



**HAL**  
open science

# Étude de la propagation de flamme dans une atmosphère gazeuse représentative de la phase tardive d'un accident grave dans un REP

Laura Vastier

► **To cite this version:**

Laura Vastier. Étude de la propagation de flamme dans une atmosphère gazeuse représentative de la phase tardive d'un accident grave dans un REP. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université d'Orléans, 2024. Français. NNT : 2024ORLE1020 . tel-04730740v2

**HAL Id: tel-04730740**

**<https://theses.hal.science/tel-04730740v2>**

Submitted on 10 Oct 2024

**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.

# UNIVERSITÉ D'ORLÉANS

*ÉCOLE DOCTORALE*

ÉNERGIE, MATÉRIAUX, SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'UNIVERS

INSTITUT DE COMBUSTION AÉROTHERMIQUE  
RÉACTIVITÉ ET ENVIRONNEMENT

**THÈSE** présentée par :

**Laura VASTIER**

Soutenue le : 05 juillet 2024

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

Discipline/ Spécialité : Énergétique. Combustion, Mécanique des fluides

**Étude de la propagation de flamme  
dans une atmosphère gazeuse  
représentative de la phase tardive d'un  
accident grave dans un REP**

**THÈSE dirigée par :**

M<sup>me</sup> CHAUMEIX Nabih  
M. BENTAIB Ahmed

Directeur de recherche, CNRS ICARE Orléans  
Ingénieur de recherche, IRSN

**RAPPORTEURS :**

M. BELLENOUE Marc  
M. CATOIRE Laurent

Professeur des universités, Institut PPrime  
Professeur des universités, ENSTA Paris

**JURY :**

M. SOTTON Julien  
M. BELLENOUE Marc  
M. CATOIRE Laurent  
M<sup>me</sup> CHAUMEIX Nabih  
M. BENTAIB Ahmed

Professeur des universités, Institut PPrime, président du jury  
Professeur des universités, Institut PPrime  
Professeur des universités, ENSTA Paris  
Directeur de recherche, CNRS ICARE Orléans  
Ingénieur de recherche, IRSN



# Remerciements

La réalisation de cette thèse représente l'aboutissement d'un long parcours, jalonné de défis et d'imprévus. Bien que ce travail soit le résultat d'un travail personnel important, il n'en demeure pas moins que celui-ci n'aurait pas pu aboutir sans le soutien et la contribution de nombreuses personnes, auxquelles je souhaite exprimer ma plus sincère gratitude. Je leur dédie ainsi les quelques mots qui vont suivre.

Tout d'abord, je souhaiterais commencer par remercier Messieurs Marc Bellenoue et Laurent Catoire pour avoir pris le temps de rapporter mon manuscrit de thèse et de m'avoir apporté des conseils indispensables à l'amélioration de mon travail, que ce soit lors de leurs rapports ou bien lors de ma soutenance. Je souhaite par la même occasion remercier Monsieur Julien Sotton pour avoir présidé mon jury et pour sa bienveillance lors de la soutenance de ma thèse.

Mes remerciements vont également à l'IRSN pour avoir financé cette thèse, ainsi qu'au projet AMHYCO au sein duquel cette thèse s'est inscrite. J'adresse des remerciements sincères à mes deux directeurs de thèse Madame Nabih Chaumeix, et Monsieur Ahmed Bentaib. Je remercie sincèrement Monsieur Sharath Nagaraju pour tout ce qu'il m'a appris et pour toute l'aide qu'il a pu m'apporter au cours de mes années de thèse. Merci pour tous les bons moments qu'on a pu passer ensemble sur ENACCEF. Je tiens également à remercier Kouamé N'Guessan pour avoir encadré mon stage de fin d'études qui m'a permis de réaliser cette thèse par la suite : merci pour ta confiance et ta bonne humeur permanente.

Je souhaite exprimer ma plus grande gratitude à tout le personnel du laboratoire ICARE qui a pu contribuer au bon déroulement de mon travail, que ce soit par leurs connaissances techniques, que scientifiques, ainsi que pour l'accueil qu'ils ont eu à mon égard.

Je tiens à remercier plus précisément Pascal et Guillaume de m'avoir accueillie au sein de leur équipe pendant une année. Grâce à vous j'ai appris un monde qui m'était jusqu'alors inconnu : les moteurs à effet Hall. Merci de m'avoir permis de développer de nouvelles compétences et d'avoir pris le temps de me transmettre vos connaissances.

Je souhaite remercier aussi Michel, Martin, Julien et Steven, mes mentors lors de mes années d'études. Je n'aurais jamais développé un goût prononcé pour la science et notamment pour la recherche si vous ne me l'aviez pas transmise. Merci pour la rigueur que vous avez su m'inculquer.

Je tiens à adresser mes plus profonds remerciements aux différents doctorants que j'ai pu croiser au cours de ces années de thèse et qui m'ont permis de décompresser le temps d'un repas en rigolant et en parlant de tout et de rien : Vincente, Nico, Guillaume, Chaimae, Kouamé, Keerthana, Camille, Hugo C., Étienne, Vincent, et tous ceux que j'aurais oublié de citer. À ceux qui sont devenus de très bons collègues, voire des amis. Valentin, Nesrine aka « Tata », Hugo aka « père Noubel », Dylan aka « Le mur », Alka, Candice : je vous remercie énormément pour tous les bons moments qu'on a pu passer ensemble et pour votre soutien indéfectible qui m'ont permis de sortir un peu de mon quotidien. Romdhan, je tiens à te remercier pour ton amitié, ta bonne humeur et ton humour qui m'ont permis de décompresser lorsque la période devenait compliquée. Enfin, Faf et Hugo, je pense que je pourrais dire 1000 mots différents pour exprimer tout ce que j'ai à vous dire, mais je pense qu'un seul suffit pour tout résumer : Survival !

Pour finir, je souhaite adresser ces derniers mots à toutes les personnes qui ne sont pas citées ici, mais qui m'ont aidée et accompagnée tout au cours de ma vie et qui m'ont permis d'arriver là où j'en suis maintenant.



# Sommaire

Introduction .....	1
Contexte de l'étude.....	7
Chapitre 1 .....	13
État de l'art .....	13
1. Propriétés fondamentales des flammes de prémélange .....	15
1.1. Flammes laminaires de prémélange .....	15
1.2. Domaine d'inflammabilité.....	17
1.2.1. Méthodes d'allumage et géométrie de l'enceinte expérimentale .....	19
1.2.2. Cas du mélange étudié : H <sub>2</sub> /CO/Air .....	27
1.3. Vitesses de flamme laminaires .....	40
1.3.1. Aspects théoriques.....	40
1.3.2. Paramètres fondamentaux des flammes de prémélange .....	44
1.3.3. Cas du mélange H <sub>2</sub> /CO/Air .....	46
2. Régimes de propagation des flammes .....	53
2.1. Déflagrations .....	53
2.2. Mécanismes d'accélération de flamme .....	54
2.3. Instabilités de flamme .....	55
2.3.1. Instabilités hydrodynamiques (Darrieus-Landau) .....	55
2.3.2. Instabilités thermo-diffusives .....	56
3. Propagation de déflagrations en milieux confinés.....	57
3.1. Propagation d'une flamme dans un tube .....	57
3.1.1. Cas d'un tube lisse.....	58
3.1.2. Cas d'un tube encombré d'obstacles .....	60
3.2. Cas du mélange étudié : H <sub>2</sub> /CO/Air .....	63
3.2.1. Géométrie de l'enceinte et position d'allumage .....	64
3.2.2. Dimensions de l'enceinte expérimentale.....	64
3.2.3. Paramètres liés aux obstacles .....	67
3.2.4. Composition initiale du mélange.....	69
4. Conclusions sur l'état de l'art.....	71
Chapitre 2 .....	73
Dispositifs expérimentaux et méthodologie .....	73
1. Étude des limites d'inflammabilité.....	75
1.1. Principe de fonctionnement général d'une bombe sphérique.....	75
1.2. Description de la bombe sphérique BSI .....	75
1.2.1. Composition du mélange.....	76
1.2.2. Instrumentations .....	77

1.3. Méthodologie de détermination des limites d'inflammabilité.....	80
1.3.1. Validation du protocole expérimental : étude du mélange H <sub>2</sub> /Air.....	81
1.3.2. Code de calcul pour la détermination des limites d'inflammabilité.....	91
1.4. Conditions expérimentales de l'étude .....	92
2. Étude de la propagation de flamme dans un tube fermé encombré d'obstacles.....	92
2.1. Enceinte d'accélération de flamme : ENACCEF-II .....	92
2.1.1. Dispositif expérimental .....	93
2.1.2. Composition du mélange.....	93
2.1.3. Instrumentations : caractérisation de la propagation de la flamme .....	96
2.2. Traitement des signaux.....	100
2.2.1. Détermination de la position et de la vitesse de propagation de la flamme.....	100
2.2.2. Détermination de l'évolution de la pression lors de la propagation de la flamme .....	105
2.3. Conditions expérimentales de l'étude .....	110
3. Logiciel de simulation de la combustion : COSILAB.....	110
3.1. Calculs à l'équilibre.....	110
3.2. Calculs des paramètres des flammes de prémélange.....	112
4. Conclusions sur les dispositifs expérimentaux et la méthodologie .....	113
Chapitre 3 .....	115
Résultats expérimentaux sur les limites d'inflammabilité.....	115
1. Cas du mélange H <sub>2</sub> /CO/Air .....	117
1.1. Détermination du domaine d'étude .....	117
1.2. Détermination des domaines d'inflammabilité.....	118
1.2.1. Conditions thermodynamiques « standards » : P <sub>ini</sub> = 1 bar et T <sub>ini</sub> = 298 K .....	119
1.2.2. Pressions initiales supérieures à 1 bar .....	125
1.2.3. Températures initiales supérieures à 298 K.....	133
1.2.4. Atmosphère appauvrie en oxygène .....	143
2. Cas du mélange H <sub>2</sub> /CO/Air/CO <sub>2</sub> .....	150
3. Mise en place de corrélations pour la détermination des limites d'inflammabilité .....	156
3.1. Corrélations concernant la variation de la pression initiale.....	156
3.2. Corrélation concernant la variation de la température initiale .....	158
4. Conclusions sur les résultats expérimentaux concernant les limites d'inflammabilité .....	159
Chapitre 4 .....	161
Résultats expérimentaux sur la propagation de flammes dans un tube fermé encombré d'obstacles .	161
1. Flammes lentes proches des limites d'inflammabilité.....	163
1.1. Caractérisation de l'influence de la composition initiale du mélange sur la propagation d'une flamme aux conditions thermodynamiques « standards ».....	163
1.1.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse .....	164
1.1.2. Profils de pression .....	174

1.2. Caractérisation de l'influence de la pression initiale.....	180
1.2.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse .....	181
1.2.2. Profils de pression .....	185
1.3. Caractérisation de l'influence de la température initiale.....	187
1.3.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse .....	188
1.3.2. Profils de pression .....	192
1.4. Caractérisation de l'influence conjointe de la pression et de la température initiales.....	194
1.4.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse .....	194
1.4.2. Profils de pression .....	204
1.5. Caractérisation visuelle de la propagation de la flamme.....	208
2. Flammes lentes proches de la limite d'inertage en CO <sub>2</sub> du mélange H <sub>2</sub> /CO/Air .....	213
2.1. Propagation d'une flamme aux conditions thermodynamiques « standards » .....	213
2.1.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse .....	214
2.1.2. Profils de pression .....	217
2.2. Caractérisation de l'influence de la température initiale.....	219
2.2.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse .....	220
2.2.2. Profils de pression .....	223
2.3. Caractérisation visuelle de la propagation de la flamme.....	225
3. Flammes non-accéléérées et flammes accélérées.....	226
4. Caractérisation du critère d'accélération de flamme .....	227
5. Conclusions sur les résultats expérimentaux concernant la propagation de flammes dans un tube fermé encombré d'obstacles .....	229
Conclusions et perspectives.....	231
Annexes.....	237
ANNEXE 1 : Matrice d'essais ENACCEF-II (propagation d'une flamme dans un tube encombré d'obstacles).....	237
ANNEXE 2 : Valeurs expérimentales déterminées par Van den Schoor et al. [132]. .....	238
ANNEXE 3 : Répartition de l'hydrogène et du monoxyde de carbone en fonction du point de prélèvement dans l'enceinte expérimentale.....	239
ANNEXE 4 : Répétabilité des signaux de trajectoire et de vitesse. ....	243
ANNEXE 5 : Répétabilité des signaux de pression. ....	249
Bibliographie.....	253



# Nomenclature

## Acronymes :

AMHYCO	Enhanced Accident Management of the H <sub>2</sub> /CO Combustion Risk	
BR	Rapport de Blocage	
BSI	Bombe Sphérique	
CAFT	Combustion Adiabatic Flame Temperature	
DNS	Direct Numerical Simulation (CFD)	
EMI	Énergie Minimale d'Inflammation	<i>en mJ</i>
ENACCEF-II	Enceinte d'accélération de flamme	
FWI	Interaction Flamme-Paroi	
GB	Gaz Brûlés	
GC	Chromatographie en phase Gazeuse	
GF	Gaz Frais	
INES	Échelle Internationale des Événements Nucléaires	
IRSN	Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire	
LAC	Limiting Air Concentration	
LASER	Amplification de la Lumière par Émission Stimulée de Radiation	
LII	Limite d'Inflammabilité Inférieure	
LIS	Limite d'Inflammabilité Supérieure	
LOC	Limiting Oxygen Concentration	
LOCA	Loss-of-Coolant Accident	
MESG	Écart Maximal Expérimental de la distance de coincement	<i>en m</i>
NPT	National Pipe Thread	
P <sub>AICC</sub>	Pression pour une combustion Adiabatique, Isochore et Complète	<i>en bar</i>
PAR	Recombineur Autocatalytique Passif	
PIF	Point d'Inertisation du Combustible	
PM	Photomultiplicateur	
REP	Réacteur à Eau Pressurisée	
SD	Shock Detector	
SMD	Diamètre de Sauter	<i>en m</i>
TDD	Transition Déflagration-Détonation	

Lettres grecques :

$\alpha$	Diffusivité thermique	<i>en <math>m^2.s^{-1}</math></i>
$\alpha_\xi$	Taux d'avancement de la réaction	
$\beta$	Nombre de Zel'dovich	
$\gamma$	Coefficient adiabatique	
$\delta_l$	Épaisseur de flamme laminaire	<i>en m</i>
$\delta_p$	Épaisseur de la zone de préchauffage	<i>en m</i>
$\delta_r$	Épaisseur de la zone de réaction	<i>en m</i>
$\varepsilon$	Puissance de dissipation par unité de masse	<i>en <math>m^2.s^{-3}</math></i>
$\kappa$	Taux d'étirement	<i>en <math>s^{-1}</math></i>
$\lambda$	Conductivité thermique	<i>en <math>W.m^{-1}.K^{-1}</math></i>
$\mu$	Viscosité dynamique	<i>en Pa.s</i>
$\xi$	Avancement de la réaction	<i>en mol</i>
$\rho$	Masse volumique	<i>en <math>kg.m^{-3}</math></i>
$\sigma$	Coefficient d'expansion des gaz brûlés	
$\sigma^*$	Paramètre impliqué dans la définition du critère d'accélération de flamme	
$\tau_c$	Temps de passage des gaz au travers de la flamme	<i>en s</i>
$\Phi / \varphi$	Richesse du mélange, ou rapport d'équivalence	
$\dot{\omega}$	Vitesse globale de réaction	<i>en <math>mol.m^{-3}.s^{-1}</math></i>

Lettres latines :

$a$	Vitesse du son	<i>en <math>m.s^{-1}</math></i>
$b$	Échelle d'expansion de l'obstacle	
$c_p$	Capacité thermique à pression constante	<i>en <math>J.K^{-1}.mol^{-1}</math></i>
$c_v$	Capacité thermique à volume constant	<i>en <math>J.K^{-1}.kg^{-1}</math></i>
$d_{int}$	Diamètre intérieur de l'obstacle	<i>en m</i>
$D_{mol}$	Diffusivité moléculaire du mélange	<i>en <math>m^2.s^{-1}</math></i>
$D_q / D_0$	Distance / Diamètre de coincement	<i>en m</i>
$D_{tube}$	Diamètre du tube	<i>en m</i>
$E_a$	Énergie d'activation	<i>en <math>J.mol^{-1}</math></i>
$E_c$	Énergie cinétique	<i>en J</i>
$f$	Distance focale d'un miroir	<i>en m</i>
$F_r$	Nombre de Froude	

$g$	Accélération gravitationnelle	<i>en m.s<sup>-2</sup></i>
$\Delta_f H$	Enthalpie de formation molaire	<i>en J.mol<sup>-1</sup></i>
$\Delta_r H$	Enthalpie de réaction	<i>en kcal.mol<sup>-1</sup></i>
$K_a$	Nombre de Karlovitz	
$K_G$	Indice de déflagration	<i>en m.bar.s<sup>-1</sup></i>
$L$	Fonction de Likelihood	
$L_b$	Longueur de Markstein	<i>en m</i>
$L_e$	Nombre de Lewis	
$L_T$	Échelle intégrale de turbulence	
$M$	Masse molaire	<i>en kg.mol<sup>-1</sup></i>
$M_a$	Nombre de Mach	
$M_b$	Nombre de Markstein	
$n$	Nombre de moles	<i>en mol</i>
$P$	Pression	<i>en bar</i>
$P_e$	Nombre de Péclet	
$P_r$	Nombre de Prandtl	
$Q$	Chaleur de combustion	<i>en K.mol<sup>-1</sup></i>
$R$	Constante universelle des gaz parfaits ( $R = 8,314$ )	<i>en J.mol<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup></i>
$Re$	Nombre de Reynolds	
$r_f$	Rayon d'une flamme sphérique	<i>en m</i>
$s$	Rapport stœchiométrique	
$S_c$	Nombre de Schmidt	
$S_l^0$	Vitesse de flamme laminaire à étirement nul	<i>en m.s<sup>-1</sup></i>
$S_l$	Vitesse de flamme laminaire étirée	<i>en m.s<sup>-1</sup></i>
$t^*$	Délai d'allumage	<i>en s</i>
$T$	Température	<i>en K</i>
$T_f$	Température adiabatique de flamme	<i>en K</i>
$V$	Volume de la chambre de combustion	<i>en m<sup>3</sup></i>
$V_s$	Vitesse spatiale de propagation de la flamme dans le référentiel du laboratoire	<i>en m.s<sup>-1</sup></i>
$x$	Teneur	<i>en %mol</i>
$X$	Fraction molaire	
$Y$	Fraction massique	

Indices :

$0$	Valeurs standards	
$b$	Valeurs dans les gaz brûlés	
$eff$	Valeurs effectives	
$f / u$	Valeurs dans les gaz frais	
$ini$	Valeurs initiales	
$max$	Valeurs maximales	

# Liste des figures

Figure 1 – Échelle INES (« International Nuclear Event Scale ») [3].	3
Figure 2 – Schémas descriptifs des différents composants d'un REP. (a) : Principaux composants du circuit primaire et des circuits secondaires d'un réacteur nucléaire. (b) : Cuve d'un réacteur nucléaire de 900 MWe [5].	4
Figure 3 – Flamme laminaire de prémélange. (a) : Propagation d'une flamme laminaire de prémélange. (b) : Structure d'une flamme laminaire de prémélange [21].	15
Figure 4 – Diagramme de Shapiro pour un mélange H <sub>2</sub> /Air dilué avec de la vapeur d'eau, pour différentes conditions thermodynamiques initiales [26].	18
Figure 5 – Évolution temporelle de la puissance du faisceau LASER dans le cadre d'un allumage par claquage LASER [41].	20
Figure 6 – Système d'allumage par arc électrique. (a) : Évolution temporelle de la tension. (b) : Évolution temporelle du courant [41].	22
Figure 7 – Limite d'inflammabilité inférieure du mélange CH <sub>4</sub> /H <sub>2</sub> /Air en fonction du diamètre de l'enceinte expérimentale pour différentes teneurs en hydrogène dans le mélange initial [57].	24
Figure 8 – Comparaison des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, du mélange CH <sub>4</sub> /H <sub>2</sub> /Air en fonction de la teneur en hydrogène dans le mélange initial et pour plusieurs méthodes de détermination différentes [31]. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures.	25
Figure 9 – Domaines d'inflammabilité des mélanges CH <sub>4</sub> /Air et C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> /Air en fonction du diamètre de l'enceinte cylindrique et de la hauteur du tube [62]. (a) : Domaine d'inflammabilité du mélange CH <sub>4</sub> /Air. (b) : Domaine d'inflammabilité du mélange C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> /Air.	26
Figure 10 – LII en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> dans le mélange H <sub>2</sub> /CO pour plusieurs températures initiales. Les symboles blancs correspondent aux données expérimentales de Van Den Schoor [132] et Wierzbza et Kilchuk [122]. Les symboles noirs correspondent aux valeurs données par Shang et al. [130]. Les lignes correspondent aux valeurs déterminées à l'aide des lois de Le Chatelier. Valeurs valables pour une pression atmosphérique de 1 bar.	33
Figure 11 – LII du mélange H <sub>2</sub> /CO/Air en fonction de la teneur en diluant ajoutée pour plusieurs températures initiales, pour une pression atmosphérique de 1 bar, et pour plusieurs teneurs en H <sub>2</sub> différentes. (a) : Cas du N <sub>2</sub> . (b) : Cas du CO <sub>2</sub> . (Symboles noirs : $x_{H2} = 0,25$ ; symboles blancs : $x_{H2} = 0,5$ ; symboles gris : $x_{H2} = 0,75$ ) [130].	39
Figure 12 – Vitesses de flamme laminaires mesurées par la méthode du brûleur pour deux teneurs en H <sub>2</sub> dans le mélange H <sub>2</sub> /CO différentes : 50%/50% et 5%/95%, pour une pression initiale de 1 bar et une température initiale de 300K [205].	48
Figure 13 – Comparaison des valeurs des vitesses de flamme laminaires trouvées expérimentalement dans différentes études trouvées dans la littérature [181].	49
Figure 14 – Différents régimes de propagation du front de flamme en suivant l'évolution de la pression (ou de la vitesse) en fonction de la distance parcourue (ou du temps écoulé) [216].	54
Figure 15 – Déplacement du front de flamme par effet piston au sein d'un tube lisse.	54
Figure 16 – Déformation du front de flamme par les lignes de courant lors du développement des instabilités de Darrieus-Landau [18].	56
Figure 17 – Déformation du front de flamme par les instabilités thermo-diffusives. En pointillés le flux massique, et en trait plein le flux thermique [219].	56
Figure 18 – Propagation d'une flamme « tulipe » dans un tube de 0,785 mètre [234].	60
Figure 19 – Régimes de propagation d'une flamme dans un tube encombré d'obstacles. (a) : Récapitulatif des différents régimes de propagation du front de flamme au sein d'un tube encombré d'obstacles [18]. (b) : Vitesses de propagation du front de flamme pour les différents régimes de propagation d'un mélange H <sub>2</sub> /Air dans un tube encombré d'obstacles [218].	62
Figure 20 – Expérience menée par Johansen et Ciccarelli [245]. (a) : Schéma explicatif des 4 étapes expérimentales. (b) : Visualisation Schlieren associée.	63
Figure 21 – Dispositif expérimental BSI. (a) : Schéma détaillé de l'enceinte vue sur une coupe de côté avec la position des différents composants. (b) : Photo du dispositif expérimental.	76
Figure 22 – Correspondance entre la température de l'enceinte expérimentale et la température initiale du mélange. (a) : Température réelle en fonction de la température en consigne pour les différentes positions des thermocouples. (b) : Température intérieure de la partie basse de l'enceinte en fonction de la température de la paroi de la BSI.	79
Figure 23 – Schéma explicatif du système de Schlieren en Z mis en place.	80
Figure 24 – Définition du critère visuel : visualisation de la propagation de la flamme à l'intérieur de la bombe sphérique. (a) : Pas d'inflammation du mélange ( $\{H_2/CO\} = 6,9\%$ ; $T_{ini} = 292\text{ K}$ ; et $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ). (b) : Inflammation d'un mélange pauvre ( $\{H_2/CO\} = 8,2\%$ ; $T_{ini} = 291,5\text{ K}$ ; et $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ). (c) : Inflammation d'un mélange riche ( $\{H_2/CO\} = 68,8\%$ ; $T_{ini} = 291,5\text{ K}$ ; $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ).	82
Figure 25 – Définition des critères de pression : signaux de pression lors de la propagation de la flamme à l'intérieur de la bombe sphérique. (a) : Pas d'inflammation du mélange ( $\{H_2/CO\} = 6,9\%$ ; $T_{ini} = 292\text{ K}$ ; et $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ). (b) : Inflammation d'un mélange pauvre ( $\{H_2/CO\} = 8,2\%$ ; $T_{ini} = 291,5\text{ K}$ ; et $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ). (c) : Inflammation d'un mélange riche ( $\{H_2/CO\} = 68,7\%$ ; $T_{ini} = 294\text{ K}$ ; $P_{ini} = 2\text{ bars}$ ).	83
Figure 26 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange H <sub>2</sub> /Air déterminés à partir du critère visuel d'une part, et des deux critères de pression (5% et 7%) d'une autre pour $P_{ini} = 1,016 \pm 0,015\text{ bar}$ , $T_{ini} = 294,6 \pm 0,46\text{ K}$ , et $E_{inflammation} = 2,8 \pm 1,76\text{ mJ}$ . (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures.	84
Figure 27 – Répartition de l'énergie d'inflammation déposée dans la bombe sphérique pour chaque essai permettant de déterminer l'énergie moyenne. (a) : Répartition d'énergie pour la source d'énergie SI3. (b) : Répartition d'énergie pour la source d'énergie SI5.	85

Figure 28 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange H <sub>2</sub> /Air déterminés pour les deux sources d'énergie pour P <sub>ini</sub> = 1,011±0,008 bar, et T <sub>ini</sub> = 296±1,3 K. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d'inflammabilité complets. ....	86
Figure 29 – Répartition de l'énergie d'inflammation déposée dans la bombe sphérique pour chaque essai permettant de déterminer l'énergie moyenne. ....	87
Figure 30 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange H <sub>2</sub> /Air déterminés pour les deux formes géométriques d'électrodes étudiées pour P <sub>ini</sub> = 1,016±0,017 bar, et T <sub>ini</sub> = 295,3±0,79 K. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d'inflammabilité complets. ....	88
Figure 31 – Schéma explicatif du chemin moyen emprunté par l'arc électrique entre deux électrodes en fonction de leur forme. (a) : Pointe-Plat. (b) : Pointe-Pointe. ....	89
Figure 32 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange H <sub>2</sub> /Air déterminés pour deux distances inter-électrodes étudiées pour P <sub>ini</sub> = 1,016±0,015 bar, et T <sub>ini</sub> = 294,4±0,46 K. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d'inflammabilité complets. ....	90
Figure 33 – Code de calcul Matlab permettant la détermination des limites d'inflammabilité d'un mélange combustible. (1) : Loi de régression logistique permettant de déterminer les limites d'inflammabilité. (2) : Intervalle de confiance à 95%. (3) : Limites d'inflammabilité à 1%, à 50%, et à 90%. ....	91
Figure 34 – Schémas de la disposition des différents éléments tubulaires [18]. (a) : Élément tubulaire « plein » sans fenêtres. (b) : Élément tubulaire équipé de fenêtres. ....	93
Figure 35 – Exemple de résultats tirés du chromatographe. (a) : Pics obtenus pour les espèces H <sub>2</sub> , O <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> , et CO. (b) : Pic obtenu pour l'espèce CO <sub>2</sub> . ....	96
Figure 36 – Dispositif expérimental ENACCEF-II. (a) : Schéma détaillé de l'enceinte avec la position des différents composants. (b) : Photo du dispositif expérimental. ....	96
Figure 37 – Transmission en fonction de la longueur d'onde pour le filtre utilisé [269]. ....	98
Figure 38 – Positionnement des 5 thermocouples placés dans chacun des 9 éléments tubulaires composant ENACCEF-II. ....	99
Figure 39 – Schéma du système Schlieren en Z mis en place dans ENACCEF-II pour la visualisation de la propagation du front de flamme, et des chocs lorsqu'ils sont présents. ....	100
Figure 40 – Signaux extraits de 4 des photomultiplicateurs de ENACCEF-II pour une flamme 4,5% H <sub>2</sub> + 4,5% CO + 91% Air à P <sub>ini</sub> = 1 bar et T <sub>ini</sub> = 363 K. ....	101
Figure 41 – Propagation du front de flamme entre le septième et le dixième photomultiplicateur. Les cercles noirs correspondent au passage de la flamme, et les cercles roses correspondent à un pic de OH généré par la recirculation des gaz brûlés. ....	102
Figure 42 – Propagation d'une flamme dans un tube encombré d'obstacles. ....	103
Figure 43 – Signal du photomultiplicateur 10, régression linéaire, et pentes "maximales" pour une flamme 4,5% H <sub>2</sub> + 4,5% CO + 91% Air à P <sub>ini</sub> = 1 bar et T <sub>ini</sub> = 363 K. ....	103
Figure 44 – Signal de pression obtenu au niveau du capteur Kistler K <sub>end</sub> (7650 mm) pour une flamme 4,5% H <sub>2</sub> + 4,5% CO + 91% Air, pour P <sub>ini</sub> = 1 bar, et T <sub>ini</sub> = 363 K. ....	106
Figure 45 – Signaux de pression obtenus au niveau des capteurs Kistler K11 – K <sub>end</sub> (2977 – 7650 mm) pour une flamme 11% H <sub>2</sub> + 11% CO + 59% Air + 19% H <sub>2</sub> O, pour P <sub>ini</sub> = 2 bars, et T <sub>ini</sub> = 353 K. ....	107
Figure 46 – Détermination du temps de passage de l'onde de choc incidente devant les différents capteurs de pression Kistler pour une flamme 11% H <sub>2</sub> + 11% CO + 59% Air + 19% H <sub>2</sub> O, pour P <sub>ini</sub> = 2 bars, et T <sub>ini</sub> = 353 K. ....	108
Figure 47 – Calculs à l'équilibre permettant de déterminer les différents paramètres de la combustion pour la propagation d'une flamme 12,58% H <sub>2</sub> + 12,54% CO + 44,88% Air + 30% H <sub>2</sub> O, à P <sub>ini</sub> = 1 bar, et à T <sub>ini</sub> = 373,15 K. (a) : Calculs à pression constante permettant de déterminer Tf. (b) : Calculs à volume constant permettant de déterminer P <sub>AICC</sub> . (c) : Calculs à pression constante permettant de déterminer les autres paramètres de combustion. ....	112
Figure 48 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange {50%H <sub>2</sub> +50%CO}/Air déterminés pour les deux sources d'énergie pour P <sub>ini</sub> = 1,013±0,005 bar ; et T <sub>ini</sub> = 296±1,28 K. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d'inflammabilité complets. ....	118
Figure 49 – Domaine d'inflammabilité du mélange {50%H <sub>2</sub> +50%CO}/Air déterminé à partir du critère visuel pour P <sub>ini</sub> = 1,013±0,005 bar ; T <sub>ini</sub> = 296±1,28 K ; et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. (a) : Limite d'inflammabilité inférieure. (b) : Limite d'inflammabilité supérieure. (c) : Domaine d'inflammabilité complet. ....	119
Figure 50 – Critère de détermination du domaine d'inflammabilité et imagerie rapide pour P <sub>ini</sub> = 1,013±0,005 bar ; T <sub>ini</sub> = 296±1,28 K ; et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. (a) : Comparaison du critère visuel avec les critères de pression à 5% et à 7% pour la détermination de la LII. (b) : Images correspondant à la propagation d'une flamme {50%H <sub>2</sub> +50%CO}/Air pour trois compositions différentes, et donc à trois probabilités d'inflammation différentes. ....	120
Figure 51 – Comparaison des pressions de combustion en fonction du temps pour trois teneurs en H <sub>2</sub> /CO pour P <sub>ini</sub> = 1,013±0,005 bar ; T <sub>ini</sub> = 296±1,28 K ; et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. ....	121
Figure 52 – Comparaison entre la P <sub>AICC</sub> et la P <sub>max</sub> , et détermination du temps nécessaire à l'obtention de la pression maximale à l'intérieur de l'enceinte en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour le mélange {50%H <sub>2</sub> +50%CO}. (a) : Comparaison entre la P <sub>AICC</sub> et la P <sub>max</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LII. (b) : Détermination de t <sub>Pmax</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LII. (c) : Comparaison entre la P <sub>AICC</sub> et la P <sub>max</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LIS. (d) : Détermination de t <sub>Pmax</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LIS. ....	122
Figure 53 – Comparaison des valeurs des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, trouvées dans la littérature avec les valeurs déterminées expérimentalement au cours de cette étude. ....	125
Figure 54 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange H <sub>2</sub> /CO/Air déterminés pour les trois pressions initiales étudiées (1 ; 2 ; 3,5 bars) pour T <sub>ini</sub> = 294,9±0,61 K, et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d'inflammabilité complets. ....	126

