 150 mbar. La plaque (a), obtenue pour un tir sans plasma, qui constitue la référence. Les plaques (b) et (c) ont été obtenues dans les mêmes conditions expérimentales avec le plasma déclenché à des instants différents. On observe qu'avant la "zone plasma" la structure des cellules est identique sur les deux plaques, c'est-à-dire une structure cellulaire régulière avec des impacts droits induits par les ondes transverses de direction perpendiculaire à la surface de la plaque. Dans la "zone plasma" on observe deux phénomènes sur les plaques (b) et (c) : La largeur des cellules de détonation a été significativement réduite et les impacts des ondes transverses ont été déformés. Enfin, on voit que les modifications produites par le plasma sont en cohérence avec l'instant où on le déclenche. En effet, la plaque (c) présente une largeur de cellule réduite bien avant la plaque (b) et qui correspond à l'instant exact où le plasma est déclenché. La figure 5.22 est un zoom sur les deux zones marquées sur la figure 5.21. Elle montre une représentation schématique de la structure observée expérimentalement. Les traits noirs sont les positions successives d'interactions des ondes transverses de direction parallèle à la plaque formant les cellules de détonation. Les traits rouges sont les impacts frontaux des ondes transverses de direction perpendiculaire à la plaque. Comme sur la figure précédente on observe des différences entre les deux images concernant la largeur des cellules de détonation et la forme des fronts d'onde. Ces images démontrent l'effet du plasma sur le comportement dynamique du front de détonation.

L'effet est réparti de manière homogène sur l'ensemble de la zone plasma. Ainsi, nous revenons sur nos hypothèses de départ en considérant que le plasma doit être

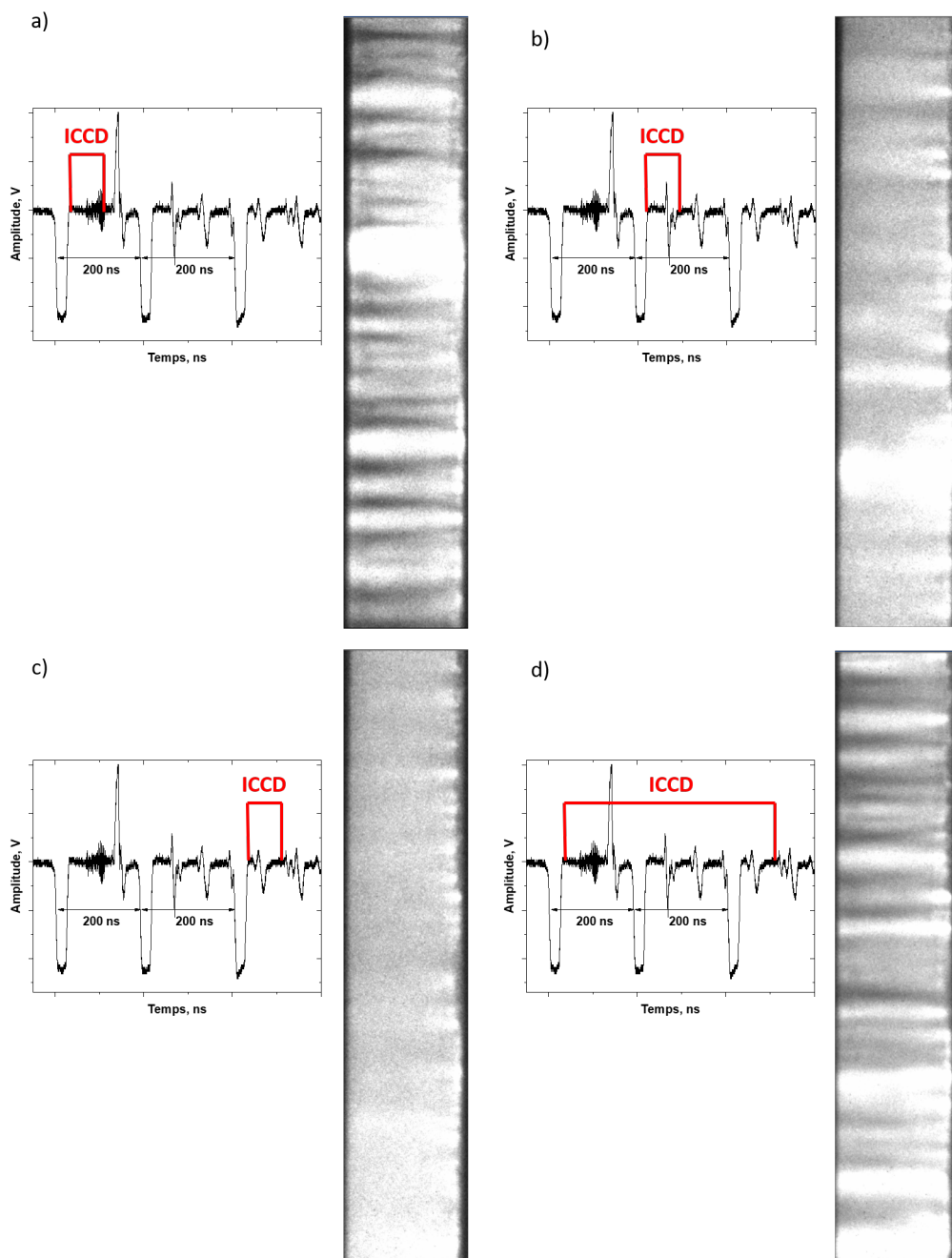


FIGURE 5.20 – Images ICCD du plasma pour $O_2 : H_2$ dilué dans 40% d'Argon dans la configuration burst à 150 mbar. a) Première impulsion (150 ns gate) ; b) deuxième impulsion ; c) troisième impulsion ; d) décharge entière (500 ns gate).

présent pour affecter les cellules mais il n'est pas nécessaire qu'il soit homogène. L'existence de région où l'intensité lumineuse est plus importante n'entraîne pas, à posteriori, d'effet plus marqués sur les plaques obtenues expérimentalement.

Une dernière vérification consiste à augmenter la pression initiale afin de s'assurer que des inhomogénéités spatiales plus marquées permettent d'aboutir aux mêmes conclusions (Fig. 5.15). En particulier, la pression de 200 mbar est ici la limite pour laquelle les effets de filamentation du plasma ne provoquent pas encore l'allumage du mélange. On choisit donc ce cas comme le cas limite pour nos conditions expérimentales afin de s'assurer de la consistance de l'effet observé. La figure 5.23 présente la morphologie du plasma pour les trois impulsions et la totalité des impulsions à 200 mbar. La décharge est similaire pour le breakdown (a) à 150 et 200 mbar. Pour la deuxième et la troisième impulsion, le comportement du plasma est différent à 200 mbar. En effet, la décharge est très intense par endroits sous forme de filaments. L'inhomogénéité spatiale est beaucoup plus forte que dans l'étude précédente. on s'intéresse alors à l'effet du plasma sur la largeur des cellules.

Un exemple de plaque obtenue pour 200 mbar est présenté en figure 5.24. La largeur moyenne des cellules est naturellement plus petite du fait de l'augmentation de la pression initiale. Deux zones d'intérêt sont marquées sur la figure. La zone 1 représente une propagation du front de détonation sans l'effet du plasma. On observe une structure cellulaire régulière avec des impacts transversaux plans. La zone 2 représente une propagation du front de détonation avec l'effet du plasma. La taille moyenne des cellules est légèrement réduite. On se retrouve avec un effet moins marqué qu'à plus basse pression concernant la largeur des cellules. Par contre, la déformation des fronts d'onde transverses est toujours aussi marquée. L'interprétation est difficile. En effet les informations des plaques sont des projections sur un plan d'un phénomène à trois dimensions. La courbure indique que les effets provoqués par le plasma et la prédissociation sont au moins du même ordre de grandeur que les instabilités des ondes transversales. Cette structure transverse est accentuée en particulier par la dilution dans l'argon. Nous avons donc cherché à caractériser l'effet du plasma dans un mélange sans structure transverse marquée et en conséquence nous choisissons le mélange $O_2 : H_2$.

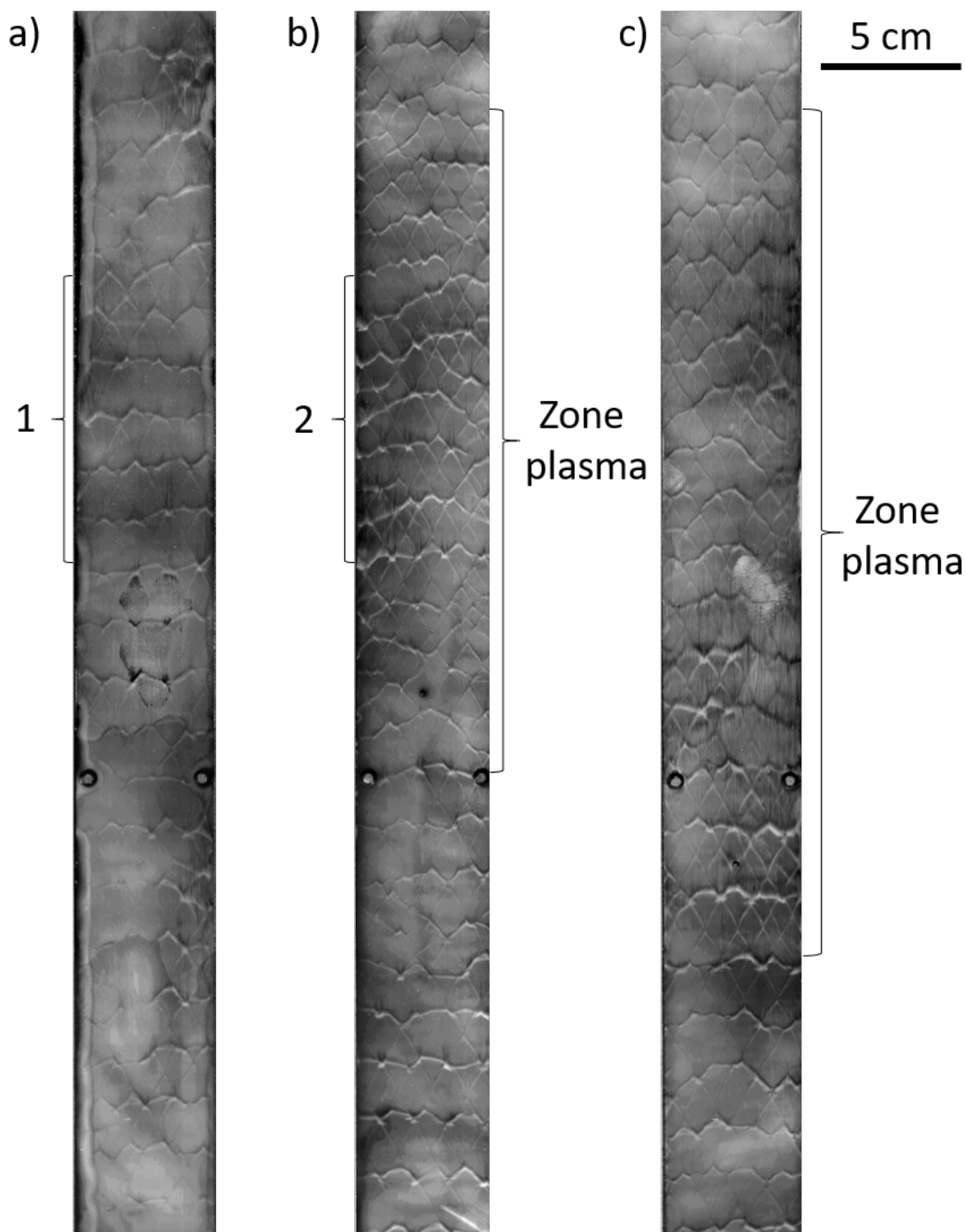


FIGURE 5.21 – Plaque obtenue à 150 mbar. a) Plaque de référence; b) et c) plaque plasma avec indications. Les "zones plasma" sont indiquée ainsi qu'une zone sur la plaque de référence (1) et sur la plaque plasma (2).

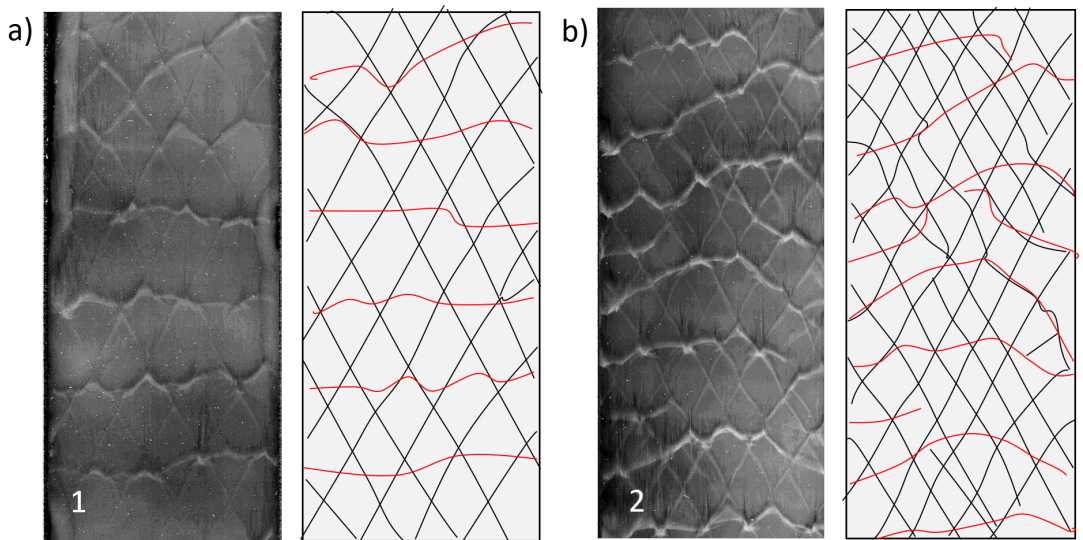


FIGURE 5.22 – Zoom et schéma des plaques pour les régions de la plaque de référence (1) et la plaque plasma (2) pour le mélange $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar}$ à 150 mbar.

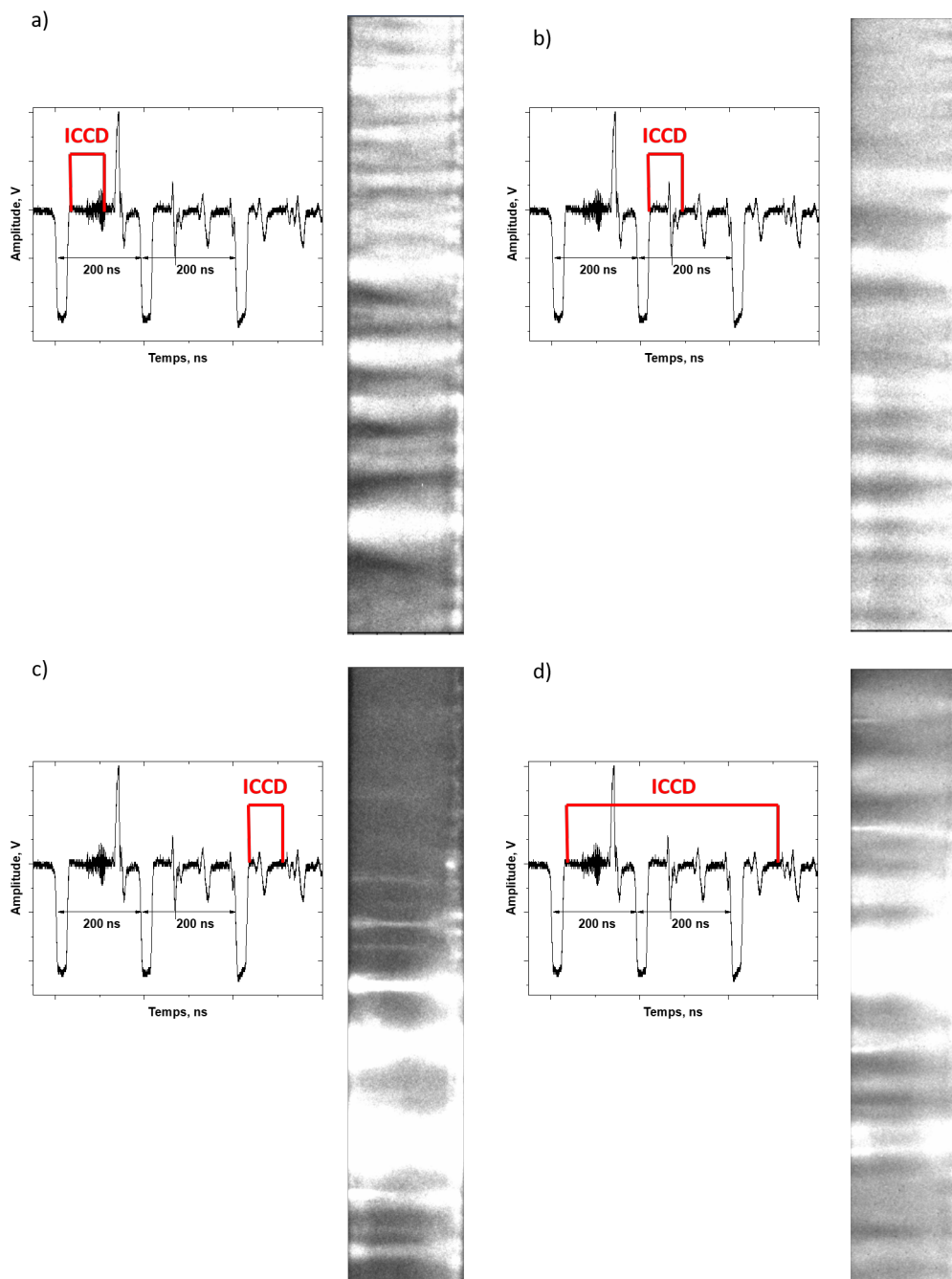


FIGURE 5.23 – Images ICCD du plasma pour $O_2 : H_2$ dilué dans 40% d'Argon dans la configuration burst à 200 mbar. a) Première impulsion (150 ns gate) ; b) deuxième impulsion ; c) troisième impulsion ; d) décharge entière (500 ns gate).

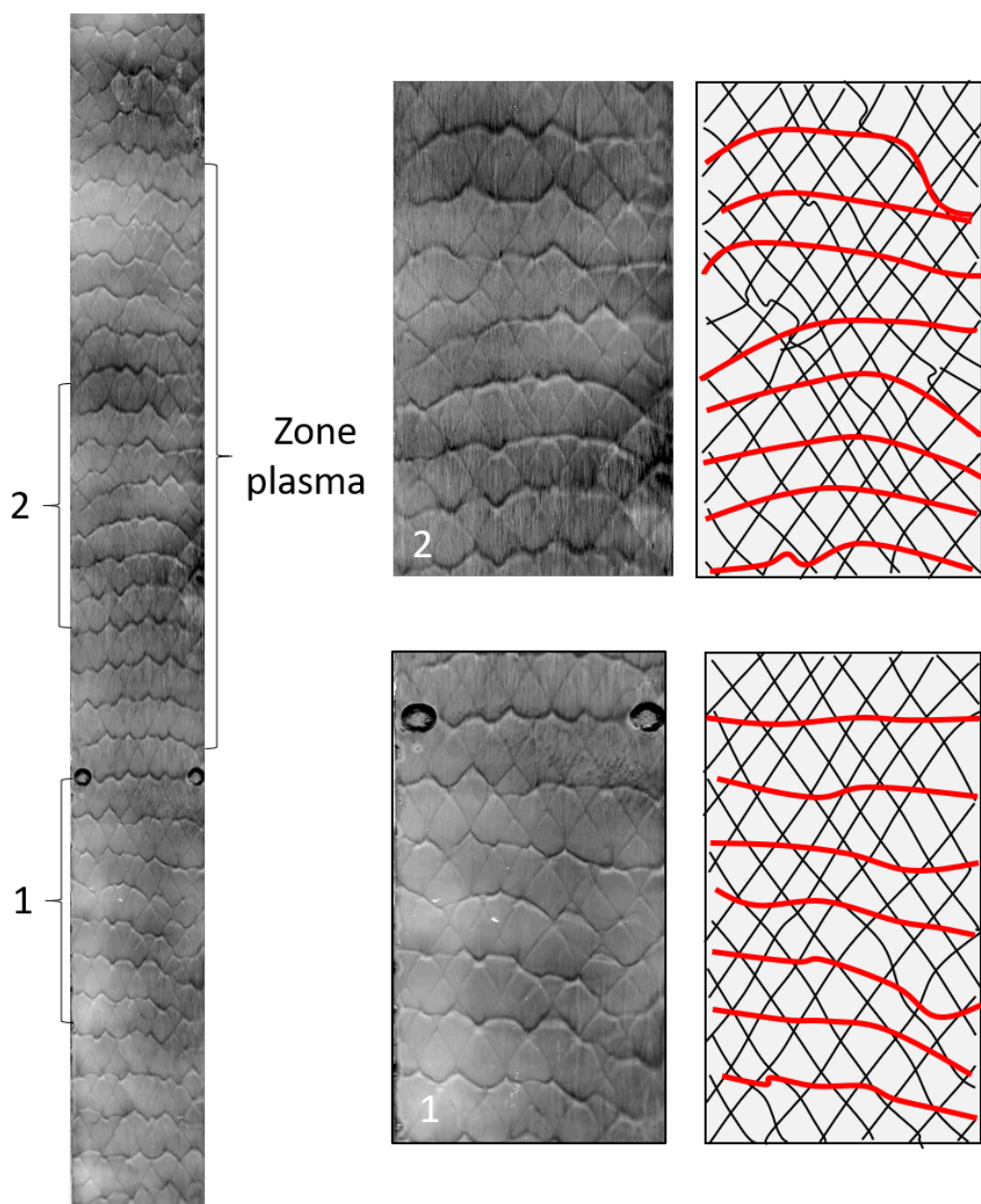


FIGURE 5.24 – Plaque obtenue à 200 mbar. la "zone plasma" ainsi que des zones en dehors (1) et dans la zone (2) sont indiquées.

5.3.4 O₂ - H₂

Le dernier mélange que l'on souhaite étudier est O₂ - H₂ stoechiométrique sans dilution. Il est particulièrement intéressant de caractériser le comportement du plasma sans dilution dans l'argon et les implications sur la chimie et l'hydrodynamique du phénomène.

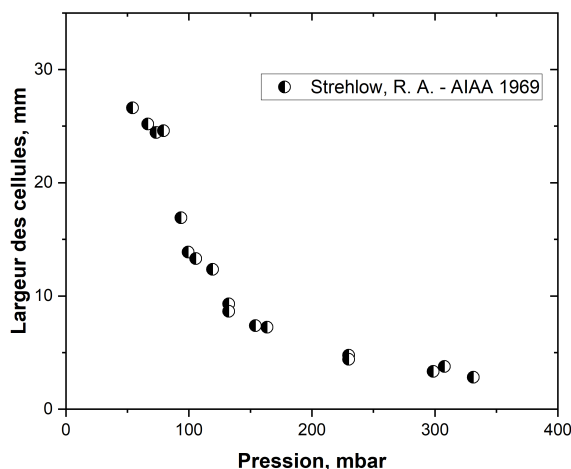


FIGURE 5.25 – Largeur des cellules vs pression initiale pour le mélange stoechiométrique O₂:H₂.

La figure 5.25 présente la largeur moyenne des cellules pour ce mélange en fonction de la pression initiale. Il est intéressant de remarquer que la largeur des cellules est équivalente, aux pressions de travail, à celles des mélanges avec dilution dans l'argon. Cette conclusion est naturelle puisque l'argon n'intervient pas dans la réaction de combustion globale et que nous n'avons pas changé la stoechiométrie du mélange.

La figure 5.26 présente les résultats obtenus pour 120 mbar dans O₂:H₂. La plaque de référence et la plaque plasma n'ont plus d'impacts transversaux marqués qui sont une caractéristique des mélanges contenant de l'argon. Sur la plaque plasma on observe des cellules de tailles réduites dans la "zone plasma" en comparaison avec la zone située au même endroit sur la plaque de référence. Les plaques sont identiques en dehors de la zone plasma. La figure 5.27 présente un zoom sur les zones marquées par 1 sur la plaque de référence et 2 sur la plaque plasma. Bien que les cellules soient moins régulières qu'avec la dilution par l'argon, on observe quand même une réduction locale de la largeur des cellules supérieure à un facteur 2.

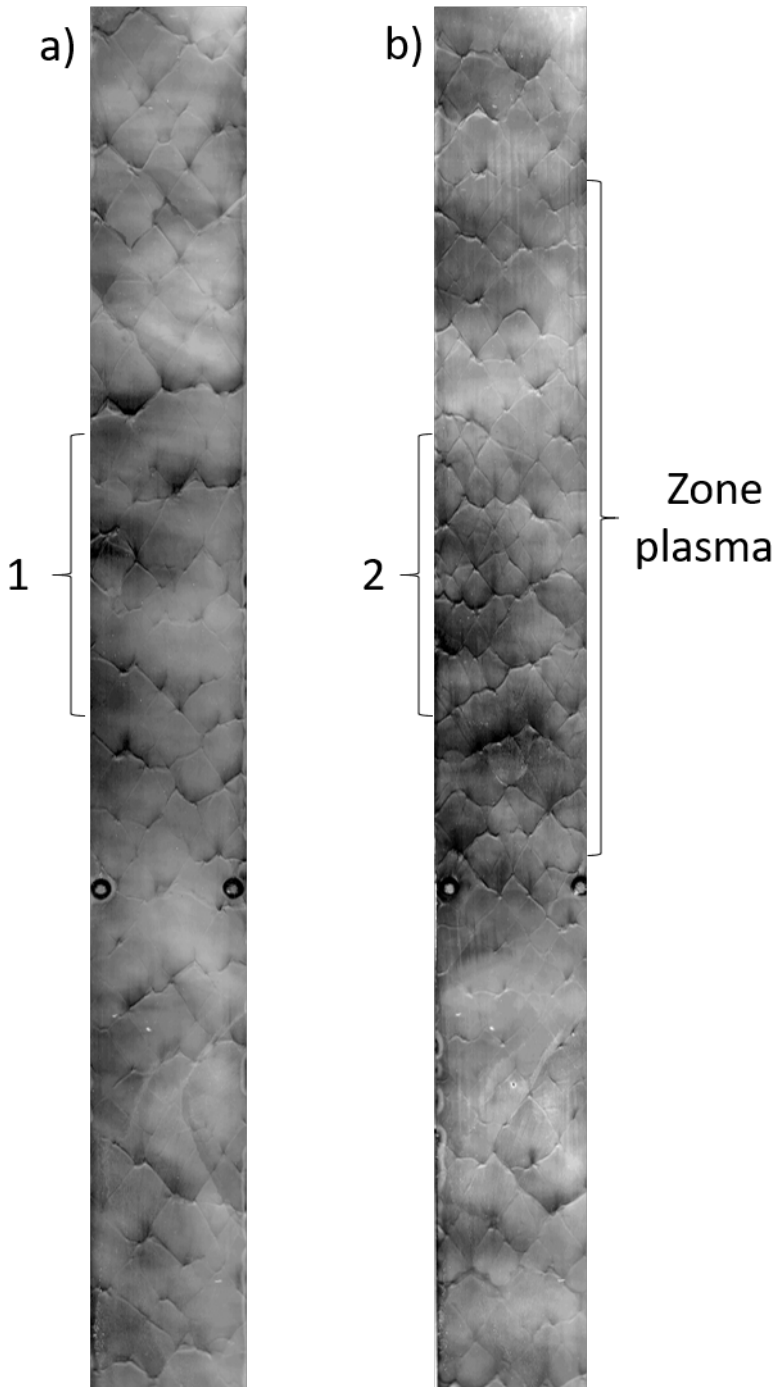


FIGURE 5.26 – Plaque obtenue à 120 mbar dans $O_2 - H_2$. a) Plaque de référence ; b) plaque plasma.

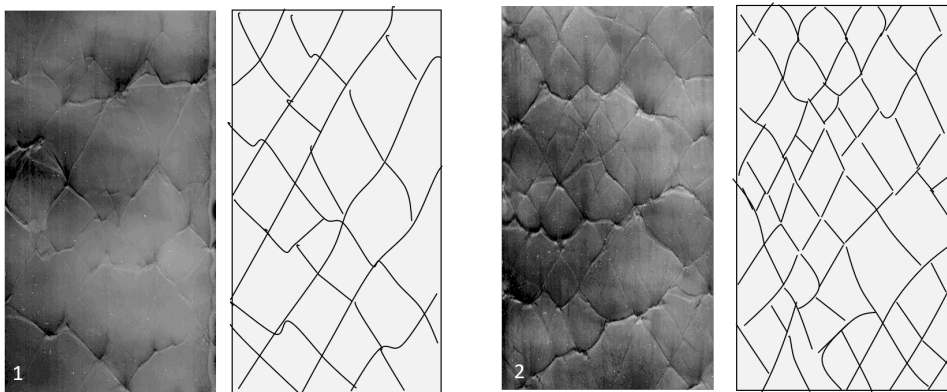


FIGURE 5.27 – Zoom et schéma des plaques pour les régions de la plaque de référence (1) et la plaque plasma (2) pour le mélange $H_2 : O_2$ à 120 mbar.

Chapitre 6

Réduction de la longueur de transition déflagration-détonation

Ce chapitre est dédié à la présentation des expériences destinées à établir l'existence d'effets promoteurs d'un plasma nanoseconde sur la transition déflagration-détonation dans un tube de section carrée. On y présente le dispositif expérimental et les techniques de mesure utilisés ainsi que les résultats obtenus pour le mélange $H_2 : O_2$ à plusieurs pressions.

Sommaire

6.1	Dispositif expérimental	101
6.1.1	Tube à déflagration	102
6.1.2	Électrode plasma	103
6.2	Métrie	107
6.2.1	Strioscopie - ombroscopie	108
6.3	Résultats	109
6.3.1	Tube à déflagration opaque	109
6.3.2	Tube à déflagration avec hublots	112

6.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental pour les expériences de TDD est composé d'un tube à déflagration et d'un système de décharge permettant d'initier la réaction de combustion. Ce tube a été utilisé à la place du tube présenté au chapitre précédent pour des raisons de disponibilité des installations expérimentales, mais les deux expériences auraient pu être réalisées dans le même tube. Le dispositif d'électrode plasma a été conçu au Laboratoire de Physique des Plasmas lors de la thèse. La figure 6.1 offre une vue d'ensemble du banc expérimental. Il est constitué d'un

tube de longueur modifiable, du système d'électrode où sont générées les décharges pour initier la combustion et de rails de suspension.

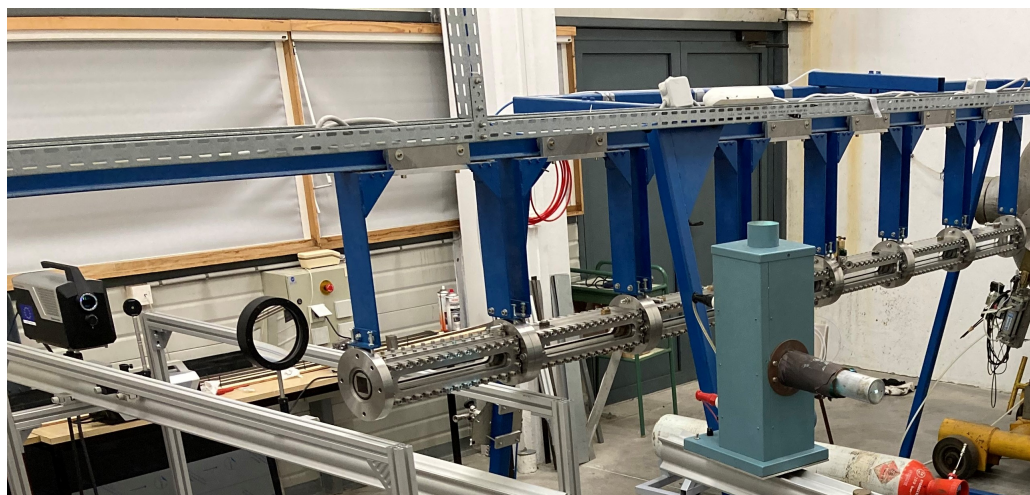


FIGURE 6.1 – Photographie du banc expérimental.

6.1.1 Tube à déflagration

Le tube à déflagration a une section carrée de $40 \times 40 \text{ mm}^2$. Il est constitué de 7 tronçons individuels de longueur 500 mm suspendus à un rail. Les tronçons peuvent être équipés de hublot en quartz ou de plaques d'acier inoxydable d'épaisseur 8 mm. La longueur du tube peut donc être variée, et nous avons travaillé avec une configuration de 3500 mm. Aux pressions étudiées le tube est ainsi suffisamment long pour ignorer les effets de sa longueur, i.e l'ajout d'un tronçon supplémentaire ne modifie pas la longueur de transition. Un schéma du tube est présenté en figure 6.2. Le sens de propagation de la flamme est indiqué et les tronçons sont numérotés de 1 à 7. Cette numérotation sera utilisée lors de la présentation des résultats expérimentaux.

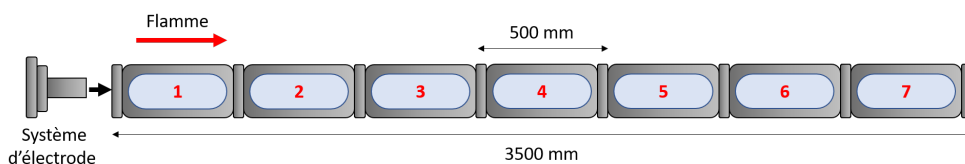


FIGURE 6.2 – Schéma du tube à déflagration. La flèche représente le sens de propagation de la flamme, les tronçons sont numérotés de 1 à 7.

Un tronçon identique a été adapté au Laboratoire de Physique des Plasmas pour étudier et optimiser le système d'électrode dans un mélange non combustible.

Nous avons réalisé une étude comparative d'un allumage du mélange par bougie conventionnelle avec un allumage plasma. La bougie positionnée en début de tube est alimentée par une alimentation stabilisée à découpage ELC ALF1225 (300 W 12 V 25 A) qui fournit une énergie que nous avons obtenue pour nos conditions de travail et dans l'air à 1 bar. L'énergie déposée par la bougie est de 45 mJ +/- 5% (incertitude estimée sur 10 tirs) indépendamment du mélange et de la pression. Les expériences ont été réalisées sans spirale de Shchelkin pour limiter les effets hydrodynamiques d'accélération de la flamme et ne comparer que les méthodes d'allumage (bougie vs plasma).

6.1.2 Électrode plasma

Nous avons conçu un système d'électrodes à 52 canaux. Ce système a été adapté afin de s'insérer dans le tube d'amorçage de section 40x40mm². Le système a été élaboré pour que chaque canal délivre un plasma pouvant démarrer la combustion en un point très localisé (2 mm de rayon). Chaque canal peut accueillir une électrode de haute tension. On a alors la possibilité de former des noyaux de combustion dans des dizaines de canaux en même temps. La figure 6.3 présente une vue en coupe du système inséré dans le tube d'amorçage.

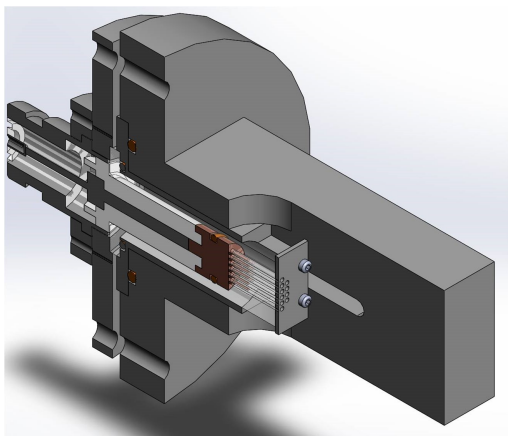


FIGURE 6.3 – Coupe du système d'électrode inséré dans le tube.

Les parties métalliques externes en gris représentent le tube et la masse de notre système d'électrode. Le système de haute tension est représenté par la pièce de couleur cuivre. La haute tension est prolongée dans les canaux par des pinules en CuZn qui permettent de créer un effet de pointe à leur extrémité ce qui favorise la génération de champs électriques localement forts. Les pinules sont

isolées électriquement les unes des autres par une pièce en plexiglas dans laquelle les canaux ont été creusés. Cette configuration permet d’avoir un accès optique de la zone entre la haute tension (les pinules) et la masse du système. Enfin, la haute tension est séparée de la masse par des pièces en téflon représentées en blanc sur le dessin. Une vue éclatée de ce système est présentée en figure 6.4.

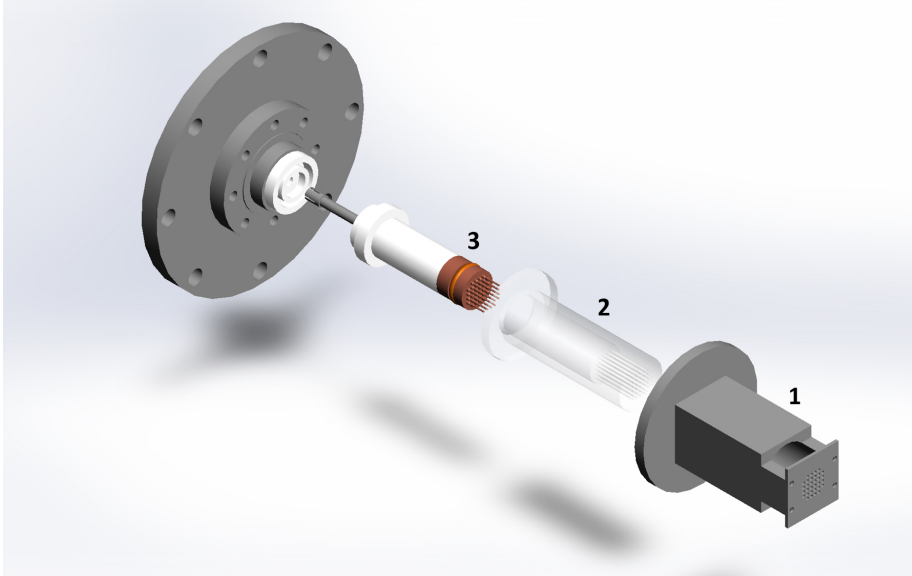


FIGURE 6.4 – Vue éclatée du système d’électrode : 1 = masse métallique ; 2 = isolant en plexiglas ; 3 = haute tension -pinules.

Le système est amovible, chaque pièce peut être remplacée ou modifiée ce qui permet une grande flexibilité dans les différentes études que l’on peut réaliser. En particulier, pour la pièce de haute tension numérotée 3, cette pièce est percée de 52 trous qui peuvent être prolongés d’une pinule ou non. De la même façon, la pièce d’isolation 2 a été produite en plusieurs versions. La version de base est rigide, en plexiglas et non modifiable. La seconde version est en PVC et possède une partie centrale amovible réalisable avec une imprimante 3D. Ce dispositif est particulièrement avantageux car il permet de tester un grand nombre de configurations pour la disposition des canaux et se change très facilement. En particulier une disposition à 4 canaux a été testée, elle permet de maximiser le dépôt d’énergie au centre du dispositif. Une photographie de cette variante est présentée en figure 6.5.

Trois configurations distinctes ont été testées afin d’étudier le comportement du plasma à différentes pressions. Les trois configurations sont présentées en figure 6.6. Les canaux rouges sont équipés d’une pinule les canaux vide n’ont pas de pinule. La configuration 1 est la situation où les 52 canaux sont équipés d’une pinule répartissant ainsi l’énergie sur une surface importante de la section du

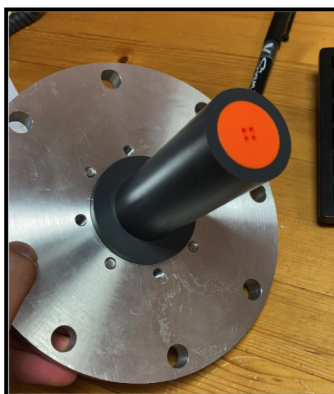


FIGURE 6.5 – Dispositif d'électrode avec partie diélectrique centrale amovible permettant de modifier le nombres de canaux disponibles pour la décharge.

tube. La configuration 2 est la situation où seulement 4 canaux sont équipés d'une pinule avec l'isolation en plexiglas permettant un accès optique. Finalement, la configuration 3 est la situation où 4 canaux sont équipés d'une pinule avec isolation en PVC. L'énergie est concentrée au centre du dispositif.

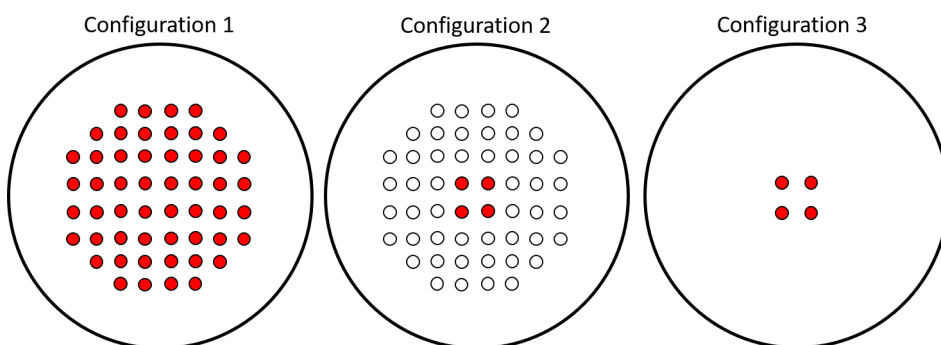


FIGURE 6.6 – Schéma des trois configurations utilisées pour étudier le comportement du plasma : 1 = 52 canaux/52 pinules ; 2 = 52 canaux/4 pinules ; 3 = 4 canaux/4 pinules

Le dispositif a été testé dans le tronçon isolé, dans de l'air à des pressions entre 1 mbar et 600 mbar pour une impulsion. Un exemple d'oscillogramme obtenu pour 22,5 kV est présenté en figure 6.7 à différentes pressions. Le comportement du plasma est qualitativement identique sur toute la plage de pressions étudiée. En effet, on peut voir sur l'impulsion réfléchi qu'une connexion entre la haute tension et la masse est très vite établie (changement de signe de l'impulsion) en moins de 10 ns. À mesure que la pression augmente, une portion plus importante de l'énergie de la décharge est déposée dans le gaz.

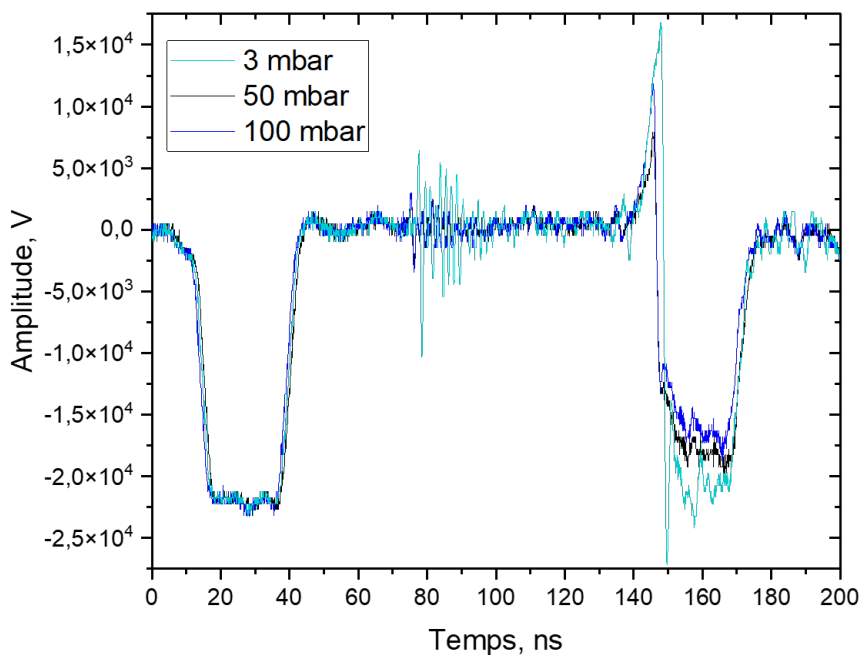


FIGURE 6.7 – Oscillogramme de la décharge pour une amplitude de 22,5 kV et aux pressions 3, 50 et 100 mbar. Le comportement du plasma est qualitativement identique.

La figure 6.8 présente des images ICCD de la décharge pour 3 cas : (a) une image de référence du dispositif, (b) la décharge à 50 mbar dans la configuration 1, et (c) la décharge à 50 mbar dans la configuration 2. Ces images sont obtenues pour une exposition de 20 ns et un gain de 1/255 de la caméra. Dans la configuration 1, la décharge se développe de manière équitable dans tous les canaux à disposition et elle reste confinée entre la haute tension et la masse. Dans la configuration 2, la décharge se développe en priorité au niveau des canaux au milieu du dispositif, puis de manière secondaire dans les canaux voisins, en périphérie il n'y a pas d'émission. On observe également une émission en dehors du volume entre la haute tension et la masse. La décharge se développe de manière similaire à des systèmes de plasma-jet. Par la suite on veut étudier plus en détail cette configuration particulière où l'énergie est localisée au centre du dispositif.

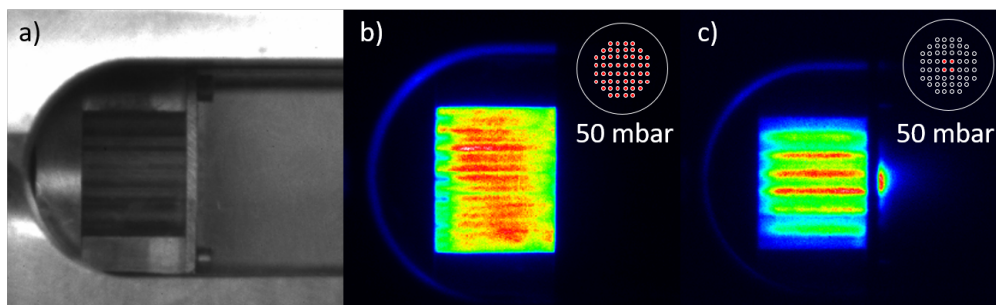


FIGURE 6.8 – Image ICCD de la décharge pour une amplitude de 22,5 kV et à la pression de 50 mbar pour : a = image de référence ; b = la configuration 1 ; c = la configuration 2. Temps d'exposition : 20 ns ; gain=1/255

La figure 6.9 présente les images ICCD du volume devant l'électrode pour les pressions 3 et 100 mbar, 22,5 kV, 20 ns d'exposition et un gain 99/255. Pour ces images la configuration 3 a été utilisée. L'intensité lumineuse est particulièrement forte au centre du tube et décroît de manière concentrique vers les bords. Plus la pression augmente, plus le volume du plasma à l'extérieur est réduit.