Figure 55 – Comparaison visuelle de la propagation du front de flamme du mélange {50% H <sub>2</sub> +50%CO} dans l'enceinte pour trois pressions initiales : 1 ; 2 et 3,5 bars pour T <sub>ini</sub> = 294,9±0,61 K, et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. ....	127
Figure 56 – Comparaison des surpressions de combustion en fonction du temps pour les trois pressions initiales étudiées, pour une même composition initiale du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air ; et pour T <sub>ini</sub> = 294,9±0,61 K ; et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. ....	128
Figure 57 – Comparaison des rapports de la pression maximale sur la P <sub>AICC</sub> , et du temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion, en fonction de la teneur en {50% H <sub>2</sub> +50% CO} dans le mélange pour les trois pressions initiales étudiées pour T <sub>ini</sub> = 294,9±0,61 K ; et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. (a) : P <sub>max</sub> /P <sub>AICC</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LII. (b) : P <sub>max</sub> /P <sub>AICC</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LIS. (c) : Détermination de t <sub>Pmax</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LII. (d) : Détermination de t <sub>Pmax</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LIS. ....	129
Figure 58 – Comparaison des valeurs des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, en fonction de la pression initiale, trouvées dans la littérature avec les valeurs déterminées expérimentalement au cours de cette étude. ....	132
Figure 59 – Comparaison des limites d'inflammabilité inférieures du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air pour les deux températures initiales étudiées : T <sub>ini</sub> = 298 K et T <sub>ini</sub> = 363 K ; pour P <sub>ini</sub> = 1,005±0,75 bar ; et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. ....	133
Figure 60 – Comparaison visuelle de la propagation du front de flamme du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air dans l'enceinte pour deux températures initiales : 298 K et 363 K. ....	134
Figure 61 – Comparaison des rapports de la pression maximale sur la P <sub>AICC</sub> , et du temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion, en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO dans le mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air pour les deux températures initiales étudiées pour P <sub>ini</sub> = 1,005±0,75 bar, et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. (a) : P <sub>max</sub> /P <sub>AICC</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LII. (b) : Détermination de t <sub>Pmax</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LII. ....	135
Figure 62 – Comparaison des valeurs des limites d'inflammabilité inférieures, en fonction de la température initiale, trouvées dans la littérature avec les valeurs déterminées expérimentalement au cours de cette étude. ....	142
Figure 63 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/O <sub>2</sub> /N <sub>2</sub> déterminés pour les deux rapports oxygène sur azote étudiés (0,11 ; et 0,264) et pour P <sub>ini</sub> = 1,008±0,006 bar ; T <sub>ini</sub> = 294,9±1,46 K ; et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d'inflammabilité complets. ....	143
Figure 64 – Comparaison visuelle de la propagation du front de flamme du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air dans l'enceinte pour deux rapports d'oxygène sur azote étudiés : 0,264 (air « normal ») et 0,11 (atmosphère appauvrie en oxygène) et pour P <sub>ini</sub> = 1,008±0,006 bar ; T <sub>ini</sub> = 294,9±1,46 K ; et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. ....	144
Figure 65 – Évolution de la LOC en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO dans le mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/O <sub>2</sub> /N <sub>2</sub> . ....	146
Figure 66 – Comparaison des pressions de combustion en fonction du temps pour les deux rapports d'oxygène sur azote étudiés et pour une composition initiale du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air proche de la limite d'inflammabilité dans les deux cas. ....	147
Figure 67 – Comparaison des rapports de la pression maximale sur la P <sub>AICC</sub> , et du temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion, en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO dans le mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air pour les deux rapports d'oxygène sur azote étudiés et pour P <sub>ini</sub> = 1,008±0,006 bar ; T <sub>ini</sub> = 294,9±1,46 K ; et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. (a) : P <sub>max</sub> /P <sub>AICC</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LII. (b) : P <sub>max</sub> /P <sub>AICC</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LIS. (c) : Détermination de t <sub>Pmax</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LII. (d) : Détermination de t <sub>Pmax</sub> en fonction de la teneur en H <sub>2</sub> /CO pour la LIS. ....	148
Figure 68 – Comparaison des valeurs des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, en fonction du rapport d'oxygène sur azote, trouvées dans la littérature avec les valeurs déterminées expérimentalement au cours de cette étude. (a) : Comparaison pour les limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Comparaison pour les limites d'inflammabilité supérieures. ....	150
Figure 69 – Limite d'inertage en CO <sub>2</sub> pour un mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air stœchiométrique et pour P <sub>ini</sub> = 1,005±0,74 bar ; T <sub>ini</sub> = 295,2±0,92 K ; et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ, et imagerie rapide. (a) : Limite d'inertage en CO <sub>2</sub> pour un mélange H <sub>2</sub> /CO/Air stœchiométrique. (b) : Images correspondant à la propagation d'une flamme H <sub>2</sub> /CO/Air pour trois teneurs en CO <sub>2</sub> différentes, et donc à trois probabilités d'inflammation différentes. ....	151
Figure 70 – Comparaison des pressions de combustion en fonction du temps pour les trois teneurs en CO <sub>2</sub> étudiées. ....	152
Figure 71 – Propagation d'une flamme {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air stœchiométrique diluée avec 48,75% de CO <sub>2</sub> dans la bombe sphérique BSI. ....	153
Figure 72 – Comparaison entre la P <sub>AICC</sub> et la P <sub>max</sub> , et détermination du temps nécessaire à l'obtention de la pression maximale à l'intérieur de l'enceinte en fonction de la teneur en CO <sub>2</sub> dans le mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air/CO <sub>2</sub> et pour P <sub>ini</sub> = 1,005±0,74 bar ; T <sub>ini</sub> = 295,2±0,92 K ; et E <sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. (a) : Comparaison entre la P <sub>AICC</sub> et la P <sub>max</sub> en fonction de la teneur en CO <sub>2</sub> pour la limite d'inertage. (b) : Détermination de t <sub>Pmax</sub> en fonction de la teneur en CO <sub>2</sub> pour la limite d'inertage. (c) : P <sub>max</sub> /P <sub>AICC</sub> en fonction de la teneur en CO <sub>2</sub> pour la limite d'inertage. ....	154
Figure 73 – Comparaison des résultats expérimentaux avec les résultats déterminés à partir des deux corrélations mises en place. (a) : Comparaison pour la limite d'inflammabilité inférieure. (b) : Comparaison pour la limite d'inflammabilité supérieure. ....	157
Figure 74 – Comparaison des résultats expérimentaux avec les résultats déterminés à partir des deux corrélations mises en place pour la limite d'inflammabilité inférieure. ....	159
Figure 75 – Teneur en H <sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 1. (a) : Teneur en H <sub>2</sub> . (b) : Teneur en CO. ....	165
Figure 76 – Rapport H <sub>2</sub> /CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 1, ainsi que pour le mélange moyen. ....	165
Figure 77 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,29% H <sub>2</sub> + 4,28% CO + 91,43% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 1,004±0,001 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K. (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en	

fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps.	166
Figure 78 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,29% H <sub>2</sub> + 4,28% CO + 91,43% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 1,004±0,001 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K. (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.	167
Figure 79 – Propagation d'une flamme plissée pour un mélange 4,37% H <sub>2</sub> + 4,38% CO + 91,25% Air pour une pression initiale de 2 bars et une température initiale de 298 K (essai 3 du Test 3).	168
Figure 80 – Rapport H <sub>2</sub> /CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 2, ainsi que pour le mélange moyen.	168
Figure 81 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,73% H <sub>2</sub> + 4,71% CO + 90,56% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 1,004±0,001 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K. (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps.	169
Figure 82 – Propagation du front de flamme entre le neuvième et le douzième photomultiplicateur. Le cercle orange correspond à l'extinction de la flamme (PM9). Le cercle bleu correspond au réallumage de la flamme (entre le PM10 et le PM12).	170
Figure 83 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,73% H <sub>2</sub> + 4,71% CO + 90,56% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 1,004±0,001 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K. (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.	171
Figure 84 – Comparaison des résultats entre les deux séries de tests pour les deux compositions initiales du mélange {50%H <sub>2</sub> +50%CO}/Air. (a) : Comparaison des trajectoires du front de flamme en fonction du temps. (b) : Comparaison des vitesses de flamme en fonction de la distance parcourue par le front de flamme.	173
Figure 85 – Évolution de la pression dans l'enceinte expérimentale tout au cours de la propagation de la flamme. (a) : Signaux de pression en fonction du temps, pour les 2 PCB et les 8 Kistler placés tout au long de l'enceinte expérimentale, et trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour une flamme 4,30% H <sub>2</sub> + 4,26% CO + 91,44% Air (essai 2 du Test 1). (b) : Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler.	175
Figure 86 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les deux autres essais composant le Test 1. (a) : Essai 1. (b) : Essai 3.	176
Figure 87 – Répétabilité des signaux de pression pour les trois essais composant le Test 1, pour un mélange moyen de 4,29% H <sub>2</sub> + 4,28% CO + 91,43% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 1,004±0,001 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K.	176
Figure 88 – Signaux de pression en fonction du temps, pour les 2 PCB et les 8 Kistler placés tout au long de l'enceinte expérimentale, et trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour une flamme 4,72% H <sub>2</sub> + 4,69% CO + 90,56% Air (essai 1 du Test 2).	177
Figure 89 – Signaux de pression en fonction du temps, pour les 2 PCB et les 8 Kistler placés tout au long de l'enceinte expérimentale, et trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour une flamme 4,72% H <sub>2</sub> + 4,70% CO + 90,58% Air (essai 3 du Test 2). Le carré vert sur la figure correspond à l'extinction et au réallumage de la flamme.	178
Figure 90 – Répétabilité des signaux de pression pour les trois essais composant le Test 2, pour un mélange moyen de 4,73% H <sub>2</sub> + 4,71% CO + 90,56% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 1,004±0,001 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K.	179
Figure 91 – Comparaison des surpressions de combustion en fonction du temps pour les deux moyennes des signaux pour les deux tests.	180
Figure 92 – Rapport H <sub>2</sub> /CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 1, pour les 4 essais composant le Test 3, pour les 3 essais composant le Test 4, ainsi que pour le mélange moyen. (a) : Test 1. (b) : Test 3. (c) : Test 4.	182
Figure 93 – Comparaison de la moyenne de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar (Test 1) ; 2 bars (Test 3) ; et 3,5 bars (Test 4).	183
Figure 94 – Comparaison de la moyenne de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar (Test 1) ; 2 bars (Test 3) ; et 3,5 bars (Test 4).	184
Figure 95 – Répétabilité des signaux de pression pour les trois essais composant le Test 3 et le Test 4. (a) : Test 3, pour un mélange moyen de 4,34% H <sub>2</sub> + 4,34% CO + 91,32% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 2,010±0,004 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K. (b) : Test 4, pour un mélange moyen de 4,36% H <sub>2</sub> + 4,36% CO + 91,28% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 3,506±0,002 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K.	186
Figure 96 – Comparaison des surpressions de combustion en fonction du temps pour les trois moyennes des signaux pour les trois tests.	186
Figure 97 – Rapport H <sub>2</sub> /CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 1, pour les 3 essais composant le Test 5, ainsi que pour le mélange moyen. (a) : Test 1. (b) : Test 5.	188
Figure 98 – Comparaison de la moyenne de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K, et pour une pression initiale de 1 bar.	189
Figure 99 – Comparaison de la moyenne de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les deux températures initiales étudiées : 298 K (Test 1) et 363 K (Test 5), et pour une pression initiale de 1 bar.	190
Figure 100 – Répétabilité des signaux de pression pour le Test 5, pour un mélange moyen de 4,21% H <sub>2</sub> + 4,24% CO + 91,55% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 1,011±0,008 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K.	192
Figure 101 – Comparaison des surpressions de combustion en fonction du temps pour les deux moyennes des signaux pour les deux tests.	193

Figure 102 – Rapport H <sub>2</sub> /CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 5, pour les 2 essais composant le Test 6, pour les 3 essais composant le Test 7, ainsi que pour le mélange moyen. (a) : Test 5. (b) : Test 6. (c) : Test 7. ....	195
Figure 103 – Comparaison de la moyenne de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. (a) : Comparaison faite pour une pression initiale de 1 bar (Test 1 et Test 5). (b) : Comparaison faite pour une pression initiale de 2 bars (Test 3 et Test 6). (c) : Comparaison faite pour une pression initiale de 3,5 bars (Test 4 et Test 7). ....	196
Figure 104 – Comparaison de la moyenne de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. (a) : Comparaison faite pour une pression initiale de 1 bar (Test 1 et Test 5). (b) : Comparaison faite pour une pression initiale de 2 bars (Test 3 et Test 6). (c) : Comparaison faite pour une pression initiale de 3,5 bars (Test 4 et Test 7). ....	198
Figure 105 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. (a) : Fit pour une pression initiale de 1 bar. (b) : Fit pour une pression initiale de 2 bars. (c) : Fit pour une pression initiale de 3,5 bars. ....	199
Figure 106 – Comparaison de la moyenne de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars ; et pour une température initiale de 363 K. ....	200
Figure 107 – Vitesse de propagation maximale du front de flamme en fonction de la pression initiale pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. ....	201
Figure 108 – Vitesse de propagation maximale du front de flamme en fonction de la Température initiale pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars. ....	202
Figure 109 – Vitesse fondamentale de flamme en fonction des deux grandeurs étudiées : la pression et la température initiales. (a) : Vitesse fondamentale de flamme pour les deux températures initiales étudiées en fonction de la pression initiale. (b) : Vitesse fondamentale de flamme pour les trois pressions initiales étudiées en fonction de la température initiale. ....	203
Figure 110 – Écart de la vitesse fondamentale de flamme pour les deux températures étudiées, et pour les trois pressions initiales fixées. ....	204
Figure 111 – Répétabilité des signaux de pression pour le Test 6 et le Test 7. (a) : Test 6, pour un mélange moyen de 4,21% H <sub>2</sub> + 4,23% CO + 91,56% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 2,010±0,003 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K. (b) : Test 7, pour un mélange moyen de 4,27% H <sub>2</sub> + 4,29% CO + 91,44% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 3,510±0,003 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K. ....	204
Figure 112 – Comparaison des surpressions de combustion en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées et pour les trois pressions initiales fixées. (a) : Comparaison faite pour une pression initiale de 1 bar (Test 1 et Test 5). (b) : Comparaison faite pour une pression initiale de 2 bars (Test 3 et Test 6). (c) : Comparaison faite pour une pression initiale de 3,5 bars (Test 4 et Test 7). ....	205
Figure 113 – Surpression de combustion maximale en fonction des deux grandeurs étudiées. (a) : Surpression de combustion maximale en fonction de la pression initiale pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. (b) : Surpression de combustion maximale en fonction de la température initiale pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars. ....	206
Figure 114 – Temps nécessaire pour atteindre la surpression de combustion maximale en fonction des deux grandeurs étudiées. (a) : Temps nécessaire pour atteindre la surpression de combustion maximale en fonction de la pression initiale pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. (b) : Temps nécessaire pour atteindre la surpression de combustion maximale en fonction de la température initiale pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars. ....	207
Figure 115 – Comparaison de la propagation visuelle d'une flamme {50%H <sub>2</sub> +50%CO}/Air proche de la limite d'inflammabilité inférieure pour une température initiale de 298 K et pour deux pressions initiales différentes : une pression initiale de 2 bars ((a), (b), (c), et (d)), et une pression initiale de 3,5 bars ((e), (f), (g), et (h)). ....	208
Figure 116 – Comparaison de la propagation visuelle d'une flamme {50%H <sub>2</sub> +50%CO}/Air proche de la limite d'inflammabilité inférieure pour une température initiale de 363 K et pour trois pressions initiales différentes : P <sub>ini</sub> = 1 bar ((a), (b), (c), et (d)) ; P <sub>ini</sub> = 2 bars ((e), (f), (g), et (h)) ; et P <sub>ini</sub> = 3,5 bars ((i), (j), (k), et (l)). ....	210
Figure 117 – Comparaison des deux méthodes d'obtention de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps : méthode visuelle d'une part et méthode d'analyse des signaux des photomultiplicateurs d'une autre. ....	212
Figure 118 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 7,76% H <sub>2</sub> + 7,93% CO + 38,36% Air + 45,95% CO <sub>2</sub> ; pour P <sub>ini</sub> = 1,006±0,004 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K (Test 8). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps. ....	214
Figure 119 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 7,76% H <sub>2</sub> + 7,93% CO + 38,36% Air + 45,95% CO <sub>2</sub> ; pour P <sub>ini</sub> = 1,006±0,004 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K (Test 8). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance. ....	215
Figure 120 – Répétabilité des signaux de pression pour le Test 8, pour un mélange moyen de 7,76% H <sub>2</sub> + 7,93% CO + 45,95% CO <sub>2</sub> + 38,36% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 1,006±0,004 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K. ....	217
Figure 121 – Signaux de pression en fonction du temps, pour les 2 PCB et les 8 Kistler placés tout au long de l'enceinte expérimentale, et trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour une flamme 7,87% H <sub>2</sub> + 8,06% CO + 37,62% Air + 46,45% CO <sub>2</sub> (essai 1 du Test 8). ....	218
Figure 122 – Comparaison de la moyenne de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées : 298 K (Test 8) et 363 K (Test 9), et pour une pression initiale de 1 bar. ....	220

Figure 123 – Comparaison de la moyenne de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les deux températures initiales étudiées : 298 K (Test 8) et 363 K (Test 9), et pour une pression initiale de 1 bar.....	221
Figure 124 – Répétabilité des signaux de pression pour le Test 9, pour un mélange moyen de 7,47% H <sub>2</sub> + 7,56% CO + 44,88% CO <sub>2</sub> + 40,09% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 1,010±0,001 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K. ....	223
Figure 125 – Comparaison des surpressions de combustion en fonction du temps pour les deux moyennes des signaux pour les deux tests. ....	224
Figure 126 – Comparaison de la propagation visuelle d'une flamme {50%H <sub>2</sub> +50%CO}/Air/CO <sub>2</sub> proche de la limite d'inertage en CO <sub>2</sub> pour une pression initiale de 1 bar et pour deux températures initiales différentes : une température initiale de 298 K ((a), (b), (c), et (d)), et une température initiale de 363 K ((e), (f), (g), et (h)). ....	225
Figure 127 – Critère d'expansion des gaz brûlés en fonction du rapport entre l'échelle intégrale et l'épaisseur de flamme laminaire.....	228
Figure 128 – Teneur en H <sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 2. (a) : Teneur en H <sub>2</sub> . (b) : Teneur en CO.....	239
Figure 129 – Teneur en H <sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 4 essais composant le Test 3. (a) : Teneur en H <sub>2</sub> . (b) : Teneur en CO.....	239
Figure 130 – Teneur en H <sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 4. (a) : Teneur en H <sub>2</sub> . (b) : Teneur en CO.....	239
Figure 131 – Teneur en H <sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 5. (a) : Teneur en H <sub>2</sub> . (b) : Teneur en CO.....	240
Figure 132 – Teneur en H <sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 2 essais composant le Test 6. (a) : Teneur en H <sub>2</sub> . (b) : Teneur en CO.....	240
Figure 133 – Teneur en H <sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 7. (a) : Teneur en H <sub>2</sub> . (b) : Teneur en CO.....	240
Figure 134 – Teneur en H <sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 8. (a) : Teneur en H <sub>2</sub> . (b) : Teneur en CO. (c) : Teneur en CO <sub>2</sub> . ....	241
Figure 135 – Teneur en H <sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 9. (a) : Teneur en H <sub>2</sub> . (b) : Teneur en CO. (c) : Teneur en CO <sub>2</sub> . ....	241
Figure 136 – Rapport H <sub>2</sub> /CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 8, pour les 3 essais composant le Test 9, ainsi que pour le mélange moyen. (a) : Test 8. (b) : Test 9. ....	242
Figure 129 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,34% H <sub>2</sub> + 4,34% CO + 91,32% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 2,010±0,004 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K (Test 3). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 4 essais. (b) : Moyenne des 4 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps. ....	243
Figure 130 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,34% H <sub>2</sub> + 4,34% CO + 91,32% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 2,010±0,004 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K (Test 3). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 4 essais. (b) : Moyenne des 4 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.....	243
Figure 131 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,36% H <sub>2</sub> + 4,36% CO + 91,28% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 3,506±0,002 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K (Test 4). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps. ....	244
Figure 132 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,36% H <sub>2</sub> + 4,36% CO + 91,28% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 3,506±0,002 bar ; et T <sub>ini</sub> = 298,15±1 K (Test 4). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.....	244
Figure 133 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,21% H <sub>2</sub> + 4,24% CO + 91,55% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 1,011±0,002 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K (Test 5). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps. ....	245
Figure 134 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,21% H <sub>2</sub> + 4,24% CO + 91,55% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 1,011±0,002 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K (Test 5). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.....	245
Figure 135 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,21% H <sub>2</sub> + 4,23% CO + 91,56% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 2,010±0,003 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K (Test 6). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 2 essais. (b) : Moyenne des 2 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps. ....	246
Figure 136 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,21% H <sub>2</sub> + 4,23% CO + 91,56% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 2,010±0,003 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K (Test 6). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 2 essais. (b) : Moyenne des 2 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.....	246
Figure 137 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,27% H <sub>2</sub> + 4,29% CO + 91,44% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 3,510±0,003 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K (Test 7). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps. ....	247

Figure 138 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,27% H <sub>2</sub> + 4,29% CO + 91,44% Air ; pour P <sub>ini</sub> = 3,510±0,003 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K (Test 7). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 2 essais. (b) : Moyenne des 2 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.....	247
Figure 139 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 7,47% H <sub>2</sub> + 7,56% CO + 40,09% Air + 44,88% CO <sub>2</sub> ; pour P <sub>ini</sub> = 1,010 ±0,001 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K (Test 9). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps. ....	248
Figure 140 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 7,47% H <sub>2</sub> + 7,56% CO + 40,09% Air + 44,88% CO <sub>2</sub> ; pour P <sub>ini</sub> = 1,010 ±0,001 bar ; et T <sub>ini</sub> = 363,15±1 K (Test 9). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 2 essais. (b) : Moyenne des 2 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance. ....	248
Figure 141 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 2. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3. ....	249
Figure 142 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les quatre essais composant le Test 3. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3. (d) : Essai 4. ....	249
Figure 143 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 4. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3. ....	250
Figure 144 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 5. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3. ....	250
Figure 145 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les deux essais composant le Test 6. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2.....	251
Figure 146 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 7. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3. ....	251
Figure 147 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 8. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3. ....	252
Figure 148 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 9. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3. ....	252



## Liste des tableaux

Tableau 1 – Limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, pour l'hydrogène et le monoxyde de carbone, en fonction de la température initiale [129, 121]. Valeurs valables pour une pression atmosphérique de 1 bar. ....	33
Tableau 2 – Coefficients caractérisant la corrélation de Jaimes et al. [119] pour différents rapports H <sub>2</sub> /CO. ....	35
Tableau 3 – Coefficients caractérisant la corrélation de Jaimes et al. [119] pour différents rapports H <sub>2</sub> /CO. ....	37
Tableau 4 – Paramètres physiques du mélange H <sub>2</sub> /CO stœchiométrique : masse volumique des gaz frais, température adiabatique de flamme, rapport d'expansion des gaz et vitesse de flamme laminaire [252]. ....	66
Tableau 5 – Récapitulatif des énergies déterminées pour les différentes conditions initiales expérimentales en fonction de la géométrie (forme et distance) des électrodes. ....	86
Tableau 6 – Récapitulatif du nombre d'essais effectués pour chaque condition initiale expérimentale étudiée. ....	92
Tableau 7 – Position des quatre points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale. ....	95
Tableau 8 – Caractéristiques des différents capteurs de pression. ....	98
Tableau 9 – Comparaison des pressions maximales et des temps nécessaires pour les atteindre pour les trois compositions du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO} étudiées. ....	121
Tableau 10 – Comparaison des valeurs déterminées expérimentalement au cours de ce travail avec les valeurs trouvées dans la littérature. ....	124
Tableau 11 – Comparaison des surpressions maximales et des temps nécessaires pour les atteindre pour les trois pressions initiales étudiées, et pour une même composition initiale du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}. ....	128
Tableau 12 – Comparaison des températures adiabatiques de flamme pour les trois pressions initiales étudiées, et pour une même composition initiale du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air. ....	131
Tableau 13 – Coefficients caractérisant la corrélation de Jaimes et al. [119] pour différents rapports H <sub>2</sub> /CO. ....	131
Tableau 14 – Comparaison des valeurs déterminées expérimentalement au cours de ce travail avec les valeurs trouvées dans la littérature en fonction de la pression initiale. ....	132
Tableau 15 – Comparaison des pressions maximales et des temps nécessaires pour les atteindre pour les deux températures initiales étudiées, et pour une même composition initiale du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air. ....	135
Tableau 16 – Comparaison des valeurs déterminées expérimentalement au cours de ce travail avec les valeurs trouvées dans la littérature en fonction de la température initiale. ....	141
Tableau 17 – Comparaison des pressions maximales et des temps nécessaires pour les atteindre pour les deux rapports d'oxygène sur azote étudiés, et pour une même composition initiale du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air. ....	145
Tableau 18 – Comparaison des valeurs déterminées expérimentalement au cours de ce travail avec les valeurs trouvées dans la littérature en fonction de l'appauvrissement en oxygène de l'atmosphère. ....	149
Tableau 19 – Comparaison des pressions maximales et des temps nécessaires pour les atteindre pour les trois teneurs en CO <sub>2</sub> étudiées dans le mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air/CO <sub>2</sub> . ....	152
Tableau 20 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude de l'influence de la composition initiale sur la propagation d'une flamme proche de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air pour des conditions thermodynamiques initiales « standards ». ....	164
Tableau 21 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux séries d'essais, pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 1). ....	172
Tableau 22 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux séries d'essais, pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 2). ....	172
Tableau 23 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux séries d'essais, pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 3). ....	172
Tableau 24 – Comparaison des valeurs de P <sub>max</sub> et v <sub>max</sub> pour les deux séries d'essais correspondant aux deux compositions initiales du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air différentes. ....	173
Tableau 25 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les mélanges H <sub>2</sub> /Air, CO/Air et {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air, pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 1). ....	174
Tableau 26 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les mélanges H <sub>2</sub> /Air, CO/Air et {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air, pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 2). ....	174
Tableau 27 – Comparaison des valeurs de ΔP <sub>max</sub> et t <sub>ΔPmax</sub> pour le Test 1 et pour le Test 2. ....	180
Tableau 28 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude de l'influence de la pression initiale sur la propagation d'une flamme proche de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air pour les trois pressions initiales étudiées, et pour une température initiale de 298 K. ....	181
Tableau 29 – Comparaison des valeurs de P <sub>max</sub> et v <sub>max</sub> pour les trois séries d'essais correspondant aux trois pressions initiales du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air étudiées. ....	184
Tableau 30 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les trois pressions initiales étudiées pour une température initiale de 298 K (Partie 1). ....	185
Tableau 31 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les trois pressions initiales étudiées pour une température initiale de 298 K (Partie 2). ....	185
Tableau 32 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les trois pressions initiales étudiées pour une température initiale de 298 K (Partie 3). ....	185
Tableau 33 – Comparaison des valeurs de ΔP <sub>max</sub> et t <sub>ΔPmax</sub> pour les trois pressions initiales du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air étudiées. ....	187
Tableau 34 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude de l'influence de la température initiale sur la propagation d'une flamme proche de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air pour les deux températures initiales étudiées, et pour une pression initiale de 1 bar. ....	188