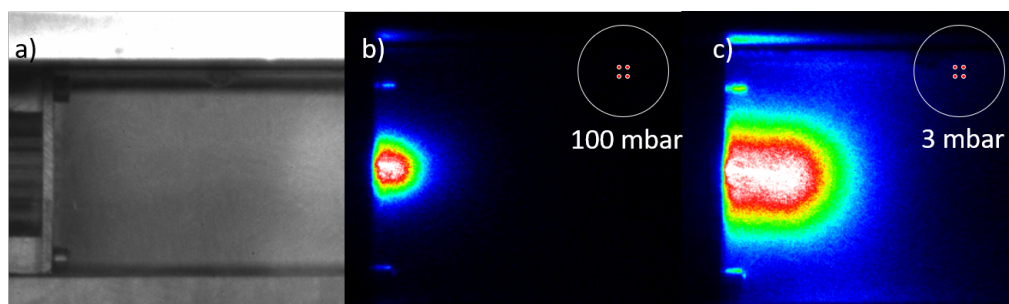


FIGURE 6.9 – Image ICCD de la décharge pour une amplitude de 22,5 kV avec la configuration 3 pour : a = image de référence ; b = 100 mbar ; c = 3 mbar. Temps d'exposition : 20 ns ; gain=1/255

6.2 Métrologie

Pour ces expériences, nous avons utilisé les mêmes techniques qu'au chapitre 5, soit, les capteurs de pression dynamiques, la visualisation ICCD, les mesures de paramètres électriques par BCS et les enregistrements sur plaque recouverte d'un dépôt de carbone. Pour cette dernière, nous avons utilisé des plaques longues de 2 m afin de ne pas introduire de perturbations dans le processus de TDD par l'effet de marche induit par l'épaisseur de la plaque. Ces plaques ont permis de retracer l'évolution de la déflagration vers la détonation de manière continue pour chaque

tir. Cette technique donne une projection sur un plan à 2D d'un phénomène à 3D. Nous avons monté un dispositif de strioscopie et d'ombroscopie pour obtenir des informations supplémentaires sur la dynamique de la transition.

6.2.1 Strioscopie - ombroscopie

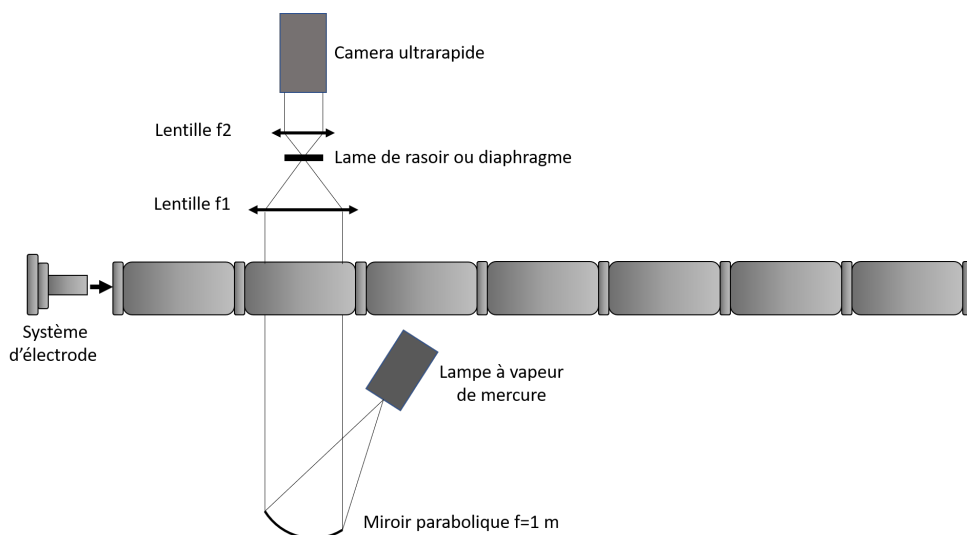


FIGURE 6.10 – Schéma du banc expérimental et du dispositif de strioscopie.

Les techniques de strioscopie et d'ombroscopie permettent de détecter les changements d'indice de réfraction de l'air sous l'effet de la température ou de la densité permettant par exemple d'étudier la propagation de la déflagration et de la détonation dans le tube d'amorçage. Pour des gaz, la variation relative de la densité et de l'indice de réfraction est linéaire. La différence entre les deux techniques réside dans la nature de l'objet occultant placé sur le chemin de la lumière. Pour la strioscopie nous avons utilisé une lame de rasoir permettant d'observer les changements sur la dérivée première de la densité. Pour l'ombroscopie nous avons utilisé un diaphragme permettant d'observer les changements sur la dérivée seconde de la densité. Les autres éléments du montage sont identiques pour les deux techniques, soit,

- Une lampe à vapeur de mercure produisant une lumière blanche ponctuelle et très intense.
- Un miroir parabolique de distance focale 1 m permettant d'obtenir une lumière collimatée.
- Une première lentille ($f_1 = 1$ m) de grande distance focale.
- Une deuxième lentille ($f_2 = 20$ cm) de petite distance focale. Le rapport f_1/f_2 donne la qualité de l'image obtenue en fin de course.

- Une caméra ultrarapide si on utilise la source de lumière blanche ou une caméra ICCD PI-MAX2 si on n'utilise pas de source de lumière.
- Il est possible de déplacer le tube sur son rail pour observer différentes positions de la transition.

6.3 Résultats

6.3.1 Tube à déflagration opaque

Des expériences en configuration opaque ont été menées en introduisant des plaques d'acier longues de 2m sur le chemin de la flamme afin d'observer l'ensemble des phénomènes de transition depuis l'allumage, pour le plasma et pour la bougie. Les expériences ont été réalisées dans un mélange $H_2 : O_2$ stoechiométrique sans dilution à des pressions entre 200 et 1400 mbar. La configuration de décharge "burst" a été préférée pour le plasma. Lors des expériences deux types de régimes de propagation de la flamme ont été observés. Un régime de "basse pression" entre 200 et 600 mbar et un régime de "haute pression" à partir de 800mbar.

Régime de basse pression

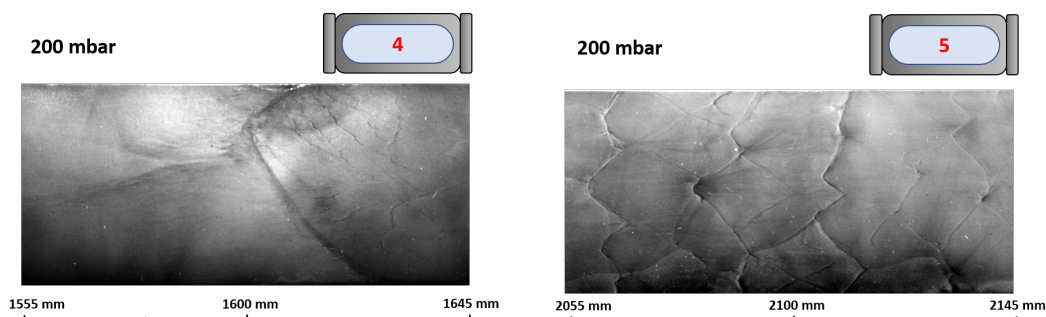


FIGURE 6.11 – Enregistrements sur plaques de la transition déflagration-détonation, gauche, et de la propagation de la détonation CJ, droite, à la pression de 200 mbar pour un allumage plasma.

La figure 6.11 présente les enregistrements sur plaques de la transition déflagration-détonation à la pression de 200 mbar pour un allumage plasma. Un second enregistrement après la transition est présenté. La transition s'effectue à partir d'un point très éloigné de l'allumage (1,6 m). Des petites cellules apparaissent témoignant d'une détonation à la célérité $D > D_{CJ}$. Quelques centimètres plus loin, la détonation relaxe vers le régime CJ et on observe des cellules dont la taille correspond aux conditions initiales de pression et de température. Ce régime de transition est

observé à la fois pour l'allumage par plasma et l'allumage par bougie et à toutes les pressions jusqu'à 600 mbar. Pour cette plage de pression, la TDD est observée à des longueurs plus courtes avec l'allumage par plasma.

Régime de haute pression

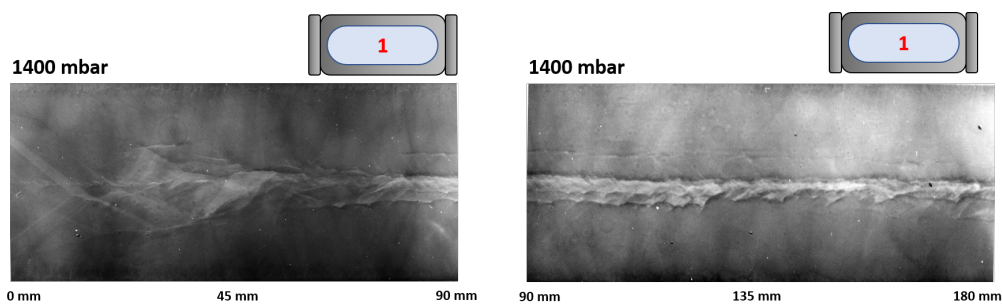


FIGURE 6.12 – Enregistrements sur plaques de la déflagration à la pression de 1400 mbar pour un allumage plasma.

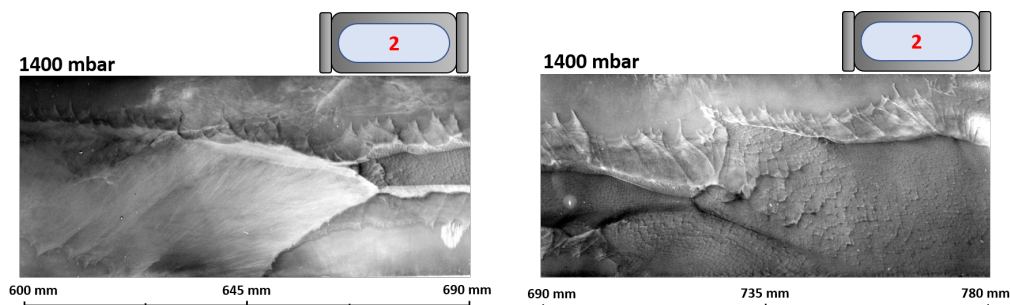


FIGURE 6.13 – Enregistrements sur plaques de la transition déflagration-détonation à la pression de 1400 mbar pour un allumage plasma.

Les figures 6.12 et 6.13 présentent les enregistrements sur plaques de la transition déflagration-détonation à la pression de 1400 mbar pour un allumage plasma. Avant la transition on observe une flamme qui se propage en s'enroulant. Au bout de 660 mm, la détonation naît au centre d'une configuration de flamme tulipe, le centre de la flamme ayant du retard par rapport aux bords. On observe des cellules très petites contenues à l'intérieur des flammes. Plusieurs points d'amorçages sont observés par la suite. La détonation se détend rapidement vers le régime CJ après 780 mm. Ce comportement est similaire pour toutes les pressions à partir de 800 mbar. Dans cette plage de pressions, la TDD se produit à des distances similaires pour l'allumage par plasma.

Comparaison Plasma-Bougie en configuration opaque

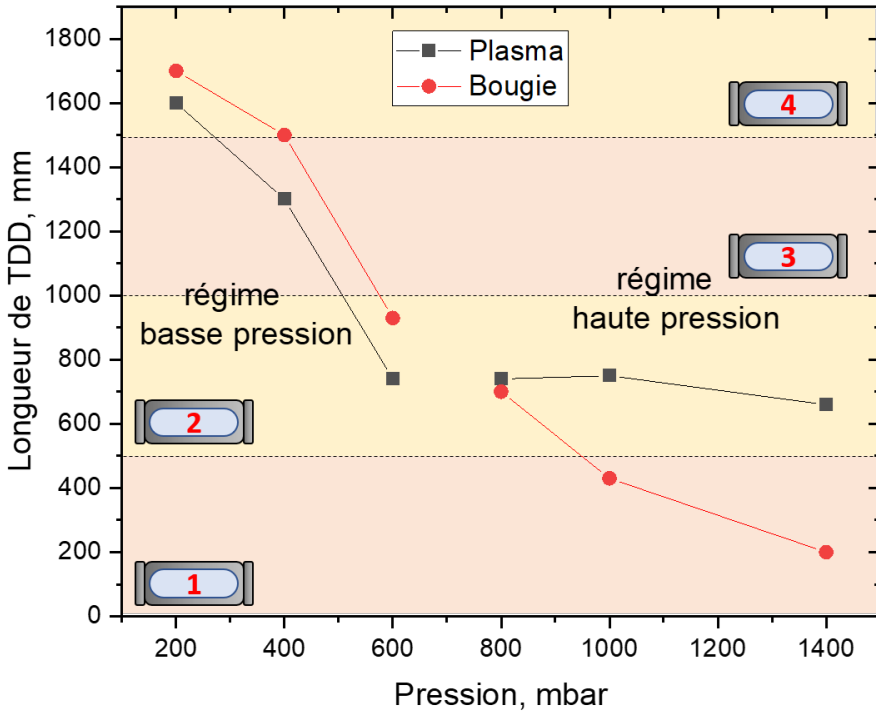


FIGURE 6.14 – Longueur de TDD en fonction de la pression initiale pour le plasma et la bougie.

La figure 6.14 répertorie les positions de TDD observée pour le plasma et pour la bougie. À partir de 600 mbar la TDD est systématiquement observée pour le plasma dans le deuxième tronçon. On sait que la longueur de TDD diminue avec la pression. Ainsi, l'effet du plasma diminue avec l'augmentation de la pression. Cette observation conforte celles issues de l'étude de la morphologie du plasma vue au chapitre 5. Le volume du plasma diminue devant le système d'électrode avec l'augmentation de la pression. À l'inverse, si la pression diminue, le plasma devient de plus en plus efficace pour diminuer la longueur de transition.

6.3.2 Tube à déflagration avec hublots

Les expériences ont été poursuivies dans le tube monté avec des hublots pour le mélange $H_2 : O_2$ stoechiométrique sans dilution. Les expériences effectuées précédemment en configuration opaque sont indicatives, elles ne permettent pas de prédire la position de la transition en raison du changement de matériaux en surface. Le parcours de la flamme a donc été caractérisé par strioscopie pour le plasma et pour la bougie. La pression a été variée entre 600 et 800 mbar.

Allumage et propagation

Les figures 6.15 et 6.16 présentent les premiers instants du développement de la flamme pour un allumage par plasma et un allumage par bougie.

Dans le cas de l'allumage par plasma, on observe la naissance d'au moins deux noyaux de combustion entourés d'ondes de compression. Ces noyaux évoluent rapidement en lobes et le milieu devant la flamme est suffisamment comprimé pour être visible sur l'enregistrement. La flamme est turbulente dès les premiers instants de son développement et sa propagation en plusieurs lobes amplifie les perturbations. Au final on obtient des ondes de compressions très marquées et très rapides et une flamme avec une surface très importante, dont la vitesse est alors tout aussi importante. En moins de 141 000 ns la flamme a parcouru la moitié de la surface d'enregistrement.

Dans le cas de l'allumage par bougie, on ne distingue pas la flamme des ondes de compression, lesquelles ne deviennent visibles que beaucoup plus tard. La flamme a une surface lisse et quasi-sphérique. Le processus est beaucoup plus long comparé à l'allumage par plasma. La flamme a parcouru la moitié de la surface d'enregistrement en 420 000 ns. L'explication la plus évidente est la différence de surface et de turbulence entre les deux flammes.

Ces différences de propagation se poursuivent jusqu'à une certaine distance que l'on va établir. Lorsque la flamme issue de la bougie devient turbulente, son comportement devient semblable à celui de la flamme issue du plasma et le processus de transition est également identique.

Pendant l'intervalle de temps où seule la flamme issue du plasma est turbulente, elle évolue beaucoup plus rapidement. Il est intéressant de caractériser cet intervalle et d'analyser la différence de propagation des deux ondes.

La figure 6.17 présente des enregistrements en strioscopie pour la flamme issue de la bougie. Les instants choisis montrent le passage de la propagation d'un front lisse à un front non-lisse, le changement de forme de la surface du front de déflagration avec l'apparition d'instabilités de type Landau et finalement l'apparition des

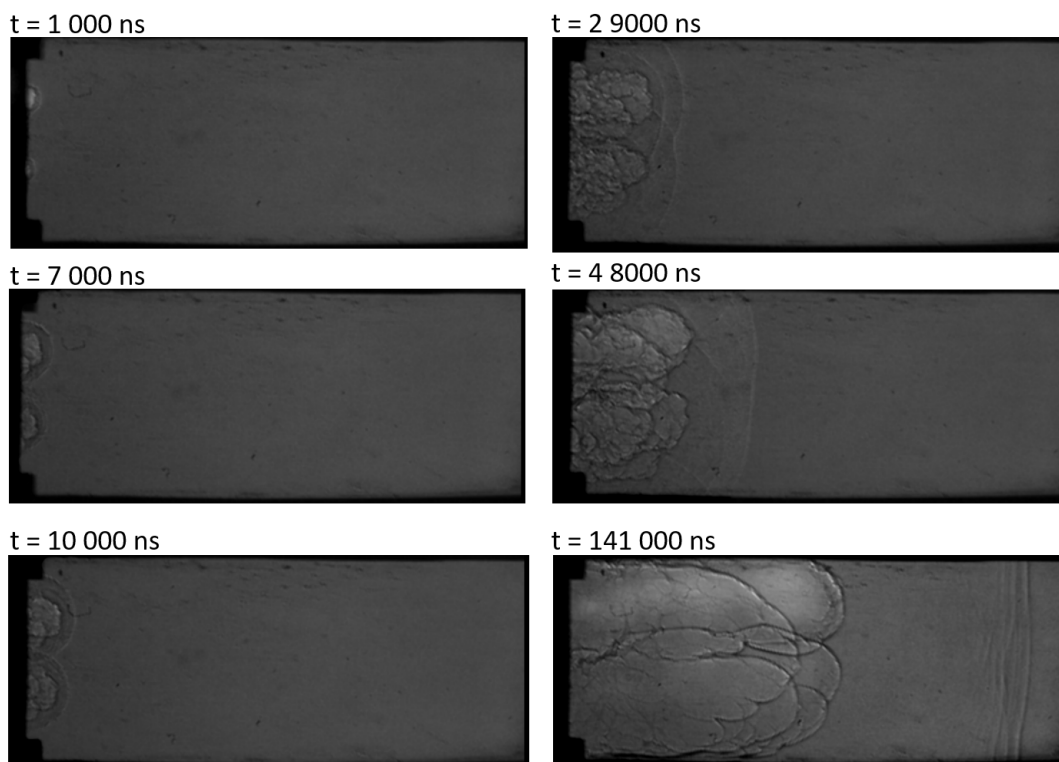


FIGURE 6.15 – Enregistrement en strioscopie de l’allumage de la flamme par plasma à 600 mbar dans $\text{H}_2:\text{O}_2$. Le temps $t=0$ représente la fin de la décharge.

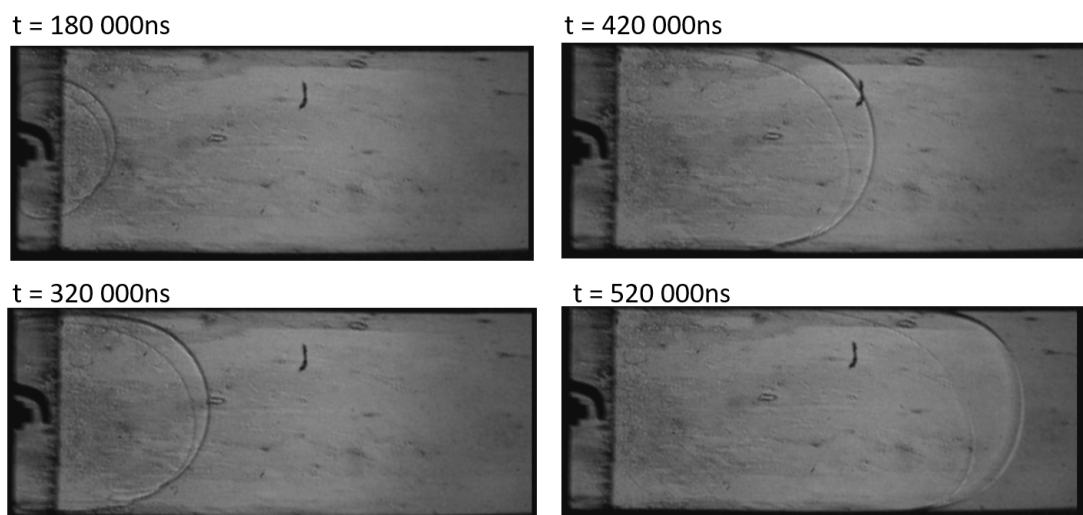


FIGURE 6.16 – Enregistrement en strioscopie de l’allumage de la flamme par bougie à 600 mbar dans $\text{H}_2:\text{O}_2$. Le temps $t=0$ représente la fin de l’étincelle.

première ondes de compression distinguables. La majorité des processus énoncés se produisent dans le premier tronçon c'est-à-dire sur les premiers 500 mm et on commence à distinguer les ondes de compression au début du troisième tronçon soit 1 m après l'allumage. Les échelles de temps sont aussi très importantes. On compare l'évolution de la flamme issue du plasma pour les mêmes conditions.

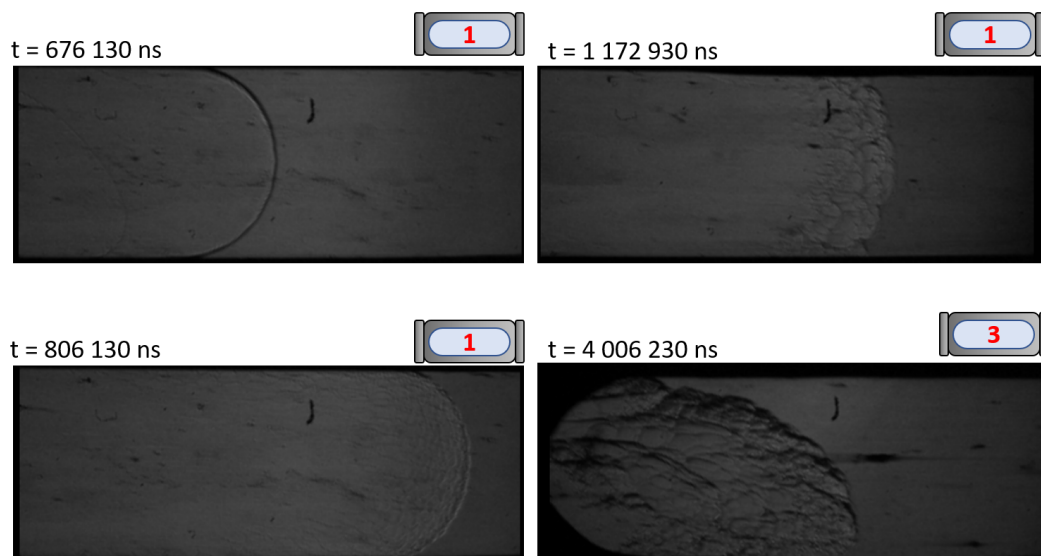


FIGURE 6.17 – Enregistrements en strioscopie de la flamme issue de la bougie à 600 mbar dans $H_2 : O_2$. Le temps $t=0$ représente la fin de l'étincelle.

La figure 6.18 présente des enregistrements en strioscopie pour la flamme issue du plasma aux mêmes instants que pour la bougie. Ces images montrent que la flamme est en avance par rapport à celle issue de la bougie. Cette différence de vitesse s'explique par l'introduction d'instabilités et de turbulence dès les premiers instants du processus de propagation de la flamme. La présence d'un choc précurseur favorisant la propagation de la flamme est observée beaucoup plus tard pour la bougie (environ 4 ms). A cet instant, la transition a déjà eu lieu pour l'allumage plasma. Un enregistrement du front au moment de la transition est présenté en quatrième image. Laquelle se produit à 2,49 ms environ.

Longueur de TDD à pression fixée

La longueur de transition présente une incertitude. En effet, la transition se déclenche stochastiquement dans les angles du tube, d'où une incertitude de environ 4 cm pour le tube. On évalue donc la moyenne des positions de la transition pour des conditions initiales données. Dans le cas de notre expérience, on observe que le front initié par plasma atteint le régime de détonation en avance spatiale par

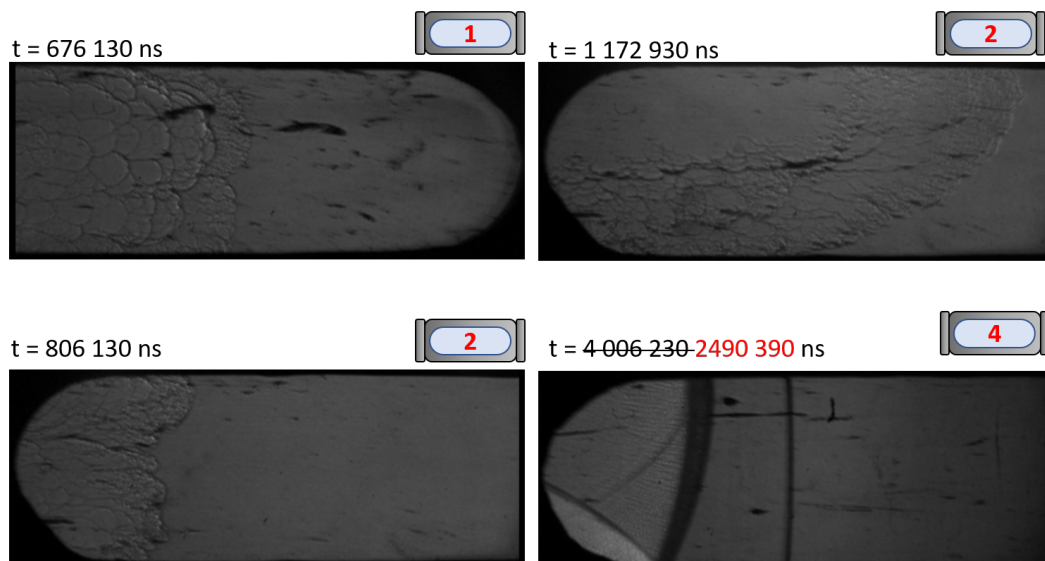


FIGURE 6.18 – Enregistrement en strioscopie de la flamme par issue du plasma à 600 mbar dans $H_2 : O_2$. Le temps $t=0$ représente la fin de la décharge.

rapport à l'initiation par la bougie. La figure 6.19 compare les enregistrements des deux ondes de combustion au début du quatrième tronçon. Ces enregistrements ont été réalisés dans $H_2 : O_2$ stoechiométrique, non dilué pour le plasma et la bougie, à 600 mbar.

Pour la bougie, à gauche, c'est à cette position que l'onde de détonation naît. Dans ce cas particulier, on voit deux points d'amorçage qui ont mené chacun à une explosion locale. La flamme est encore visible derrière le front, devant le front on distingue encore les ondes de compression du milieu qui seront rattrapées par le front.

Pour le plasma, à droite, la détonation est déjà bien formée pour la même position dans le tube. La zone de combustion est attachée à l'onde de choc, et la structure cellulaire du front de détonation est parfaitement distinguable. Devant le choc, le mélange est dans son état initial : on a donc bien la propagation supersonique du front. La détonation autonome est alors rapidement pour les conditions initiales considérées.

Pression de TDD à longueur fixée

Dans le cas de l'allumage par plasma, pour la pression initiale de 600 mbar, la transition de la déflagration vers la détonation se produit entre les tronçons 3 et 4 où nous n'avons pas d'accès optique. Afin de pouvoir visualiser la transition et s'assurer qu'elle n'est pas causée par un défaut dans la jonction des deux tubes

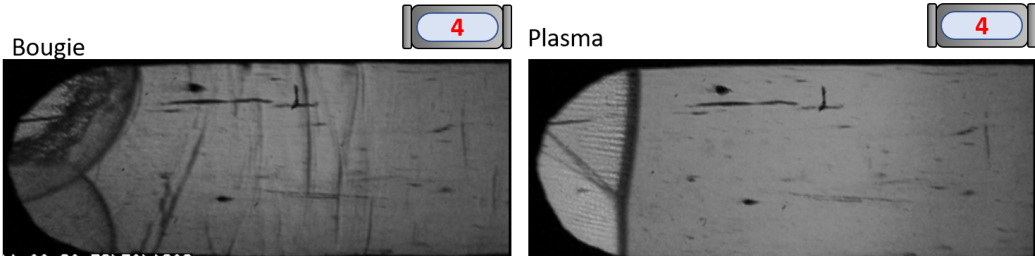


FIGURE 6.19 – Enregistrement en strioscopie de l’onde issue de la bougie (gauche) et du plasma (droite) à 600 mbar dans $H_2 : O_2$.

nous avons augmenté la pression par paliers de 50 mbar pour décaler la position de TDD vers la gauche.

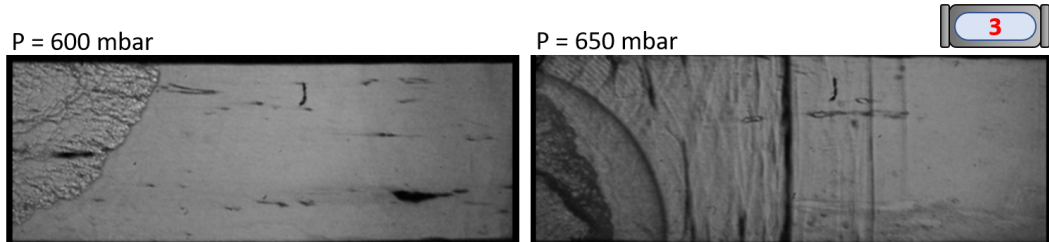


FIGURE 6.20 – Enregistrement en strioscopie de l’onde issue du plasma à 600 et 650 mbar dans $H_2 : O_2$.

La figure 6.20 présente des enregistrements en strioscopie pour la flamme issue du plasma à 600 et 650 mbar. A 600 mbar la flamme est lente relativement au front de compression, très en avance, et qui n’apparaît donc pas sur l’image. A 650 mbar, on est déjà dans le cas d’une transition vers le régime de détonation. On observe que la flamme avait déjà rattrapé le front d’onde de compression. Le comportement de la flamme issue du plasma semble très sensible aux changements de pression initiale.

La figure 6.21 présente des enregistrements en strioscopie pour la flamme issue de la bougie entre 650 et 800 mbar. Il faut augmenter la pression de plusieurs centaines de mbar pour observer la transition vers la détonation. A 650 et 700 mbar, on se trouve dans le même cas qu’à 600 mbar avec le plasma : des ondes de compression se forment devant la flamme mais la flamme se propage comparative-ment plus lentement. À partir de 750 mbar, la flamme est rapide à cette position et la distance entre le front de flamme et le front de l’onde diminue. Enfin, à 800 mbar, on a une explosion dans la région située entre la flamme et les ondes de compression. Ainsi, on voit que la flamme issue de la bougie est beaucoup moins

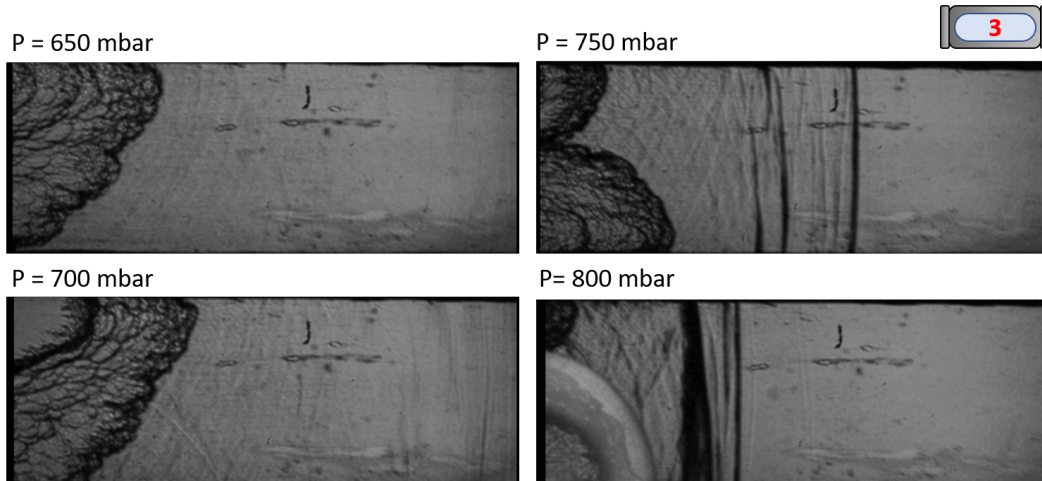


FIGURE 6.21 – Enregistrements en strioscopie de l'onde issue de la bougie entre 650 et 800 mbar dans $H_2 : O_2$.

sensible aux changements de pression initiale.

En résumé, dans cette configuration de tube avec des hublots, long de 3500 mm et avec le mélange $H_2 : O_2$ stoechiométrique à des pressions modérées l'allumage par plasma est donc plus efficace que l'allumage par bougie pour réaliser la TDD par trois critères :

- le temps nécessaire est inférieur.
- la distance nécessaire est inférieure.
- la pression nécessaire est inférieure.

Chapitre 7

Réduction des temps d'induction de combustion

Dans ce chapitre nous proposons une explication des effets observés dans les chapitres 5 et 6, à savoir une augmentation de la détonabilité de mélanges réactifs sous certaines conditions par application d'un plasma nanoseconde hors équilibre. L'hypothèse principale est que la prédissociation par le plasma du gaz a un effet promoteur sur les réactions de combustions lors des processus de propagation d'une détonation et de formation d'une flamme. Dans un premier temps, on relie les résultats expérimentaux de champ électrique, courant et énergie déposée à des pourcentages de dissociation des électrons puis des espèces radicalaires d'intérêt pratique. Puis, nous utilisons ces résultats pour calculer les profils des grandeurs thermodynamiques de la détonation selon le modèle ZND. Sous réserve de certaines hypothèses, ces profils peuvent être reliés à des temps et longueur caractéristiques comme le temps d'induction. On établit alors à partir des résultats expérimentaux que le plasma nanoseconde a un effet instantané sur la réduction des temps d'induction chimique dans les réactions de combustion d'une détonation établie et de la TDD.

Sommaire

7.1 Effets du plasma sur la détonabilité	120
7.1.1 Détonabilité et largeur des cellules	120
7.1.2 Détonabilité et TDD	124
7.2 Réduction du temps d'induction chimique	130
7.2.1 Création d'un milieu excité par le plasma	130
7.2.2 Effets thermiques potentiels	138
7.2.3 Profils ZND et temps d'induction	142

7.1 Effets du plasma sur la détonabilité

7.1.1 Détonabilité et largeur des cellules

Les expériences présentées au chapitre 5 indiquent qu'une application locale du plasma nanoseconde provoque un changement de la structure cellulaire sur le parcours de l'onde de détonation : les cellules deviennent plus petites. Cette réduction traduit une augmentation locale de la détonabilité du mélange dans nos conditions expérimentales. Les résultats ont été obtenus pour des mélanges, pressions et nombres d'impulsions différents. On veut faire ressortir des tendances. On analyse le rôle de ces paramètres sur le champ électrique pendant la décharge et l'énergie déposée dans le gaz par celle-ci.

Pour réaliser cette étude, on utilise pour chaque tir les enregistrements effectués par BCS des impulsions, un exemple pour le cas $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{CH}_4 : \text{Ar}(60\%)$ à 180 mbar est présenté en figure 7.1. Les deux impulsions consécutives sont séparées de $10 \mu\text{s}$ (régime "slow rise") et on les différencie par leur couleur. À partir de cet enregistrement nous pouvons calculer des paramètres électriques de la décharge. Dans la configuration d'électrodes parallèles la norme du champ électrique réduit peut être calculée en faisant l'hypothèse d'uniformité. La formule appliquée est présentée sur la partie supérieure de la figure où d représente la distance entre les électrodes (5 cm) et N la densité du gaz (obtenue à partir de la loi du gaz parfait). L'énergie déposée peut également être calculée pour la décharge. La formule appliquée est présentée sur la partie inférieure de la figure où Z_0 est l'impédance du câble et V le volume de plasma. Pour cette expérience, le volume considéré est celui illustré en figure 5.11 qui constitue un parallélépipède entre les électrodes. Ces calculs peuvent être appliqués de manière identique pour le régime "burst".

On présente les champs électriques réduits et énergie déposées par les décharges dans les cas :

- (1) Le mélange $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{CH}_4 : \text{Ar}(60\%)$ stœchiométrique pour lequel le régime "slow rise" a été utilisé à 180 mbar (Figure 7.2).
- (2) Le mélange $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar}(40\%)$ stœchiométrique pour lequel le régime "burst" a été utilisé à 150 mbar (Figure 7.3).
- (3) Le mélange $\text{H}_2 : \text{O}_2$ stœchiométrique pour lequel le régime "burst" a été utilisé à 150 mbar (Figure 7.4).
- (4) Le mélange $\text{H}_2 : \text{O}_2$ stœchiométrique pour lequel le régime "burst" a été utilisé à 120 mbar (Figure 7.5).

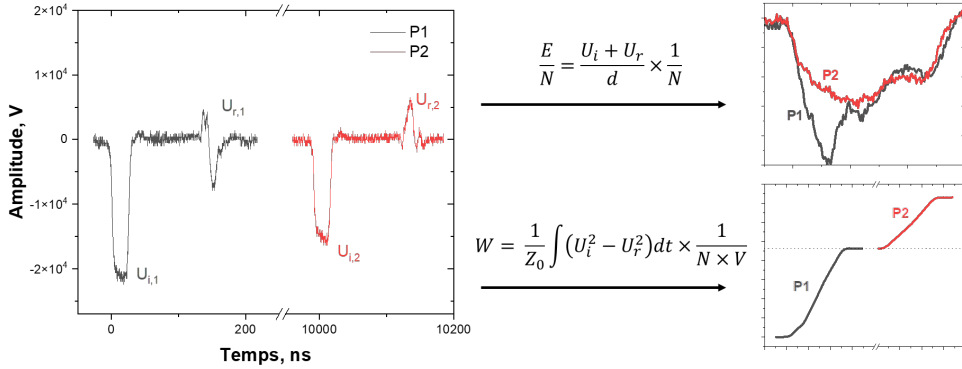


FIGURE 7.1 – Méthode de mesure du champ électrique réduit et énergie déposée pour la configuration : 2 impulsions -23 et -17 kV ; H₂ :O₂ :CH₄ :Ar ; 180 mbar.

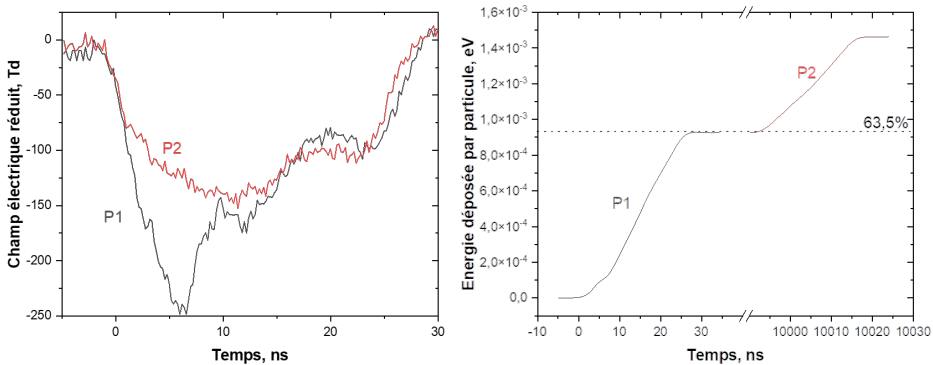


FIGURE 7.2 – Champ électrique réduit et énergie déposée pour la configuration : 2 impulsions -23 et -17 kV ; H₂ :O₂ :CH₄ :Ar ; 180 mbar.

Nombre d'impulsions

Le nombre d'impulsions a été sélectionné pendant les expériences à mesure des résultats observés et des contraintes rencontrées. Dans tous les cas, le profil du champ électrique ne change pas, la première impulsion (P1) que l'on identifie comme le breakdown produit champ électrique fort en début d'impulsion, entre 200 et 250 Td. Les impulsions suivantes génèrent un champ électrique à valeur moyenne située entre 100 et 150 Td pendant la décharge. La deuxième impulsion (P2) à le même profil pour 200 ns et 10 μs après P1, le temps entre les impulsions ne semble pas avoir d'effet sur la forme du champ électrique. La troisième impulsion est identique à la deuxième dans le cas du régime "burst".

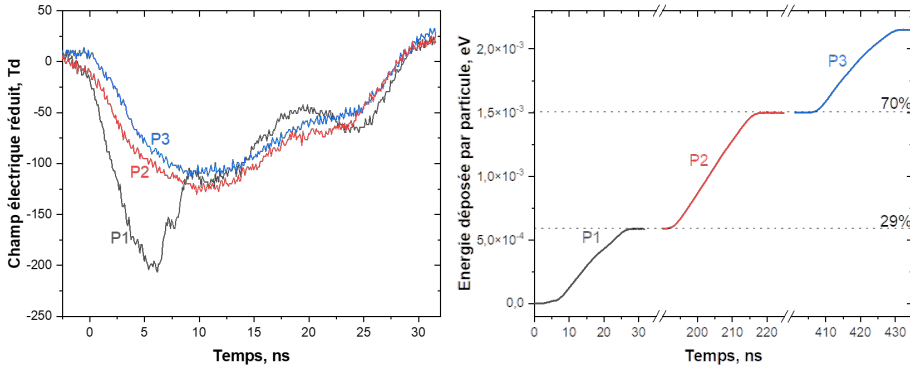


FIGURE 7.3 – Champ électrique réduit et énergie déposée pour la configuration : 3 impulsions -25 kV chacune ; $H_2 : O_2 : Ar$; 150 mbar.

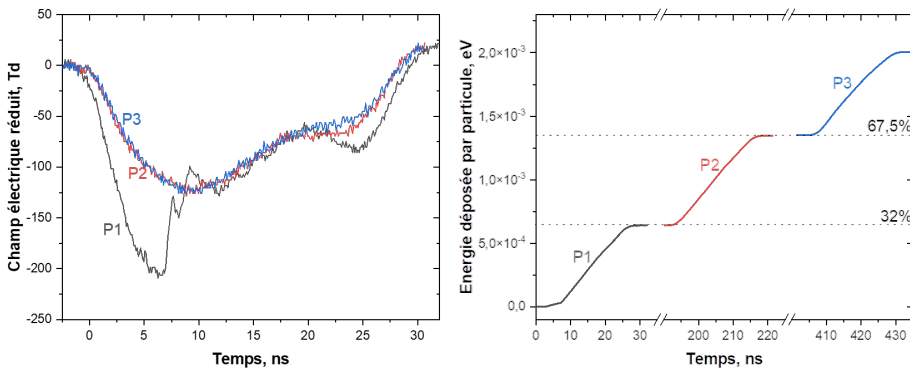


FIGURE 7.4 – Champ électrique réduit et énergie déposée pour la configuration : 3 impulsions -25 kV chacune ; $H_2 : O_2$; 150 mbar.

Le dépôt d'énergie est également équivalent pour les 4 cas. On dépose consécutivement de l'énergie dans le système à mesure que l'on délivre les impulsions. Le nombre d'impulsions augmente l'énergie déposée. Dans le cas (1) on dépose moins d'énergie ($1,5 \cdot 10^{-3}$ eV par particule) uniquement car on a une impulsion en moins. Dans les cas (2) à (4) on bénéficie d'une impulsion supplémentaire, en conséquence l'énergie déposée est plus élevée (entre 2 et $2,5 \cdot 10^{-3}$ eV par particule). En conséquence, le nombre d'impulsion a un effet sur la quantité d'énergie déposée.

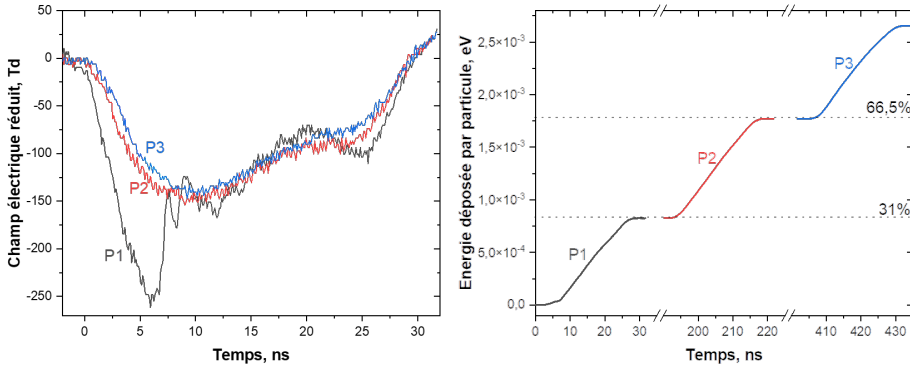


FIGURE 7.5 – Champ électrique réduit et énergie déposée pour la configuration : 3 impulsions -25 kV chacune ; H₂ :O₂ ; 120 mbar.

Composition du mélange

Les cas (2) et (3) permettent d'étudier l'effet de la composition du mélange sur le dépôt d'énergie, notamment de la présence d'argon. Les figures montrent que l'énergie déposée par particule est légèrement supérieure dans le cas d'un mélange avec argon mais cette différence n'est pas suffisante pour qu'on puisse déterminer si un mélange est meilleur que l'autre pour le dépôt d'énergie.

Pression initiale

La pression initiale de travail est un facteur important dans notre étude. La figure 6.15 établit les contraintes pour la coexistence optimale du plasma et de la détonation. Les cas (3) et (4) permettent de montrer qu'à la pression de 120 mbar l'énergie est déposée plus efficacement qu'à 150 mbar.