Tableau 35 – Comparaison des valeurs de $P_{max}$ et $v_{max}$ pour les deux séries d'essais correspondant aux deux températures initiales du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air étudiées. ....	191
Tableau 36 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour une pression initiale de 1 bar (Partie 1). ....	191
Tableau 37 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour une pression initiale de 1 bar (Partie 2). ....	191
Tableau 38 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour une pression initiale de 1 bar (Partie 3). ....	191
Tableau 39 – Comparaison des valeurs de $\Delta P_{max}$ et $t_{\Delta P_{max}}$ pour les deux températures initiales du mélange étudiées. ....	193
Tableau 40 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude de l'influence de la température initiale sur la propagation d'une flamme proche de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air pour les deux températures initiales étudiées, et pour les 3 pressions initiales fixées. ....	194
Tableau 41 – Comparatif de la distance parcourue par le front de flamme pour un mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air pour un temps fixé en fonction de la pression et de la température initiales. ....	197
Tableau 42 – Comparaison des valeurs de $P_{max}$ et $v_{max}$ pour les six séries d'essais correspondant aux deux températures initiales, et ce pour les trois pressions initiales du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air étudiées. ....	201
Tableau 43 – Comparaison conjointe des valeurs de $v_{max}$ en fonction de la pression initiale et de la température initiale. ....	201
Tableau 44 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour les trois pressions initiales fixées (Partie 1). ....	202
Tableau 45 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour les trois pressions initiales fixées (Partie 2). ....	203
Tableau 46 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour les trois pressions initiales fixées (Partie 3). ....	203
Tableau 47 – Comparaison conjointe des valeurs de $\Delta P_{max}$ en fonction de la pression initiale et de la température initiale. ....	206
Tableau 48 – Comparaison conjointe des valeurs de $t_{\Delta P_{max}}$ en fonction de la pression initiale et de la température initiale. ....	207
Tableau 49 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air/CO <sub>2</sub> stœchiométrique proche de la limite d'inertage en CO <sub>2</sub> , pour des conditions thermodynamiques « standards ». ....	214
Tableau 50 – Valeurs de $P_{max}$ et $v_{max}$ pour le mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air/CO <sub>2</sub> étudié à des conditions thermodynamiques « standards ». ....	216
Tableau 51 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour le mélange correspondant aux mélanges avec et sans diluant pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 1). ....	216
Tableau 52 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour le mélange correspondant aux mélanges avec et sans diluant pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 2). ....	216
Tableau 53 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour le mélange correspondant aux mélanges avec et sans diluant pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 3). ....	216
Tableau 54 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude de l'influence de la température initiale sur la propagation d'une flamme proche de la limite d'inertage en CO <sub>2</sub> du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air/CO <sub>2</sub> pour les deux températures initiales étudiées, et pour une pression initiale de 1 bar. ....	219
Tableau 55 – Comparaison des valeurs de $P_{max}$ et $v_{max}$ pour les deux séries d'essais correspondant aux deux températures initiales du mélange étudiées. ....	222
Tableau 56 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées 298 K et 363 K (Partie 1). ....	222
Tableau 57 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées 298 K et 363 K (Partie 2). ....	222
Tableau 58 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées 298 K et 363 K (Partie 3). ....	223
Tableau 59 – Comparaison des valeurs de $\Delta P_{max}$ et $t_{\Delta P_{max}}$ pour les deux températures initiales du mélange {50% H <sub>2</sub> +50% CO}/Air/CO <sub>2</sub> étudiées. ....	224
Tableau 60 – LII du mélange H <sub>2</sub> /CO/Air avec une dilution à l'azote pour plusieurs teneurs en H <sub>2</sub> et à différentes températures [132]. Ces valeurs sont valables pour une pression atmosphérique. NaN : la LII n'a pas été trouvée pour ces conditions données. ....	238
Tableau 61 – LIS du mélange H <sub>2</sub> /CO/Air avec une dilution à l'azote pour plusieurs teneurs en H <sub>2</sub> et à différentes températures [132]. Ces valeurs sont valables pour une pression atmosphérique. ....	238
Tableau 62 – Limite en oxygène (LOC) calculée numériquement et déterminée expérimentalement, et limite en air (LAC) du mélange H <sub>2</sub> /CO/Air avec une dilution à l'azote pour plusieurs teneurs en H <sub>2</sub> et à différentes températures [132]. Ces valeurs sont valables pour une pression atmosphérique. ....	238

## Introduction



Cette étude porte sur la propagation d'une flamme dans une atmosphère gazeuse représentative de la phase tardive d'un accident grave dans un Réacteur à Eau Pressurisée (REP). La France possède aujourd'hui 58 réacteurs nucléaires qui permettent de combler trois quarts de l'électricité nécessaire au bon fonctionnement de la vie quotidienne de ses 67 millions d'habitants. Ce secteur énergétique a été introduit en France en 1950 avec l'arrivée des premiers réacteurs nucléaires. Cependant, ce n'est que jusque dans les années 1970, avec le choc pétrolier, que le président Valéry Giscard-d'Estaing décide de mettre en place le plan Messmer (consistant en la construction de 3 réacteurs nucléaires par an) dans le but de faire du nucléaire la source énergétique principale de la France. Parmi ces réacteurs nucléaires se trouvent les Réacteurs à Eau Pressurisée, ou REP, qui font l'objet de cette étude, et qui représentent la majorité sur le territoire français à l'heure actuelle. Il s'agit de réacteurs nucléaires de dernière génération conçus par la multinationale française du secteur de l'énergie Orano (ex-Areva) dans les années 2000 dans le but d'augmenter la sûreté de ces installations et la rentabilité de cette source d'énergie [1]. Cependant, cette source d'énergie n'est pas à l'abri d'incidents de toute sorte qui peuvent avoir des conséquences majeures sur la sécurité des populations, et sur l'environnement. La gravité des accidents nucléaires est classée dans ce que l'on appelle l'échelle INES (échelle internationale des événements nucléaires ou « International Nuclear Event Scale »). Il y a 8 niveaux numérotés de 0 à 7 (0 : écart ; 1-3 : incident nucléaire ; 4-7 : accident nucléaire). Les deux plus graves étant les accidents nucléaires graves (classés 6) et les accidents nucléaires majeurs (classés 7, il y en a eu 2 dans l'histoire : la catastrophe de Tchernobyl et l'accident nucléaire de Fukushima) [2]. La Figure 1 illustre une représentation graphique de l'échelle INES. Dans le cadre de ce travail, ce sont les accidents graves et majeurs, classés 6 et 7 sur l'échelle INES, plus précisément la phase tardive de ceux-ci, qui feront l'objet de l'étude.

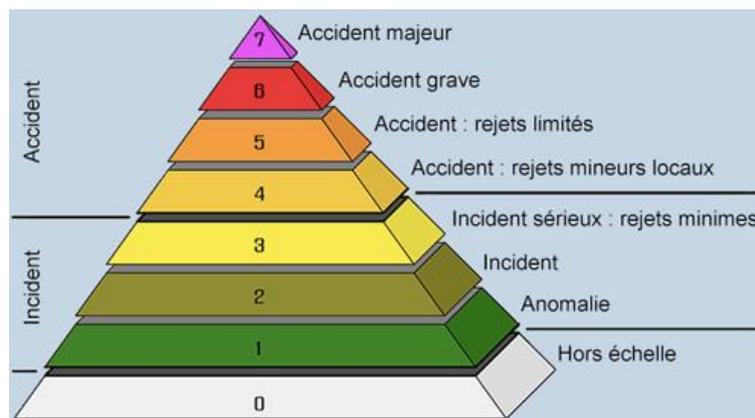


Figure 1 – Échelle INES (« International Nuclear Event Scale ») [3].

La différence principale entre un incident nucléaire et un accident nucléaire, mise à part la gravité de l'évènement, est l'état du cœur du réacteur. En effet, lors d'un accident nucléaire, le cœur du réacteur est plus ou moins fondu, alors que lors d'un incident, la fusion du cœur du réacteur n'a pas lieu. Cette défaillance arrive à la suite de plusieurs dysfonctionnements consécutifs, d'origines diverses et variées. La probabilité de survenue d'un accident nucléaire est donc très faible, et est de l'ordre de  $10^{-5}$  par réacteur nucléaire et par an [4]. Il est donc intéressant de se pencher plus en détail sur les composants principaux d'un REP et plus précisément sur le cœur du réacteur. Deux types de REP peuvent donc être distingués, les réacteurs à 900 MWe (au nombre de 32 en France), et les réacteurs à 1300 MWe et à 1450 MWe (au nombre de 20 et de 4 respectivement en France) [5]. La Figure 2 présente deux schémas explicatifs, le premier des principaux composants d'un REP (cf. Figure 2 (a)), et le deuxième du cœur du réacteur (cf. Figure 2 (b)).

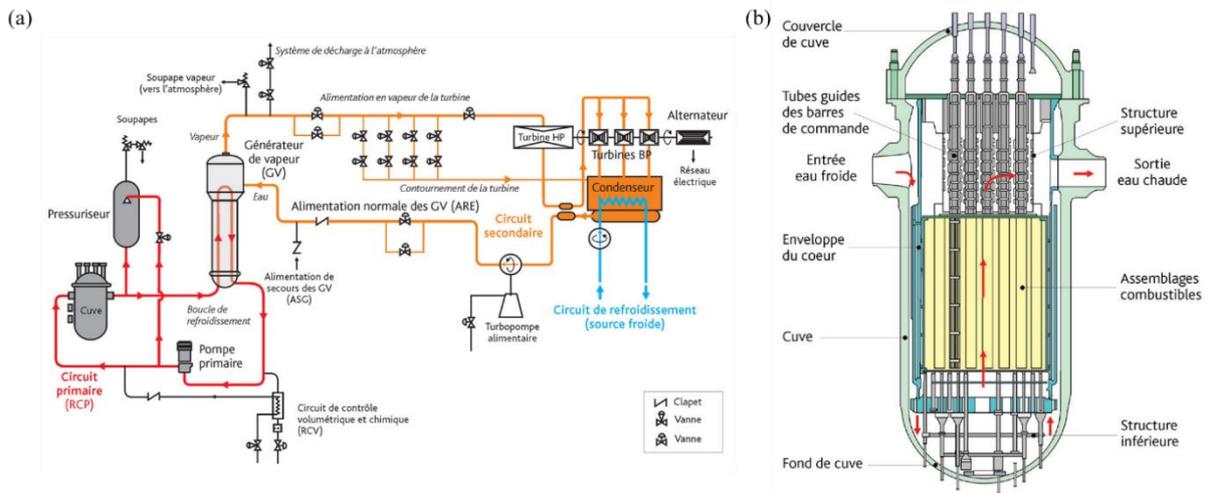


Figure 2 – Schémas descriptifs des différents composants d'un REP. (a) : Principaux composants du circuit primaire et des circuits secondaires d'un réacteur nucléaire. (b) : Cuve d'un réacteur nucléaire de 900 MWe [6].

Lors d'un accident nucléaire, le premier phénomène physique qui a lieu avant la fusion du cœur, est le dénoyage du cœur du réacteur. En effet, lors des différents dysfonctionnements qui peuvent avoir lieu, il se peut qu'il n'y ait plus d'eau pour refroidir l'assemblage combustible, c'est ce que l'on appelle le « dénoyage du cœur ». Cependant, le dénoyage du cœur ne mène pas systématiquement à la percée de la cuve et donc à la perte de confinement, comme cela a été le cas lors de l'accident de Three Mile Island par exemple [7]. En effet, cela n'arrive que dans le cas où le débit de réinjection d'eau dans la cuve n'est plus suffisant pour refroidir le cœur du réacteur. Lors de l'arrêt des réactions en chaîne qui ont lieu au cours du fonctionnement du réacteur, les produits de fission radioactifs continuent de libérer de l'énergie sous forme de chaleur, c'est ce que l'on appelle « puissance résiduelle ». Elle représente environ 1,5% de la puissance de fonctionnement du réacteur (900, 1300 ou 1450 MWe) [7]. Cette puissance résiduelle est responsable de la montée en température du cœur dénoyé. Le combustible du cœur du réacteur se trouve sous forme de pastilles, composées par des gaz neutres, ainsi que des gaz rares générés par les réactions nucléaires, contenues dans les crayons de combustible. Ceux-ci sont recouverts par des gaines en zircaloy (groupe d'alliages de zirconium). Lors du dénoyage du cœur du réacteur, il y a une production de vapeur d'eau qui a lieu, ce qui génère une augmentation de la pression à l'intérieur de la cuve. Deux cas de figure se présentent alors : soit la pression à l'intérieur de la cuve est inférieure à la pression des gaz à l'intérieur des crayons de combustible, soit elle est supérieure. Dans le premier cas, comme la pression à l'intérieur des crayons de combustible est supérieure à la pression dans la cuve, ces derniers augmentent de volume jusqu'à exploser. Dans le deuxième cas, comme la pression à l'intérieur des crayons de combustible est inférieure à la pression dans la cuve, la gaine en zircaloy se voit écrasée contre les pastilles de combustible, générant ainsi du  $\text{UO}_2\text{-Zr}$ . Dans les deux cas cités ci-dessus, les produits de fission finissent par être relâchés dans le circuit primaire, et dans le cas des réacteurs à 900 MWe, la masse de ceux-ci peut atteindre jusqu'à 1500 kg. Dans le cas particulier où la pression à l'intérieur de la cuve dépasse les 20 bars au moment où celle-ci est percée, on parle d'accident de fusion « en pression » [4].

Le deuxième phénomène physique qui a lieu lors d'un accident nucléaire arrive lorsque la vapeur d'eau rentre en contact avec le zirconium des gaines des crayons de combustible, ce dernier s'oxyde, laissant place à une libération non négligeable d'hydrogène dans le circuit primaire. Cet hydrogène peut conduire à une déflagration, qui dans certains cas peut transiter vers la détonation. Ceci est dû principalement à la stratification de l'hydrogène au sein du réacteur. En effet, lors de cette stratification, des poches très concentrées en hydrogène et en monoxyde de carbone se forment, favorisant ainsi la combustion, les accélérations de flamme, et in fine, les transitions de la déflagration vers la détonation. C'est ce que l'on appelle le « risque hydrogène ». Dans le but de réduire les risques

liés à l'hydrogène, permettant de réduire la concentration de celui-ci dans l'atmosphère, plusieurs méthodes peuvent être mises en place. Entre lesquelles se trouvent, l'allumage délibéré de l'hydrogène, l'utilisation de recombineurs autocatalytiques passifs (PAR), le remplacement d'oxygène par un gaz inerte, entre autres. Pour les réacteurs trouvés en France, le critère consiste à maintenir une teneur moyenne de 8% d'hydrogène dans le but d'éviter une combustion complète, et une teneur locale de 10% d'hydrogène dans le but d'éviter les accélérations de flamme [8]. La mise en place de recombineurs autocatalytiques (PAR) est largement répandue parmi les REP modernes. Il est possible de décrire la production d'hydrogène lors d'un accident grave dans un REP en 3 phases distinctes. La première phase, la plus importante, est la phase de dégradation du cœur du réacteur dans la cuve, décrite précédemment. En effet, la surface de zirconium métallique est importante, et les variations de température sont amplifiées par la réaction exothermique. La deuxième phase est la phase de relocalisation à l'intérieur de la cuve. Elle dépend de plusieurs paramètres, tels que le mode de défaillance de la tête inférieure, de la quantité d'eau présente dans celle-ci, et de la plaque inférieure de support. Finalement la dernière phase est la phase de production d'hydrogène suite à l'interaction du noyau fondu avec le béton [9].

Le troisième phénomène physique qui a lieu est la création du « corium ». Le corium est un mélange fondu de matériaux combustibles, de gaine en zircaloy partiellement ou totalement oxydée, de produits de fission non volatils et de divers matériaux de structure. Les principaux constituants du corium en cuve sont  $\text{UO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ , Zr et l'acier. À titre d'exemple, lors d'un accident dans un REP-900 MWe, la quantité totale de corium relâchée dans la cuve est d'approximativement 150 Tonnes [10]. Le corium qui est produit s'accumule au niveau du fond de la cuve. Deux phénomènes vont donc avoir lieu. Dans un premier temps, lorsqu'il y a de l'eau au fond de la cuve, celle-ci s'évapore au contact du corium du fait de sa très haute température. La génération de vapeur d'eau peut produire des explosions de vapeur. Les explosions de vapeur sont à l'origine d'une partie non négligeable des pertes de confinement de la cuve qui contient le cœur du réacteur. Dans un deuxième temps, lorsque le corium atteint le fond de la cuve, il entre en contact avec le béton qui compose le radier. Ce phénomène s'appelle « interaction corium-béton » [11]. Lors de l'interaction entre le corium et le béton, des composés gazeux de CO et de  $\text{CO}_2$  sont formés par la décomposition des carbonates présents dans le béton, et l'oxydation des métaux présents dans le corium. Cette interaction se fait généralement en deux étapes distinctes : une phase à court terme et une phase à long terme. La première phase a une durée d'une quinzaine de minutes à partir du moment où la cuve est percée. Pendant cette phase, la production de gaz inflammables ( $\text{H}_2$  et CO) est principalement due à l'oxydation du zircaloy et des métaux, présents dans le corium. Ces réactions étant fortement exothermiques, la vitesse d'érosion du radier est maximale (de l'ordre de 1 m/h) et les gaz sont libérés à grande vitesse. La deuxième phase a lieu jusqu'à la pénétration complète du radier. Pendant cette phase, des gaz inflammables, provenant de l'oxydation du fer issu du corium initial et de l'armature dans le béton, sont relâchés. La vitesse d'érosion du radier est faible (de l'ordre de quelques cm par heure) et les gaz sont libérés à une vitesse moindre que lors de la phase précédente. Le béton trouvé dans les REP peut être composé de silice ou de sable calcaire commun en fonction des sites, et de la puissance du réacteur. L'interaction corium-béton a une durée totale qui varie entre 3,5 et 4,5 jours. De même, la quantité totale de gaz libérée dans l'enceinte dépend de la composition du béton. Lors de la première phase, dite à court terme, la teneur en  $\text{H}_2/\text{CO}$  augmente, et le rapport entre ces gaz inflammables et les diluants ( $\text{H}_2\text{O}$  et  $\text{CO}_2$ ) varie entre 2,5 et 5. Cependant, plus le béton contient de calcium, moins ce dernier rapport est élevé, et plus la quantité de gaz inflammables émis augmente (le nombre de moles de combustible est doublé et le nombre de moles de diluants est quadruplé). Lors de la deuxième phase, dite à long terme, le rapport entre les gaz inflammables et les diluants ( $\text{H}_2\text{O}$  et  $\text{CO}_2$ ) devient constant et égal à 0,2 pour les deux types de bétons cités précédemment. Lors de cette phase, la quantité de diluants ajoutée est supérieure à la quantité de matériaux combustibles ajoutée, et globalement la concentration de matériaux combustibles dans l'enceinte de confinement diminue. Cependant, en fonction de la composition du radier, les teneurs sont différentes : un béton composé de sable calcaire commun produit 2,5 fois plus de gaz inflammables qu'un béton composé de silice. Néanmoins, la période d'interaction corium-béton n'est augmentée que d'un tiers du temps [12].



## Contexte de l'étude



Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre du projet européen AMHYCO (« Towards an Enhanced Accident Management of the Hydrogen/CO Combustion Risk ») [13, 14]. Ce projet est porté par 12 partenaires, dont 6 académiques (l'université polytechnique de Madrid (UPM), le CIEMAT, le CNRS, l'université de la Ruhr à Bochum (RUB), le Jožef Stefan Institute (JSI), et le Canadian Nuclear Laboratories (CNL)), 2 institutionnels (l'IRSN et l'institut de recherche allemand Jülich), et 4 industriels (Framatome GMBH, Energorisk Ltd, NRG, et LGI Sustainable Innovation). Ce projet a trois objectifs majeurs : l'investigation expérimentale de phénomènes qui restent encore très complexes pour la modélisation théorique, l'amélioration de la prévision des outils numériques utilisés pour évaluer les risques d'explosion à l'intérieur de l'enceinte de confinement du réacteur, et l'amélioration des préconisations pour la gestion des accidents graves dans les REP. Un focus particulier a été donné aux accidents LOCA (Loss-of-coolant accident). Ce type d'accident est un mode de défaillance d'un réacteur nucléaire, où en cas de gestion inefficace, peut résulter en l'endommagement du cœur du réacteur et donc en un accident grave. Donc, comprendre ce mode de défaillance est indispensable dans l'étude des accidents graves dans les REP, et surtout dans leur prévention pour réduire au maximum les dégâts et les conséquences irréversibles. L'accident de Fukushima Daiichi (2011) correspond à un accident de type LOCA. La perte de refroidissement du cœur du réacteur a entraîné trois explosions d'hydrogène et le rejet de contaminations radioactives. Les explosions d'hydrogène peuvent être directement attribuées à l'oxydation du zirconium par la vapeur dans les gaines de combustible à la suite de la perte de refroidissement.

Lors des premiers instants de l'accident grave, des quantités non négligeables d'hydrogène et de monoxyde de carbone sont rejetées, que ce soit par la décomposition des gaines de zirconium ou par l'interaction Corium-Béton. Différentes phases se distinguent en fonction du stade de développement de l'accident, se terminant par la phase tardive. Cette étude se place dans le cadre de la phase tardive de l'accident, qui donne lieu à différentes conditions initiales de pression et de température dans l'enceinte de confinement. Cette thèse expérimentale se concentre sur deux objectifs majeurs :

- L'étude du domaine d'inflammabilité du mélange  $H_2/CO/Air$ , en particulier l'influence de plusieurs paramètres initiaux : pression, température, appauvrissement en oxygène de l'atmosphère. Les paramètres initiaux sont choisis de telle sorte à représenter différentes étapes du déroulement de la phase tardive d'un l'accident grave dans un REP. De plus, la détermination de la limite d'inertage en  $CO_2$  du mélange  $H_2/CO/Air$  stœchiométrique a également été étudiée, apportant ainsi des données expérimentales jusqu'à présent manquantes dans la littérature. En effet, des simulations numériques réalisées à l'IRSN mettent en exergue la présence non négligeable de  $CO_2$  dans l'atmosphère de l'enceinte de confinement lors de la phase tardive de l'accident. Cette partie de l'étude a été réalisée dans une bombe sphérique de 8 litres.
- L'étude de l'accélération des flammes  $H_2/CO/Air$  proches des limites d'inflammabilité et de la limite d'inertage en  $CO_2$  pour plusieurs conditions initiales de pression et de température. En effet, actuellement tous les codes de calcul de l'IRSN prennent comme valeur limite pour l'accélération des flammes dans une enceinte de confinement les valeurs de la limite d'inflammabilité inférieure. Cette étude expérimentale a consisté à caractériser les accélérations de flamme en termes de vitesse et de pression, pour des mélanges dont la teneur est au-dessus de ces limites d'inflammabilité (sans dépasser la limite de sévérité). Cette partie de l'étude est menée dans l'enceinte d'accélération de flamme ENACCEF-II. Cette enceinte a été construite dans le cadre du projet MITHYGENE [15] dans le but de reproduire l'intérieur d'une enceinte de confinement.

Mes travaux de thèse constituent la suite des travaux réalisés précédemment au laboratoire en collaboration avec l'IRSN. Ces études se sont concentrées sur la phase initiale, ainsi que la phase de développement de l'accident grave. La caractérisation de ces phases a été réalisée en étudiant plusieurs conditions initiales de mélange, de température, de pression, et de turbulence. Un récapitulatif des

différentes études menées au sein du laboratoire concernant les accidents graves dans les REP est donné par :

- Cheikhravat [16], a étudié expérimentalement la combustion d'hydrogène dans une atmosphère inflammable en présence de gouttes d'eau. Pour cela, il a étudié dans un premier temps l'influence de l'aspersion de vapeur d'eau sur le comportement d'une flamme H<sub>2</sub>/Air. Puis, il s'est concentré sur l'influence d'un gradient de concentration en hydrogène sur l'accélération de ces flammes, avant d'étudier l'impact des gouttes d'eau sur une flamme accélérée. Cette étude a été menée dans deux installations : la bombe sphérique de 56 litres et ENACCEF-I. Ces installations ont permis de déterminer les limites d'inflammabilité de ces mélanges contenant de la vapeur d'eau en fonction de la pression et de la température.
- Coudoro [17], a étudié expérimentalement la propagation d'une flamme en milieu confiné ou semi-confiné. L'objectif de son étude était d'établir une base de données expérimentales concernant les mélanges gaz naturel/air et syngas/air, puis d'étendre la méthodologie appliquée aux mélanges hydrogène/air à ces mélanges. Trois mélanges gazeux ont été sélectionnés : (82% CH<sub>4</sub>/18% N<sub>2</sub>), (77% CH<sub>4</sub>/23% H<sub>2</sub>), et (50% H<sub>2</sub>/50% CO). Les limites d'inflammabilité de ces mélanges ont été déterminées pour une température initiale de 300 K et des pressions initiales de 1 et 2 bars. De plus, les vitesses fondamentales de flamme et les longueurs de Markstein ont été mesurées à différentes températures initiales (300, 330 et 360 K) et à deux pressions initiales (1 et 2 bars) pour chacun des mélanges. L'étude de Coudoro [17] a permis de mettre en évidence que différents critères d'accélération s'appliquent selon que la flamme soit stable ou non. Un critère permettant de prédire l'accélération de la flamme a été proposé dans les deux cas.
- Goulier [18], a étudié le comportement aux limites des flammes de prémélange H<sub>2</sub>/Air, en se concentrant particulièrement sur la transition entre une flamme laminaire et une flamme turbulente. L'objectif était d'établir une base de données expérimentales permettant de prédire la vitesse de propagation de la flamme en fonction de deux ensembles de paramètres : d'une part, ceux caractérisant la combustion, et d'autre part, ceux caractérisant l'écoulement turbulent. Cette étude a porté sur deux aspects principaux : (I) la phase initiale d'accélération de la flamme, et (II) la modification de la vitesse de propagation de la flamme en présence d'une turbulence initiale contrôlée, qui était homogène et isotrope. Pour mener à bien cette recherche, une bombe sphérique a été utilisée afin de générer une flamme sphérique de grand diamètre en présence d'une turbulence contrôlée, homogène et isotrope.
- Grosseuvres [19], a étudié les propagations de flammes H<sub>2</sub>/Air/H<sub>2</sub>O<sub>vap</sub> en milieu confiné dans le but d'identifier les situations critiques. L'objectif était d'établir un critère d'accélération de flamme permettant de déterminer à l'avance si une flamme hydrogène-air-vapeur d'eau peut être fortement accélérée en se basant sur les propriétés thermodynamiques du mélange réactif initial. Pour ce faire, différents dispositifs expérimentaux ont été utilisés, incluant la détermination de vitesses de flamme laminaire à différentes températures initiales, différents taux d'appauvrissement en oxygène et différents taux de dilution par la vapeur d'eau à l'aide de deux bombes sphériques. La propagation de flammes en milieu confiné a été étudiée avec l'enceinte d'accélération de flamme (ENACCEF-II) afin d'identifier les conditions dans lesquelles une flamme fortement accélérée a été obtenue.

- Caruso [20], a étudié la propagation d'une flamme  $H_2/Air/H_2O_{vap}$  en présence de gouttelettes d'eau. Pour cela, il a caractérisé la propagation ascendante et descendante de ces flammes dans une enceinte d'accélération de flamme verticale ENACCEF-I (volume interne 720 litres), avec différents mélanges hydrogène/air choisis de telle sorte à être représentatifs de différents régimes de combustion.