Ces résultats sont cohérents avec les observations, soit une diminution de la largeur des cellules pour tous les mélanges étudiés, avec des effets plus ou moins marqués selon la pression initiale de travail (facteur dominant) et la présence d'hydrogène (effet stabilisant la détonation). Le rapport de réduction de la largeur des cellules dans des cas avec plasma (λ_p) et sans plasma (λ_{np}) est présenté en figure 7.6 pour les mélanges précédents en fonction de la pression initiale. Les incertitudes sur les mesures sont estimées en comptabilisant le nombre de plaques disponibles pour les conditions, la régularité des cellules, le nombre de cellules par section. Le facteur de réduction est à peu près égal à 2. Indépendamment du mélange étudié, on observe une pente qui traduit la diminution de l'efficacité du plasma avec la pression.

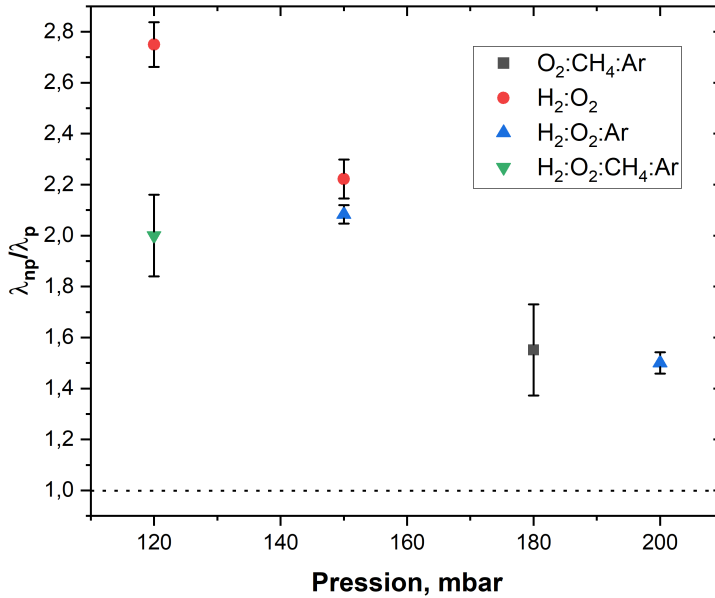


FIGURE 7.6 – Facteur de réduction de la largeur des cellules avec action du plasma (λ_p) et sans plasma (λ_{np}) pour différents mélanges en fonction de la pression.

7.1.2 Détonabilité et TDD

Les expériences présentées au chapitre 6 indiquent qu'un allumage du mélange par une décharge multi-canaux nanoseconde permet d'obtenir une flamme plus rapide, qui évolue vers le régime de détonation plus tôt et à pression initiale plus basse par rapport à un allumage par bougie. Ces différences traduisent une augmentation de la détonabilité du mélange dans nos conditions expérimentales. Dans ces expériences nous avons observé une nette modification de l'aspect de la flamme par allumage plasma, mais l'étude systématique du phénomène reste difficile car l'électrode est encore un prototype. Nous allons préciser son fonctionnement.

Nous nous sommes intéressés en particulier au comportement de la décharge en fonction de la pression. En effet, pour cette expérience, nous avons travaillé dans une gamme de pression large, de 100 mbar à 1,4 bar. Les principaux éléments étudiés sont le dépôt d'énergie et la morphologie de la décharge. La décharge pour cette expérience (Fig 5.8) ne permet plus de faire l'hypothèse d'un champ électrique uniforme. Le volume de la décharge est également réduit.

La figure 7.7 montre le courant et l'énergie déposée par la décharge pour une impulsion dans le mélange $H_2 : O_2$. Dans la section précédente, on a vu que l'énergie déposée était équivalente pour les trois impulsions 7.5. De plus, d'une impulsion à l'autre, des canaux différents peuvent être "allumés" il n'est donc par certain que l'on dépose trois fois l'énergie au même endroit. On décide de ne présenter que la première impulsion par la suite.

A 100 mbar, le gap entre les électrodes de haute tension et la masse est vite comblé, la décharge connecte en une fraction de nanoseconde le gap et le courant est supérieur à 600 A (en valeur absolue) pendant toute la durée de la décharge. A 650 mbar, la décharge recouvre le gap inter-électrode plus tard et le courant est supérieur à 600 A pendant moins de 10 ns. Pour l'énergie déposée par la décharge, on observe un minimum de 120 mJ pour 100 mbar, un maximum de 160 mJ pour 250 mbar puis une énergie décroissante de 350 à 650 mbar. Ces valeurs d'énergie déposée sont égales à celles pour la première impulsion dans l'expérience des cellules de détonation. Pour pouvoir les comparer il faut ramener cette énergie au nombre de particules. En d'autres termes il faut considérer le changement de volume de la décharge d'une expérience à l'autre et étudier la morphologie de la décharge en fonction de la pression.

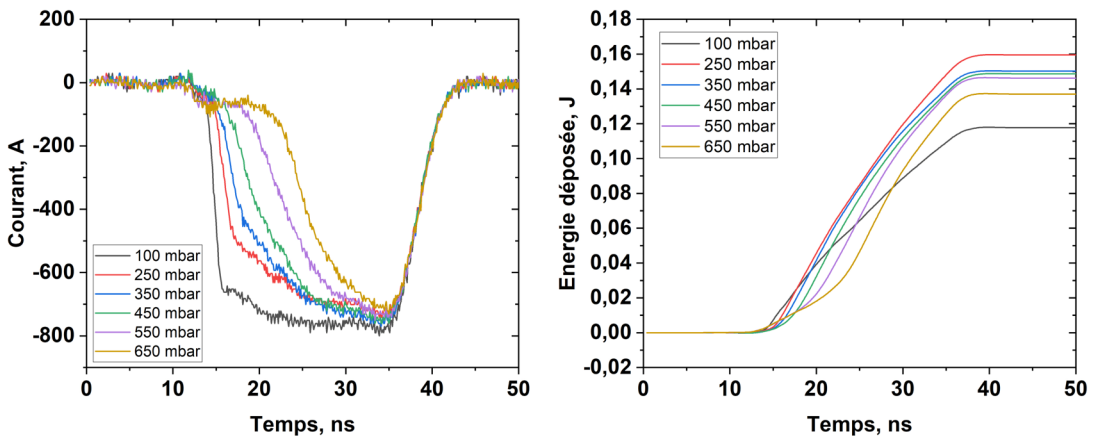


FIGURE 7.7 – Courant et énergie déposée pour une impulsion dans $H_2 : O_2$ stœchiométrique.

La figure 7.8 présente des enregistrements ICCD avec un filtre 308 nm pour observer l'émission de OH^* . On utilise la chimiluminescence pour ne voir uniquement que l'émission "utile" et ne pas être induit en erreur par de potentielles réflexions de la lumière de certains canaux avec plasma dans d'autres sans plasma. Ainsi, on voit le nombre de canaux allumés en fonction de la pression pour une impulsion

dans $\text{H}_2 : \text{O}_2$ pour les pressions b) 250, c) 350, d) 450 mbar. Le nombre de canaux allumés décroît avec la pression. Lorsque les électrodes sont "neuves", la position des canaux allumés est aléatoire mais leur nombre est en moyenne constant pour une pression donnée. Lorsqu'on a effectué plusieurs tirs la position des canaux allumés devient plus systématique mais leur nombre reste en moyenne dépendant de la pression. Avec ces informations on peut calculer l'énergie déposée par particule en considérant pour chaque pression, le volume de la décharge comme le nombre de canaux "allumés" que multiplie le volume d'un canal. Nous comparons les résultats obtenus avec ceux pour l'expérience des cellules de détonation.

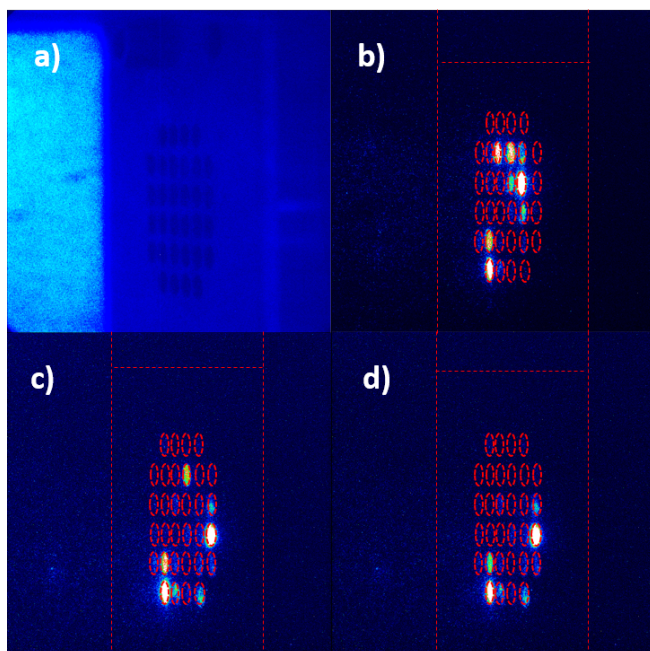


FIGURE 7.8 – Nombre de canaux allumés en fonction de la pression pour 1 impulsion par chimiluminescence OH^* (308 nm) dans $\text{H}_2 : \text{O}_2$. Pour : a) référence ; b) 250 mbar ; c) 350 mbar ; d) 450 mbar. Gate 30 ns, retard 200 ns.

La figure 7.9 présente l'énergie déposée par particule pour une impulsion dans le mélange $\text{H}_2 : \text{O}_2$ à plusieurs pressions. Ces énergies se situent entre 0.25 et 1 eV par particules. Avec cette décharge on dépose pratiquement 1 eV par particule à 100 mbar. Les énergies pour cette expérience sont trois ordres de grandeur au-dessus de celles pour la diminution de la taille des cellules. En effet, le volume et la nature de la décharge sont très différents d'une expérience à l'autre. L'énergie déposée par particule décroît avec la pression. On s'intéresse particulièrement aux pressions à partir de 600 mbar pour lesquelles on a effectué la strioscopie.

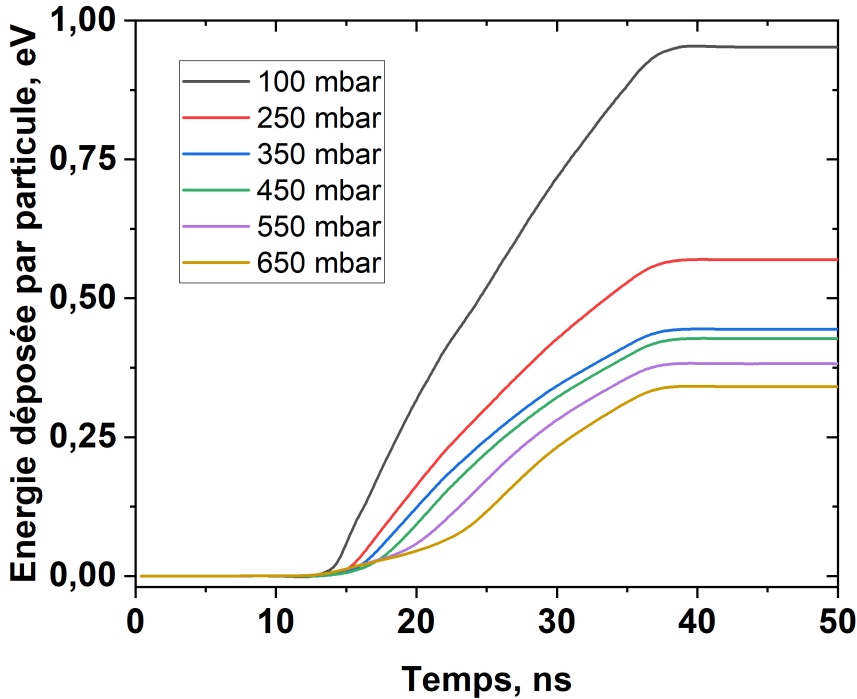


FIGURE 7.9 – Énergie déposée par particule pour une impulsion dans $H_2 : O_2$.

La figure 7.10 présente l'émission en chimiluminescence (308 nm OH^*) de la décharge et son afterglow à la fin de la troisième impulsion à 800 mbar. Le temps d'enregistrement de la caméra est de 30 ns avec un retard de 900 ns. On observe un seul canal très intense et une émission à sa sortie et aux alentours. La figure 7.11 présente l'émission pour les mêmes conditions à 600 mbar, puis avec un retard plus important. Ainsi, on voit qu'à 600 mbar on a deux canaux "allumés" en fin de décharge. A 2 μs , on observe deux lobes d'émission de OH^* qui rappellent les lobes de flammes observés en striescopie au chapitre 6. La décharge a un comportement très différent en fonction de la pression, il est difficile de définir quel est le meilleur régime pour améliorer les processus de combustion. Cependant, on peut se référer à l'expérience et analyser pour la gamme de pression étudiée en striescopie (de 600 à 800 mbar) la position de la transition par rapport à P.

La figure 7.12 présente les positions de TDD enregistrées en striescopie pour la bougie et pour le plasma. Lorsque la transition se situe dans la jonction de deux tronçons comme pour la figure 6.19, la position est estimée en regardant l'avancement de l'apparence du front par rapport à une détonation complètement

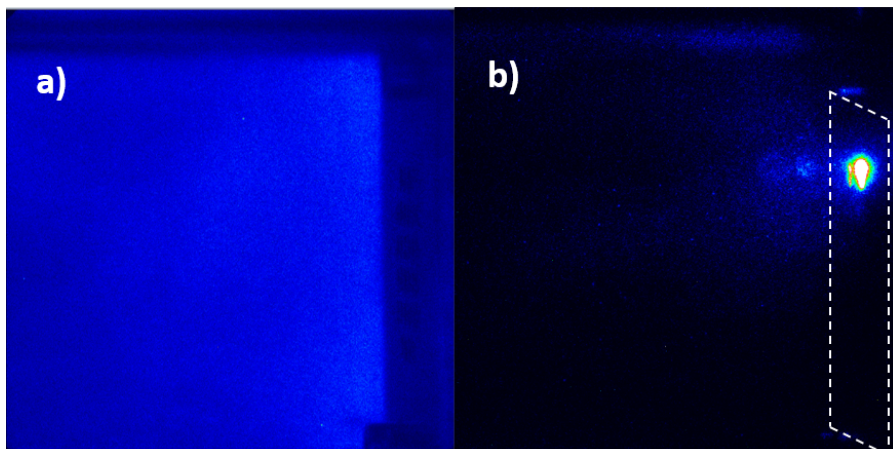


FIGURE 7.10 – Émission en chimiluminescence OH^* (308 nm) de la fin de la décharge et son afterglow dans $\text{H}_2:\text{O}_2$. a) référence ; b) 800 mbar, 30 ns gate, retard 900 ns.

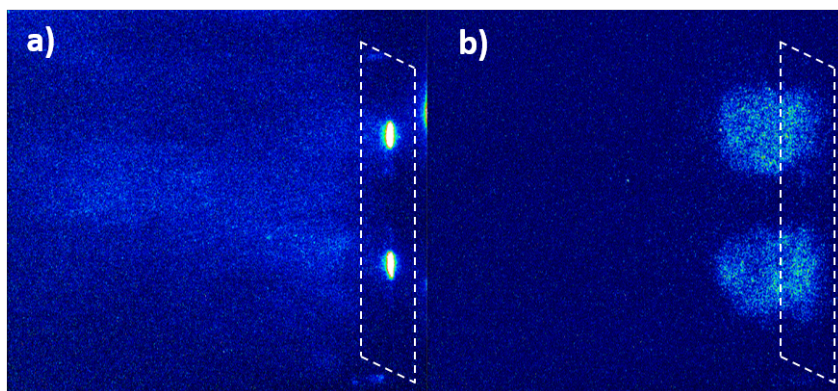


FIGURE 7.11 – Émission en chimiluminescence OH^* (308 nm) de la fin de la décharge et son afterglow dans $\text{H}_2:\text{O}_2$. a) 600 mbar, 30 ns gate, retard 900 ns ; b) 600 mbar, 30 ns gate, retard 2 μs .

établie. Ces positions présentent donc une incertitude sur la mesure.

Pour la gamme de pression étudiée, on observe la transition à des distances plus courtes de manière systématique avec le plasma par rapport à la bougie. On a calculé l'énergie totale déposée par le plasma (300 à 450 mJ pour les trois impulsions dans la gamme de pression considérée) et on a mesuré l'énergie totale déposée par la bougie (45 mJ dans l'air à 1 bar). Les résultats obtenus peuvent s'expliquer par la différence d'ordre de grandeur dans le dépôt d'énergie entre la bougie et le plasma. De plus la chimie aux premiers instants du développement

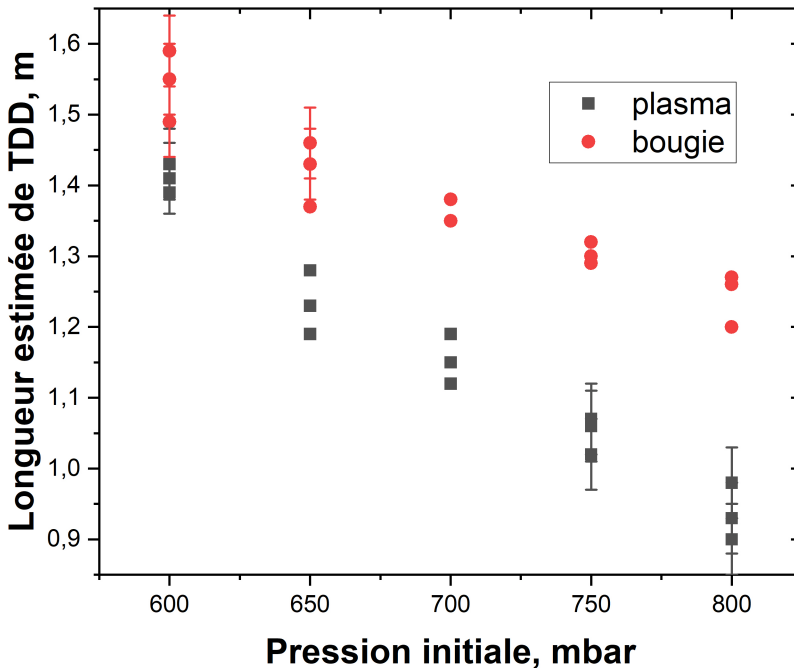


FIGURE 7.12 – Longueur de TDD estimée en fonction de la pression initiale pour le plasma et pour la bougie.

de la flamme est plus riche pour le plasma. Enfin, on a vu en strioscopie que des effets de turbulences arrivaient beaucoup plus tôt.

Nous avons effectué deux séries d'expériences pour étudier la TDD assistée par plasma. Dans la première, nous avons relevé la longueur de transition en utilisant de très longues plaques avec une fine couche de carbone. Dans la seconde, nous avons relevé la longueur de transition en suivant la flamme par strioscopie. Les conditions initiales pour les deux expériences étaient équivalentes à l'exception des parois des tronçons et de la présence de la longue plaque en acier. Dans l'expérience avec la plaque, toutes les parois étaient en acier, ce qui peut expliquer une différence pour la position de la TDD pour une même pression par rapport à l'expérience en strioscopie. Cependant, cette différence de matériaux ne peut pas expliquer la différence de tendance entre les deux expériences présentées en figure 6.14 et 7.12. L'hypothèse principale pour expliquer cette différence est la présence de la plaque d'acier, bien que nous ayons pris soin de la positionner au plus près de l'allumage.

7.2 Réduction du temps d'induction chimique

7.2.1 Création d'un milieu excité par le plasma

On s'intéresse ici à la chimie pendant la décharge dans le but de comprendre l'amélioration de détonabilité observée dans des mélanges combustibles. On travaillera en particulier sur le cas de réduction de la taille des cellules. En effet, il est plus facile de travailler avec cette décharge car on peut considérer le champ électrique comme constant. Cette approximation nous permet d'obtenir un résultat 0D de la cinétique chimique de la décharge et ainsi d'établir des tendances et une corrélation entre les caractéristiques de la décharge nanoseconde et la réduction de détonabilité.

Dans un premier temps, on s'intéresse au mélange utilisé. En effet, nous avons travaillé dans des mélanges différents et des résultats très visibles et reproductibles ont été obtenus pour $H_2 : O_2$ et $H_2 : O_2 : Ar$. On a vu auparavant les différences en termes de champ électrique et d'énergie déposée. On veut étudier maintenant les différences de chimie pour ces deux mélanges. La figure 7.13 présente les différences de la forme de la FDE pour les mélanges avec et sans argon pour des champs électriques réduits qui correspondent au maximum (200 Td) et à la moyenne (150 Td) observés pendant la décharge. Dans le mélange sans argon, les électrons dans la queue de la distribution ont des énergies plus importantes (entre 60 et 80 Td) que dans la distribution avec argon (50 à 65 Td). La dilution permet d'avoir une énergie moyenne des électrons plus importante. Pour isoler l'effet de l'argon on trace les mêmes courbes pour un mélange d'argon en figure 7.14. On voit que l'énergie moyenne des électrons est plus élevée. La dilution dans l'argon permet donc d'augmenter l'énergie moyenne des électrons dans le plasma.

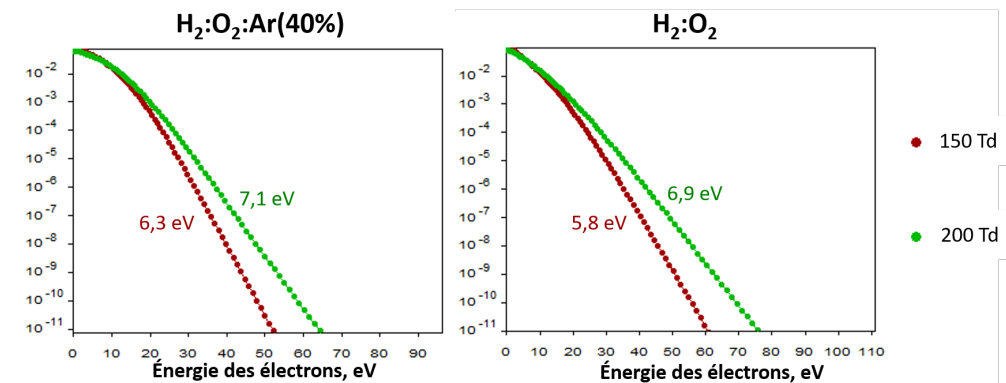


FIGURE 7.13 – FDE pour $H_2 : O_2$ et $H_2 : O_2 : Ar(40\%)$ à 150 et 200 Td, l'énergie moyenne des électrons est indiquée.