Ce travail constitue la première étude concernant la phase tardive d'un accident grave dans un REP réalisée au laboratoire. Il s'articule autour de quatre chapitres. Le premier est consacré à une revue détaillée de l'état de l'art concernant les flammes de prémélange, les limites d'inflammabilité et les propagations de flammes dans des tubes lisses et encombrés d'obstacles. Le deuxième chapitre décrit les deux dispositifs expérimentaux utilisés lors de ce travail : une bombe sphérique et une enceinte d'accélération de flamme. Le troisième chapitre se concentre sur les résultats expérimentaux, réalisés dans une bombe sphérique, concernant l'influence de plusieurs paramètres initiaux (pression, température, appauvrissement en oxygène de l'atmosphère) sur les limites d'inflammabilité des mélanges  $H_2/CO/Air$ , ainsi que sur la détermination de la limite d'inertage en  $CO_2$  de ces mêmes mélanges. Finalement, le dernier chapitre traite de l'étude de la propagation de flammes proches des limites d'inflammabilité, ainsi que de la limite d'inertage en  $CO_2$ , des mélanges  $H_2/CO/Air$  dans un tube encombré d'obstacles représentant les mêmes conditions que dans un REP. Une conclusion générale, ainsi que des perspectives sur la suite des travaux, seront données en dernière instance de ce manuscrit.



## Chapitre 1

### État de l'art



Au cours de ce premier chapitre, une revue de l'état actuel des connaissances concernant les différentes notions physiques utilisées dans les diverses campagnes expérimentales sera faite. Cette revue se déroulera en trois grandes parties avant de dresser une conclusion générale sur l'état actuel des connaissances. Tout d'abord, les propriétés fondamentales des flammes de prémélange seront détaillées. Ensuite, il sera abordé les différents régimes de propagation de flamme. Enfin, la propagation des déflagrations en milieux confinés sera étudiée. En conclusion, un bilan de l'état actuel des connaissances, en mettant en lumière les lacunes éventuelles dans la littérature existante, sera dressé.

## 1. Propriétés fondamentales des flammes de prémélange

La première partie se concentre sur les propriétés fondamentales des flammes de prémélange. Après une description détaillée des flammes laminaires de prémélange, une revue des domaines d'inflammabilité est proposée, avec un accent particulier sur les méthodes d'allumage et sur l'influence de la géométrie de l'enceinte expérimentale. Les paramètres fondamentaux des flammes de prémélange sous différents aspects théoriques comme par exemple la vitesse de flamme laminaire est présentée dans la dernière partie de ce volet. Un intérêt particulier est porté sur le mélange étudié :  $H_2/CO/Air$ .

### 1.1. Flammes laminaires de prémélange

Une flamme est le lieu d'une réaction de combustion entre un combustible et un oxydant, dont l'épaisseur est relativement faible. En effet, l'existence d'une flamme dépend de la réunion de trois éléments (« triangle du feu ») en quantité suffisante : le combustible, l'oxydant, et l'énergie d'activation. Il existe deux types de flammes : les flammes de diffusion et les flammes de prémélange. La différence principale entre ces deux types de flammes est l'état initial. En effet, tandis que dans une flamme de diffusion, le combustible et le comburant sont séparés et doivent être mis en contact dans le but de pouvoir réagir. Dans une flamme de prémélange, le combustible et l'oxydant sont initialement prémélangés et peuvent donc réagir dans une zone de faible épaisseur, appelée front de flamme, où les réactions chimiques d'oxydation du combustible ont lieu [21]. Le front de flamme est une surface qui sépare les gaz frais des gaz brûlés. Les flammes de prémélange sont structurées en trois zones. La zone de préchauffage, où se trouvent les gaz frais qui sont chauffés à une certaine température (température d'allumage). La zone de réaction qui correspond au front de flamme, c'est donc la partie de la flamme qui peut être visualisée. Et finalement, la zone de post-flamme se trouvant à une très haute température et où les radicaux restants se recombinent. Le front de flamme, d'une épaisseur  $\delta_l$ , se déplace, des gaz brûlés vers les gaz frais, à une vitesse fondamentale de flamme  $S_l^0$ , grandeurs qui seront définies plus en détail postérieurement. La Figure 3 présente la structure d'une flamme laminaire de prémélange.

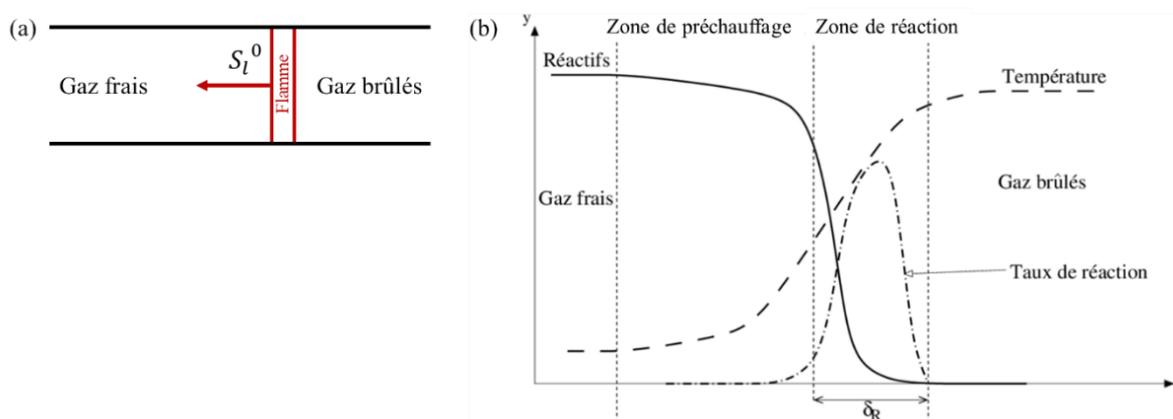


Figure 3 – Flamme laminaire de prémélange. (a) : Propagation d'une flamme laminaire de prémélange. (b) : Structure d'une flamme laminaire de prémélange [22].

Ces flammes laminaires de prémélange sont caractérisées par quelques propriétés de la réaction de combustion, telles que l'équation de réaction, son taux d'avancement, sa vitesse, ainsi que la richesse du mélange.

- Équation de la réaction :

L'équation de la réaction de la combustion est donnée par :



Avec, R les réactifs (composés d'un combustible et d'un oxydant), P les produits, et Q le dégagement de chaleur. Les réactifs sont de la forme :  $x_F * F + x_O * O$ , avec F le combustible, O l'oxydant, et  $x_F$  et  $x_O$  les coefficients stœchiométriques des réactifs. Les produits sont de la forme :  $x_P * P$ , avec P les produits, et  $x_P$  le coefficient stœchiométrique des produits.

- Richesse du mélange :

La richesse d'un mélange indique la quantité d'oxydant présent dans le mélange par rapport à la quantité de combustible. Elle est notée  $\Phi$  et est donnée par :

$$\Phi = s * \frac{Y_F}{Y_O} \quad (2)$$

Avec,  $\Phi$  la richesse du mélange,  $Y_F$  et  $Y_O$  les fractions massiques du combustible et de l'oxydant à l'état initial (gaz frais), et s le rapport stœchiométrique de la réaction, donné par :

$$s = \frac{x_O * M_O}{x_F * M_F}$$

Avec,  $x_F$  et  $x_O$  les coefficients stœchiométriques des réactifs, et  $M_F$  et  $M_O$  les masses molaires des réactifs (en  $\text{g.mol}^{-1}$ ) [23]. Si  $\Phi < 1$ , le mélange est pauvre. Dans ce cas la quantité de fuel dans le mélange est moins importante que la quantité d'oxydant. Si  $\Phi = 1$ , le mélange est stœchiométrique. Il s'agit du mélange « idéal » dans lequel tous les réactifs sont consommés à l'état final de la réaction. Si  $\Phi > 1$ , le mélange est riche.

- Taux d'avancement de la réaction :

L'avancement de la réaction, noté  $\xi$ , permet de quantifier l'évolution de la réaction dès son état initial (EI donné pour un avancement de  $\xi = 0$ ) jusqu'à son état final (EF donné pour un avancement maximal noté  $\xi_{max}$ ). L'état qui se trouve entre l'état initial et l'état final est appelé état intermédiaire. L'avancement de la réaction est donné par :

$$\xi = \frac{\Delta n_1}{x_1} = \frac{\Delta n_2}{x_2} = \dots = \frac{\Delta n_i}{x_i}$$

Avec,  $x_1, x_2, \dots, x_i$  les coefficients stœchiométriques des i constituants du mélange, et  $\Delta n_1, \Delta n_2, \dots, \Delta n_i$  l'évolution des quantités des i constituants données par  $\Delta n_k = n_k - n_k^0$ , avec  $n_k$  le nombre de moles du constituant k dans le mélange à l'état intermédiaire (en mol), et  $n_k^0$  le nombre de moles du constituant k dans le mélange à l'état initial (en mol).

Le taux d'avancement de la réaction, noté  $\alpha_\xi$ , peut donc être défini. Ce taux donne le rapport entre l'avancement de la réaction à l'état intermédiaire et l'avancement de la réaction à l'état final (avancement maximal). Il est donné par :

$$\alpha_\xi = \frac{\xi}{\xi_{max}} \quad (3)$$

Avec,  $\xi$  l'avancement de la réaction à l'état intermédiaire (en mol), et  $\xi_{max}$  l'état d'avancement maximal de la réaction à l'état final (en mol).

- Vitesse de la réaction :

La vitesse spécifique de la réaction, notée  $v_k$ , est obtenue à partir de la loi d'Arrhenius (pour déterminer la constante de vitesse) et d'un produit des concentrations molaires des réactifs élevées à la puissance de leur coefficient stœchiométrique. Elle est donnée par :

$$v_k = k * \prod c_i^{n_i} \quad (4)$$

Avec,  $v_k$  la vitesse spécifique de la réaction,  $c_i$  la concentration molaire du  $i^{\text{ème}}$  élément de la réaction,  $n_i$  un coefficient de pondération de la concentration. La constante de vitesse de la réaction  $k$  est définie comme suit :

$$k = A * T^s e^{\frac{-E_a}{RT}} \quad (5)$$

Avec,  $k$  la constante de vitesse de la réaction,  $A$  un facteur pré-exponentiel,  $T$  la température (en K),  $s$  le coefficient de pondération de température,  $R$  la constante des gaz parfaits ( $R = 8,314 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ), et  $E_a$  l'énergie d'activation de la réaction (en  $\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$ ) [24].

## 1.2. Domaine d'inflammabilité

Un mélange gazeux constitué d'un combustible et d'un comburant intimement mélangés ne peut être le siège d'une inflammation suivie d'une propagation de flamme autoentretenu que dans un domaine d'inflammabilité donné en termes de composition initiale. Ainsi, conventionnellement, deux limites d'inflammabilité qui délimitent ce domaine sont définies [25] :

- La limite d'inflammabilité inférieure, notée LII, représente la teneur minimale en combustible en dessous de laquelle aucune inflammation suivie d'une propagation de flamme ne peut être obtenue.
- La limite d'inflammabilité supérieure, notée LIS, correspond à la teneur maximale au-delà de laquelle aucune inflammation ni propagation de flamme ne peut être obtenue.

Le domaine d'inflammabilité dépend de plusieurs paramètres, comme les conditions thermodynamiques initiales (pression et température), l'énergie minimale d'inflammation (EMI), la géométrie de l'enceinte (l'enceinte doit être suffisamment grande pour qu'il n'y ait pas d'effet de coincement sur la flamme), du système d'allumage, la présence éventuelle de diluants dans le milieu, la richesse du mélange, entre autres. L'influence de ces différents paramètres sera abordée par la suite.

Le domaine, ou l'enveloppe, d'inflammabilité d'un mélange, en fonction du taux de dilution dans le mélange initial peut être représenté dans un diagramme ternaire, ou diagramme de Shapiro [26] dans le cas des mélanges  $\text{H}_2/\text{Air}/\text{Diluant}$ . Sur la Figure 4 est représenté le diagramme de Shapiro pour un mélange  $\text{H}_2/\text{Air}$  dilué avec de la vapeur d'eau, pour différentes conditions thermodynamiques initiales. L'enveloppe d'inflammabilité contient toutes les teneurs en combustible pour lesquelles le mélange est inflammable. Pour toutes les autres teneurs qui se trouvent à l'extérieur, le mélange n'est plus inflammable. Le nez de l'enveloppe se trouve généralement au niveau de la ligne des mélanges stœchiométriques.

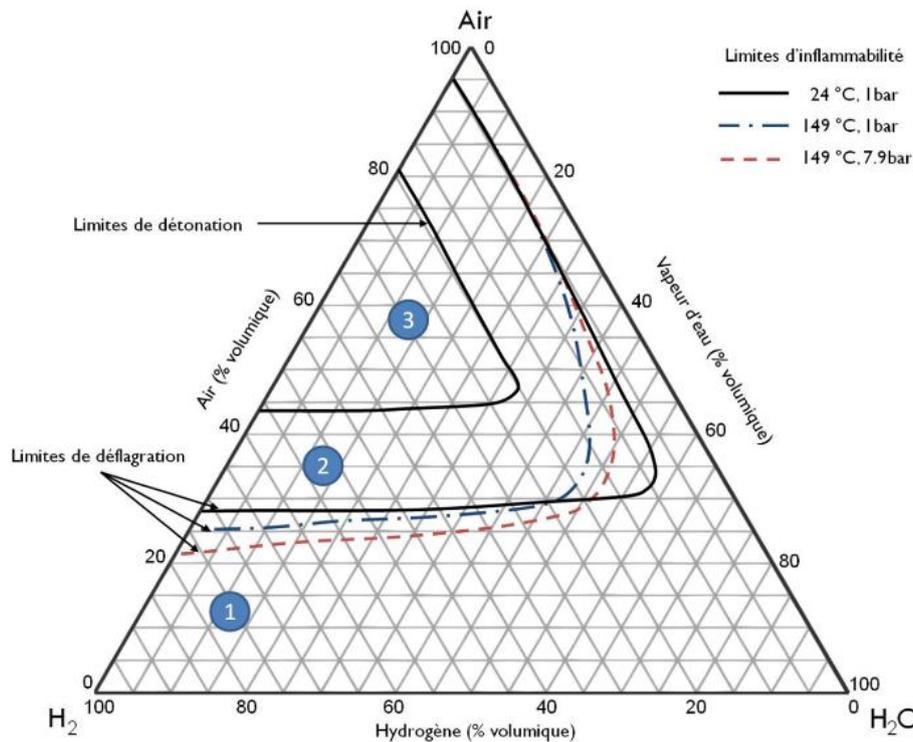


Figure 4 – Diagramme de Shapiro pour un mélange  $H_2$ /Air dilué avec de la vapeur d'eau, pour différentes conditions thermodynamiques initiales [27].

En fonction de la teneur en combustible dans le mélange initial (mélange riche ou pauvre), la propagation de la flamme diffère. Dans le cas de l'étude de la LIS, et donc pour les mélanges riches, d'un mélange à base d'hydrogène, la combustion est complète, la flamme se propage dans tout le volume de l'enceinte, et la pression augmente. Dans le cas de l'étude de la LII, et donc pour les mélanges pauvres, la combustion n'est pas toujours complète. Dans ce cadre, deux propagations différentes peuvent se produire, en fonction de si la combustion est complète ou pas : limite d'inflammabilité ascendante et limite d'inflammabilité descendante. La première correspond à une propagation de flamme ascendante, et la deuxième à une propagation de flamme descendante. La limite d'inflammabilité ascendante est moins élevée que la descendante, car cette dernière correspond à une combustion complète, ce qui n'est pas le cas pour la première. Entre ces deux limites se trouvent les propagations de flamme horizontales. Ces trois limites d'inflammabilité (descendante, horizontale, ascendante) ont été largement étudiées dans la littérature pour un mélange  $H_2$ /Air [28, 18, 16].

Pour déterminer expérimentalement le domaine d'inflammabilité d'un mélange combustible, différents critères ont été mis en œuvre. D'une part, le critère visuel s'appuyant sur l'observation de l'existence de la propagation autoentretenu du front de flamme dans l'enceinte expérimentale peut être mis en place. D'autre part, un critère s'appuyant sur la mesure de la pression peut être appliqué. À cet égard, trois critères de pression sont communément utilisés. Ces critères reposent sur l'augmentation de la pression à l'intérieur de l'enceinte par rapport à la pression initiale. Ils peuvent être décrits comme suit : le critère français à 2%, le critère européen à 5%, et le critère américain à 7% [29]. Le critère à  $x\%$ , avec  $x = \{2, 5, 7\}\%$ , correspond à une augmentation de la pression de  $x\%$  par rapport à la pression initiale. Le critère européen est donné par la norme BS EN 1839:2017 [30] et le critère américain est donné par la norme ASTM E681 [31]. Une comparaison entre les différentes méthodes de détermination des limites d'inflammabilité pour un mélange  $CH_4/H_2$ /Air a été faite par Van den Schoor et al. [32]. Une méthode alternative, basée sur la valeur maximale de la dérivée seconde de l'augmentation de la pression, pour la détermination des limites d'inflammabilité, de mélanges à base d'hydrogène, dans une enceinte sphérique est donnée par Crawl et Jo [33]. En effet, la dérivée seconde de l'augmentation de la pression donne des indications sur l'accélération de la combustion.

### 1.2.1. Méthodes d'allumage et géométrie de l'enceinte expérimentale

Les premiers paramètres à définir pour déterminer le domaine d'inflammabilité d'un mélange sont la méthode d'allumage du mélange, ainsi que la géométrie de l'enceinte expérimentale. Dans ce qui suit, trois méthodes d'allumage d'un mélange combustible seront décrites dans un premier temps : par surface chaude, par claquage LASER, et par arc électrique. Cependant, d'autres méthodes d'allumage, qui ne seront pas présentées ici, existent. Puis, dans un deuxième temps, l'influence de la configuration, ainsi que de la taille de l'enceinte expérimentale sera détaillée.

#### 1.2.1.1. Allumage par surface chaude

La première méthode d'allumage du mélange définie est l'allumage par surface chaude. Comme son nom l'indique, cette méthode consiste à chauffer une surface, qui est en contact avec le mélange combustible, à une température supérieure à la température minimale d'inflammation. Plusieurs modèles théoriques ont été mis en place dans le but de décrire les mécanismes régissant cette méthode d'allumage. C'est le cas du modèle établi par Laurendeau [34]. Ce modèle suppose que l'inflammation se produit lorsque la vitesse de perte de chaleur de la surface est égale au taux de gain de chaleur dû aux réactions chimiques. Ce modèle a été utilisé lors de plusieurs études, comme c'est le cas de l'étude de Buckel et Chandra [35]. Malgré les hypothèses simplificatrices adoptées, un bon accord, entre le modèle théorique et les mesures expérimentales, a été trouvé en ce qui concerne la température de la surface chaude requise pour l'allumage d'un mélange  $H_2/O_2$ . Bien que les résultats semblent être en accord, l'utilisation d'un code multidimensionnel de dynamique des fluides avec une chimie détaillée à taux finis pour capturer la physique complète semble nécessaire. Plusieurs études numériques ont été menées pour l'étude des mélanges  $H_2/Air$ . C'est le cas de l'étude de Boeck et al. [36] et de Melguizo-Gavilanes et al. [37]. Ces derniers ont observé que lorsque l'allumage par surface chaude se produit à la limite d'un nuage d'hydrogène créé par un rejet accidentel, l'allumage initial peut ne pas donner lieu à une flamme qui se propage, mais produire une région à haute température qui s'étend verticalement vers le haut à partir de la surface chaude. Pour des teneurs en hydrogène comprises entre 5 et 6%, le panaché chaud de produits s'étendant au-dessus de la surface chaude peut agir comme une source d'inflammation pour les régions plus réactives du nuage, par exemple, il peut enflammer les régions plus riches d'un nuage d'hydrogène stratifié. Il en va de même pour les teneurs comprises entre 6 et 8% de  $H_2$  qui s'étendent d'une surface chaude vers des régions plus réactives.

La grandeur importante à caractériser est donc la température minimale d'inflammation. Un modèle permettant de prédire cette température minimale d'inflammation, pour un mélange  $H_2/Air$  en contact d'une surface chaude non réactive, a été mis en place par Kumar et al. [38]. Cette température semble diminuer lorsque le rapport de la surface chaude par le volume de l'enceinte expérimentale diminue, ou que le diamètre de la source d'allumage augmente [39]. Le modèle est régi par l'équation (6) ci-dessous :

$$T_S = T_S^\infty * \exp\left(\frac{B}{t^*}\right) \quad (6)$$

Avec,  $T_S$  la température minimale d'inflammation (en K),  $T_S^\infty$  la température de surface pour un délai d'allumage infini (en K),  $B$  une constante qui dépend de la stœchiométrie du mélange, et  $t^*$  le délai d'allumage (en s).

Pour la partie expérimentale de son étude, il s'est basé sur le critère de Van't Hoff pour définir l'inflammation, ou non, du mélange. Le critère de Van't Hoff [40] définit l'allumage du mélange combustible comme étant l'instant où la température des gaz devient supérieure à la température de la surface chaude. Ainsi, il a pu faire une comparaison entre les valeurs déterminées numériquement et les valeurs expérimentales. Les valeurs expérimentales sont en accord avec les résultats déterminés numériquement pour un mélange  $H_2/Air$  pour des conditions thermodynamiques « standards ». La température de surface minimale d'inflammation diminue lorsque la température initiale du mélange

augmente. De même, celle-ci augmente lorsque la pression initiale augmente. De plus, pour le mélange  $H_2$ /Air, les convections latérales des gaz chauds dues à la poussée d'Archimède sont négligeables pour la détermination de la température minimale d'inflammation.

### 1.2.1.2. Allumage par claquage LASER

La deuxième méthode d'allumage du mélange définie est l'allumage par claquage LASER. Le principe consiste à créer une étincelle, qui se manifeste sous forme de plasma, en focalisant un faisceau LASER d'ultra-courte impulsion (de l'ordre de quelques nanosecondes) à travers une lentille sphérique convergente. La puissance de ce faisceau LASER évolue au cours du temps sous forme de gaussienne [41]. Pour que le claquage puisse avoir lieu, il faut que la densité d'énergie soit suffisante dans le petit volume occupé par le faisceau LASER au niveau du point focal de la lentille sphérique. Le phénomène de claquage se produit lorsque le seuil de claquage est atteint, le milieu est ionisé par l'augmentation du nombre d'électrons libres, ce qui rend le milieu optiquement épais et permet l'absorption de l'énergie déposée. Au contraire, tant que le seuil de claquage n'est pas atteint, le milieu reste optiquement transparent, et l'énergie déposée est perdue [42]. L'évolution temporelle de la puissance du faisceau LASER, ainsi que la différence entre un milieu transparent et un milieu optiquement épais est donnée sur la Figure 5.

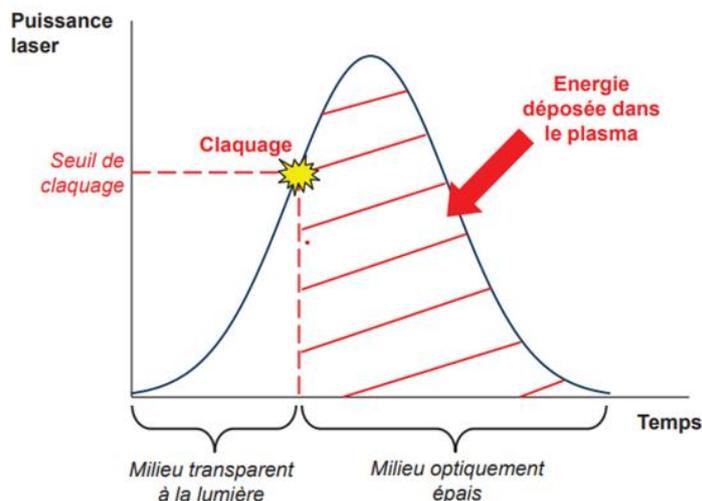


Figure 5 – Évolution temporelle de la puissance du faisceau LASER dans le cadre d'un allumage par claquage LASER [42].

Le plasma est formé par l'absorption des photons incidents entre le moment où le claquage a lieu et le moment où le pulse est fini. Ce plasma est créé par les deux processus suivants : ionisation multiphotonique et cascade électronique.

- **Ionisation multiphotonique** : Comme son nom l'indique, il s'agit de l'ionisation d'un atome par plusieurs photons en même temps : par leur absorption, et par l'émission d'électrons libres [43]. En effet, la molécule est ionisée lorsque l'énergie d'ionisation de celle-ci est inférieure à l'énergie totale des photons incidents qu'elle va absorber. Ce phénomène est prédominant, et ne peut par conséquent pas être négligé, lorsque l'absorption d'énergie est importante. En effet, lors de l'absorption d'un photon, l'atome passe d'un niveau d'énergie plus bas à un niveau d'énergie plus élevé (que ce soit entre deux niveaux excités ou entre son niveau fondamental et un niveau excité). Or, la relation de Planck-Einstein statue que l'énergie du photon est égale au produit de la constante de Planck et de la fréquence du photon [44]. Cette dernière étant inversement proportionnelle à la longueur d'onde, l'ionisation multiphotonique est prédominante pour des LASERS émettant des longueurs d'onde courtes [42]. Cependant, pour

les lasers émettant des longueurs d'onde dans le visible et proches des infrarouges, ce phénomène peut être négligé.

- Cascade électronique : Lors du processus d'ionisation multiphotonique, des électrons libres vont être générés. Ceci a pour conséquence l'augmentation de l'énergie par un Bremsstrahlung inverse : absorption d'un photon par la collision entre un électron libre, provenant du faisceau LASER, et un ion [45]. L'ionisation des molécules composant le gaz est produite par l'accélération des électrons libres lors de ce phénomène. Ceci générera l'apparition de nouveaux électrons libres, qui vont être accélérés à leur tour et qui ioniseront de nouvelles molécules. Ce phénomène est connu sous le nom de cascade électronique [42]. La haute résolution spatiale du système optique Cassegrain a été utilisée pour observer différents niveaux d'ionisation dans le noyau du plasma, ce qui a confirmé le mécanisme de cascade électronique pour la formation du plasma [46].

Lors du claquage, le phénomène prédominant parmi les deux cités ci-dessus, est celui de la cascade électronique, comme cela a été montré par Phuoc et al. [47]. Beduneau et Ikeda [46] ont caractérisé spatialement les claquages induits par LASER dans l'air et ils ont observé une bonne reproductibilité de l'emplacement et de la forme du plasma. Ces paramètres dépendent largement de la configuration optique et du taux d'absorption d'énergie du plasma. En effet, la caractérisation spatiale du plasma a montré une forte dépendance du seuil de claquage, de la forme, de la taille et de la localisation du plasma par rapport à la distance focale de la lentille. La génération du premier électron responsable de la formation du plasma a été d'une importance primordiale pour le développement du plasma [48]. L'énergie déposée par le claquage LASER dépend de plusieurs paramètres tels que la composition initiale du mélange, les conditions thermodynamiques initiales (pression et température), la longueur d'onde du LASER utilisé, la distance focale de la lentille de focalisation entre autres. L'ordre de grandeur de l'énergie déposée varie entre quelques dizaines de mJ et quelques centaines de mJ [49].

### 1.2.1.3. Allumage par arc électrique

La troisième, et dernière méthode d'allumage du mélange définie est l'allumage par arc électrique. Comme son nom l'indique, la méthode consiste à créer une étincelle, ou un arc électrique, entre deux électrodes en créant une haute tension aux bornes de celles-ci (de l'ordre du kV) [42]. Cette méthode peut être décomposée en quatre phases : une phase de préclaquage, une phase de claquage, une phase d'arc, et finalement une phase de décharge. La première phase a lieu pendant un temps très court de l'ordre de quelques nanosecondes. La mise en place d'une haute tension entre les deux bornes des électrodes va générer un champ électrique qui va accélérer les électrons libres qui se trouvent naturellement dans le milieu où sont placées les électrodes. Cette accélération des électrons libres va faire qu'ils vont rentrer en collision avec les molécules de gaz, ce qui va avoir pour effet de les ioniser. Ainsi, de nouveaux électrons libres et de nouveaux ions vont être créés. Les nouveaux électrons libres vont donc être accélérés à leur tour par ce même champ électrique, et vont rentrer en collision avec d'autres molécules présentes dans le milieu. Cette opération va se répéter plusieurs fois (cascade électronique), ce qui va avoir comme conséquence d'ioniser le milieu. Durant cette phase, le courant entre les deux électrodes augmente, car le milieu est devenu conducteur par la présence élevée d'électrons libres. Lors de la deuxième phase, le milieu entre les deux électrodes est devenu très conducteur. Ceci a deux conséquences principales : d'une part, le courant augmente considérablement en quelques nanosecondes, et d'une autre part, la tension diminue considérablement à son tour. Le claquage est donc dû à la chute rapide de la tension et à la réduction du champ électrique. Lors de cette phase, la collision entre les électrons libres, les ions et les molécules de gaz qui traversent le milieu entre les électrodes, va générer un transfert efficace d'énergie (rendement qui atteint les 94% [50]). Finalement, toute cette énergie générée par la décharge électrique chauffe le gaz qui se trouve dans le milieu. Ainsi, en quelques nanosecondes, un plasma se forme entre les deux électrodes. Au cours de la troisième phase, lorsque l'étincelle générée entre les deux électrodes est maintenue, des points de fusion apparaissent sur la pointe des électrodes, appelée communément phase d'arc. Malgré la diminution de

la tension, du courant, et du transfert d'énergie, les points de fusion assurent le maintien de l'ionisation du milieu. Le transfert d'énergie passe donc d'un rendement de 94% lors de la phase de claquage, à un rendement de 50% lors de cette phase [50]. Lors de la dernière phase, les espèces se déséxcitent, ce qui génère l'émission d'un rayonnement. Ainsi, au bout de 1  $\mu$ s, l'arc va donc subir un état de décharge lumineuse. De même, une augmentation de la tension peut être constatée alors que le courant reste faible. Le rendement du transfert d'énergie diminue encore une fois lors de cette phase, atteignant un rendement de 30% [50]. Le discernement entre la fin de la phase de décharge et la fin des quatre phases de l'allumage par arc électrique, est le début de l'apparition du noyau de la flamme. Les quatre phases sont représentées sur la Figure 6. En fonction de la quantité d'énergie qui est déposée entre les deux électrodes, deux phénomènes distincts peuvent se produire :

- Soit l'énergie déposée entre les deux électrodes est suffisante pour allumer le mélange. Dans ce cas, il y a suffisamment de radicaux dans le plasma, et l'échauffement des gaz dans le milieu augmente l'énergie thermique ce qui lui permet d'atteindre l'énergie d'activation des réactions chimiques. Ainsi, le noyau de la flamme créé entre les deux électrodes se développe et se propage.
- Soit l'énergie déposée entre les électrodes n'est pas suffisante pour allumer le mélange. Dans ce cas, l'énergie n'atteint pas l'énergie d'activation des radicaux.