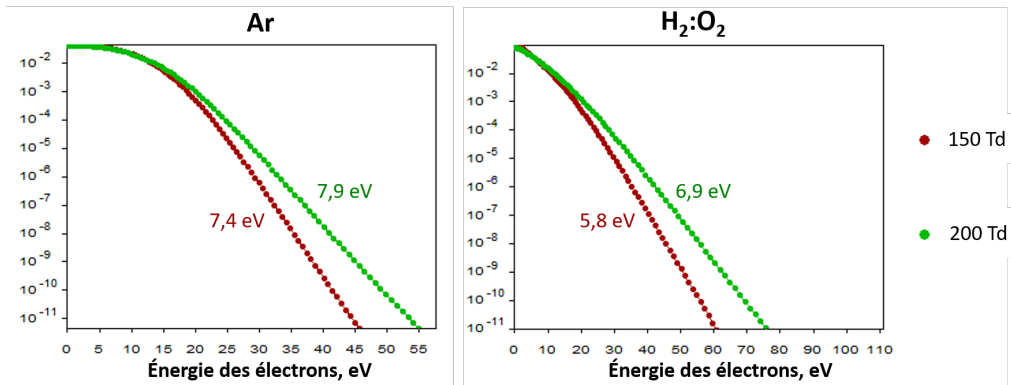
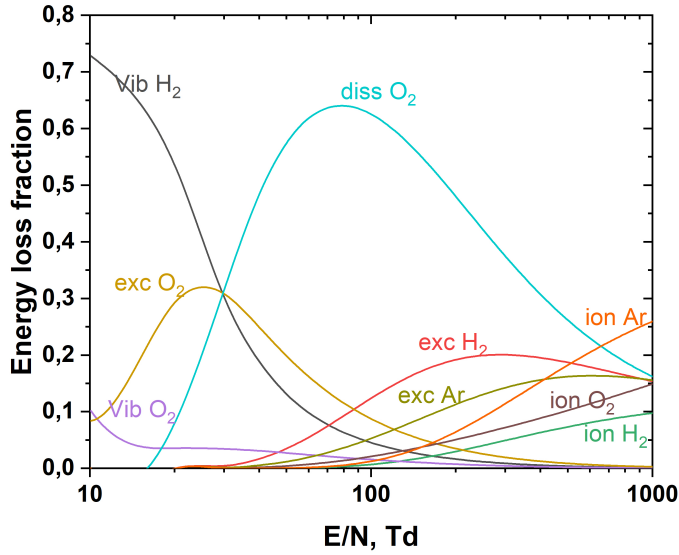
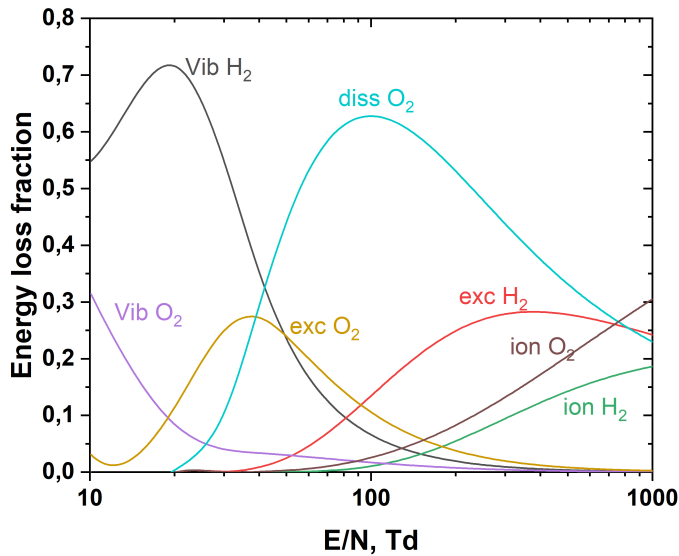


FIGURE 7.14 – FDE pour H₂ :O₂ et Ar à 150 et 200 Td, l'énergie moyenne des électrons est indiquée.

Les figures 7.15 et 7.16 présentent la fraction d'énergie perdue lors des collisions inélastiques (Energy loss fraction) pour les deux compositions. Dans le cas sans argon (7.16), les processus dominants sont l'excitation vibrationnelle de H₂ à très faible valeur de champ et la dissociation de O₂ pour des valeurs de champ intermédiaires et hautes. À partir de 800 Td, les processus d'ionisation deviennent importants. Dans le cas avec argon (7.15), l'excitation et la dissociation de l'oxygène sont plus importantes à faible valeur de champ et à très hautes valeurs de champ l'ionisation de l'argon domine. Ces observations sont en accord avec les résultats obtenus en figure 7.13. L'ajout d'argon peut donc être intéressant si on a pour but de dissocier l'oxygène.

On s'intéresse donc à la dissociation de O₂ dans le mélange et plus largement à l'évolution des espèces chimiquement actives pour les deux mélanges, aux pressions de 120 mbar et 150 mbar pour H₂ :O₂ et pour H₂ :O₂ :Ar. Les figures 7.17-7.19 présentent les résultats obtenus pour les trois impulsions. Pour calculer l'évolution des espèces on a utilisé les champs électriques des impulsions P1, P2 et P3 avec une décroissance rapide du champ entre les impulsions. La majorité des espèces atteignent des concentrations négligeables après 200 ns. A l'exception des électrons, de H₃⁺ et de HO₂⁺ (les deux ions ont des concentrations similaires, on n'indique que H₃⁺ sur les graphes). Pour chaque nouvelle impulsion on utilise donc leurs concentrations comme paramètres initiaux, toutes les autres concentrations sont approximées à 0.

L'argon ionisé ou excité joue le rôle d'une espèce intermédiaire dans le mélange. Dans l'ensemble, la concentration d'oxygène atomique augmente pour chaque impulsion et l'espèce excitée dominante est l'oxygène. On voit qu'au terme de la troisième impulsion, l'espèce active majoritaire est l'oxygène atomique. Afin de déterminer l'efficacité de la décharge pour dissocier l'oxygène dans ces conditions, on étudie le rapport de concentration d'oxygène atomique et de la molécule d'oxy-

FIGURE 7.15 – Energy loss fraction pour $H_2 :O_2 :Ar$.FIGURE 7.16 – Energy loss fraction pour $H_2 :O_2$.

gène dans le mélange. Les figures 7.20-7.22 présentent ce rapport pour les trois conditions. Parmi nos conditions expérimentales, les rapports de dissociation les

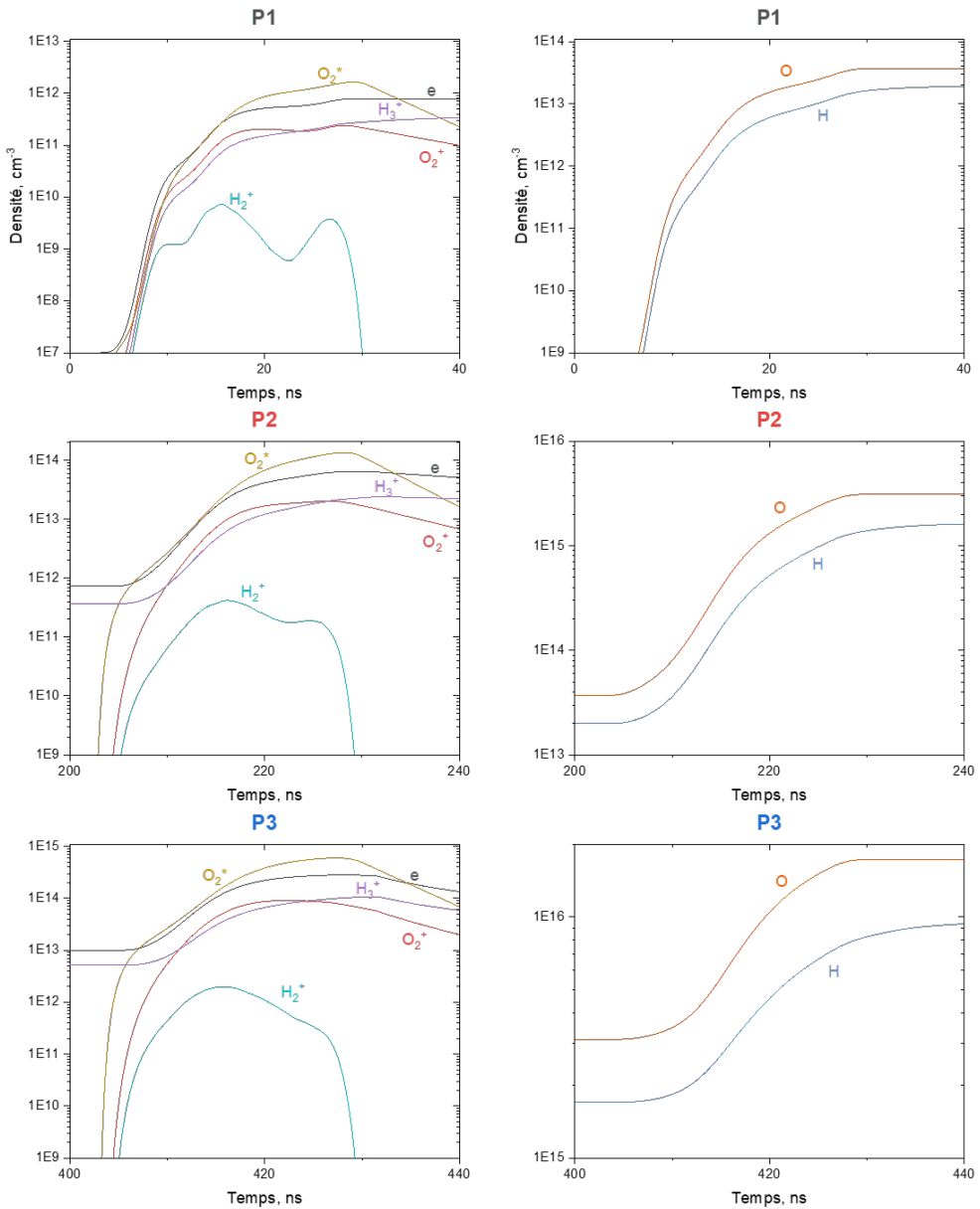


FIGURE 7.17 – Évolutions des espèces pour les 3 impulsions dans $\text{H}_2:\text{O}_2$ à 120 mbar.

plus hauts sont obtenus pour $\text{H}_2:\text{O}_2$ à 120 mbar et $\text{H}_2:\text{O}_2:\text{Ar}$ à 150 mbar. Ils sont équivalents et correspondent à 2% de la quantité totale d'oxygène dissociée après trois impulsions.

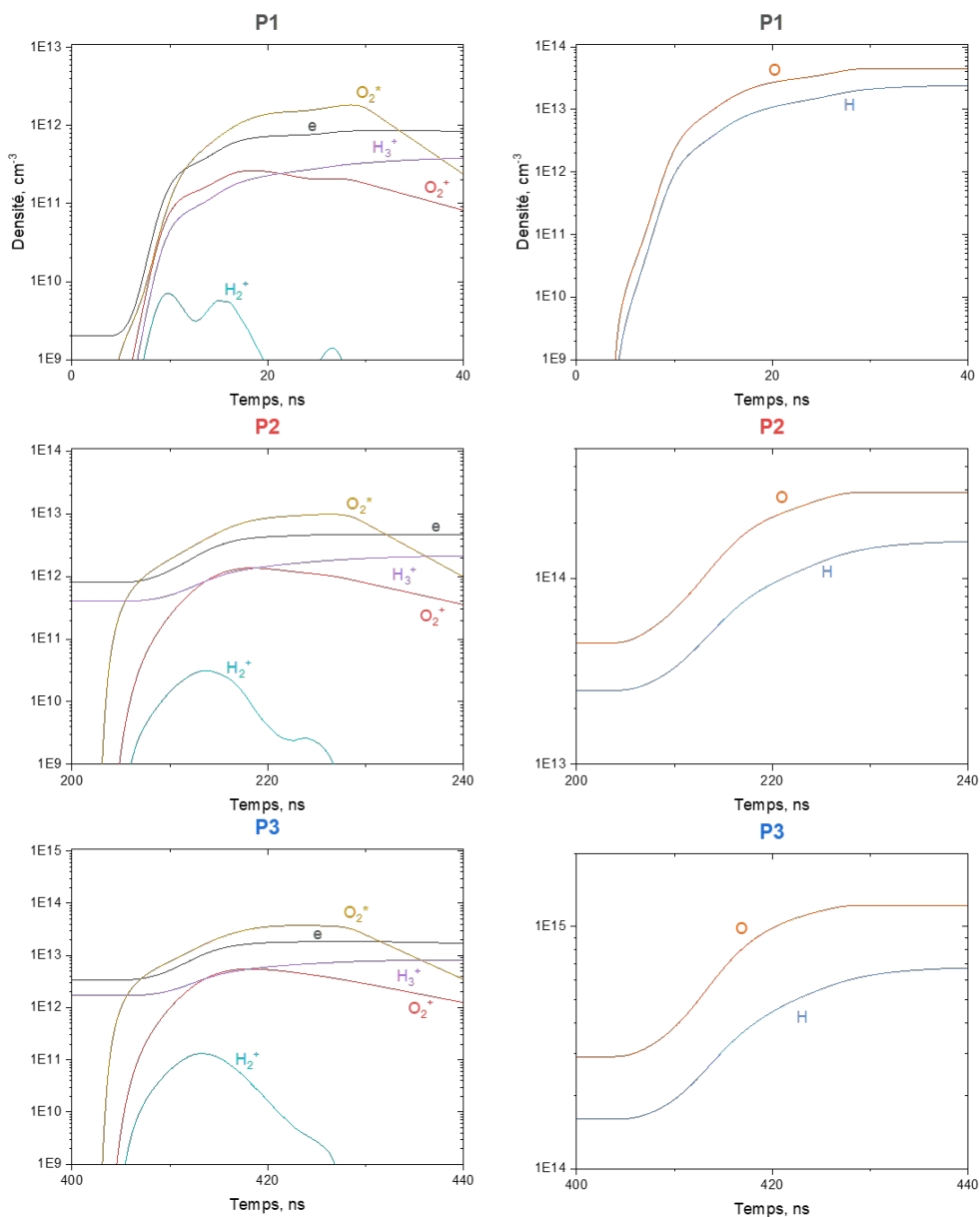


FIGURE 7.18 – Évolutions des espèces pour les 3 impulsions dans $\text{H}_2:\text{O}_2$ à 150 mbar.

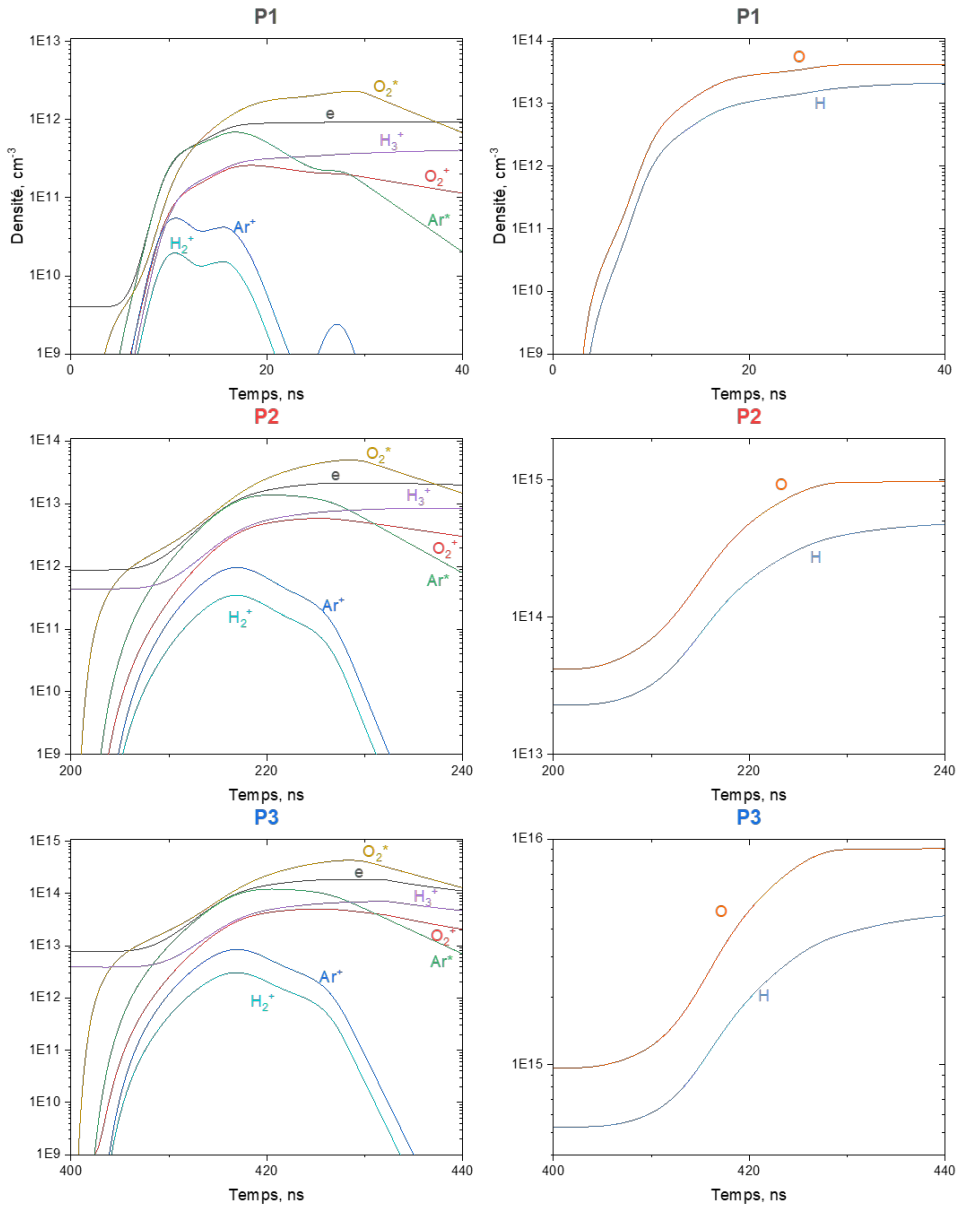


FIGURE 7.19 – Évolutions des espèces pour les 3 impulsions dans $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar}$ à 150 mbar.

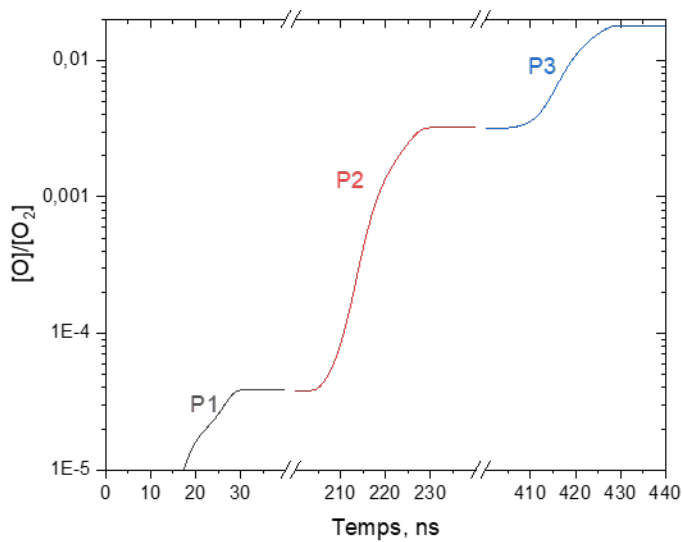


FIGURE 7.20 – Évolution de $[O]/[O_2]$ pour les 3 impulsions dans $H_2 : O_2$ à 120 mbar.

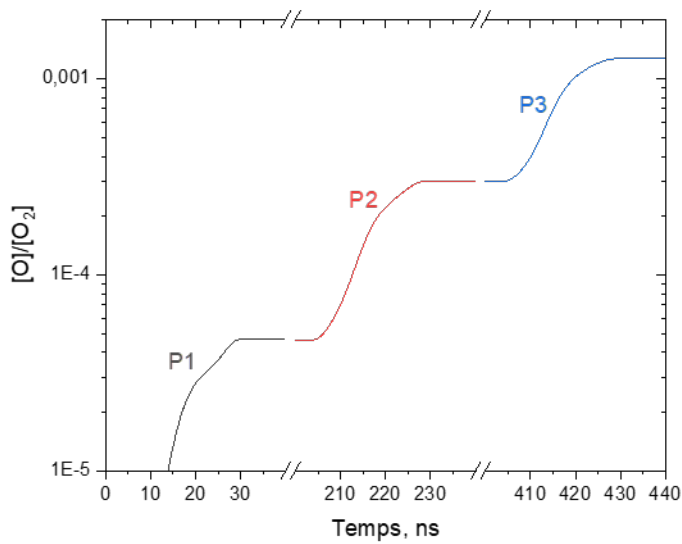


FIGURE 7.21 – Évolution de $[O]/[O_2]$ pour les 3 impulsions dans $H_2 : O_2$ à 150 mbar.

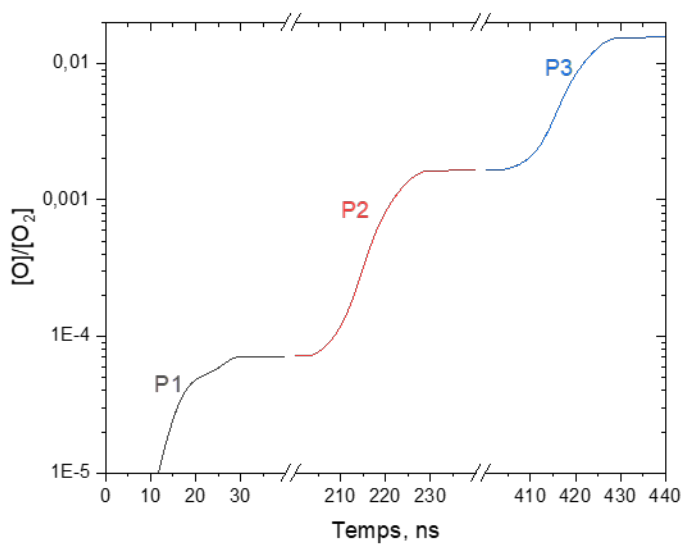


FIGURE 7.22 – Évolution de $[O]/[O_2]$ pour les 3 impulsions dans $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar.

7.2.2 Effets thermiques potentiels

Nous avons étudié dans la section précédente l'effet du plasma sur la production d'espèces excitées. L'objet de cette sous-section est d'analyser si des effets thermiques seraient aussi à considérer. Plus précisément nous avons cherché à savoir si les résultats observés de réduction de la largeur des cellules de détonation pourraient aussi être expliqués par un chauffage du gaz par le plasma.

Dans un premier temps, nous rappelons les caractéristiques principales des décharges nanosecondes pour comprendre les conditions pouvant amener au chauffage du gaz. Dans un deuxième temps, nous évaluons quels seraient les effets de l'augmentation la température initiale sur les largeurs des cellules pour les mélanges étudiés.

Champ électrique réduit

Le champ électrique réduit appliqué au gaz détermine les processus dominants dans le plasma. Il est noté E/N et exprime le rapport entre E , représentant la norme du champ électrique appliqué entre les deux bornes, qui induit une anisotropie dans le gaz et N la densité du gaz qui produit de l'isotropie. En d'autres termes, le champ électrique réduit est une mesure du niveau de "non-équilibre" du plasma. Pour des valeurs importantes, à partir de 10^2 Td, on considère le plasma fortement hors équilibre.

Dans nos expériences, nous avons un champ électrique réduit variant entre 150 et 250 Td. Pour ces valeurs élevées, on voit que les processus dominants dans le plasma sont : la dissociation des molécules à 70%, l'excitation électronique et l'ionisation (Figure 7.15 - 7.16).

Température initiale

La température initiale du gaz joue un rôle important dans l'établissement des processus de relaxation de l'énergie. De nombreux travaux [58, 59, 60] montrent que la fraction de l'énergie strictement dédiée au chauffage est fortement dépendante à la fois de la valeur du champ électrique réduit et de la température initiale.