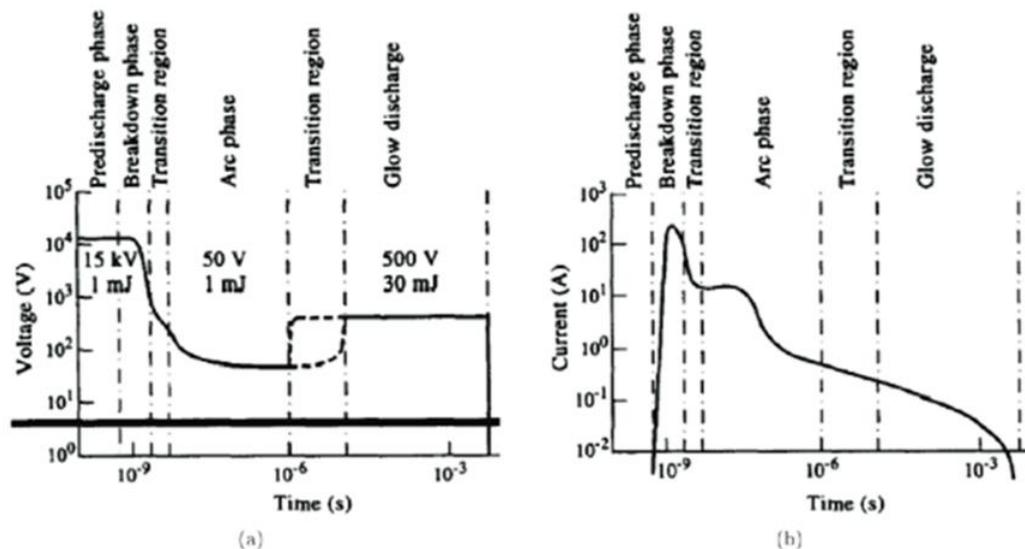


Figure 6 – Système d'allumage par arc électrique. (a) : Évolution temporelle de la tension. (b) : Évolution temporelle du courant [42].

Il a été montré [51] et [52] que la géométrie, la quantité d'énergie déposée, et l'emplacement exact du noyau de la flamme varient d'un essai à un autre dans le cadre de l'étude de l'allumage par arc électrique. Par contre, pour un allumage par claquage LASER, la géométrie, l'emplacement du plasma induit, et la quantité d'énergie déposée par le LASER sont mieux maîtrisés, ce qui rend ce type d'allumage reproductible [46]. En termes d'énergie déposée, l'ordre de grandeur des énergies d'allumage par claquage LASER est plus important que celui obtenu pour un arc électrique. De plus, la durée de dépôt d'énergie par claquage LASER est beaucoup plus courte, de l'ordre de la nanoseconde, que par arc électrique, comme l'a montré Cardin [42]. Ceci montre que les puissances mises en jeu par claquage LASER sont beaucoup plus élevées que par arc électrique pour l'allumage des mélanges combustibles.

Cependant, il a été montré à plusieurs reprises que l'énergie minimale d'inflammation est plus importante pour un allumage par claquage LASER que pour un allumage par arc électrique [47, 53, 54]. En effet, l'allumage par claquage LASER requiert une énergie plus importante car lors du dépôt, et de

la propagation de l'onde de choc qui s'ensuit, une grande partie, environ 85% [55, 56], de cette énergie est dissipée. Or, le phénomène de dépôt énergétique par arc électrique est plus lent, de l'ordre de 1 ms, ce qui laisse le temps au noyau de la flamme de se former et de se développer avant que l'énergie soit dissipée.

Dans ce travail il a été choisi d'appliquer l'allumage par arc électrique, comme méthode d'allumage du mélange combustible lors des différentes campagnes expérimentales. En effet, d'une part, la méthode d'allumage par claquage LASER, qui a été utilisée par Coudoro [17] avec la même bombe sphérique BSI que celle utilisée dans ces travaux, n'a pas pu être employée car l'instrumentation fort coûteuse n'est plus disponible. D'autre part, la mise en place d'un système d'allumage par surface chaude est complexe, et malgré le fait que plusieurs études permettant de déterminer la température nécessaire de la surface chaude concernant le mélange H<sub>2</sub>/Air existent, aucune étude concernant le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air n'a été trouvée dans la littérature. Dans ce cas l'utilisation d'un modèle numérique est indispensable. Néanmoins, ces résultats restent très imprécis.

#### 1.2.1.4. Influence de la configuration et de la taille de l'enceinte

Le dernier paramètre pour caractériser le domaine d'inflammabilité est l'influence de la géométrie (configuration et taille) de l'enceinte expérimentale. L'influence de la configuration et de la taille de l'enceinte sur la détermination du domaine d'inflammabilité est très importante pour des enceintes de petite taille, mais lorsque l'enceinte est suffisamment grande, cette influence s'estompe et devient négligeable.

Cashdollar et al. [57] présentent une étude expérimentale concernant l'influence de la taille de l'enceinte (120 litres et 20 litres), ainsi que de différentes méthodes d'allumage sur les limites d'inflammabilité de différents gaz tels que le méthane, le propane et l'hydrogène. Ils ont comparé leurs résultats avec les résultats obtenus lors d'une étude précédente réalisée dans un tube de 8 litres, et dans une bombe sphérique de 25,5 m<sup>3</sup>. Tout d'abord, ils ont conclu que, contrairement au méthane et au propane, la limite d'inflammabilité inférieure de l'hydrogène était dépendante du critère choisi : le critère visuel étant celui qui donne des valeurs les plus basses pour la LII. De même, ils ont montré que la valeur de la LII de l'hydrogène, déterminée à partir d'un critère de pression à 7%, contrairement au méthane et au propane, dépend de la taille de l'enceinte expérimentale, en augmentant lorsque la taille de l'enceinte augmente. Dans le cadre de cette étude, la LII du mélange H<sub>2</sub>/Air augmente lorsque la taille de l'enceinte augmente et les valeurs sont données par : 5% ; 6% ; 6,5% ; et 7,5%, respectivement pour les enceintes de 8 litres ; 20 litres ; 120 litres ; et 25,5 m<sup>3</sup>.

Shoshin et Goey [58] ont réalisé une série d'expériences dans des tubes de différents diamètres (6 ; 8,9 ; 12,3 ; 18,4 ; 25,2 ; 35 ; et 50,2 mm) où ils ont fait varier la teneur en hydrogène dans le mélange (entre 0 et 40%). Les données illustrées sur la Figure 7 révèlent que la limite d'inflammabilité inférieure varie en fonction du diamètre de l'enceinte expérimentale. De plus, il est observé que la valeur de la LII diminue au fur et à mesure que le diamètre du tube diminue. Cependant, au-delà d'un certain diamètre de l'enceinte expérimentale, la LII atteint un plateau et reste constante malgré l'augmentation du diamètre du tube.

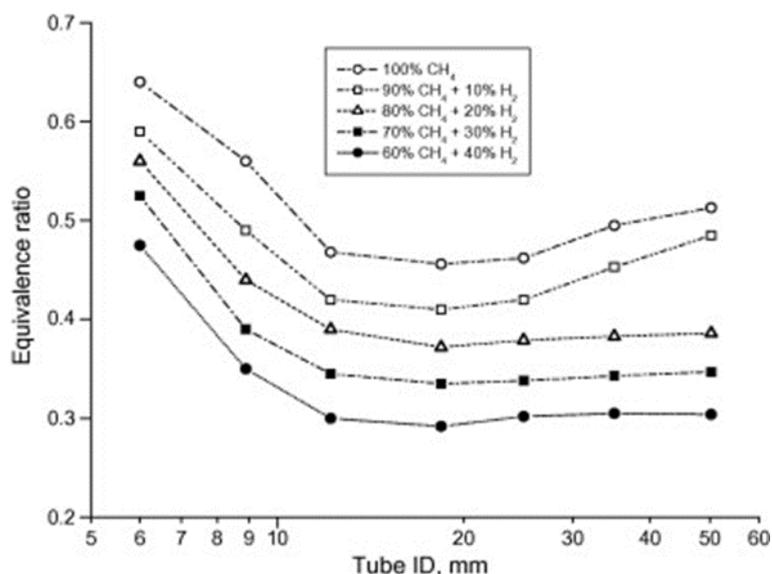


Figure 7 – Limite d'inflammabilité inférieure du mélange CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>/Air en fonction du diamètre de l'enceinte expérimentale pour différents teneurs en hydrogène dans le mélange initial [58].

Van der Schoor et al. [32] présentent une comparaison des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, déterminées à la fois numériquement et expérimentalement, au cours de leur étude, et trouvées dans la littérature, comme illustré sur la Figure 8. Ces limites ont été expérimentalement déterminées dans deux types d'installations : une enceinte cylindrique et une bombe sphérique. La première consiste en un tube cylindrique de 300 mm de long et d'un diamètre intérieur de 60 mm, placé verticalement. Ce tube est en verre afin que le comportement de la flamme puisse être observé visuellement. Cette configuration utilise une décharge électrique entre deux électrodes. Un critère visuel d'inflammabilité est adopté : l'allumage du mélange est considéré comme ayant eu lieu si la flamme se détache des électrodes et se propage sur une distance d'au moins 100 mm. Le deuxième dispositif expérimental est une bombe sphérique d'un diamètre interne de 200 mm (volume interne de 4,2 litres). L'évolution de la pression après l'allumage est mesurée à l'aide d'un transducteur de pression piézoélectrique Kistler 701A. Pour allumer les mélanges testés, un fil de tungstène enroulé est fondu, placé au centre du récipient, en appliquant une tension de 40 V en courant continu. Un critère de pression est utilisé pour déterminer la limite d'inflammabilité : l'allumage du mélange est confirmé si l'inflammation est suivie d'une augmentation de la pression d'au moins 5 % par rapport à la pression initiale. Les écarts déterminés expérimentalement quant à l'influence de l'enceinte expérimentale peuvent être alloués à une différence de critère de détermination des limites d'inflammabilité.

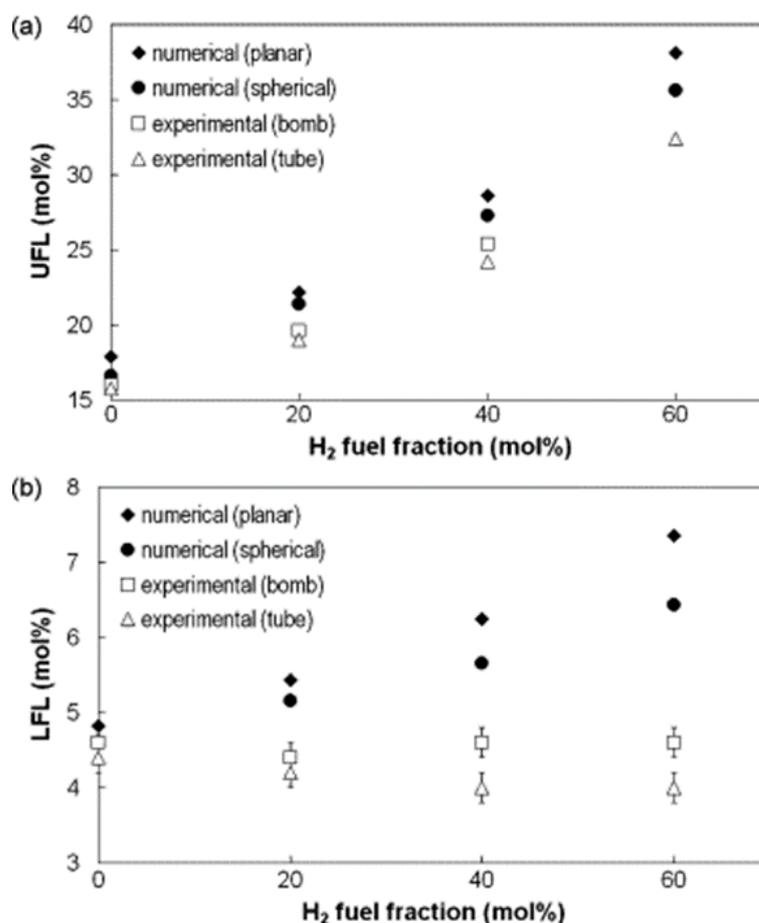


Figure 8 – Comparaison des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, du mélange CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>/Air en fonction de la teneur en hydrogène dans le mélange initial et pour plusieurs méthodes de détermination différentes [32]. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures.

Il est possible de faire une comparaison des limites d'inflammabilité supérieures déterminées dans les différentes études trouvées dans la littérature pour les différents dispositifs expérimentaux. Wierzba et Ale [59], ont déterminé les limites d'inflammabilité supérieures d'un mélange CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>/Air, dans une enceinte cylindrique de 50,8 mm de diamètre, et de 1 m de hauteur. La méthode d'allumage employée est l'arc électrique entre deux électrodes. Gasse [60], quant à lui, a déterminé la limite d'inflammabilité supérieure de mélanges CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>/Air selon la norme DIN 51649, qui correspond à un tube vertical de verre, d'un diamètre interne de 60 mm, et d'une hauteur de 300 mm. Pahl [61], a mesuré la LII et la LIS de mélanges CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>/Air dans une bombe cylindrique fermée, d'un diamètre de 150 mm et d'une hauteur de 150 mm. L'allumage a été réalisé au moyen d'un fil fusible placé au centre de la cuve, qui a libéré une énergie d'allumage d'environ 40 J. Les résultats déterminés par Gasse [60] concordent très bien avec ceux obtenus par Van der Schoor [32] en utilisant la méthode du tube. L'utilisation d'une durée d'étincelle plus longue (0,5 s) et d'un critère d'inflammabilité moins strict (détachement de la flamme des électrodes) expliquerait le domaine d'inflammabilité plus large trouvé par Gasse [60]. La comparaison des résultats de cette étude obtenus dans la bombe sphérique avec ceux obtenus par Pahl [61], qui a utilisé un dispositif expérimental similaire, montre des différences allant jusqu'à 3% mol. L'énergie d'inflammation plus élevée utilisée par Pahl [61] pourrait expliquer les limites plus larges, même avec l'utilisation d'un critère d'inflammabilité plus strict. L'exigence de propagation de la flamme sur une longueur de 1 m, appliquée par Wierzba et Ale [59], rend leur critère d'inflammabilité beaucoup plus strict que celui appliqué par Van der Schoor [32], ce qui entraîne des LIS plus basses. Néanmoins, dans l'ensemble, il y a un bon accord des limites d'inflammabilité supérieures, contrairement aux limites d'inflammabilité inférieures, des mélanges CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>/Air, malgré la diversité d'enceintes expérimentales utilisées et des critères utilisés.

Coward et Brinsley [62] présentent une revue, à partir des travaux de la littérature, des résultats expérimentaux pour déterminer les domaines d'inflammabilité obtenus dans diverses installations pour des mélanges  $\text{CH}_4/\text{Air}$ ,  $\text{CO}/\text{Air}$ ,  $\text{H}_2/\text{Air}$  et  $\text{H}_2/\text{O}_2$ . L'ensemble des résultats montre une grande dispersion, aussi bien pour les limites d'inflammabilité inférieures que supérieures, en particulier pour les mélanges en présence d'hydrogène. Dans son étude, il attribue ces différences non seulement aux dimensions géométriques de l'enceinte expérimentale, mais aussi au critère d'inflammation choisi. En particulier, en ce qui concerne le dimensionnement des installations expérimentales, il émet 4 conditions :

- L'enceinte expérimentale doit permettre la libre expansion des produits de combustion en évitant la compression des gaz frais.
- L'enceinte expérimentale doit être suffisamment grande pour minimiser au maximum les pertes thermiques aux parois lors de la propagation de la flamme.
- La taille de l'enceinte expérimentale doit permettre la propagation de la flamme initiale autoentretenu sans qu'elle n'ait été modifiée pendant son parcours.
- Le mélange initial doit être tel que la propagation ne se fasse indéfiniment que de manière ascendante.

Une étude menée par Takahashi et al. [63] a porté sur les variations des limites d'inflammabilité de deux hydrocarbures (propane et méthane) pour plusieurs tailles et géométries d'enceinte expérimentale différentes (plusieurs enceintes cylindriques et une enceinte sphérique). Les résultats de leur étude sont présentés sur la Figure 9 (a) pour le méthane et sur la Figure 9 (b) pour le propane.

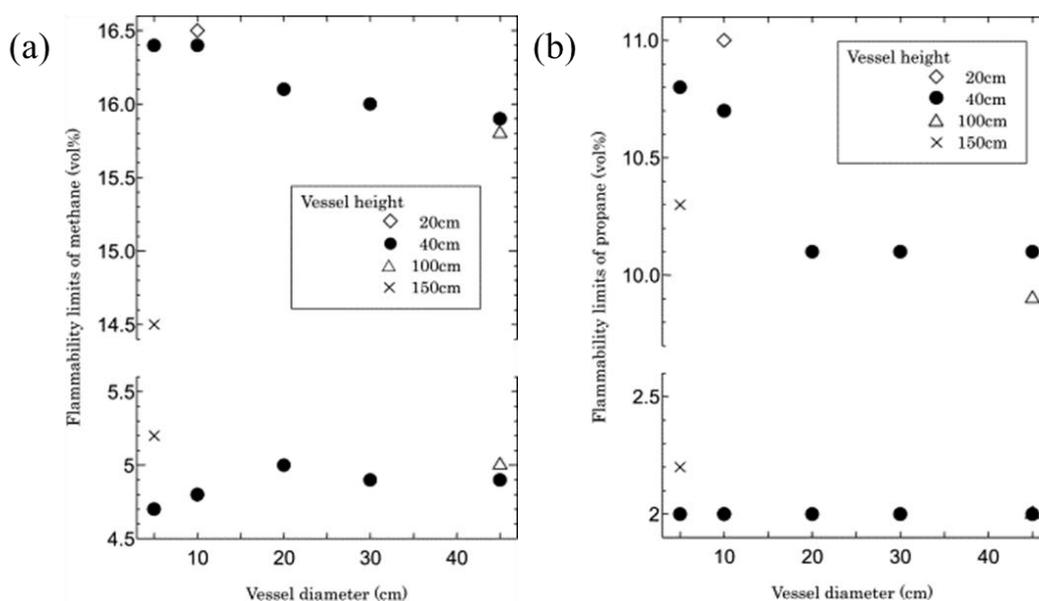


Figure 9 – Domaines d'inflammabilité des mélanges  $\text{CH}_4/\text{Air}$  et  $\text{C}_3\text{H}_8/\text{Air}$  en fonction du diamètre de l'enceinte cylindrique et de la hauteur du tube [63]. (a) : Domaine d'inflammabilité du mélange  $\text{CH}_4/\text{Air}$ . (b) : Domaine d'inflammabilité du mélange  $\text{C}_3\text{H}_8/\text{Air}$ .

Ils montrent que pour une enceinte cylindrique, plus le diamètre de l'enceinte est important, plus le domaine d'inflammabilité est réduit. En effet, lorsque le diamètre de l'enceinte diminue, la flamme naissante peut être considérablement renforcée par sa propre chaleur dégagée qui est rayonnée et réfléchiée par les parois. De plus, pour une enceinte cylindrique de petite taille (diamètre inférieur à 5 cm), l'effet de coincement de la flamme créée par les parois de l'enceinte va modifier les limites d'inflammabilité du mélange [64]. Lorsque la hauteur de l'enceinte est relativement faible, les limites d'inflammabilité vont être déterminées par trois facteurs supplémentaires qui viennent s'ajouter aux effets de quenching de la flamme :

- L'accumulation des gaz chauds au niveau de la paroi supérieure de l'enceinte.

- L'augmentation de la température des gaz frais au-dessus de la flamme lorsque celle-ci se propage vers la paroi supérieure de l'enceinte.
- Le renforcement de la flamme en cours de développement par la chaleur rayonnée par la flamme elle-même, et réfléchiée sur toutes les parois de l'enceinte.

Si la hauteur et le diamètre de l'enceinte expérimentale sont faibles, tous les effets précédents peuvent devenir prédominants, et leurs effets sur la facilitation de la combustion sur la flamme naissante peuvent l'emporter sur l'effet de coincement, ce qui a pour conséquence d'élargir le domaine d'inflammabilité. Inversement, lorsque l'enceinte atteint une taille suffisante, l'influence de tous ces facteurs devient totalement négligeable et les limites d'inflammabilité convergent vers la valeur des limites d'inflammabilité du mélange déterminées pour les mêmes conditions expérimentales initiales, mais dans un espace ouvert. En conclusion, pour une enceinte cylindrique, il faut que son diamètre soit supérieur à 30 cm, et que sa hauteur soit supérieure à 60 cm pour s'approcher des valeurs obtenues en milieu ouvert. En considérant une bombe sphérique, il montre que la valeur des limites d'inflammabilité, que ce soit la limite inférieure comme la limite supérieure, reste inchangée aussi bien pour une bombe sphérique de 12 litres comme pour une bombe sphérique de 200 litres [63].

### 1.2.2. Cas du mélange étudié : H<sub>2</sub>/CO/Air

Cette partie de l'étude se concentrera sur le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. Plusieurs paramètres initiaux seront définis et caractérisés : l'énergie minimale d'inflammation (EMI), la distance de coincement de la flamme, l'influence de différentes conditions initiales du mélange combustible (température initiale, pression initiale, et l'ajout de diluants) sur la détermination du domaine d'inflammabilité. Lorsque les données sont présentes dans la littérature, deux mélanges supplémentaires seront présentés : H<sub>2</sub>/Air et CO/Air.

#### 1.2.2.1. Énergie minimale d'inflammation (EMI)

Le premier paramètre à définir et caractériser est l'énergie minimale d'inflammation, ou EMI. Comme son nom l'indique, il s'agit de l'énergie minimale telle que l'allumage et la propagation de la flamme dans l'enceinte sont possibles. La flamme peut donc être autoentretenu. Si l'énergie déposée dans l'enceinte est inférieure à la EMI, alors le noyau de la flamme qui en résulte se désintègre rapidement car les pertes de chaleur deviennent prédominantes, et que les espèces dissociées se recombinaient plus vite qu'elles ne sont générées par les réactions chimiques en son intérieur. Il ne faut pas confondre l'énergie minimale d'inflammation avec l'énergie de décharge produite par la source d'inflammation. Cette dernière est définie par :  $CV^2/2$  [65]. Les facteurs affectant la EMI jouent un rôle important dans la détermination du comportement ultérieur de la flamme. Quelques-uns des paramètres qui peuvent avoir une influence sur cette énergie minimale d'inflammation sont : l'humidité, la distance entre les électrodes, la source d'inflammation, le nombre de Lewis, la pression initiale, la température initiale, la distance de coincement, l'effet de Soret ou thermo-diffusion, entre autres [66]. D'après Kurdyumov et al. [67], l'énergie minimale d'inflammation est de l'ordre de grandeur :

$$E_m \sim \rho_0 c_{p_0} T_0 \delta_l^3 \quad (7)$$

Avec,  $E_m$  l'énergie minimale d'inflammation (en J),  $\rho_0$  la masse volumique initiale (en kg.m<sup>-3</sup>),  $c_{p_0}$  la capacité thermique à pression constante initiale (en J.K<sup>-1</sup>),  $T_0$  la température initiale (en K), et  $\delta_l$  l'épaisseur de flamme laminaire (en m).

Cette valeur est associée à des conditions telles que le dégagement de chaleur qui augmente la température dans une poche chaude de taille comparable à l'épaisseur de la flamme laminaire  $\delta_l \sim \alpha_0/\nu_l$ . Avec,  $\alpha_0$  la diffusivité thermique du mélange gazeux à l'état initial (en m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>), et  $\nu_l$  la vitesse de propagation du front de flamme laminaire (en m.s<sup>-1</sup>).

L'énergie minimale d'inflammation du mélange H<sub>2</sub>/Air est beaucoup plus basse que celle de la plupart des mélanges combustibles. En effet, pour un mélange H<sub>2</sub>/Air stœchiométrique, elle est inférieure à 0,02 mJ, alors que celle des autres gaz combustibles tels que les hydrocarbures est généralement supérieure à 0,2 mJ [68]. Pour des conditions thermodynamiques « standards », et pour un mélange H<sub>2</sub>/Air sec, l'énergie minimale d'inflammation se trouve entre 0,017 mJ [68] et 0,019 mJ [65]. Concernant l'influence de l'ajout de vapeur d'eau, Ono et al. [65] ont montré qu'une augmentation de l'humidité relative de 0% à 90% n'entraîne qu'une légère augmentation de la EMI. L'ajout de vapeur d'eau n'a donc pas d'influence sur la valeur de la EMI. Concernant l'influence de la distance inter-électrodes, Ono et Oda [68] ont montré que plus la distance inter-électrodes augmente, plus l'énergie minimale d'inflammation augmente pour des teneurs en hydrogène comprises entre 10% et 50%. De plus, lorsque la distance inter-électrodes est diminuée jusqu'à 0,15 mm, l'énergie minimale d'inflammation augmente jusqu'à atteindre 0,04 mJ [66]. Ghosh et al. [69] ont montré que lorsque la température initiale du mélange diminue, l'énergie minimale d'inflammation augmente de façon linéaire (avec un taux d'augmentation de -7,9 μJ/K). En outre, concernant l'appauvrissement en oxygène dans le mélange initial, Kumamoto et al. [70] ont conclu que plus la teneur en oxygène augmente par rapport à la teneur en azote dans le mélange, plus l'énergie minimale d'inflammation diminue.

L'effet Soret, ou thermophorèse, apparaît dans les mélanges en suspension de particules et de fluides. Ce phénomène est causé par le gradient de température, de sorte que le mouvement des molécules de fluide dans la zone chaude et les niveaux d'énergie élevés dans cette région déplacent les particules vers la zone froide. Ainsi, le processus de transfert de chaleur est accéléré par le déplacement des particules chaudes de la zone chaude vers la zone froide [71]. Concernant l'influence de cet effet sur la EMI, les résultats montrent que celle-ci conduit à une énergie minimale d'inflammation plus grande (ou plus petite) pour des mélanges relativement riches (ou pauvres) [72]. Cet effet est principalement engendré par la diffusion de Soret de H<sub>2</sub> alors que celle du radical H est presque négligeable. Elle conduit également à une augmentation (ou diminution) de la longueur de Markstein (la longueur de Markstein caractérise la variation de la vitesse locale de la flamme due à l'influence de l'étirement externe [73]) et du rayon critique pour les mélanges riches (ou pauvres). En outre, Tromans et Fuzeland [74] ont mis en évidence que la valeur de l'EMI augmente considérablement lorsque le nombre de Lewis augmente. L'énergie minimale d'inflammation augmente également si le front de flamme est étiré. Finalement, Proust [75] a montré que l'énergie minimale d'inflammation est proportionnelle au carré de la distance de coïncement (cf. Chapitre 1 – partie 1.2.2.2).

Il n'y a pas beaucoup de données dans la littérature concernant l'énergie minimale d'inflammation du mélange CO/Air sec. Celle-ci est inférieure à 0,3 mJ [76]. Wires et al. [77] ont travaillé sur un mélange CO/O<sub>2</sub> stœchiométrique, auquel de faibles quantités de H<sub>2</sub> ont été rajoutées : entre 0,006% et 2%. Ils ont conclu que l'énergie minimale d'inflammation diminue avec l'augmentation de la teneur en hydrogène. Cela peut s'expliquer comme suit : pendant la mise en place de la source d'énergie externe, le mélange est chauffé à une température élevée. Ensuite, après le temps d'allumage, une température élevée doit être maintenue pendant la période d'induction, bien que la diffusion et la conduction thermique diminuent la température dans le volume de la source. Si le mélange ne contient que de petites quantités d'hydrogène, les périodes d'induction sont longues, car il n'y a que peu d'espèces contenant de l'hydrogène qui sont nécessaires aux réactions de transport de chaîne et de ramification. Le mélange doit donc être chauffé à une température très élevée pendant la période d'induction [78]. De plus, Wires et al. [77] ont étudié la relation existante entre l'énergie minimale d'inflammation et la vitesse de flamme laminaire pour ce mélange. L'énergie minimale d'inflammation de tout système particulier est liée à l'épaisseur de la flamme et, par conséquent, à la distance qu'une flamme doit parcourir avant de s'établir dans un état stable. Cette preuve indique l'existence d'une zone de flamme très épaisse dans la flamme CO/O<sub>2</sub>. Leurs données indiquent que la flamme de CO/O<sub>2</sub> est beaucoup plus épaisse qu'une flamme d'hydrocarbure ayant la même vitesse de combustion.