Selon les mêmes sources, pour le cas de notre décharge nanoseconde, à température ambiante et pour des champs électriques réduits de l'ordre de 10^2 Td la limite haute de la fraction d'énergie dédiée au chauffage est estimé à 30%. On remarquera que cette limite est réaliste pour les considérations précédentes de répartition des différents processus dans le plasma en fonction de E/N .

Energie déposée

La quantité d'énergie déposée dans le plasma est le dernier élément à considérer pour savoir si la augmenter la température du gaz peut augmenter. On distingue deux cas : Pour de faibles valeurs d'énergie déposée, la décharge sera diffuse, le courant faible et on ne constatera pas de chauffage du gaz dans les échelles de temps de la décharge, puis un chauffage lent appelé V-T (vibrationnel-translational). Pour des valeurs importantes d'énergie déposée, la décharge sera filamentaire avec un courant très important et des phénomènes de chauffage du gaz dominants à courte échelle appelés "Fast gas heating" qui correspondent à des transferts E-T (électronique-translational).

Dans nos expériences, nous avons des valeurs d'énergie déposée très faibles, de l'ordre de $2 \cdot 10^{-3}$ eV par particule. Nous sommes donc dans le premier cas énoncé. Cette quantité d'énergie déposée par particule correspond à une augmentation de température totale de 20°C si toute l'énergie va dans le chauffage. Nous avons démontré qu'au maximum seulement 30% de l'énergie est dédiée au chauffage ce qui correspond à une augmentation de température de 6°C en limite haute. Il nous reste à savoir en combien de temps cette énergie est déposée, en d'autres termes, le front de détonation perçoit-il une augmentation de la température ?

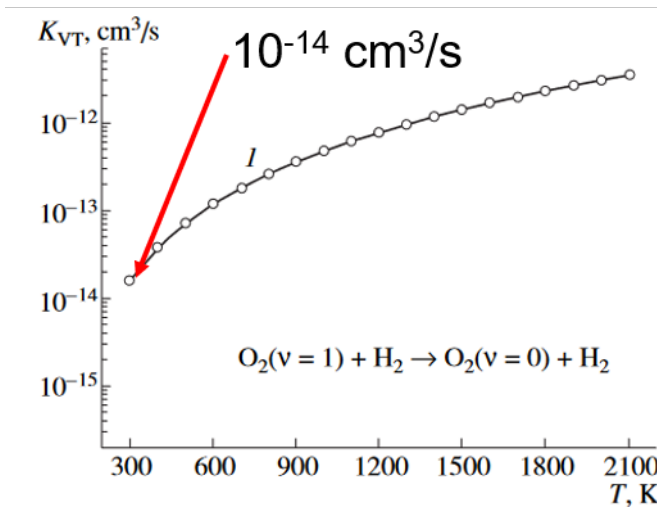


FIGURE 7.23 – Relaxation V-T pour $\text{H}_2 : \text{O}_2$ à 100 mbar.

A faible valeur d'énergie déposée ce sont les transferts de type V-T qui dominent les processus de relaxation. On cherche à estimer le temps caractéristique de relaxation dans nos conditions expérimentales avec des données de la littérature. La figure 7.23 présente les constantes de vitesse de la relaxation V-T principale pour un mélange $\text{H}_2 : \text{O}_2$ à 100 mbar en fonction de la température initiale. On voit

que pour une température ambiante $k=10^{-14}$ cm³/s est minimale. En considérant que la quantité d'hydrogène est constante on obtient un temps caractéristique de relaxation $T_{V-T}=10^{-4}$ s.

Dans les mélanges de notre étude le front de détonation se déplace à des vitesses entre 2,0 et 2,7 mm/ μ s. La zone plasma est longue de 370 mm au maximum. Le front à donc besoin de 137 μ s pour parcourir toute la distance. Sur cette échelle de temps les processus de type V-T énoncés précédemment n'ont pas le temps de s'établir. En d'autres termes, le front de détonation ne voit pas la potentielle augmentation de température de 6°C produite par le plasma.

Température initiale et largeur de cellule

Nous venons d'indiquer que dans nos conditions, l'augmentation de température du gaz, si elle existe, est négligeable et se produit à des échelles de temps trop lentes pour influencer sur les résultats expérimentaux. Nous avons néanmoins cherché à évaluer l'effet qu'aurait l'augmentation de la température initiale du gaz sur les cellules de détonation dans un mélange H₂ :O₂. Nous avons distingué les augmentations de température à pression constante de celles à volume constant.

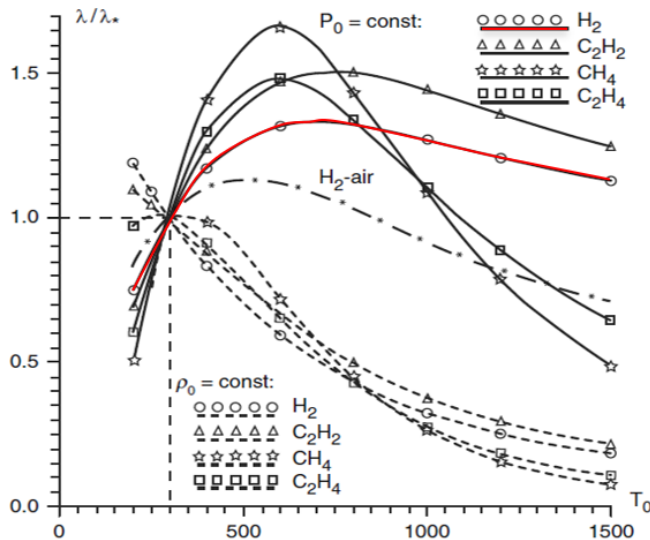


FIGURE 7.24 – Calculs de l'effet de la température sur λ pour plusieurs mélanges à pression constante (traits pleins) et à volume constant (pointillés) [19].

La figure 7.24 présente l'effet de la température sur λ dans le cas de plusieurs mélanges, à pression ou à volume constants [19]. Pour notre mélange, H₂ :O₂ on

voit qu'une augmentation de la température à pression constante entraîne une augmentation de λ . C'est l'effet inverse de celui que nous avons observé. Ces observations sont confirmés expérimentalement dans la thèse de Matignon [61]. En ce qui concerne une augmentation de la température initiale à volume constant, c'est l'effet inverse qui est observé, c'est à dire une diminution de λ . Nous avons cherché à estimer cette dépendance en réalisant un calcul de l'effet sur les profils ZND d'augmentations de température et de pression initiales maintenant le volume initial constant. Les résultats sont présentés en figure 7.25.

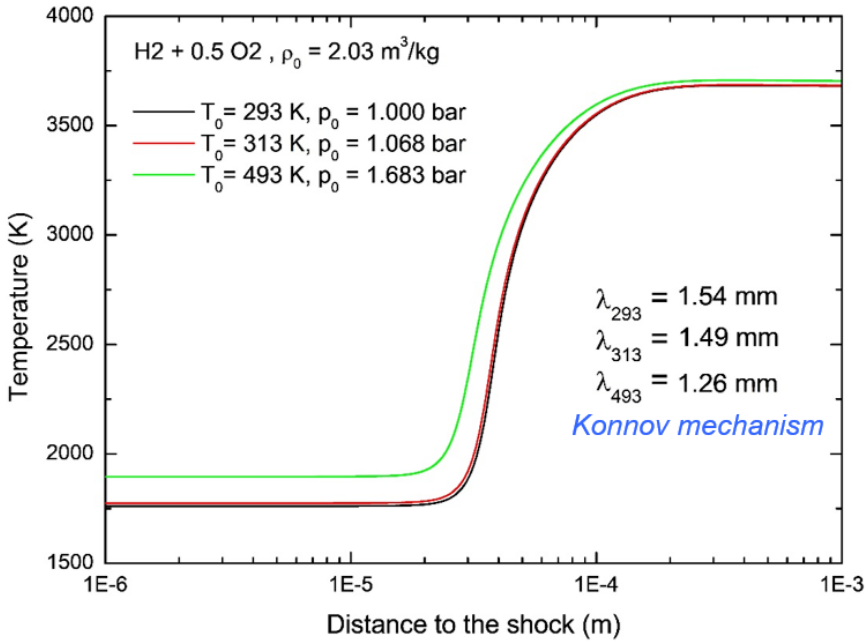


FIGURE 7.25 – Effet d'augmentations de température et de pression initiales à volume constant sur les profils ZND et λ .

On constate ainsi que la valeur de λ et les profils ZND sont insensibles à une augmentation de 20°K de la température initiale. Une augmentation de température de 200°K ne les diminue que très peu, et ce très loin des diminutions obtenus dans nos expériences.

Il est important de préciser que ces tendances sur l'effet de la température initiale dépendent du mélange étudié. Par exemple, pour le mélange H₂ :Air λ diminue quand la température initiale augmente à pression constante. Cette différence avec le mélange H₂ :O₂ peut s'expliquer par la présence de la molécule de N₂ qui agit comme un réservoir énergétique facilitant les transferts d'énergie thermique vers des énergies chimiques (vibration, dissociation, quenching inverse

...).

7.2.3 Profils ZND et temps d'induction

Pour finir, on utilise les meilleurs taux de dissociation obtenus avec les données expérimentales pour simuler les profils de la détonation ZND correspondant aux conditions initiales. Dans les meilleurs cas, on obtient 2% d'oxygène dissocié pour $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar et pour $H_2 : O_2$ à 120 mbar. Dans la suite de cette section, nous étudions ces deux cas.

Les figures 7.26 et 7.27 présentent les profils de pression et de température ZND pour $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar et pour $H_2 : O_2$ à 120 mbar, respectivement, avec et sans plasma. On observe pour les deux mélanges que les réactions exothermiques de combustion arrivent beaucoup plus tôt et les détentes du gaz associées également. Les pentes sont moins raides. En fin de zone de réaction, les propriétés thermodynamiques sont identiques, on retrouve le même état final.

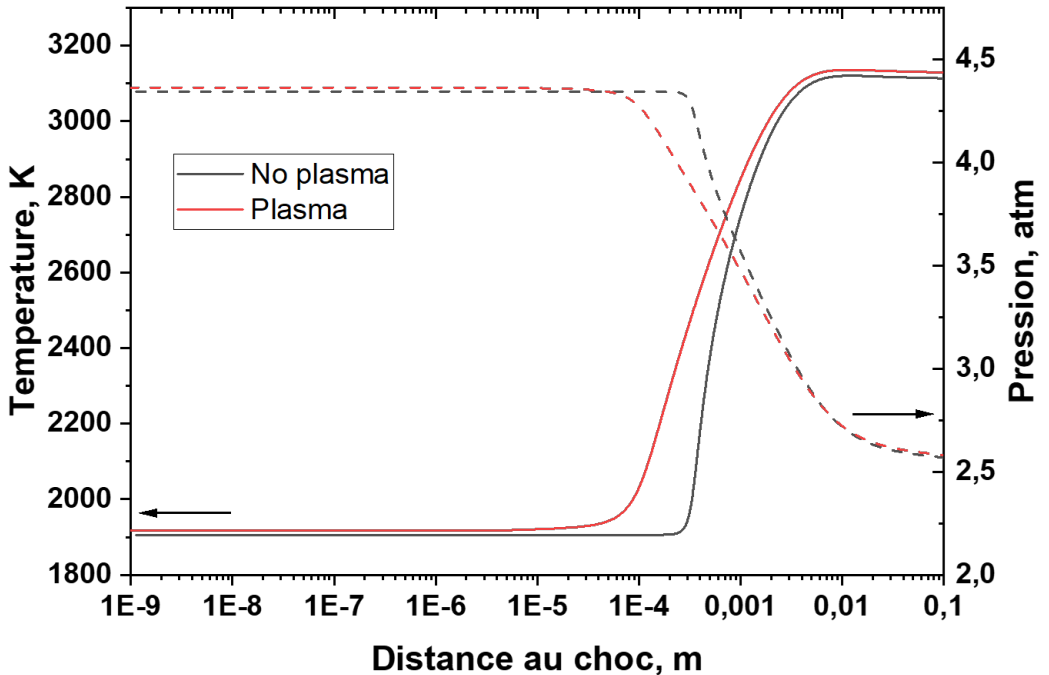


FIGURE 7.26 – Profils ZND de pression et température pour $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar.

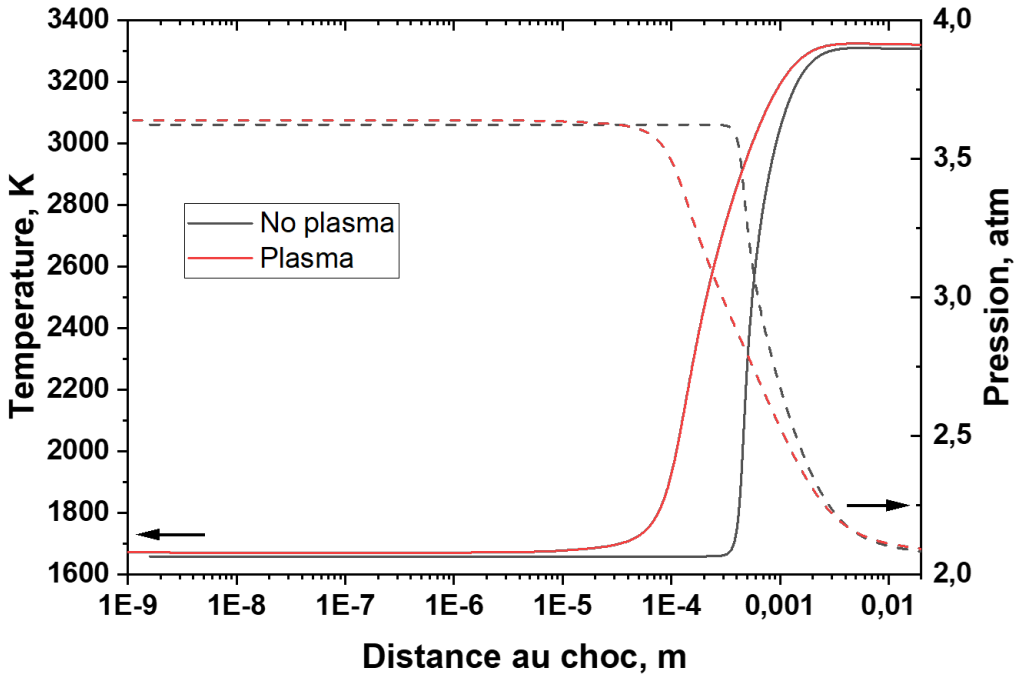


FIGURE 7.27 – Profils ZND de pression et température pour $H_2 : O_2$ à 120 mbar.

On s'intéresse à présent à l'évolution de la température dans le temps et particulièrement à sa dérivée première dont le maximum nous donne des informations sur le temps d'induction. Les figures 7.28-7.29 présentent les cas avec et sans plasma pour $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar. On observe une réduction du temps d'induction d'un facteur 2. Cette réduction correspond aux expériences réalisées pour le mélange à cette pression. Les figures 7.30-7.31 présentent les cas avec et sans plasma pour $H_2 : O_2$ à 120 mbar. Pour ce mélange, on obtient une réduction du temps d'induction d'un facteur 4. C'est légèrement supérieur à ce que nous avons observé expérimentalement sur les cellules. En effet, pour ce mélange nous avons obtenu un facteur de réduction de 2,9 expérimentalement. La différence peut être expliquée par des mesures plus difficiles dans un mélange sans argon, moins régulier ou par une surestimation de la quantité d'oxygène dissocié pour ces conditions.

Pour conclure, une réduction du temps d'induction a été observée systématiquement, numériquement (ZND) et expérimentalement (cellules) pour des mélanges combustibles après application d'un plasma nanoseconde. La prédissociation de la molécule d'oxygène a été identifiée comme principale responsable de la réduction du temps d'induction ZND.

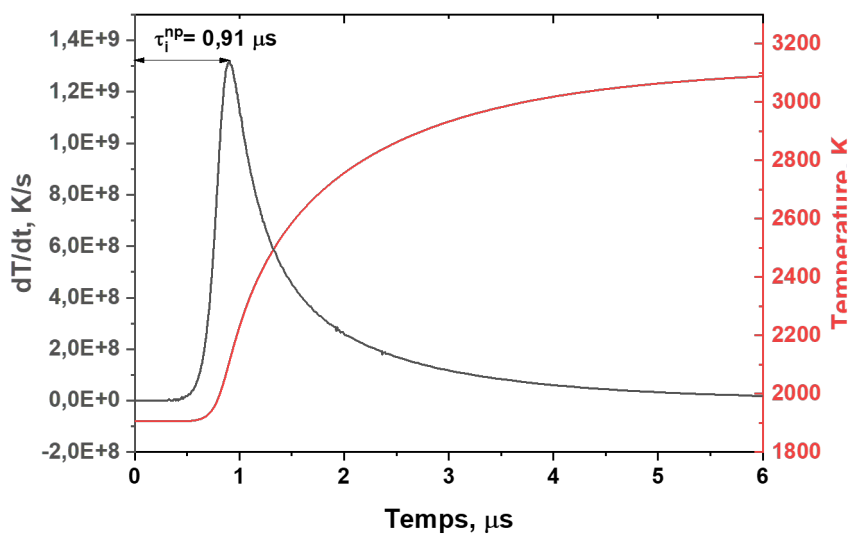


FIGURE 7.28 – Dérivée temporelle de la température sans plasma pour $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar}$ à 150 mbar.

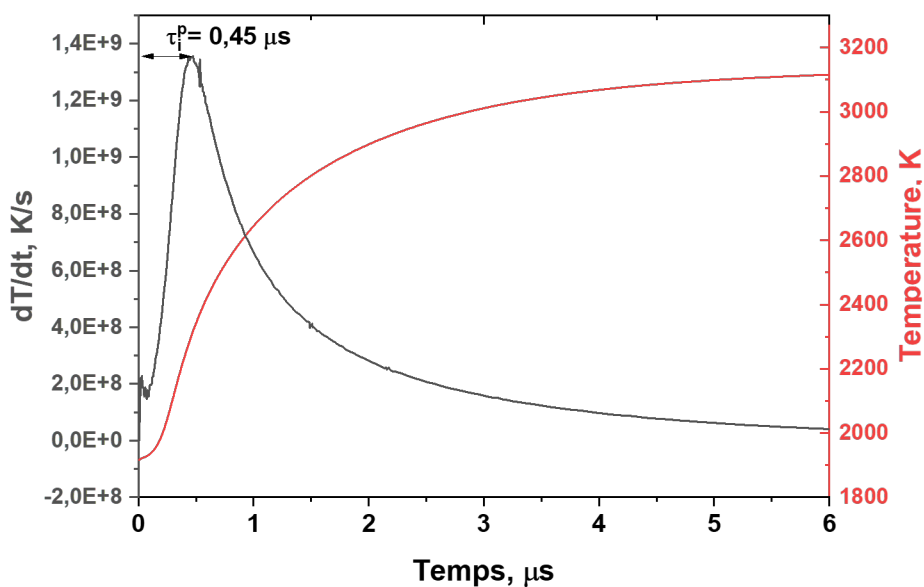


FIGURE 7.29 – Dérivée temporelle de la température avec plasma pour $\text{H}_2 : \text{O}_2 : \text{Ar}$ à 150 mbar.

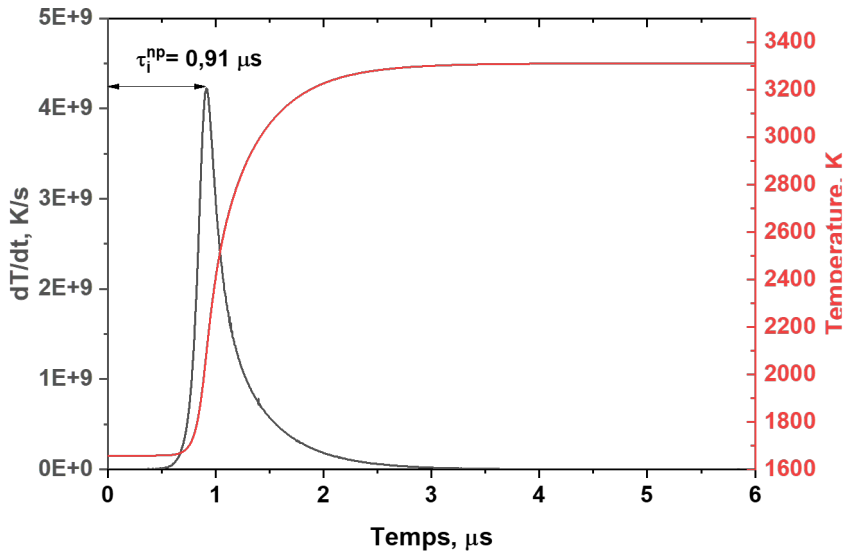


FIGURE 7.30 – Dérivée temporelle de la température sans plasma pour $H_2 : O_2$ à 120 mbar.

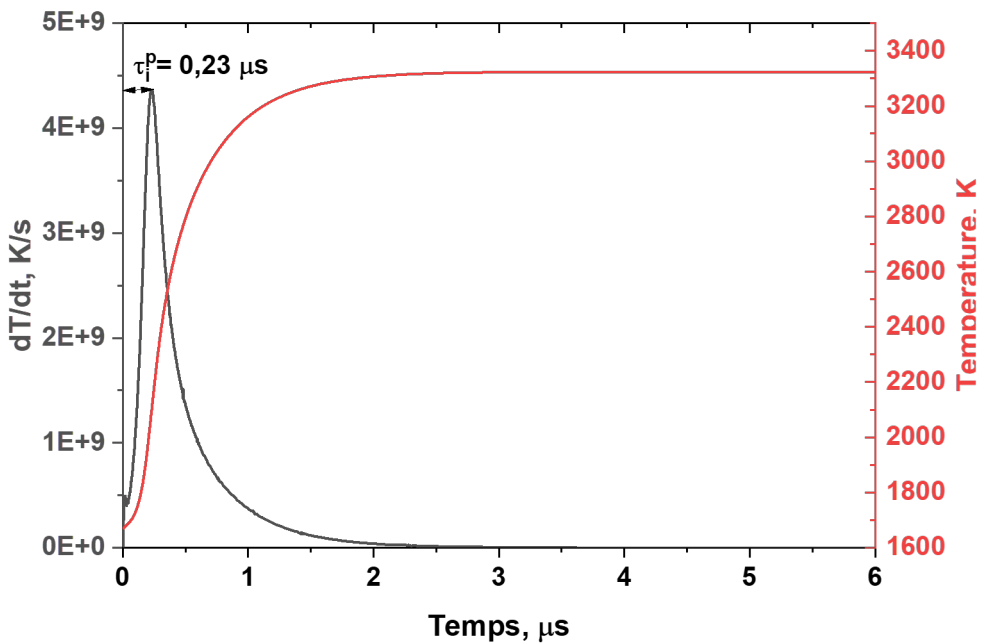


FIGURE 7.31 – Dérivée temporelle de la température avec plasma pour $H_2 : O_2 : Ar$ à 150 mbar.

Chapitre 8

Conclusion

Nous avons consacré ce travail de thèse à l'étude d'interactions entre des plasmas nanosecondes et des ondes de combustions de type déflagration et détonation. L'étude est expérimentale et numérique et elle constitue une première approche du sujet. Sa difficulté principale a été le rapprochement de deux phénomènes aux physiques différentes.