Concernant les valeurs de l'énergie minimale d'inflammation déterminées pour le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, quelques résultats sont présents dans la littérature. Étant donné que la réaction chimique détaillée de l'explosion du syngas est complexe, une simulation détaillée et précise de ce phénomène est difficilement réalisable (en particulier dans une atmosphère turbulente et/ou à grande échelle). Les programmes de simulation de la EMI ne sont pas facilement disponibles, les études sur l'énergie minimale d'inflammation sont encore principalement menées par la méthode expérimentale [79]. Pour un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique, l'énergie minimale d'inflammation varie entre 0,02 mJ (pour 100% d'hydrogène) et 0,3 mJ (pour 100% de monoxyde de carbone) [80]. En outre, comme expliqué dans l'ouvrage de Glassman et Yetter [81], la valeur de la EMI doit être liée à l'énergie initiale externe nécessaire pour chauffer un volume sphérique de rayon  $r_f$  uniformément de  $T_0$  à  $T_f$  et elle peut s'écrire ainsi :

$$EMI \propto \left(\frac{\alpha}{S_l^0}\right)^3 * c_p * \rho_f * (T_f - T_0) \propto \delta_l^3 * c_p * \rho_f * (T_f - T_0) \propto D_q^3 \quad (8)$$

Avec,  $\alpha$  la diffusivité thermique (en m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>),  $S_l^0$  la vitesse de flamme laminaire (en m.s<sup>-1</sup>),  $c_p$  la capacité thermique à pression constante du mélange (en J.kg<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>),  $\rho_f$  la masse volumique des gaz frais (en kg.m<sup>-3</sup>),  $T_f$  la température adiabatique de flamme (en K),  $T_0$  la température initiale (en K),  $\delta_l$  l'épaisseur de la flamme laminaire (en m), et  $D_q$  la distance de coïncement de la flamme de prémélange (en m).

Par ailleurs, il semble que les corrélations entre l'EMI et la distance de coïncement puissent être différentes pour les différents combustibles. En effet, la valeur de l'EMI devrait être égale à la distance de coïncement élevée à une puissance  $n$  donnée (3 dans l'exemple donné ci-dessus et dans les études de Han et al. [66] et de Tang et al. [82]). Cependant, la puissance devrait être de 2 dans la théorie de la combustion de Williams [81] et dans l'étude de Kutcha [39], de 2,48 dans les travaux antérieurs de Calcote et al. [83], et de 2,32 pour les mélanges H<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>/Air analysés par Tang et al. [82]. Ning et al. [84] ont déterminé les énergies minimales d'inflammation du syngas, pour plusieurs conditions thermodynamiques différentes. Ils ont conclu que l'EMI diminue avec l'augmentation de la température initiale et de la pression initiale, car l'augmentation de ces grandeurs augmente la vitesse de réaction de la combustion.

Maas et Warnatz [78] ont déterminé, en se basant sur une résolution numérique des équations de conservation de la masse, les EMI pour plusieurs mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air. Des résultats expérimentaux concernant les mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air ne sont pas présents dans la littérature.

#### 1.2.2.2. Distance de coïncement d'une flamme

Le deuxième paramètre initial à définir est la distance de coïncement de la flamme, notée  $D_q$ . La distance de coïncement est l'un des paramètres directement responsables de l'échange de chaleur à proximité de la paroi d'une enceinte expérimentale [85]. La première fois où le concept de distance de coïncement a été évoqué est en 1816 par Humphry Davy [86]. Il a fait la découverte de la lampe de sécurité de Davy, qui repose sur le principe selon lequel les explosions de grisou (à base de méthane) ne passent pas à travers de petites ouvertures ou de petits tubes. Un siècle plus tard, Payman et Wheeler [87] se sont intéressés à cette notion, et ils ont travaillé sur la propagation de flammes dans un tube de petit diamètre. Ils ont conclu que la capacité d'une flamme à traverser des tubes ou des trous de petit diamètre dépend principalement de sa vitesse, et donc, de la nature de mélange inflammable et des conditions thermodynamiques. Ainsi, les flammes d'hydrogène et d'air pouvaient passer par des trous de très petit diamètre car la présence d'hydrogène dans un mélange confère cette propriété, dans une certaine mesure, à la flamme. Le diamètre de coïncement peut donc être défini comme suit : soit comme le diamètre minimal du trou qui permet le passage d'une flamme, soit comme le diamètre maximal du trou qui étouffe la flamme [88].

L'effet de coincement est généré par plusieurs facteurs. Une flamme prémélangée cesse de se propager vers la paroi, car les pertes de chaleur sont suffisamment importantes pour ralentir les réactions chimiques [85]. De même, ce phénomène de coincement peut être généré par l'étirement du front de flamme. Cependant les pertes thermiques restent prédominantes par rapport à l'étirement du front de flamme dans le phénomène de coincement de la flamme [89]. Il est possible de parler aussi de coincement chimique : il s'agit de l'élimination des radicaux actifs de la zone de réaction par diffusion à la surface de quenching. Lorsque l'élimination des radicaux est trop activée, la flamme est étouffée même si la perte de chaleur vers la paroi est insignifiante. Le quenching chimique est plus prononcé à des températures de paroi élevées où la perte de chaleur en surface est faible, car la réaction hétérogène en surface devient dominante à haute température [90]. Deux effets concurrents peuvent affecter le processus de coincement. Le premier est le fait que le transfert de chaleur par rayonnement tend à préchauffer les gaz non brûlés, accélérant ainsi la flamme et supprimant le processus d'extinction. Le second effet est que la perte de chaleur par rayonnement des surfaces proches de la zone de réaction abaisse la température de la flamme et réduit ainsi la vitesse de réaction globale [91]. Les phénomènes d'extinction dépendent de nombreux paramètres concernant à la fois l'état de surface (température, matériau, géométrie de la surface) et le milieu de combustion (température, pression, composition, dynamique des gaz près de la surface, étirement de la flamme). Quatre méthodes de détermination d'une distance de coincement existent [88] :

- Méthode du brûleur : détermination du retour de flamme (flash-back) ou de l'extinction d'une flamme stabilisée sur un brûleur lors de l'arrêt de l'arrivée de gaz du brûleur.
- Méthode du tube : détermination du diamètre critique du tube pour la propagation d'une flamme dans un mélange quiescent. Une amélioration de la méthode du tube a été proposée par Miller et al. [92]. Dans leur méthode, un tube conique ou cunéiforme est utilisé au lieu d'un tube droit. La flamme est photographiée pendant qu'elle se propage dans le tube afin de déterminer le point où la flamme est éteinte. La taille du tube à ce point est la distance d'extinction ou de coincement.
- Détermination de la distance critique entre deux plaques pour qu'une flamme ne puisse pas se propager. Deux électrodes sont placées respectivement sur chacune des plaques.
- Extrapolation des diagrammes de stabilité du souffle de retour de flamme (Blowoff-Flashback) au point de coincement.

La méthode la plus précise pour mesurer la distance de coincement est la méthode du brûleur. Plusieurs théories permettent de déterminer la distance de coincement par le calcul [93, 94, 95, 85, 96, 97].

Le diamètre de coincement peut se traduire aussi par le nombre de Péclet de coincement (rapport entre les transferts convectifs et les transferts diffusifs). Le nombre de Péclet de coincement pour un tube cylindrique a été déterminé par plusieurs auteurs [88, 85, 91]. Ce même nombre, mais en fonction de la distance de coincement peut être déterminé. Plusieurs auteurs ont établi des corrélations permettant de le déterminer [89, 98, 99]. Pour donner quelques ordres de grandeur du nombre de Péclet de coincement. Hackert et al. [91] ont trouvé des nombres de Péclet de l'ordre de 60. Ce nombre est du même ordre de grandeur que les résultats de Spalding et al. [100] ( $P_e \sim 40$ ), et de Aly et Hermance [99] ( $P_e \sim 60$ ). Lee et T'ien [101] ont trouvé un nombre de Péclet de 20. Pour une propagation entre deux plaques, le nombre de Péclet, est de l'ordre de 26,5 sur la base de la séparation des plaques. Pour une propagation dans un tube, le nombre de Péclet, est de l'ordre de 53 sur la base du diamètre hydraulique [91]. Jafargholi et al. [102] ont trouvé un nombre de Péclet de coincement pour un mélange  $H_2$ /Air de l'ordre de 1,7. Mari et al. [103] ont trouvé quant à eux un nombre de Péclet de coincement de l'ordre de 1,4.

Nolte et al. [96] ont montré que le comportement de la distance de coincement en fonction des différents paramètres initiaux est le même, quel que soit le mélange combustible initial. La variation de

cette distance en fonction des différents paramètres initiaux a été largement étudiée dans la littérature [96, 91, 88, 89, 104, 105, 106, 103, 99, 107]. De plus, Nair et Gupta [108] ont établi que la distance de coïncement est proportionnelle à  $\frac{1}{P^\alpha * T^\beta}$  (avec P et T la pression et la température initiales, et  $\alpha$  et  $\beta$  deux constantes dépendantes de la nature du mélange combustible). Pour un mélange combustible à base d'hydrogène,  $\alpha = 1,6$  [109]. Il est possible de définir une température d'extinction ou température de coïncement, et elle a été définie par Zel'dovich [110] comme suit :

$$T_q = T_f - \frac{T_f^2}{T_a} \quad (9)$$

Avec,  $T_q$  la température de coïncement (en K),  $T_f$  la température adiabatique de flamme (en K), et  $T_a$  la température d'activation (en K).

Le mélange H<sub>2</sub>/Air a la distance de coïncement la plus petite, 3 fois approximativement, de tous les mélanges combustibles [106, 111]. Dans le cadre d'une étude réalisée dans un REP, l'installation d'une grille d'extinction entre les compartiments comme mesure pour empêcher la propagation de flammes entre ceux-ci, ou pour l'enfermement de l'équipement dans le but de maintenir leur capacité de survie, a été suggérée [104, 112]. En effet, de par sa réactivité et sa vitesse de flamme élevées, l'hydrogène a une tendance non négligeable à générer des retours de flamme. Une mesure pour éviter ceci est l'utilisation d'une maille de coïncement. Lorsque la taille de la maille est suffisamment petite, les pertes de chaleur vers les parois font que la propagation de la flamme est arrêtée par l'étouffement de celle-ci [113]. La distance de coïncement pour un mélange stœchiométrique Hydrogène-Air souvent citée dans la littérature est d'environ 0,6 mm [106, 114]. Cependant, il a été établi qu'une explosion peut être transmise à travers un trou entre deux surfaces, même si cet espace est inférieur à la distance de coïncement. En effet, même si les grilles d'extinction peuvent arrêter les flammes d'hydrogène, les jets de gaz de produits chauds éjectés dans le compartiment voisin, qui lui est rempli d'un mélange combustible frais, peuvent s'enflammer. Lorsque la pression initiale de la chambre de combustion est faible, la température des gaz chauds éjectés due à la perte de chaleur à travers les grilles d'extinction est faible. Ainsi, l'augmentation de pression due à la combustion est faible, et le contrôle de la combustion de l'hydrogène à l'aide des grilles d'extinction est efficace [115]. Heureusement, il existe une limite inférieure à la taille de l'espace à travers lequel une explosion peut être transmise, qui dépend de la géométrie du trou et de la nature du mélange inflammable. Cette notion est appelée : Écart Maximal Expérimental de Sécurité (MESG). Dans le cas de l'hydrogène, cette valeur vaut 0,3 mm (moitié approximativement de la distance de coïncement) [112]. Ils ont montré aussi qu'une distance de coïncement de 0,3 mm pour un mélange Hydrogène-Air, valeur qui correspond à la valeur de la MESG, est adaptée pour des applications dans les centrales nucléaires, et donc dans les REP.

Les données concernant le mélange CO/Air sont rares dans la littérature [116]. Wires et al. [77] ont déterminé une distance de coïncement de 0,4 mm, pour un mélange CO/O<sub>2</sub>. De même, les données dans la littérature concernant le diamètre de coïncement du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air sont très rares. La distance de coïncement des mélanges syngas-air diminue avec l'augmentation du flux thermique aux parois [117]. Ainsi, la corrélation suivante, similaire à celles présentées par Westbrook et al. [98], a pu être développée pour les mélanges syngas/Air stœchiométriques, que ce soit pour une propagation ascendante comme descendante [117] :

$$D_q = A * P^{-B} \quad (10)$$

Avec,  $D_q$  la distance de coïncement (en  $\mu\text{m}$ ),  $P$  la pression initiale (en MPa), et  $A$  et  $B$  deux constantes ( $A = 450$  et  $B = 0,79$  pour une propagation ascendante, et  $A = 300$  et  $B = 0,89$  pour une propagation descendante). La corrélation est valable pour des pressions initiales supérieures à 0,3 MPa. Toutefois, l'estimation donnée doit être prise comme un ordre de grandeur, car dans des conditions

turbulentes, l'interaction flamme-mur (FSI) entraîne des nombres de Péclet plus faibles que dans le cas laminaire [117].

### 1.2.2.3. Influence des conditions initiales sur le domaine d'inflammabilité

La troisième partie se concentrera sur l'influence des conditions initiales thermodynamiques (température initiale et pression initiale) et de l'ajout de diluants sur le domaine d'inflammabilité.

#### 1.2.2.3.1. Température initiale

Dans un premier temps, le premier paramètre initial à étudier est l'influence de la température initiale sur le domaine d'inflammabilité du mélange  $H_2/CO/Air$ . Deux types de résultats peuvent être trouvés dans la littérature : d'une part des corrélations permettant de déterminer les limites d'inflammabilité en fonction de la température initiale, et des valeurs déterminées expérimentalement d'autre part. Plusieurs auteurs ont déterminé des corrélations permettant de déterminer ces limites d'inflammabilité en fonction de la température initiale [64, 118, 119, 120, 121]. Les diverses études faites jusqu'à présent convergent sur le fait qu'il est possible de déterminer les limites d'inflammabilité des mélanges combustibles en utilisant les lois de Le Chatelier si les limites d'inflammabilité des différents composants du mélange à la bonne température initiale sont prises comme base pour le calcul [122]. Cependant, il faut différencier les LII des LIS. En effet, Wierzba et Kilchuk [123] ont montré que les LII des mélanges  $H_2/CO$ , pour une température initiale différente de la température ambiante, peuvent être déterminées en utilisant les lois de Le Chatelier. Cependant, ils ont montré que les LIS s'écartent sensiblement des valeurs correspondantes déterminées à l'aide des lois de Le Chatelier (notamment lorsque la teneur en hydrogène n'est pas très élevée).

Les modèles qui relient les limites d'inflammabilité à la perte de chaleur indiquent que la température de flamme pour un combustible donné doit être supérieure à la température minimale nécessaire à la propagation de la flamme pour pouvoir avoir allumage de ce mélange [100, 124]. Kim et al. [125] ont déterminé la température seuil pour l'hydrogène à 610 K compte tenu de la perte de chaleur, et la température seuil pour le monoxyde de carbone à 1491 K. La LIS augmente, et la LII diminue avec l'augmentation de la température initiale [126, 125, 127, 128, 129]. Plusieurs études dans la littérature ont montré que la diminution de la limite d'inflammabilité inférieure était linéaire avec l'augmentation de la température initiale [121, 119, 130, 131, 123]. En effet, White [132] a signalé que la température limite de la flamme est maintenue constante indépendamment de la température initiale expérimentale. Si tel est le cas, la LII évolue linéairement en fonction de la température initiale. Britton et Frurip [118] ont montré que cette diminution linéaire de la LII se fait entre la température initiale du mélange, et la température de flamme à cette limite inférieure. De même, il a été montré à maintes reprises que la LIS se voit plus affectée par l'augmentation de la température initiale que la limite d'inflammabilité inférieure [128, 122]. L'augmentation de la LIS du mélange  $H_2/CO/Air$  avec l'augmentation de la température initiale se stabilise pour des températures initiales supérieures à 150°C [123]. Toutefois, la LII ne sera pas abaissée indéfiniment. Lorsque la teneur en  $H_2/CO$  est réduite à une certaine valeur, une quantité trop faible de gaz combustible ne serait pas en mesure de maintenir la réaction, et la propagation de la flamme ne pourrait pas se poursuivre.

Shang et al. [131] ont tracé l'évolution de la LII du mélange  $H_2/CO/Air$  en fonction de la teneur en hydrogène dans le mélange et pour plusieurs températures initiales. Ces résultats sont donnés sur la Figure 10.

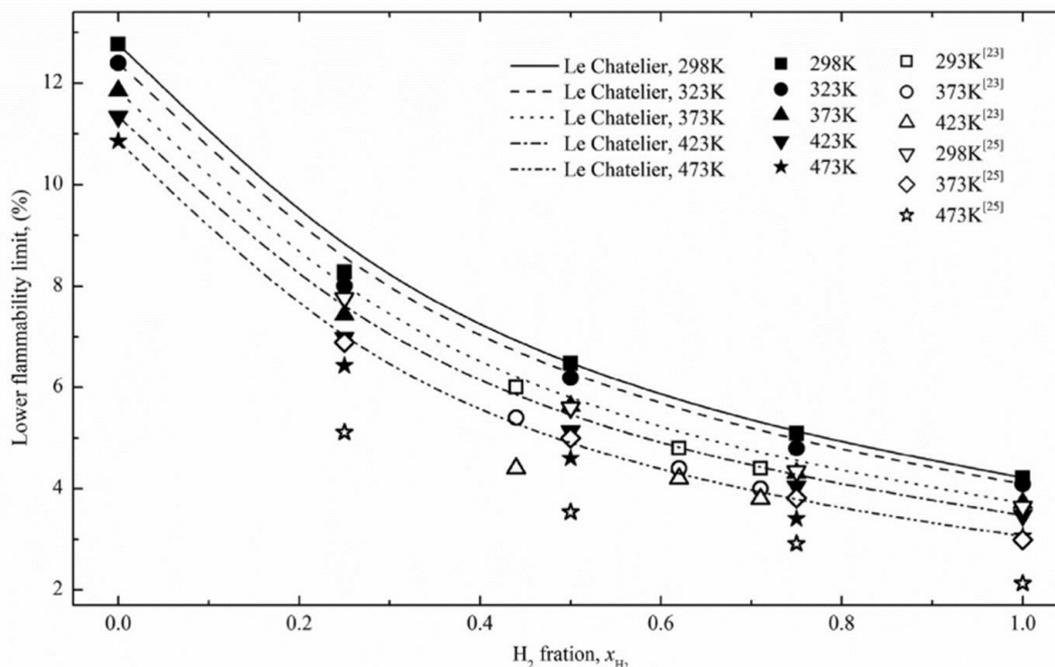


Figure 10 – LII en fonction de la teneur en H<sub>2</sub> dans le mélange H<sub>2</sub>/CO pour plusieurs températures initiales. Les symboles blancs correspondent aux données expérimentales de Van Den Schoor [133] et Wierzba et Kilchuk [123]. Les symboles noirs correspondent aux valeurs données par Shang et al. [131]. Les lignes correspondent aux valeurs déterminées à l'aide des lois de Le Chatelier. Valeurs valables pour une pression atmosphérique de 1 bar.

Karim et al. [130] et Wierzba et Wang [122] ont déterminé les limites d'inflammabilité des mélanges H<sub>2</sub>/Air et CO/Air pour plusieurs températures initiales différentes. Celles-ci sont données dans le Tableau 1.

Température (en K)		143 [130]	186 [130]	218 [130]	246 [130]	273 [130]	298 [130]	298 [122]	473 [122]	573 [122]
H <sub>2</sub>	LII	6,21	5,66	5,24	4,88	4,52	4,13	3,9	2,8	2,4
	LIS	/	/	/	/	/	/	74,7	80,3	82,6
CO	LII	15,46	14,98	14,63	14,32	14,03	13,75	13,6	11,5	10,3
	LIS	/	/	/	/	/	/	66,5	74,5	76,1

Tableau 1 – Limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, pour l'hydrogène et le monoxyde de carbone, en fonction de la température initiale [130, 122]. Valeurs valables pour une pression atmosphérique de 1 bar.

Un paramètre très important à prendre en compte lors de l'étude de l'influence de la température initiale sur les limites d'inflammabilité, inférieures comme supérieures, est le temps de séjour, ou temps de résidence. Ce temps correspond au temps d'attente du mélange des gaz frais à la température initiale choisie avant l'allumage. En effet, il est possible qu'à des températures initiales élevées, les mélanges combustibles subissent d'importantes réactions de préallumage, notamment lorsque le mélange testé est laissé au repos pendant un certain temps avant l'allumage et que la température initiale est suffisante [122, 59]. Ceci est dû au développement potentiel de réactions d'oxydation lentes de préallumage qui peut modifier le mélange effectif avant l'allumage. Wierzba et Kilchuk [123] ont montré que plus le temps de séjour est élevé, plus le domaine d'inflammabilité est réduit. Cependant, la LIS est beaucoup plus affectée par ce temps de séjour que la LII. De plus, plus la température initiale est élevée, plus le temps de séjour a une influence importante sur ces limites d'inflammabilité. Cependant, ils ont montré que les variations des limites d'inflammabilité de ces mélanges en fonction du temps de séjour étaient beaucoup plus faibles lorsque ce dernier était supérieur à ~15 minutes. Afin de limiter les évolutions du mélange combustible, lorsque la température initiale est élevée, ils préconisent un délai court entre

l'introduction du mélange combustible dans l'enceinte et l'allumage de ce dernier, qui a été fixé à 5 minutes dans leur étude.

Zlochower [134], propose une méthode de prédiction des limites d'inflammabilité pour plusieurs mélanges, dont H<sub>2</sub>/Air et CO/Air. Sa méthode numérique tient compte de la température initiale et se base sur la température adiabatique de flamme. Pour valider sa méthode, il confronte ses résultats numériques aux valeurs de la littérature déterminées expérimentalement. La méthode proposée permet de corrélérer correctement les valeurs expérimentales à condition que la température initiale ne soit pas trop éloignée de la température ambiante.

Les corrélations permettant de décrire l'influence de la température initiale sur la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, trouvées dans la littérature, sont données ci-dessous :

- Zabetakis et al. [64] :

Zabetakis et al. [64] se sont servis de la loi de Burgess-Wheeler, et de la méthode CAFT (Combustion Adiabatic Flame Temperature) pour déterminer deux corrélations qui permettent de déterminer la LII, et la LIS, en fonction de la température initiale. Celles-ci sont données par les équations suivantes :

$$LII(T_{ini}) = LII(25^{\circ}C) - \frac{0,75}{\Delta_r H} (T_{ini} - 25) \quad (11)$$

$$LIS(T_{ini}) = LIS(25^{\circ}C) + \frac{0,75}{\Delta_r H} (T_{ini} - 25) \quad (12)$$

Avec,  $LII(T_{ini})$  et  $LIS(T_{ini})$  les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange à la température initiale  $T_{ini}$  souhaitée,  $LII(25^{\circ}C)$  et  $LIS(25^{\circ}C)$  les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange à la température initiale  $T_{ini} = 25^{\circ}C$ ,  $\Delta_r H$  l'enthalpie de réaction de la combustion (en kcal.mol<sup>-1</sup>), et  $T_{ini}$  la température initiale souhaitée (en °C). Cette corrélation est valable pour des températures initiales comprises entre 400 et 1500 K, et pour une pression atmosphérique.

- Britton et Frurip [118] :

Britton et Frurip [118] ont établi une corrélation permettant de déterminer la limite d'inflammabilité inférieure en fonction de la température initiale. Celle-ci est donnée par l'équation suivante :

$$LII(T_{ini}) = LII(T_0) * \frac{T_f - T_{ini}}{T_f - T_0} \quad (13)$$

Avec,  $LII(T_{ini})$  et  $LII(T_0)$  les limites d'inflammabilité inférieures du mélange à la température initiale  $T_{ini}$  souhaitée et à la température de référence  $T_0$  respectivement,  $T_f$  la température adiabatique de flamme (en K),  $T_{ini}$  la température initiale souhaitée (en K), et  $T_0$  la température de référence (en K). Cette corrélation est valable pour des températures initiales comprises entre 400 et 1500 K, et pour une pression atmosphérique.

- Jaimés et al. [120] :

Jaimés et al. [120] ont établi une corrélation, basée sur une régression logistique, qui permet de déterminer les limites d'inflammabilité inférieures du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air en fonction de la pression initiale. La corrélation établie est donnée par l'équation suivante :

$$LII_{H_2/CO}(T) = [a * T + b] * P + c * T + d \quad (14)$$

Avec,  $LII_{H_2/CO}(T)$  la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO à la température initiale T souhaitée, T la température initiale du mélange (en °C), P la pression initiale souhaitée (en bar), et a, b, c et d les coefficients calculés pour différents rapports H<sub>2</sub>/CO (a en bar<sup>-1</sup>.°C<sup>-1</sup>, b en bar<sup>-1</sup>, c en °C<sup>-1</sup>, et d sans dimension). Cette corrélation est valable pour des températures initiales allant jusqu'à 200°C, et pour des pressions allant jusqu'à 9 bars. Les 4 coefficients ont été calculés et sont donnés dans le Tableau 2.

H <sub>2</sub> /CO	a	b	c	d
20/80	4,3714. 10 <sup>-4</sup>	1,6857. 10 <sup>-1</sup>	-12,14. 10 <sup>-3</sup>	10,282
40/60	-1,7143. 10 <sup>-4</sup>	1,5629. 10 <sup>-1</sup>	-6,7543. 10 <sup>-3</sup>	7,8609
60/40	0,28571. 10 <sup>-4</sup>	1,1429. 10 <sup>-1</sup>	-7,0457. 10 <sup>-3</sup>	6,4371

Tableau 2 – Coefficients caractérisant la corrélation de Jaimes et al. [120] pour différents rapports H<sub>2</sub>/CO.

- Hustad et Sønju [121] :

Hustad et Sønju [121] ont établi une corrélation à partir de la relation établie par Schroeder et al. [135] et des lois de Le Chatelier, qui permet de déterminer la valeur de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air en fonction de la température initiale. Cette corrélation est donnée ci-dessous :

$$\frac{1}{LII_{H_2/CO}(T_{ini})} = \frac{y_{H_2}}{5 * (1 - 0,00129 * (T_0 - 25))} + \frac{y_{CO}}{15 * (1 - 0,00095 * (T_0 - 25))} \quad (15)$$

Avec,  $LII_{H_2/CO}(T_{ini})$  la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO à la température initiale  $T_{ini}$  souhaitée,  $y_{H_2}$  et  $y_{CO}$  les fractions massiques de H<sub>2</sub> et de CO respectivement, et  $T_0$  la température de référence (en °C). Cette corrélation est valable pour des températures initiales comprises entre 25°C et 520°C, et pour une pression atmosphérique. Les teneurs en H<sub>2</sub> et en CO peuvent varier entre 10 et 30%, et la teneur en N<sub>2</sub> entre 40 et 80%.

- Kondo et al. [119] :

Kondo et al. [119] ont établi deux corrélations permettant de déterminer la valeur de la limite d'inflammabilité inférieure, et de la limite d'inflammabilité supérieure, du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air en fonction de la température initiale. Ces corrélations sont données ci-dessous :

$$LII_{H_2/CO}(T_{ini}) = LII_{H_2/CO}(25^\circ C) - \frac{100 * c_p}{Q} (T_{ini} - 25) \quad (16)$$

$$LIS_{H_2/CO}(T_{ini}) = LIS_{H_2/CO}(25^\circ C) * \left[ 1 + \frac{100 * c_p}{LII_{H_2/CO}(25^\circ C) * Q} (T_{ini} - 25) \right] \quad (17)$$

Avec,  $LII_{H_2/CO}(T_{ini})$  et  $LIS_{H_2/CO}(T_{ini})$  les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange H<sub>2</sub>/CO à la température initiale  $T_{ini}$  souhaitée,  $LII_{H_2/CO}(25^\circ C)$  et  $LIS_{H_2/CO}(25^\circ C)$  les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange à la température initiale  $T_{ini} = 25^\circ C$ ,  $c_p$  la capacité thermique à pression constante des gaz frais à  $LII_{H_2/CO}(25^\circ C)$  (en J.K<sup>-1</sup>.mol<sup>-1</sup>), Q la chaleur de combustion molaire (en J.mol<sup>-1</sup>), et  $T_{ini}$  la température initiale souhaitée (en °C). Cette corrélation est valable pour des températures initiales comprises entre 5°C et 100°C, et pour une pression atmosphérique.

### 1.2.2.3.2. Pression initiale

Le deuxième paramètre initial à étudier est l'influence de la pression initiale sur le domaine d'inflammabilité du mélange  $H_2/CO/Air$ . Plusieurs auteurs ont déterminé des corrélations permettant de déterminer ces limites d'inflammabilité en fonction de la pression initiale [120, 136, 137]. Ces corrélations sont moins nombreuses que celles permettant de déterminer les limites d'inflammabilité en fonction de la température initiale.

Plusieurs études concernant l'influence de la pression initiale sur les limites d'inflammabilité de plusieurs mélanges à base d'hydrogène ont été menées. Ces études peuvent être divisées en deux grandes familles : d'une part, les études faites pour des pressions inférieures à 1 bar et d'une autre part, celles faites pour des pressions supérieures à 1 bar. Le et al. [138, 139] ont déterminé que la LII (LIS) de l'hydrogène diminue (augmente) avec la diminution de la pression initiale lorsqu'elle est comprise entre 0,3 et 1 atm. Puis, elle augmente lorsque la pression initiale continue de diminuer au-delà de 0,3 atm. Ainsi, ils ont pu conclure que le domaine d'inflammabilité de l'hydrogène s'étend lorsque la pression initiale passe de 0,1 à 0,3 atm, et il rétrécit par la suite lorsque la pression initiale continue d'augmenter. Le domaine d'inflammabilité le plus large correspond donc à la pression initiale de 0,3 atm. Il a été observé que la pression initiale a peu d'effets sur la LII jusqu'à une certaine pression, où le taux de réaction de combustion est fortement réduit par rapport à la pression initiale.

Des études portant sur les limites d'inflammabilité de l'hydrogène à des pressions supérieures à 1 bar ont montré que le domaine d'inflammabilité continue à se rétrécir lorsque la pression initiale passe de 1 bar à 10 bars, puis que ce domaine recommence à s'élargir avec une nouvelle augmentation de la pression au-delà de 10 bars [129, 140, 141, 142, 143, 144]. Tout d'abord, concernant l'évolution de la LII, Bone et al. [141] ont montré que lorsque la pression initiale augmente de 1 atm à 30 atm, la LII de l'hydrogène augmente progressivement, mais lorsque la pression initiale continue à augmenter de 30 bars à 125 bars, la LII de l'hydrogène diminue. Berle et Werner [143] sont arrivés à une conclusion similaire que celle énoncée ci-dessus. En effet, ils ont montré que lorsque la pression initiale augmente de 0,1 MPa à 13 MPa, la LII de l'hydrogène commence par augmenter puis diminue par la suite, et un point d'inflexion apparaît aux alentours de 2 MPa. Cependant, Liu et Zhang [137] ont constaté que lorsque la pression initiale augmente de 0,1 MPa à 0,4 MPa, la LII de l'hydrogène diminue progressivement. Zhang et al. [145] ont expliqué qu'avec l'augmentation de la pression initiale, les fractions molaires maximales des radicaux OH restent presque inchangées et les taux de production maximaux augmentent. Par conséquent, pour maintenir la même fraction molaire de OH, la consommation d'hydrogène doit être augmentée, ce qui entraîne une augmentation de la LII. Ils ont également constaté une influence négligeable de la pression initiale sur la LII dans une gamme de pressions initiales élevées allant de 2 à 4 MPa. Le fait que la pression initiale n'a pas de réelle influence sur la valeur de la LII a été constaté par d'autres études [139, 141, 146].

D'autre part, concernant l'évolution de la LIS, Bone et al. [141] ont montré que la LIS augmente progressivement avec l'augmentation de la pression initiale lorsque celle-ci est supérieure à 10 atm. De même, Liu et Zhang [137] et Van den Schoor et Verplaetsen [147] ont constaté que la LIS augmente avec l'augmentation de la pression initiale. Shebeko et al. [129] ont conclu que l'augmentation de la pression initiale a comme conséquence la diminution du domaine d'inflammabilité du mélange  $H_2/O_2/N_2$ . Ce rétrécissement peut être expliqué par une diminution des concentrations relatives des radicaux actifs dans le front de flamme, suite à une augmentation des taux de réactions de recombinaison. Contrairement à la LII, la pression initiale semble avoir une influence non négligeable sur la LIS [138].

Lorsque le nombre de molécules de gaz augmente à haute pression, la chaleur de combustion augmente également. Pour la LII (état riche en oxygène), la chaleur ou l'énergie de combustion est le

facteur dominant, car un minimum de combustible est nécessaire pour générer suffisamment de chaleur pour dépasser la perte de chaleur et pour que la combustion se propage dans toute l'enceinte. Cependant, pour la LIS (état riche en combustible, mais manque d'oxygène), ce sont les pertes de chaleur et le manque d'oxygène qui déterminent la valeur de la LIS [148]. Dans le cas des mélanges H<sub>2</sub>/CO, il est possible de conclure que par rapport aux hydrocarbures, l'oxydation des mélanges H<sub>2</sub>/CO est régie par des dimensions sensiblement plus faibles en termes de nombre de réactions intermédiaires et d'espèces [149]. Toutes les conclusions données ci-dessus pour le mélange H<sub>2</sub>/Air restent valables pour le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. En effet, la phénoménologie relative à l'hydrogène prédomine sur ce mélange, qui se comportera donc de façon similaire.

L'étude de l'influence de la pression initiale sur les limites d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air n'est pas simple. En effet, l'évolution de la LII n'est pas monotone avec l'augmentation de la pression initiale, et toutes les études de la littérature ne sont pas forcément en accord les unes avec les autres.

La corrélation permettant de décrire l'influence de la pression initiale sur la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, trouvée dans la littérature, est donnée ci-dessous :

- Jaimes et al. [120] :

La corrélation établie par Jaimes et al. [99] est la même que celle utilisée pour la détermination de la LII en fonction de la température initiale. Celle-ci permet aussi, en fixant la valeur de la pression initiale, de déterminer la valeur de la LII en fonction de la température initiale. Celle-ci est donnée par :

$$LII_{H_2/CO}(P) = [a * T + b] * P + c * T + d \quad (17)$$

Avec,  $LII_{H_2/CO}(P)$  la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO à la pression initiale  $P$  souhaitée,  $T$  la température initiale du mélange (en °C),  $P$  la pression initiale souhaitée (en bar), et  $a$ ,  $b$ ,  $c$  et  $d$  les coefficients calculés pour différents rapports H<sub>2</sub>/CO ( $a$  en bar<sup>-1</sup>.°C<sup>-1</sup>,  $b$  en bar<sup>-1</sup>,  $c$  en °C<sup>-1</sup>, et  $d$  sans dimension). Cette corrélation est valable pour des températures initiales allant jusqu'à 200°C, et pour des pressions allant jusqu'à 9 bars. Les 4 coefficients ont été calculés et donnés dans le Tableau 3.

H <sub>2</sub> /CO	a	b	c	d
20/80	4,3714. 10 <sup>-4</sup>	1,6857. 10 <sup>-1</sup>	-12,14. 10 <sup>-3</sup>	10,282
40/60	-1,7143. 10 <sup>-4</sup>	1,5629. 10 <sup>-1</sup>	-6,7543. 10 <sup>-3</sup>	7,8609
60/40	0,28571. 10 <sup>-4</sup>	1,1429. 10 <sup>-1</sup>	-7,0457. 10 <sup>-3</sup>	6,4371

Tableau 3 – Coefficients caractérisant la corrélation de Jaimes et al. [120] pour différents rapports H<sub>2</sub>/CO.

### 1.2.2.3.3. Ajout de diluants

Le troisième paramètre initial ayant une influence sur le domaine d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air est la dilution du mélange combustible (ajout de CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O<sub>vap</sub>, ou même N<sub>2</sub>). Deux types de résultats peuvent être trouvés dans la littérature : d'une part des corrélations permettant de déterminer les limites d'inflammabilité en fonction de la dilution, et des valeurs déterminées expérimentalement d'autre part. Plusieurs auteurs ont déterminé des corrélations permettant de déterminer ces limites d'inflammabilité en fonction du taux de diluant dans le mélange initial, et de déterminer la LOC (Limiting Oxygen Concentration) par la même occasion [150, 151, 152]. Ces corrélations sont moins nombreuses que celles permettant de déterminer les limites d'inflammabilité en fonction de la température, et de la pression initiales.

La dilution du mélange initial avec de l'azote ou de la vapeur d'eau ont été toutes les deux suggérées comme méthodes possibles de contrôle d'une combustion de H<sub>2</sub>/CO, en modifiant les limites d'inflammabilité [153]. Les effets de la dilution par un inerte sur la combustion d'un mélange combustible doivent être considérés sous les trois aspects suivants : une teneur en oxygène plus faible, une température de flamme réduite, et un mécanisme de réaction modifié [131]. Pour la réalisation de

cette étude, il est important de définir ce qu'est la LOC. La LOC, ou Limiting Oxygen Concentration est la teneur minimale en oxygène nécessaire pour qu'un mélange combustible puisse s'enflammer. Lorsque le rapport  $O_2/N_2$  varie par rapport à la valeur « normale » de 0,264 (rapport correspondant à l'air), dans le but d'obtenir une atmosphère appauvrie en oxygène, il est important de s'assurer que la quantité en oxygène est suffisante pour réagir avec le combustible et générer la propagation d'une flamme autoentretenu. Une corrélation permettant de calculer la LOC a été établie par Grune et al. [150]. De même, la définition du PIF est importante. Le PIF, ou Point d'Inertisation du Combustible, correspond à la teneur en diluant au-dessus de laquelle le mélange n'est plus inflammable [154]. Une méthode empirique permettant de déterminer la fraction molaire du diluant au point d'inertage du combustible, à 25°C et à 1 atm, a été développée par Mendiburu et al. [154]. Le point d'inertage en combustible correspond au « nez » de la courbe qui relie la limite d'inflammabilité inférieure et la limite d'inflammabilité supérieure du mélange combustible sur le diagramme de Shapiro (cf. Figure 4 – Chapitre 1 – partie 1.2).

Plusieurs études concernant l'influence de l'ajout de diluants sur les limites d'inflammabilité de plusieurs mélanges à base d'hydrogène ont été menées au cours de ces dernières années. Li et al. [155] ont montré que les lois de Le Chatelier ne sont pas valables dans des conditions de dilution inerte élevée (valeurs supérieures à 70%). Il a été montré que l'augmentation de la teneur en diluant dans le mélange, entraîne une très légère augmentation de la LII et une diminution de la LIS [154, 151, 156, 123]. Ainsi, le domaine d'inflammabilité est réduit par l'augmentation du taux de dilution. Les valeurs expérimentales (LII, LIS, LOC et LAC) déterminées par Van den Schoor et al. [133] sont données dans l'ANNEXE 2 : Valeurs expérimentales déterminées par Van den Schoor et al. La LAC, ou Limiting Air Concentration est la teneur minimale en air nécessaire pour qu'un mélange combustible puisse s'enflammer. La valeur de la LII du mélange  $H_2/CO/Air$  ne connaît qu'une très légère variation avec l'ajout d'azote au mélange [125, 133]. Cela est sûrement dû aux capacités thermiques à pression constante similaires de l'air et de l'azote, et au fait que l'oxygène est en excès dans le cadre de l'étude de la LII [152]. Cependant, cette même valeur augmente avec l'ajout de vapeur d'eau au mélange initial. En effet, la capacité thermique à pression constante de l'eau étant supérieure à celle de l'air pourrait expliquer cette différence de comportement entre les deux diluants. De plus, les pertes de chaleur générées par la vapeur d'eau sont supérieures à celles générées par l'azote, car la vapeur d'eau est une espèce rayonnante. En raison de sa plus grande capacité thermique à pression constante et de son effet inhibiteur sur l'oxydation du CO et la génération de radicaux H, le  $CO_2$  a présenté un effet de dilution plus fort sur la LII que le  $N_2$  [131]. Shang et al. [131] ont montré qu'il existe une valeur seuil d'ajout de diluant ( $N_2$  ou  $CO_2$ ) au-delà de laquelle l'augmentation de la valeur de la LII devient considérable en raison de l'influence combinée de l'inhibition cinétique et thermique. Shebeko et al. [129] ont souligné qu'il existe deux mécanismes de réaction rivaux dans un système de combustion impliquant  $H_2/CO/O_2/N_2$  : (1) si le radical libre  $HO_2$  réagit pour générer un radical libre OH ou un radical libre O, la réaction de combustion se maintient et (2) si le radical libre  $HO_2$  réagit pour générer  $O_2$ , la réaction de combustion s'arrête. Xie et al. [157] et Katsumi et al. [158] ont montré que l'ajout de  $CO_2$  ou de  $H_2O_{vap}$  a comme effet de diminuer la pression maximale, ainsi que sa vitesse d'augmentation à l'intérieur de l'enceinte. De même, le nombre de Péclet et la longueur de Markstein diminuent. Ils ont montré que le  $CO_2$  a un effet plus important sur ces paramètres que la vapeur d'eau. L'ajout de vapeur d'eau a comme effet de retarder l'accélération d'une flamme  $H_2/CO/Air$ . Les diluants peuvent être classés par celui qui a le plus d'impact sur les valeurs des limites d'inflammabilité à celui qui en a le moins : dioxyde de carbone > vapeur d'eau > azote > hélium [159, 156, 130, 131, 160].

Shang et al. [131] ont tracé les valeurs de la LII du mélange  $H_2/CO/Air$  en fonction de la teneur en diluants ( $N_2$  et  $CO_2$ ) dans le mélange pour plusieurs températures initiales et pour plusieurs rapports  $H_2/CO$ . Ces résultats sont présentés sur la Figure 11.

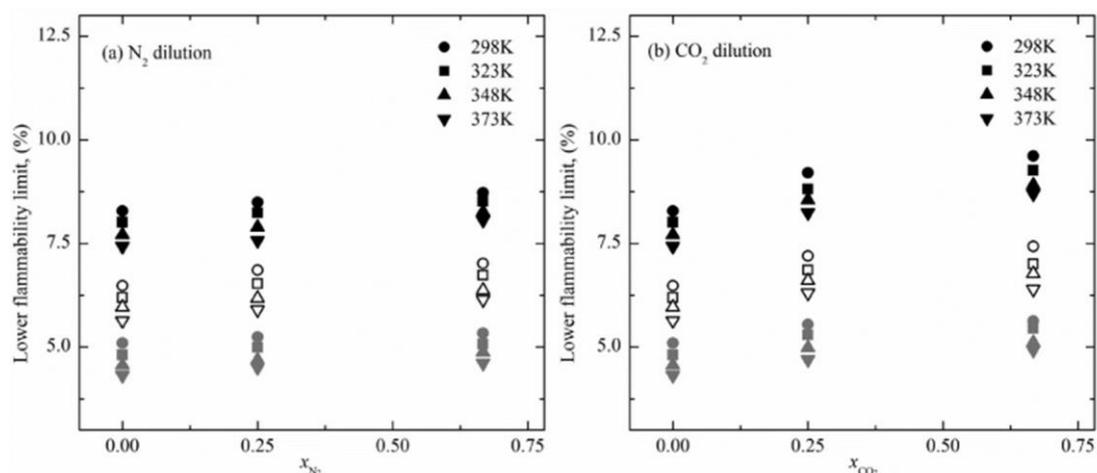


Figure 11 – LII du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air en fonction de la teneur en diluant ajoutée pour plusieurs températures initiales, pour une pression atmosphérique de 1 bar, et pour plusieurs teneurs en H<sub>2</sub> différentes. (a) : Cas du N<sub>2</sub>. (b) : Cas du CO<sub>2</sub>. (Symboles noirs :  $x_{H_2} = 0,25$  ; symboles blancs :  $x_{H_2} = 0,5$  ; symboles gris :  $x_{H_2} = 0,75$ ) [131].

Holborn et al. [153] ont montré que l'ajout conjoint d'azote et de brouillard d'eau a comme effet de réduire considérablement la valeur de la LIS, et par conséquent le domaine d'inflammabilité du mélange. En effet, lorsqu'elles sont transportées dans la zone de réaction de la flamme, les gouttelettes de brouillard d'eau s'évaporent en extrayant la chaleur de la flamme, ce qui réduit le taux de réaction et donc la vitesse de combustion à laquelle la flamme se propage. Cet effet est remarquable lorsque la densité du brouillard d'eau passe de 0,17 kg.m<sup>-3</sup> à 0,25 kg.m<sup>-3</sup>. De même, concernant la vapeur d'eau, l'effet de la dilution est plus important lorsque la teneur en H<sub>2</sub>O est inférieure à 30% et lorsqu'elle est supérieure à 60%. Cependant, Cheikhravat et al. [161] ont montré qu'un mélange non inflammable peut le devenir lorsqu'il est aspergé par un jet d'eau froide. Cette aspersion d'eau froide va induire un refroidissement de l'atmosphère conduisant à la condensation de la vapeur d'eau. Un tel scénario pourrait se produire si les vaporisateurs d'eau étaient déclenchés dans une centrale nucléaire à la suite d'un accident grave afin de réduire la pression et de refroidir les parois de l'enceinte de confinement. La présence de brouillard d'eau dans le mélange n'a pas déplacé la LII tant que la densité de gouttelettes fines est inférieure à une valeur critique qui correspond à une distance moyenne entre 2 gouttelettes de l'ordre de 10 fois la SMD (50 μm).

Contrairement aux corrélations, les valeurs déterminées dans la littérature correspondant aux limites d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air en présence de diluant, ne seront pas présentées par la suite. En effet, ce travail se concentrera sur deux axes spécifiques en termes d'ajout de diluants. D'une part, les limites d'inflammabilité du domaine H<sub>2</sub>/CO/Air avec une atmosphère appauvrie en oxygène seront déterminées. Puis, sera déterminée la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> pour un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique (cf. Chapitre 3 – partie 2). Il n'y a pas de données dans la littérature concernant cette limite d'inertage.

Les corrélations permettant de décrire l'influence de la présence de diluants sur la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, trouvées dans la littérature, sont données ci-dessous :

- Kondo et al. [151] :

Kondo et al. [151] ont développé une corrélation permettant de prendre en compte l'ajout de diluants sur les limites d'inflammabilité d'un combustible individuel (donc H<sub>2</sub>/Air ou CO/Air en l'occurrence). Pour cela, ils se sont basés sur les lois de Le Chatelier. Les corrélations sont données par les expressions ci-dessous :

$$\frac{X_1}{LII(diluant)} = \frac{X_1}{LII} + p * X_{in} \quad (18)$$

$$\frac{X_1 * n_1}{100 - \left(\frac{LIS(diluant)}{X_1}\right)} = \frac{X_1 * n_1}{100 - LIS} + q * X_{in} + r * X_{in}^2 + s * X_{in}^3 \quad (19)$$

Avec,  $X_1$  la fraction molaire du combustible individuel étudié,  $LII(diluant)$  et  $LII$  les limites d'inflammabilité inférieures du mélange avec et sans diluant respectivement,  $X_{in}$  la fraction molaire de diluant dans le mélange,  $n_1$  le nombre de moles du combustible individuel étudié dans le mélange (en mol),  $LIS(diluant)$  et  $LIS$  les limites d'inflammabilité supérieures du mélange avec et sans diluant respectivement, et  $p$ ,  $q$ ,  $r$ , et  $s$  des paramètres expérimentaux à déterminer. Cette corrélation est valable pour une température ambiante, et pour une pression atmosphérique.

- Wang et al. [152] :

Wang et al. [152] ont développé une corrélation permettant de prendre en compte l'ajout de diluants sur les limites d'inflammabilité inférieures d'un mélange combustible  $H_2/CO$ . Les corrélations sont données par les expressions ci-dessous :

$$[LII]_{diluant 1} = 0,0013X^2 - 0,2152X + 13,002 \quad (20)$$

$$[LII]_{diluant 2} = 0,0007X^2 - 0,1488X + 11,485 \quad (21)$$

Avec  $[LII]_{diluant 1}$  et  $[LII]_{diluant 2}$  les limites d'inflammabilité inférieures du mélange combustible en fonction des deux dilutions étudiées : 1 – oxygène pur ( $H_2/CO/O_2$ ) ; et 2 – ajout de 20% de  $H_2O$  ( $H_2/CO/O_2/H_2O$ ), et  $X$  la fraction molaire en hydrogène dans le mélange combustible. Cette corrélation est valable pour des températures initiales comprises entre 25 et 150°C, et pour une pression atmosphérique.

### 1.3. Vitesses de flamme laminaires

La troisième, et dernière étape, dans la définition des propriétés fondamentales de ces flammes, est la définition des vitesses de flamme laminaires. Dans cette partie, seront vus dans un premier temps les aspects théoriques (Mallard et Le Chatelier, Zel'dovich, Frank-Kamenetskii et Semenov). Puis, dans un deuxième temps, seront caractérisés les différents paramètres fondamentaux des flammes de prémélange (énergie d'activation, nombre de Zel'dovich, et épaisseur de flamme). Finalement, le cas particulier du mélange étudié :  $H_2/CO/Air$  sera étudié.

#### 1.3.1. Aspects théoriques

La détermination des vitesses de flamme laminaires est nécessaire pour définir le critère d'accélération de flamme. La vitesse de flamme laminaire étirée, notée  $S_l$ , est conventionnellement définie comme étant la vitesse à laquelle le front de flamme se déplace par rapport aux gaz frais dans un plan unidimensionnel [162]. Selon cette définition il n'existe pas une vitesse  $S_l$  unique pour un mélange combustible donné et pour des conditions thermodynamiques (pression et températures initiales) définies. D'autres effets non négligeables rentrent alors en jeu tels que : l'étirement de la flamme, les transferts de chaleur liés aux pertes thermiques au niveau du front de flamme, entre autres. Ainsi, la vitesse fondamentale de flamme à étirement nul, notée  $S_l^0$  peut donc, être définie de telle sorte à ce qu'elle ne soit pas impactée par ces effets. Celle-ci est définie comme étant la vitesse des gaz frais dans une direction normale au front de flamme. Ainsi, la flamme laminaire est considérée comme étant plane, 1D, adiabatique, non étirée, et qui se propage librement dans le milieu. Cependant, dans la pratique,

l'écoulement n'est que très rarement totalement uniforme, et la flamme n'est donc que très rarement totalement plane. Ces flammes légèrement courbées se voient très affectées par la courbure locale et par les instabilités hydrodynamiques ou thermo-diffusives (cf. Chapitre 1 – partie 2.3.1) [163]. La vitesse fondamentale de flamme ne dépend donc que de la composition du mélange combustible et des conditions thermodynamiques initiales (pression et température). Une relation donnée par Markstein [164], puis validée par les études de Matalon et Matkowsky [165] et Clavin [166], permet de corréliser la vitesse laminaire de flamme, à la vitesse fondamentale de flamme pour une flamme faiblement étirée. Elle est donnée par :

$$S_l = S_l^0 - L_b * \kappa \quad (22)$$

Avec,  $S_l$  la vitesse de flamme laminaire étirée (en m.s<sup>-1</sup>),  $S_l^0$  la vitesse de flamme à étirement nul (en m.s<sup>-1</sup>),  $L_b$  la longueur de Markstein (sensibilité de la flamme à l'étirement) (en m), et  $\kappa$  le taux d'étirement (en s<sup>-1</sup>).

Des corrélations non-linéaires ont été établies par Ronney et Sivashinsky [167], Kelley et Law [168], et Kelley et al. [169]. Elles se basent sur l'équation établie par Markstein [164], et rajoutent des hypothèses supplémentaires : elles supposent une flamme ayant un rayon très large par rapport à l'épaisseur de flamme ( $r_f \gg \delta_l$ ), et elles supposent aussi un nombre de Lewis non unitaire ( $L_e \neq 1$ ). Des méthodes d'extrapolation qui permettent de déterminer ces vitesses de flamme laminares ont été développées par plusieurs auteurs [170, 168, 171, 172]. Le modèle établi par Kelley et al. [169] fait l'hypothèse supplémentaire d'une flamme adiabatique soumise à un fort étirement.

Le calcul des vitesses laminares de flamme dépend de plusieurs grandeurs telles que le nombre de Markstein, le nombre de Karlovitz, le coefficient d'expansion, et le nombre de Lewis. Ces grandeurs sont définies comme suit :

- Nombre de Markstein et nombre de Karlovitz : Ce sont deux nombres adimensionnels permettant la caractérisation de la vitesse de flamme laminaire. Ils sont donnés par :

$$M_b = \frac{L_b}{\delta_l} \text{ et } K_a = \frac{\delta_l}{S_l^0} * \kappa \quad (23)$$

Avec,  $M_b$  le nombre de Markstein des gaz brûlés,  $L_b$  la longueur de Markstein des gaz brûlés (en m),  $\delta_l$  l'épaisseur de flamme laminaire non étirée (en m) donnée par :  $\delta_l = \frac{\alpha_T}{S_l^0}$ ,  $\alpha_T$  la diffusivité thermique du mélange (en m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>),  $K_a$  le nombre de Karlovitz,  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en m.s<sup>-1</sup>),  $\kappa = \frac{1}{A_f} * \frac{dA_f}{dt} = \frac{2}{r_f} * \frac{dr_f}{dt}$  (dans le cadre d'une flamme sphérique) le taux d'étirement (en s<sup>-1</sup>), et  $r_f$  le rayon de la flamme sphérique (en m).

À partir de ces deux grandeurs, il est possible d'établir une corrélation reliant la vitesse de flamme laminaire à la vitesse fondamentale de flamme. Celle-ci est donnée ci-dessous :

$$\frac{S_l}{S_l^0} = 1 - M_b * K_a \quad (24)$$

Avec,  $S_l$  la vitesse de flamme laminaire étirée (en m.s<sup>-1</sup>),  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en m.s<sup>-1</sup>),  $M_b$  le nombre de Markstein, et  $K_a$  le nombre de Karlovitz.

- Coefficient d'expansion de la flamme et nombre de Lewis : Ce sont deux nombres adimensionnels permettant la caractérisation de la vitesse de flamme laminaire. Ils sont donnés par :

$$\sigma = \frac{\rho_f}{\rho_b} \text{ et } L_e = \frac{\alpha_T}{D_{mol}} \quad (25)$$

Avec,  $\sigma$  le coefficient d'expansion de la flamme,  $\rho_b$  la masse volumique des gaz brûlés (en  $\text{kg.m}^{-3}$ ),  $\rho_f$  la masse volumique des gaz frais (en  $\text{kg.m}^{-3}$ ),  $L_e$  le nombre de Lewis,  $\alpha_T$  la diffusivité thermique (en  $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ ), et  $D_{mol}$  la diffusivité de masse (en  $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ ).

La méthode de détermination de la vitesse fondamentale de flamme dépend de la géométrie du front de flamme : flammes coniques stabilisées sur brûleur, flammes plates stabilisées par flux de chaleur, méthode de « counterflow flames », ou bien flammes à propagation sphérique [163]. Dans le cas d'une flamme à propagation sphérique, il est possible de relier la vitesse fondamentale de flamme à la vitesse spatiale du front de flamme et au coefficient d'expansion de celle-ci [17]. Ceci se traduit par la relation suivante :

$$S_l^0 = \frac{V_S}{\sigma} \quad (26)$$

Avec,  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en  $\text{m.s}^{-1}$ ),  $V_S$  la vitesse spatiale de la flamme (évolution du rayon de la flamme laminaire en fonction du temps au sein de l'enceinte expérimentale) (en  $\text{m.s}^{-1}$ ), et  $\sigma$  le coefficient d'expansion de la flamme.

Deux approches théoriques distinctes, traitant chacune d'un mécanisme de combustion différent, ont été mises en place dans le but de déterminer les vitesses fondamentales de flamme. D'une part, la première approche théorique se concentre sur les phénomènes de transport (théories thermiques), et d'autre part, la deuxième approche théorique se concentre sur les phénomènes de diffusion (diffusion d'atomes et de radicaux libres – théories diffusionnelles). Les théories thermiques restent les plus faciles à mettre en place. Les théories de Mallard et Le Chatelier et de Zel'dovich, Frank-Kamenetskii et Semenov seront détaillées par la suite.

### 1.3.1.1. Mallard et Le Chatelier

La théorie de Mallard et Le Chatelier est la première théorie permettant de décrire la combustion d'une flamme. Elle a été décrite par François Ernest Mallard et Henry Le Chatelier, deux scientifiques français, en 1885. Glassman [173] décrit le phénomène de déplacement du front de flamme comme étant le résultat de la propagation du flux de chaleur qui se déplace depuis les gaz frais vers les gaz brûlés. Ainsi, pour le développement de leur théorie, ils se sont appuyés sur les diverses équations de conservation, et notamment la conservation de l'énergie.

Une hypothèse concernant l'évolution de la température en fonction de la position dans la flamme a été faite. En effet, ils ont décomposé spatialement la flamme en deux zones distinctes : la zone de préchauffage, et la zone de réaction. Les deux zones sont séparées par le lieu exact de l'inflammation des gaz frais. La première zone, ou zone de préchauffage, est une zone où les gaz frais sont chauffés par transfert de chaleur depuis les gaz brûlés. Dans cette zone, la température de la flamme passe de la température initiale des gaz frais  $T_0$  à une température d'inflammation  $T_{inf}$ , qui se trouve entre la température initiale des gaz frais et la température finale atteinte. L'épaisseur de cette zone, notée  $\delta_p$ , est relativement élevée par rapport à l'épaisseur de la deuxième zone, elle contient tout le gradient des températures comprises entre la température initiale et la température d'inflammation. La deuxième zone, ou zone de réaction, est une zone où la température continue d'augmenter à cause des réactions chimiques, et finit par se stabiliser à la température finale atteinte par la flamme. Dans cette zone, la température de la flamme passe de la température d'inflammation  $T_{inf}$ , à la température de flamme, ou température des gaz brûlés,  $T_b$ . L'épaisseur de cette zone, notée  $\delta_r$ , est moins élevée que celle de la première zone. L'épaisseur de flamme est donc donnée par :  $\delta_l = \delta_p + \delta_r$ . Le schéma présenté sur la Figure 3 (b) – Chapitre 1 – partie 1.1, décrit la structure d'une flamme laminaire vue par la théorie de Mallard et Le Chatelier.

Trois hypothèses simplificatrices sont faites dans le cadre de cette théorie dans le but de déterminer la vitesse de flamme laminaire :

- Évolution linéaire de la température dans la zone de réaction.
- Problème unidimensionnel : les gaz frais se déplacent en suivant la direction perpendiculaire au front de flamme.
- L'épaisseur de la zone de réaction est donnée par :

$$\delta_r = S_l * \frac{dt}{d\xi} \quad (27)$$

Avec,  $\delta_r$  l'épaisseur de la zone de réaction (en m),  $S_l$  la vitesse de flamme laminaire (en m.s<sup>-1</sup>), et  $\frac{d\xi}{dt}$  le taux d'avancement de la réaction (en s<sup>-1</sup>).