Dans les chapitres 2 et 3, nous avons présenté les éléments nécessaires à la compréhension de ces différences, en particulier, les échelles de temps d'existence du plasma (de l'ordre de la nanoseconde pour notre étude) et de propagation de la déflagration/détonation (jusqu'à la milliseconde). Ce sont des phénomènes transitoires, instables ce qui rend leur synchronisation difficile. Nous avons également mis l'accent sur leur complémentarité. En effet, un intérêt des plasmas est de générer des espèces excitées qui peuvent relaxer leur énergie sous plusieurs formes, en brisant des liaisons moléculaires par exemple. Dans un milieu avec de l'oxygène une portion de l'énergie fournie par le plasma va dans la dissociation de la molécule, ce qui forme un milieu propice aux réactions de combustion. Dans notre thèse, on s'intéresse particulièrement à la notion de détonabilité que l'on définit de deux façons : (1) la facilité pour la détonation à se propager dans des conditions données de confinement et (2) la rapidité avec laquelle la détonation s'établit à partir d'une flamme. Pour ces deux définitions on fait correspondre un paramètre expérimental d'étude, la largeur des cellules de détonation pour la première et la longueur de TDD pour la seconde. On fait le lien entre ces paramètres et le temps d'induction chimique. Notre étude consiste à exprimer la réduction du temps d'induction chimique par la réduction (1) de la largeur des cellules de détonation dans une première expérience et (2) la réduction de la longueur de TDD dans une seconde expérience.

Dans le chapitre 4 dédié à la simulation numérique, nous avons présenté un schéma cinétique pour le plasma pour représenter la dissociation des espèces im-

portantes dans les réactions de combustion. En effet, l'utilisation de plasmas nanosecondes génère des valeurs de champ électrique réduites très importantes, et une portion représentative de l'énergie va dans les processus inélastiques d'excitation électronique, de dissociation et d'ionisation. Les sections efficaces et le schéma cinétique ont fait l'objet d'une étude comparative de ceux disponibles dans la littérature afin de sélectionner les meilleures correspondances à l'expérience. Cette comparaison a été menée en calculant un courant à partir de la densité électronique obtenue par le code et en mesurant le courant expérimental par BCS. La meilleure combinaison de section efficace et de schéma cinétique est aussi présentée avec la comparaison des courants. Pour apprécier l'effet du plasma sur la détonation, nous avons établi un protocole numérique consistant en l'utilisation de la composition finale du mélange à la fin de la décharge comme paramètre initial dans des calculs des profils des grandeurs thermo-chimiques dans le modèle de la détonation ZND. Notre protocole est physiquement possible car, du point de vue de la détonation, l'excitation des espèces par le plasma est "instantanée", et le temps de vie des espèces excitées est suffisamment long pour que le front de détonation se déplaçant en moyenne à 2 km/s en bénéficie sur une distance physiquement pertinente, c'est-à-dire de l'ordre de plusieurs longueurs de cellules de détonation.

Dans le chapitre 5 dédié à la détonation, nous nous sommes intéressés aux modifications de la détonabilité d'un mélange par application d'un plasma nanoseconde devant un front de détonation déjà établi. A notre connaissance, les résultats obtenus sont nouveaux, ils montrent un effet positif du plasma sur la détonabilité même pour des conditions marginales de propagation de la détonation. Ils s'expriment par une diminution instantanée de la largeur moyenne des cellules de détonation en paroi dans la zone où le plasma est appliqué. Cette preuve expérimentale a été obtenue après avoir résolu les difficultés de l'étude simultanée des deux phénomènes. Ainsi, un protocole expérimental assurant la synchronisation de l'allumage du plasma avec l'arrivée du front de détonation a été établi. Une autre contrainte est l'existence d'une pression "idéale" pour la réalisation jointe du plasma dans la configuration "plan-plan" et de la détonation dans le tube de section $5 \times 5 \text{ cm}^2$. En effet, il est plus favorable de travailler à des pressions de l'ordre de quelques dizaines de millibars pour obtenir un plasma diffus dans toute la zone. A l'inverse, pour obtenir une détonation multicellulaire il est nécessaire de travailler à des pressions initiales plus élevées. Un compromis a été trouvé et une discussion sur l'homogénéité du plasma est proposée. Nous soulignons ainsi qu'il n'est pas nécessaire que le plasma recouvre l'intégralité de la zone étudiée mais des zones plus longues que quelques cellules de détonation. Ainsi, un domaine de co-existence fonctionnelle des deux phénomènes a été trouvé en utilisant une électrode longue pour diminuer l'énergie déposée par unité de volume et le risque de "filamentation". Enfin, nous avons discuté les résultats sur plusieurs mélanges en prenant comme paramètre la visibilité de l'effet par rapport à la dynamique du

phénomène, à savoir la régularité des cellules de détonation. Nous avons observé un effet systématique du plasma pour tous les mélanges qui est cependant plus marqué, et donc plus simple à étudier, pour des mélanges à base d'hydrogène.

Dans le chapitre 6 dédié à la déflagration, nous nous sommes intéressés aux modifications de la détonabilité d'un mélange par application d'un plasma nanoseconde comme source d'allumage de la flamme. Les résultats distinguent l'allumage d'une flamme issue d'un plasma à celle issue d'une bougie automobile classique. Ces résultats sont constitués à la fois de l'apparence de la flamme et de la distance de sa transition vers la détonation. Nous avons conçu un système d'électrodes multi-canaux capable de générer des plasmas en plusieurs points. Ce système a été adapté à un tube à détonation. L'utilisation du plasma nanoseconde permet d'enrichir le milieu en espèces actives et d'avoir une flamme très rapide dès les premiers instants de son développement. L'utilisation de plusieurs canaux permet aussi de générer de nombreux noyaux de combustion et des instabilités fortes dès les premiers instants. Nous avons observé ces phénomènes expérimentalement par stioscopie et chimiluminescence. Dans le cas d'un allumage thermique par bougie, la flamme est plus lisse, plus lente, et sa transition vers le régime de détonation est plus tardive dans nos conditions. Cette électrode reste un prototype et nous n'avons pas pu déterminer si l'allumage de la flamme par le plasma de type chimique ou thermique ou une combinaison des deux. De plus, une étude approfondie sur le nombre de canaux optimal sera nécessaire pour savoir s'il vaut mieux déposer une quantité très importante d'énergie dans peu de canaux ou une énergie modérée dans beaucoup de canaux. Nous avons indiqué que dans nos conditions, la pression de travail déterminait le nombre de canaux allumés. En résumé nous avons démontré l'efficacité de notre plasma sur le phénomène de TDD de trois manières : temps de transition plus court, longueur de transition plus courte et pressions plus basse pour la réaliser.

Dans le dernier chapitre 7, nous synthétisons nos résultats. En particulier, sur l'aspect énergétique. En effet, nous avons utilisé le même générateur pour les deux expériences et les décharges sont très différentes. Dans la première expérience dédiée à la détonation, la décharge doit être diffuse sur un volume important on obtient alors un dépôt d'énergie par particule faible, typiquement 10^{-3} eV. Par simulation numérique, nous avons établi que l'on dissocie au maximum 2% de l'oxygène dans nos mélanges. Cette dissociation est suffisante pour observer une réduction de la taille des cellules de détonation, à peu près d'un facteur 2. Cependant, nous avons remarqué que l'efficacité de cette réduction dépend principalement de la pression de travail. Dans la deuxième expérience dédiée à la TDD, la décharge est contenue dans des microcanaux en début de tube, on obtient alors un dépôt d'énergie par particule très important jusqu'à l'électronvolt par particule. Ces énergies importantes sont en parties responsables de la création d'une flamme très rapide et instable qui effectue une transition vers la détonation

plus efficacement qu'une flamme issue d'une bougie classique. Finalement, nous présentons les résultats de calculs ZND dans le cas des détonations et nous montrons qu'une dissociation de l'ordre de 2% de l'oxygène entraîne une réduction du temps d'induction donc en première approximation de la largeur des cellules d'un facteur 2. Ces résultats rapprochent ainsi l'expérience et les calculs. Les études réalisées lors de ce travail de thèse démontrent donc une corrélation entre le plasma nanoseconde, la détonabilité et le temps d'induction chimique des réactions de combustion.

Bibliographie

- [1] I. Esakov, L. Grachev, K. Khodataev, D. Van Wie, Experiments on propane ignition in high-speed airflow using a deeply undercritical microwave discharge, in : 42nd AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit, 2004, p. 840.
- [2] I. Esakov, L. Grachev, K. Khodataev, V. Vinogradov, D. Van Wie, Efficiency of propane-air mixture combustion assisted by deeply undercritical mw discharge in cold high-speed airflow, in : 44th AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit, 2006, p. 1212.
- [3] E. Mintoussov, S. Pancheshnyi, A. Starikovskii, Propane-air flame control by non-equilibrium low-temperature pulsed nanosecond barrier discharge, in : 42nd AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit, 2004, p. 1013.
- [4] S. Bozhenkov, S. Starikovskaia, A. Y. Starikovskii, Nanosecond gas discharge ignition of H₂- and CH₄- containing mixtures., *Combustion and flame* 133 (1-2) (2003) 133–146.
- [5] S. Starikovskaya, N. Aleksandrov, I. Kosarev, S. Kindysheva, A. Y. Starikovskii, Ignition with low-temperature plasma : kinetic mechanism and experimental verification, *High Energy Chemistry* 43 (3) (2009) 213–218.
- [6] I. Adamovich, I. Choi, N. Jiang, J. Kim, S. Keshav, W. Lempert, E. Mintusov, M. Nishihara, M. Samimy, M. Uddi, Plasma assisted ignition and high-speed flow control : non-thermal and thermal effects, *Plasma Sources Science and Technology* 18 (3) (2009) 034018.
- [7] N. Popov, Effect of singlet oxygen O₂ (a 1δg) molecules produced in a gas discharge plasma on the ignition of hydrogen–oxygen mixtures, *Plasma Sources Science and Technology* 20 (4) (2011) 045002.
- [8] N. Popov, Effect of nonequilibrium excitation on the ignition of combustible mixtures, in : 43rd AIAA Plasmadynamics and Lasers Conference, 2012, p. 2989.
- [9] I. Kosarev, N. Aleksandrov, S. Kindysheva, I. S. Starikovskaia, A. Y. Starikovskii, Kinetics of ignition of saturated hydrocarbons by nonequilibrium

- plasma : C₂H₆-to C₅H₁₂-containing mixtures, *Combustion and flame* 156 (1) (2009) 221–233.
- [10] J. Kasahara, S. Frolov, Present status of pulse and rotating detonation engine research, *Proc. 25th ICDERS* (2015) 2–7.
- [11] B. A. Rankin, D. R. Richardson, A. W. Caswell, A. G. Naples, J. L. Hoke, F. R. Schauer, Chemiluminescence imaging of an optically accessible non-premixed rotating detonation engine, *Combustion and Flame* 176 (2017) 12–22.
- [12] J. R. Burr, K. H. Yu, Detonation reignition within a rotating detonation engine, in : 54th AIAA Aerospace Sciences Meeting, 2016, p. 1202.
- [13] T. Gaillard, D. Davidenko, F. Dupoirieux, Numerical simulation of a rotating detonation with a realistic injector designed for separate supply of gaseous hydrogen and oxygen, *Acta Astronautica* 141 (2017) 64–78.
- [14] S. Boulal, Comportements dynamiques de la détonation dans des compositions gazeuses non-uniformes, Ph.D. thesis, Chasseneuil-du-Poitou, Ecole nationale supérieure de mécanique et d . . . (2017).
- [15] J. A. Gray, D. A. Lacoste, Enhancement of the transition to detonation of a turbulent hydrogen–air flame by nanosecond repetitively pulsed plasma discharges, *Combustion and Flame* 199 (2019) 258–266.
- [16] A. A. Tropina, R. Mahamud, Effect of plasma on the deflagration to detonation transition, *Combustion Science and Technology* (2021) 1–19.
- [17] J. K. Lefkowitz, P. Guo, T. Ombrello, S. H. Won, C. A. Stevens, J. L. Hoke, F. Schauer, Y. Ju, Schlieren imaging and pulsed detonation engine testing of ignition by a nanosecond repetitively pulsed discharge, *Combustion and Flame* 162 (6) (2015) 2496–2507.
- [18] A. Starikovskiy, N. Aleksandrov, A. Rakitin, Plasma-assisted ignition and deflagration-to-detonation transition, *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 370 (1960) (2012) 740–773.
- [19] F. Zhang, *Shock wave science and technology reference library*, Springer, 2009.
- [20] R. A. Strehlow, A. J. Crooker, The structure of marginal detonation waves, *Acta Astronautica* 1 (3-4) (1974) 303–315.
- [21] C. Roth, Nanoscale plasma surface modification of powders, Ph.D. thesis, ETH Zurich (2012).

- [22] S. Yang, S. Nagaraja, W. Sun, V. Yang, Multiscale modeling and general theory of non-equilibrium plasma-assisted ignition and combustion, *Journal of Physics D : Applied Physics* 50 (43) (2017) 433001.
- [23] Y. Ju, W. Sun, Plasma assisted combustion : Dynamics and chemistry, *Progress in Energy and Combustion Science* 48 (2015) 21–83.
- [24] A. Ionin, I. Kochetov, A. Napartovich, N. Yuryshev, Physics and engineering of singlet delta oxygen production in low-temperature plasma, *Journal of Physics D : Applied Physics* 40 (2) (2007) R25.
- [25] S. Pancheshnyi, S. Biagi, M. Bordage, G. Hagelaar, W. Morgan, A. Phelps, L. Pitchford, The lxcat project : Electron scattering cross sections and swarm parameters for low temperature plasma modeling, *Chemical Physics* 398 (2012) 148–153.
- [26] J.-S. Yoon, M.-Y. Song, J.-M. Han, S. H. Hwang, W.-S. Chang, B. Lee, Y. Itikawa, Cross sections for electron collisions with hydrogen molecules, *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 37 (2) (2008) 913–931.
- [27] F. S. Billig, Research on supersonic combustion, *Journal of Propulsion and Power* 9 (4) (1993) 499–514.
- [28] J. Moorthy, B. Rajinikanth, B. Charyulu, G. A. P. Rao, Scramjet combustor development : a review, *Journal of Aerospace Engineering & Technology* 2 (3) (2012) 28–41.
- [29] S. Dooley, S. H. Won, J. Heyne, T. I. Farouk, Y. Ju, F. L. Dryer, K. Kumar, X. Hui, C.-J. Sung, H. Wang, et al., The experimental evaluation of a methodology for surrogate fuel formulation to emulate gas phase combustion kinetic phenomena, *Combustion and Flame* 159 (4) (2012) 1444–1466.
- [30] S. M. Starikovskaia, Plasma assisted ignition and combustion, *Journal of Physics D : Applied Physics* 39 (16) (2006) R265.
- [31] L. Kof, A. Y. Starikovskii, Oxygen-hydrogen mixtures ignition under the high-voltage ionization wave conditions at high temperatures, in : 26th international symposium on combustion, 1996, pp. 05–052.
- [32] N. Popov, Effect of a pulsed high-current discharge on hydrogen-air mixtures, *Plasma Physics Reports* 34 (5) (2008) 376–391.
- [33] N. Popov, Fast gas heating in a nitrogen–oxygen discharge plasma : I. kinetic mechanism, *Journal of Physics D : Applied Physics* 44 (28) (2011) 285201.
- [34] A. Starikovskiy, N. Aleksandrov, Plasma-assisted ignition and combustion, *Aeronautics and astronautics* (2011) 331–68.

- [35] A. Starikovskiy, N. Aleksandrov, Plasma-assisted ignition and combustion, *Progress in Energy and Combustion Science* 39 (1) (2013) 61–110.
- [36] S. Starikovskaia, Plasma-assisted ignition and combustion : nanosecond discharges and development of kinetic mechanisms, *Journal of Physics D : Applied Physics* 47 (35) (2014) 353001.
- [37] K. Kailasanath, Review of propulsion applications of detonation waves, *AIAA journal* 38 (9) (2000) 1698–1708.
- [38] K. Kailasanath, Recent developments in the research on pulse detonation engines, *AIAA journal* 41 (2) (2003) 145–159.
- [39] P. Wolański, Detonative propulsion, *Proceedings of the combustion Institute* 34 (1) (2013) 125–158.
- [40] G. D. Roy, S. M. Frolov, A. A. Borisov, D. W. Netzer, Pulse detonation propulsion : challenges, current status, and future perspective, *Progress in Energy and Combustion Science* 30 (6) (2004) 545–672.
- [41] G. Canteins, Etude de la détonation continue rotative-application à la propulsion, Ph.D. thesis, Université de Poitiers (2006).
- [42] J. E. Shepherd, J. Kasahara, Analytical models for the thrust of a rotating detonation engine (2017).
- [43] B. A. Rankin, M. L. Fotia, A. G. Naples, C. A. Stevens, J. L. Hoke, T. A. Kaemming, S. W. Theuerkauf, F. R. Schauer, Overview of performance, application, and analysis of rotating detonation engine technologies, *Journal of Propulsion and Power* 33 (1) (2017) 131–143.
- [44] C. Brophy, R. Hanson, Fuel distribution effects on pulse detonation engine operation and performance, *Journal of Propulsion and Power* 22 (6) (2006) 1155–1161.
- [45] S. Boulal, P. Vidal, R. Zitoun, T. Matsumoto, A. Matsuo, Experimental investigation on detonation dynamics through a reactivity sink, *Combustion and Flame* 196 (2018) 11–25.
- [46] S. Boulal, P. Vidal, R. Zitoun, Experimental investigation of detonation quenching in non-uniform compositions, *Combustion and Flame* 172 (2016) 222–233.
- [47] S. Boulal, P. Vidal, R. Zitoun, T. Matsumoto, A. Matsuo, Experimental investigation on detonation dynamics through a reactivity sink, *Combustion and Flame* 196 (2018) 11–25.
- [48] J. H. Lee, *The detonation phenomenon*, 2008.

- [49] Y. P. Raizer, J. E. Allen, Gas discharge physics, Vol. 2, Springer Berlin, 1997.
- [50] S. Starikovskaia, E. Kukaev, A. Y. Kuksin, M. Nudnova, A. Y. Starikovskii, Analysis of the spatial uniformity of the combustion of a gaseous mixture initiated by a nanosecond discharge, *Combustion and flame* 139 (3) (2004) 177–187.
- [51] S. Pancheshnyi, B. Eismann, G. Hagelaar, L. Pitchford, Computer code *zdplaskin*, University of Toulouse, LAPLACE, CNRS-UPS-INP, Toulouse, France (2008).
- [52] I. N. Kosarev, S. O. Belov, S. V. Kindysheva, A. Y. Starikovskiy, N. L. Aleksandrov, Inhibition of plasma-assisted ignition in hydrogen–oxygen mixtures by hydrocarbons, *Combustion and Flame* 189 (2018) 163–172.
- [53] J. Delcroix, C. Ferreira, A. Ricard, Principles of laser plasmas ed g bekefi (1976).
- [54] M. J. McEwan, L. F. Phillips, Chemistry of the atmosphere, New York (1975).
- [55] A. Florescu-Mitchell, J. Mitchell, Dissociative recombination, *Physics reports* 430 (5-6) (2006) 277–374.
- [56] R. Mével, J. Sabard, J. Lei, N. Chaumeix, Fundamental combustion properties of oxygen enriched hydrogen/air mixtures relevant to safety analysis : Experimental and simulation study, *international journal of hydrogen energy* 41 (16) (2016) 6905–6916.
- [57] Y. Denisov, Y. Troshin, Pulsating and spinning detonation in channels (original in russian), in : *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, Vol. 125, 1959, pp. 110–113.
- [58] N. A. Popov, The effect of nonequilibrium excitation on the ignition of hydrogen-oxygen mixtures, *High Temperature* 45 (2) (2007) 261–279.
- [59] D. Xu, M. Shneider, D. Lacoste, C. Laux, Thermal and hydrodynamic effects of nanosecond discharges in atmospheric pressure air, *Journal of Physics D : Applied Physics* 47 (23) (2014) 235202.
- [60] M. Castela, S. Stepanyan, B. Fiorina, A. Coussement, O. Gicquel, N. Darabiha, C. O. Laux, A 3-d dns and experimental study of the effect of the recirculating flow pattern inside a reactive kernel produced by nanosecond plasma discharges in a methane-air mixture, *Proceedings of the Combustion Institute* 36 (3) (2017) 4095–4103.
- [61] C. Matignon, Etude de la détonation de deux mélanges stoechiométriques ($\text{CH}_4/\text{H}_2/\text{O}_2/\text{N}_2$ et $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_6/\text{O}_2/\text{N}_2$) influence de la proportion relative des deux combustibles et de la température initiale élevée, Ph.D. thesis, Université de Poitiers (2000).

Titre : Etude de l'interaction des plasmas hors-équilibre et des détonations : réduction de la largeur des cellules et longueur de transition

Mots clés : Plasma nanoseconde, détonation, déflagration, détonabilité, temps d'induction chimique.

Résumé : La thèse présente une étude de l'interaction entre les plasmas froids nanosecondes et les ondes de combustion en vue d'améliorer la détonabilité de mélanges gazeux. Les objectifs principaux sont d'initier une détonation par processus de transition déflagration-détonation (TDD) et d'améliorer la propagation de la détonation dans des conditions défavorables par l'aide de plasma. La détonabilité du mélange est le principal paramètre de l'étude. Deux systèmes d'électrodes ont été conçus pour répondre à ces deux problématiques.

Une étude numérique de l'effet de la predissociation de l'état initial sur les profils ZND de la détonation et le temps d'induction a été effectuée. Une corrélation forte est observée entre les résultats expérimentaux de réduction de la taille des cellules et la réduction des longueurs d'induction dans le modèle ZND associé. Une causalité entre l'action du plasma, le temps d'induction et l'augmentation de la détonabilité est démontrée. Cette étude approfondit la compréhension du rôle des plasmas nanosecondes couplés aux ondes de combustion.

Title : Interaction of non-equilibrium low temperature plasma with detonation: reduction of the cell size and the deflagration-to-detonation length

Keywords : Nanosecond plasma, detonation, deflagration, detonability, chemical induction time.

Abstract : This thesis presents a study of the interaction between nanosecond non-equilibrium plasma and combustion waves in gaseous mixtures. Plasma assisted ignition and combustion applications have been well-studied for their favourable effects of plasma on combustion reactions. This work aims to demonstrate similar effects on the dynamics of deflagration and detonation waves. The focus was directed towards initiating detonation through a deflagration-to-detonation process (DDT) and sustaining detonation in unfavorable conditions by the use of plasma. The detonability of the mixture was the main parameter of the study. Two discharge setups were designed to investigate any enhancements in detonability based on these points.

A numerical study on the effect of predissociation of the initial state on the detonation ZND profiles and the induction time was made. An important correlation is observed between the experimental results obtained in reducing the detonation cell size and the reduction in induction time predicted by the numerical simulations. A causality between plasma action, induction time and detonability is also demonstrated. This study improves the understanding of the role of nanosecond plasma in enhancing combustion waves. It also underlines the importance of proper coupling between plasma setups and detonation phenomenon.