Il est donc possible de conclure que la vitesse de flamme laminaire dépend de la cinétique de la réaction et de sa diffusivité thermique au sein du milieu. La vitesse de flamme laminaire étirée est donc donnée par la relation ci-dessous :

$$S_l = \sqrt{\frac{\lambda_b}{\rho_f * c_p} * \frac{T_b - T_{inf}}{T_{inf} - T_0} * \frac{d\xi}{dt}} \quad (28)$$

Avec,  $S_l$  la vitesse de flamme laminaire étirée (en m.s<sup>-1</sup>),  $\lambda_b$  la conductivité thermique des gaz brûlés (en W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>),  $\rho_f$  la masse volumique des gaz frais (en kg.m<sup>-3</sup>),  $c_p$  la capacité thermique à pression constante (en J.kg<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>),  $T_b$  la température des gaz brûlés (en K),  $T_{inf}$  la température d'inflammation (en K),  $T_0$  la température initiale des gaz frais (en K), et  $\frac{d\xi}{dt}$  le taux d'avancement de la réaction (en s<sup>-1</sup>).

D'après cette théorie, proposée par Mallard et Le Chatelier, la vitesse de flamme laminaire dépend de deux paramètres qui sont la diffusivité thermique, et le taux global de réaction. La limite de cette théorie est la détermination de la température d'inflammation, qui se révèle indispensable pour la détermination de  $S_l$ , mais qui est difficile à déterminer expérimentalement.

### 1.3.1.2. Zel'dovich, Frank-Kamenetskii et Semenov

La théorie de Zel'dovich, Frank-Kamenetskii et Semenov, est une théorie décrite par Iakov Zel'dovich, David A. Frank-Kamenetskii et Nikolay Semenov, trois scientifiques slaves, au XX<sup>e</sup> siècle. Cette théorie se base sur la théorie de Mallard et Le Chatelier détaillée ci-dessus [17]. En effet, la structure de la flamme laminaire en deux zones (préchauffage et réaction) reste la même que celle énoncée précédemment. L'une des différences les plus importantes entre les deux théories est la température d'inflammation. En effet, dans cette théorie l'inflammation se fait quasiment à la température finale de la flamme, ou température des gaz brûlés. Ainsi, la température d'inflammation est considérée comme étant très proche de la température adiabatique de flamme. Plusieurs hypothèses sont émises lors de la mise en place de cette théorie :

- La flamme est considérée comme stationnaire, unidimensionnelle et adiabatique.
- Conservation de l'énergie.
- Conservation de la masse ou des espèces.
- La pression est constante au cours de la réaction.
- Capacité thermique constante.
- Conductivité thermique constante.
- Les différents nombres adimensionnels sont constants et égaux à 1 : nombre de Lewis ( $L_e$ ), nombre de Prandtl ( $P_r$ ), et nombre de Schmidt ( $S_c$ ). Ces nombres sont définis comme suit :

$$P_r = \frac{\mu * c_p}{\lambda} ; S_c = \frac{\mu}{\rho * D_{mol}} \text{ et } L_e = \frac{\alpha_T}{D_{mol}} \quad (29)$$

Avec,  $P_r$  le nombre de Prandtl,  $\mu$  la viscosité dynamique du mélange (en  $\text{Pa}\cdot\text{s}^{-1}$ ),  $c_p$  la capacité thermique à pression constante (en  $\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ),  $\lambda$  la conductivité thermique du mélange (en  $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ),  $S_c$  le nombre de Schmidt,  $\rho$  la masse volumique du mélange (en  $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ),  $D_{mol}$  la diffusivité de matière (en  $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ ),  $L_e$  le nombre de Lewis, et  $\alpha_T$  la diffusivité thermique (en  $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ ).

Une combinaison de la résolution de l'équation de conservation de l'énergie et de l'équation de conservation de la masse donne la relation suivante permettant de déterminer la vitesse fondamentale de flamme :

$$S_l^0 = \sqrt{\frac{2 * \lambda_f * c_{p,f} * A}{\rho_0 * \bar{c}_p^2} * \frac{T_0}{T_f} * \frac{n_r}{n_p} * L_e * \frac{R * T_f^2}{E_a} * \frac{e^{\frac{-E_a}{R * T_f}}}{(T_f - T_0)^2}} \quad (30)$$

Avec,  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ),  $\lambda_f$  la conductivité thermique dans les gaz frais (en  $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ),  $c_{p,f}$  la capacité thermique à pression constante dans les gaz frais (en  $\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ),  $A$  un facteur préexponentiel,  $\rho_0$  la masse volumique initiale (en  $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ),  $\bar{c}_p$  a capacité thermique à pression constante moyenne entre  $T_0$  et  $T_f$  (en  $\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ),  $T_0$  la température initiale des gaz frais (en K),  $T_f$  la température adiabatique de flamme (en K),  $n_r$  le nombre de moles des réactifs (en mol),  $n_p$  le nombre de moles des produits (en mol),  $L_e$  le nombre de Lewis,  $R = 8,314$  la constante universelle des gaz parfaits (en  $\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ), et  $E_a$  l'énergie d'activation (en  $\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}$ ).

### 1.3.2. Paramètres fondamentaux des flammes de prémélange

La définition de quelques paramètres fondamentaux des flammes de prémélange gravitant autour de la définition de la vitesse de flamme laminaire sera faite : l'énergie d'activation, du nombre de Zel'dovich, et de l'épaisseur de flamme (cf. Chapitre 1 – partie 1.3.1.2).

#### - Énergie d'activation :

La constante de vitesse est directement reliée à l'énergie d'activation par la constante de vitesse (cf. équation (4)). En effet, cette constante de vitesse de réaction est reliée à l'énergie d'activation, et à la température adiabatique de flamme, par la loi d'Arrhenius. Son expression est donnée par :

$$k = A * \exp\left(\frac{-E_a}{R * T_f}\right) \quad (31)$$

Avec,  $k$  la constante de vitesse de la réaction (en  $\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$ ),  $A$  un facteur préexponentiel,  $E_a$  l'énergie d'activation (en  $\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}$ ),  $R = 8,314$  la constante universelle des gaz parfaits (en  $\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ), et  $T_f$  la température adiabatique de flamme (en K).

Or, la vitesse fondamentale de flamme est reliée au taux global de réaction par la relation suivante :  $S_l^0 = \sqrt{\alpha * k}$ . Ainsi, il est possible de formuler une relation permettant de relier la vitesse fondamentale de flamme à l'énergie d'activation. Celle-ci est donnée par :

$$2 * \ln(S_l^0) - \ln(\alpha) = \left[-\frac{B * E_a}{R}\right] * \frac{1}{T_f} \quad (32)$$

Avec,  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ),  $\alpha$  la diffusivité thermique (en  $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$ ),  $B$  une constante de calcul fonction du facteur préexponentiel  $A$ ,  $E_a$  l'énergie d'activation (en  $\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}$ ),  $R = 8,314$  la constante universelle des gaz parfaits (en  $\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ), et  $T_f$  la température adiabatique de flamme (en K).

L'énergie d'activation peut donc être obtenue en déterminant la pente de la droite résultant du tracé de la grandeur  $2 * \ln(S_l^0) - \ln(\alpha)$  en fonction de l'inverse de la température adiabatique de flamme.

- Nombre de Zel'dovich :

Le nombre de Zel'dovich quant à lui est un nombre adimensionnel, noté  $\beta$ , défini par Zel'dovich et Frank-Kamenetskii, qui ont déterminé, d'après la théorie de Mallard et Le Chatelier, que le taux de réaction a un comportement non-linéaire. Ce nombre représente la réactivité du mélange, et donc l'énergie d'activation normalisée par la température adiabatique de flamme. Il est défini comme suit [166] :

$$\beta = \frac{E_a}{R * T_f^2} * (T_f - T_0) \quad (33)$$

Avec,  $\beta$  le nombre de Zel'dovich,  $E_a$  l'énergie d'activation (en J.mol<sup>-1</sup>),  $R = 8,314$  la constante universelle des gaz parfaits (en J.mol<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>),  $T_f$  la température adiabatique de flamme (en K),  $T_0$  la température initiale des gaz frais (en K).

- Épaisseur de flamme laminaire :

Comme il a été vu précédemment, l'épaisseur de flamme peut être séparée en deux zones distinctes : une zone de préchauffage, et une zone de réaction. Lorsque les gaz frais traversent ces deux zones, ils montent en température rapidement jusqu'à ce que la réaction ait lieu et que le dégagement de chaleur soit suffisant pour permettre à la flamme d'être autoentretenu. La détermination de l'épaisseur de flamme laminaire se fait alors par l'ajout des épaisseurs des deux zones citées ci-dessus :  $\delta_l = \delta_p + \delta_r$  [174]. Ces deux zones ont des épaisseurs inégales, la zone de préchauffage étant plus épaisse. L'épaisseur de chacune de ces zones est donnée par :

- Zone de préchauffage : Son épaisseur est notée  $\delta_p$ , et elle est donnée par l'équilibre entre le flux d'énergie qui provient des gaz frais (donnée par la vitesse de flamme laminaire), et le flux de chaleur qui provient de la zone de réaction qui se trouve en aval de cette zone de préchauffage. L'augmentation de la température initiale, jusqu'à atteindre la température d'inflammation, ou la température adiabatique de flamme (en fonction de la théorie utilisée) se fait par la juxtaposition de la diffusion de masse (prise en compte uniquement dans le cas de la théorie de Zel'dovich, Frank-Kamenetskii et Semenov) et la diffusion de la chaleur. Elle est donnée par :

$$\delta_p = \frac{\lambda_f}{\rho_f * c_{p,f} * S_l^0} \quad (34)$$

Avec,  $\delta_p$  l'épaisseur de la zone de préchauffage (en m),  $\lambda_f$  la conductivité thermique dans les gaz frais (en W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>),  $\rho_f$  la masse volumique des gaz frais (en kg.m<sup>-3</sup>),  $c_{p,f}$  la capacité thermique à pression constante dans les gaz frais (en J.kg<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>), et  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en m.s<sup>-1</sup>).

D'autres méthodes de détermination de l'épaisseur de la zone de préchauffage ont été établies dans la littérature [174, 175, 176, 177, 178]. Ces théories se basent sur des paramètres différents (production d'une espèce en particulier, consommation d'un des réactifs, entre autres).

- Zone de réaction : Son épaisseur est notée  $\delta_r$ , et elle est donnée par les deux paramètres suivants : le nombre de Zel'dovich et l'épaisseur de la zone de préchauffage. Il s'agit de la zone où la réaction de combustion a lieu et donc de la zone où le dégagement de chaleur est le plus important. Cette zone est délimitée par deux températures différentes : la température d'inflammation, ou la température adiabatique de flamme (en fonction de la théorie utilisée), et la température des gaz brûlés. Elle est donnée par :

$$\delta_r = \frac{\delta_p}{\beta} \quad (35)$$

Avec,  $\delta_r$  l'épaisseur de la zone de réaction (en m),  $\delta_p$  l'épaisseur de la zone de préchauffage (en m), et  $\beta$  le nombre de Zel'dovich. En règle générale le nombre de Zel'dovich est très grand par rapport à 1, d'où le fait que l'épaisseur de la zone de réaction est beaucoup plus petite que celle de la zone de préchauffage.

Une théorie plus complète permettant de déterminer l'épaisseur de flamme laminaire a été détaillée par Poinot et Veynante [162]. Cette théorie se base sur la modélisation de l'évolution de la température de la flamme au cours des différentes zones du front de flamme. La difficulté de cette théorie réside dans le fait qu'il faut détailler correctement le mécanisme cinétique. Ceci n'est pas toujours facile à mettre en place en fonction du système chimique considéré. Dans le cadre de cette théorie, l'épaisseur de flamme laminaire est définie comme suit :

$$\delta_l = \frac{T_b - T_0}{\left(\frac{dT}{dx}\right)_{max}} \quad (36)$$

Avec,  $\delta_l$  l'épaisseur de flamme laminaire (en m),  $T_b$  la température des gaz brûlés (en K),  $T_0$  la température initiale des gaz frais (en K), et  $\left(\frac{dT}{dx}\right)_{max}$  le gradient thermique maximal au travers du front de flamme (en K.m<sup>-1</sup>).

Finalement, il est possible de définir le temps de passage des gaz (frais, puis brûlés) à travers le front de flamme laminaire. Celui-ci est noté  $\tau_c$ . Il est donné par la relation suivante :

$$\tau_c = \frac{\delta_l}{S_l^0} \quad (37)$$

Avec,  $\tau_c$  le temps de transit des gaz (frais, puis brûlés) à travers la flamme laminaire (en s),  $\delta_l$  l'épaisseur de flamme laminaire (en m), et  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en m.s<sup>-1</sup>).

### 1.3.3. Cas du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air

Les vitesses de flamme laminaires des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air ont été largement étudiées dans la littérature. En effet, plusieurs auteurs ont établi des corrélations permettant de les déterminer en fonction des différents paramètres de la combustion (ajout de diluants, vitesses de flamme laminaires des gaz individuels : H<sub>2</sub>/Air et CO/Air, richesse, température initiale, teneur maximale en radicaux H, pression initiale, teneur en hydrogène) [179, 180, 181, 182, 183, 184, 185, 186, 187, 188] et [189, 190, 191]. La corrélation proposée par Ravi et Petersen [191] fournit une estimation de la vitesse fondamentale de flamme avec une précision très correcte par rapport au modèle cinétique (moins de 12% d'erreur) pour les mélanges ayant une teneur en hydrogène comprise entre 50% et 100%. Lorsque la teneur en hydrogène diminue jusqu'à atteindre 5%, la corrélation n'est plus en mesure de déterminer correctement la valeur de la vitesse de flamme laminaire du mélange. Ainsi, la corrélation proposée est capable d'estimer les vitesses fondamentales de flamme pour des mélanges H<sub>2</sub>/CO pauvres, contenant au moins 15% d'hydrogène, en utilisant le mécanisme simple de l'hydrogène au lieu du mécanisme plus complexe du syngas en lui-même. Le principe pour déterminer leur corrélation a été de soumettre l'idée que lorsque la teneur en hydrogène dans le mélange est suffisamment élevée, alors la réaction, et donc sa vitesse sont majoritairement influencées par l'hydrogène et non pas par le CO à cause du coefficient de diffusivité de l'hydrogène qui est beaucoup plus élevé. Leur corrélation se base donc en grande partie sur la corrélation de la vitesse de flamme laminaire du mélange H<sub>2</sub>/Air. Dans ce cas, pour étendre la corrélation à un mélange générique de H<sub>2</sub>/CO/Air/H<sub>2</sub>O avec des concentrations de CO approchant les 100 % (dans le mélange H<sub>2</sub>/CO), il faudrait également incorporer les corrélations de vitesse de flamme

pour le monoxyde de carbone. Les résultats indiquent que les extrapolations linéaires classiques qui peuvent être trouvées dans la littérature surestiment systématiquement, et de façon non négligeable, les vitesses de flamme laminaires pour les flammes très pauvres (par exemple, pour des ratios d'équivalence inférieures à 0,7) [192].

La vitesse de flamme laminaire est un paramètre important d'un mélange combustible, car elle contient des informations fondamentales sur la réactivité, la diffusivité et l'exothermicité. En fonction de cette vitesse de flamme laminaire, la flamme a plus ou moins tendance à subir des phénomènes tels que le retour de flamme (ou flash-back) et la génération d'ondes de souffle [180, 193]. En règle générale, les valeurs des vitesses de flamme laminaires déterminées expérimentalement sont plus élevées que celles déterminées numériquement [194]. En effet, la mesure précise expérimentale de la vitesse de flamme laminaire est difficile d'obtention. Cette mesure est dépendante de la méthode expérimentale employée pour l'obtenir. La méthode du brûleur Bunsen est une méthode d'obtention des vitesses de flamme laminaires fiable. Dans ce cas, la flamme est conique et est affectée par les pertes de chaleur au bord du brûleur, la déformation aérodynamique sur les côtés de la flamme, et la courbure importante à la pointe de la flamme [180]. Par exemple, une augmentation du diamètre du brûleur limite progressivement l'étude aux mélanges  $H_2/CO$  à faible teneur en  $H_2$ , en raison de l'augmentation des propensions au retour de flamme (flash-back) du mélange. La détermination des vitesses de flamme laminaires se fait surtout par la méthode de la bombe sphérique et du Counterflow, car il est possible de définir clairement leur taux d'étirement, ce qui permet l'extrapolation à une vitesse de flamme plane non étirée et adiabatique [193]. Le deuxième volet qui vient compléter le volet expérimental est le volet de la modélisation numérique. Parmi les mécanismes les plus utilisés qui permettent de mettre en place la modélisation numérique, se trouvent : Davis et al. [195] (modèle cinétique optimisé, qui comprend 14 espèces et 53 réactions), USC Mech II [196] (modèle cinétique dérivé du mécanisme de Davis et al. [195] qui comprend 111 espèces et 784 réactions : il permet de prendre en compte l'ajout de certaines espèces dans le mélange initial, comme c'est le cas du méthane), GRI-Mech 3.0 [197] (53 espèces et 325 réactions), Li-Mech [198] (21 espèces et 84 réactions), Frassoldati-Mech [199] (14 espèces et 32 réactions), Kéromnès-Mech [200] (15 espèces et 41 réactions), Sun et al. [201] (16 espèces et 48 réactions), San Diego [202] (57 espèces et 268 réactions), et Polimi-Mech [203] (21 espèces et 62 réactions). Le mécanisme cinétique utilisé dans le cadre de ce travail est le mécanisme Polimi-Mech [203]. Le mécanisme cinétique adapté est choisi en fonction des données déterminées expérimentalement. Il est ainsi possible, de valider ou de compléter, en fonction des conditions initiales choisies, la corrélation déterminée numériquement et permettant de décrire la flamme laminaire.

Les vitesses de flamme laminaires des mélanges  $H_2/CO/Air$  ayant été largement étudiées dans la littérature, il est possible d'en tirer quelques conclusions en fonction des différents paramètres thermodynamiques initiaux.

- Conditions thermodynamiques « standards » :

La vitesse de flamme laminaire augmente avec l'augmentation de la teneur en hydrogène dans le mélange [180, 204, 191, 192, 184, 205, 190]. Ceci peut être expliqué par le fait que la vitesse de flamme du mélange  $H_2/Air$  est beaucoup plus importante que celle du mélange  $CO/Air$ , et donc que celle du mélange  $H_2/CO/Air$ . L'augmentation de la vitesse de flamme laminaire en fonction de l'augmentation de la teneur en hydrogène, peut être divisée en trois régimes bien distincts. Le premier régime, qui correspond à une augmentation de la teneur en hydrogène de 0% à 20%, est un régime où la vitesse de flamme augmente fortement. Cette forte augmentation de la vitesse peut être expliquée par la sensibilité non négligeable de la réaction d'oxydation du  $CO$  à l'ajout de petites quantités d'hydrogène. Le deuxième régime, qui correspond à une augmentation de la teneur en hydrogène de 20% à 80%, est un régime où la vitesse de flamme laminaire augmente linéairement avec la teneur en  $H_2$ . Cette augmentation linéaire peut être aussi expliquée par la même raison que celle énoncée précédemment. Le troisième régime, qui correspond à une augmentation de la teneur en hydrogène de 80% à 100%, est à nouveau un régime où la vitesse de flamme laminaire augmente fortement. Ce régime est un peu

particulier du fait de la teneur élevée en hydrogène. En effet, dans ce cas, le mélange  $H_2/CO/Air$  peut s'apparenter, en termes de comportement, au mélange  $H_2/Air$ . L'ajout de  $H_2$  accélère sensiblement la vitesse de la réaction élémentaire  $CO + OH = CO_2 + H$  qui contrôle la vitesse de réaction globale. Lorsqu'une grande quantité de  $H_2$  est ajoutée au mélange, la cinétique chimique du  $H_2$  devient dominante et l'importance de l'oxydation du  $CO$  sur le taux de réaction chimique global diminue considérablement [205]. Une augmentation de la teneur en  $CO$  dans le mélange entraîne une augmentation monotone (presque linéaire) de la vitesse de flamme laminaire. Cette augmentation est attribuée au fait que l'augmentation de la teneur en radicaux  $H$  et  $OH$  favorise l'augmentation de la vitesse de réaction globale du mélange. De plus, l'augmentation de la teneur en  $CO$  conduit à un taux de libération de chaleur plus élevé [184].

La Figure 12 montre la comparaison de la vitesse de flamme pour deux mélanges  $H_2/CO$  différents, montrant que lorsque la teneur en  $H_2$  augmente dans le mélange initial, la vitesse de flamme laminaire augmente à son tour.

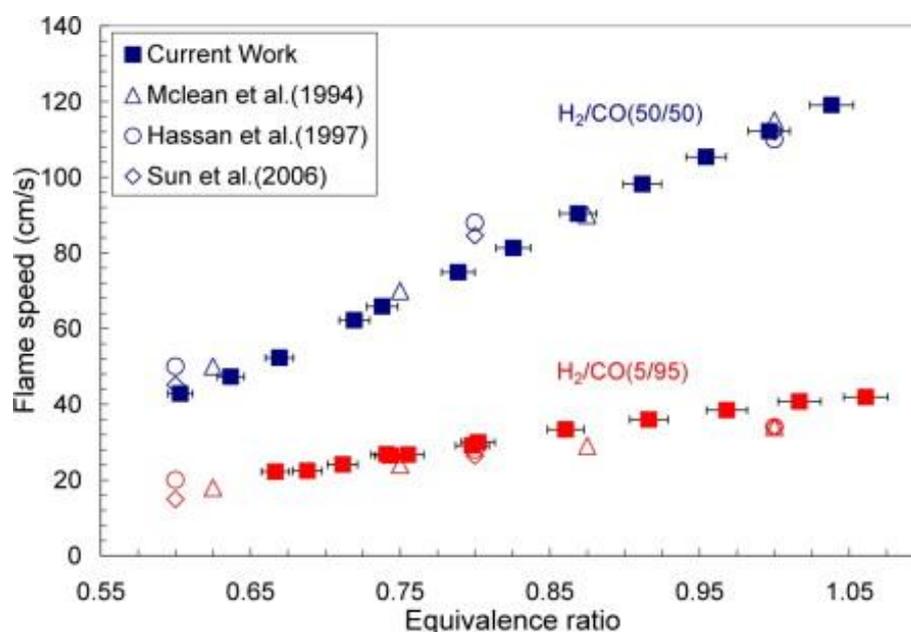


Figure 12 – Vitesses de flamme laminaires mesurées par la méthode du brûleur pour deux teneurs en  $H_2$  dans le mélange  $H_2/CO$  différentes : 50%/50% et 5%/95%, pour une pression initiale de 1 bar et une température initiale de 300K [206].

Il a été montré que lorsque le rapport d'équivalence augmente, la vitesse de flamme laminaire commence par augmenter dans un premier temps avant de diminuer par la suite, suivant une courbe en forme de « cloche » [207, 204, 208]. La valeur maximale de la vitesse de flamme laminaire est donc obtenue pour un rapport d'équivalence de 2, où la réaction est la plus violente [181, 205, 186]. Un récapitulatif des valeurs expérimentales des vitesses de flamme laminaires pour un mélange  $H_2/CO/Air$  en fonction du rapport d'équivalence trouvées dans la littérature a été fait par Lee et al. [182]. Ces résultats se trouvent sur la Figure 13.

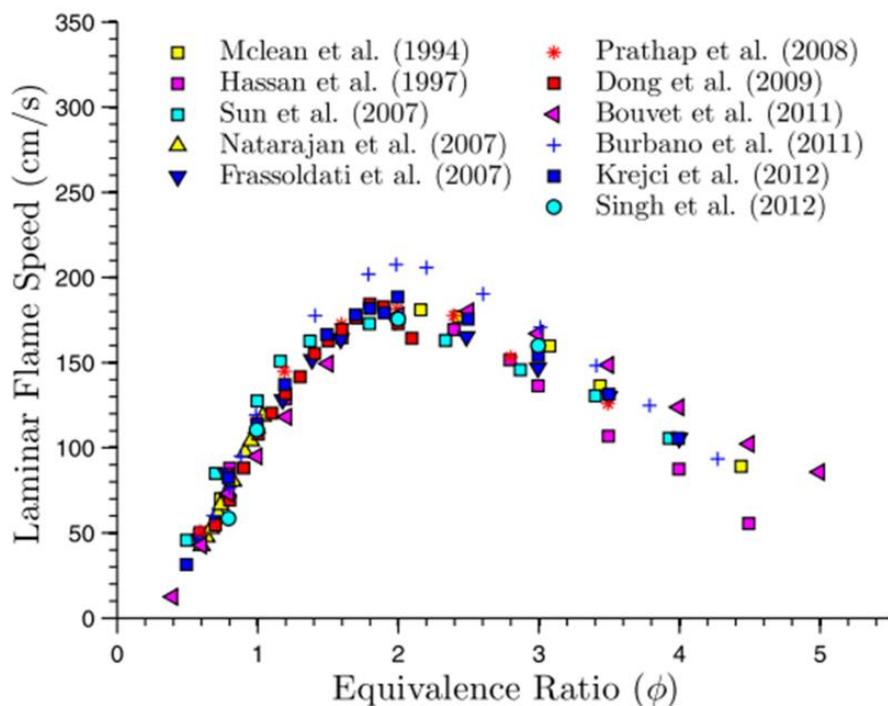


Figure 13 – Comparaison des valeurs des vitesses de flamme laminaire trouvées expérimentalement dans différentes études trouvées dans la littérature [182].

En outre, Liang et al. [73] ont étudié l'influence de la diffusion de Soret des différentes espèces sur ces vitesses de flamme laminaire. Ce phénomène est causé par le gradient de température, de sorte que le mouvement des molécules dans la zone chaude et les niveaux d'énergie élevés déplacent les particules vers la zone froide. Ainsi, le processus de transfert de chaleur est accéléré par le déplacement des particules chaudes de la zone chaude vers la zone froide [209]. Les résultats indiquent que la vitesse de flamme laminaire du mélange est principalement réduite par la diffusion de Soret du radical H alors que l'influence de la diffusion de Soret de  $H_2$  est négligeable. Ceci est dû au fait que la zone de réaction principale et la diffusion de Soret pour le radical H ( $H_2$ ) sont fortement (faiblement) couplées, et que la diffusion de Soret réduit la concentration de radicaux H dans la zone de réaction. L'influence de la diffusion de Soret sur la vitesse de la flamme laminaire augmente avec le rapport d'équivalence et avec la teneur en hydrogène du mélange.

Monteiro et al. [189] ont conclu que les valeurs des nombres de Markstein montrent que les flammes des mélanges  $H_2/CO/Air$  sont généralement instables, et les nombres de Karlovitz indiquent que ces flammes sont peu influencées par le taux d'étirement. Des valeurs positives (négatives) du nombre de Markstein indiquent que la vitesse de flamme diminue (augmente) avec l'augmentation du taux d'étirement de la flamme. Dans ce cas, si une perturbation quelconque apparaît sur le front de flamme, la vitesse du front de flamme sera augmentée, ce qui accroît l'instabilité de la flamme. En outre, ils ont conclu que la vitesse de flamme laminaire (donc étirée) augmente avec l'augmentation du taux d'étirement de la flamme pour les mélanges  $H_2/CO/Air$  pauvres (rapport d'équivalence inférieur à 0,8). À l'inverse, cette vitesse de flamme diminue avec l'augmentation du taux d'étirement pour les mélanges stœchiométriques.

- Influence de la température initiale :

La vitesse de flamme laminaire du mélange  $H_2/CO/Air$  augmente avec l'augmentation de la température initiale [181, 182, 184, 185, 191, 194, 210]. En effet, avec l'augmentation de la température initiale, la température adiabatique de flamme augmente et donc les taux de réaction, et les diffusivités thermiques et massiques deviennent plus importants. Les effets de la température initiale sur la vitesse

de flamme laminaire du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air sont significatifs [210]. Cependant, l'augmentation de la température initiale augmente également la viscosité dynamique des gaz frais, ce qui permet à l'écoulement de rester laminaire même à des vitesses de flamme plus élevées que pour des conditions thermodynamiques « standards » [206]. Les effets de la température initiale sur cette vitesse de flamme sont les plus faibles au niveau du point le plus violent de la réaction (vitesse de flamme laminaire maximale). L'augmentation de la température initiale accroît la teneur en radicaux libres dans la réaction. Lorsque la température initiale augmente, la production de H et de OH par la réaction  $O + H_2 = H + OH$  augmente, ce qui renforce la réaction en chaîne et augmente la vitesse de flamme laminaire. Les réactions  $H + O_2 = O + OH$  et  $CO + OH = CO_2 + H$  sont les réactions élémentaires qui ont le plus d'impact sur la vitesse de flamme laminaire du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. Ce sont également les réactions élémentaires dont le coefficient de sensibilité change le plus lorsque la température initiale change. À faible rapport d'équivalence, l'influence de  $CO + OH = CO_2 + H$  sur la vitesse de la flamme laminaire est la plus importante. Avec l'augmentation du rapport d'équivalence, l'influence de la réaction  $CO + OH = CO_2 + H$  diminue et l'influence de la réaction  $H + O_2 = O + OH$  augmente.

En raison de l'augmentation du flux de diffusion de Soret du radical H, l'influence de la diffusion de Soret sur le flux de combustion laminaire augmente avec la température initiale. En ce qui concerne l'effet de la température initiale, il est observé que l'influence de la diffusion de Soret sur la vitesse de flamme laminaire augmente de façon monotone avec la température initiale. En effet, avec l'augmentation de la température initiale, le flux de diffusion de Soret du radical H est favorisé et le couplage entre la diffusion de Soret de H et la réaction chimique principale demeure. Par conséquent, l'influence de la diffusion de Soret sur la vitesse de flamme laminaire augmente avec la température initiale [73]. Ai et al. [210] et Han et al. [211] ont montré que la longueur de Markstein diminue avec l'augmentation de la température initiale. Cette valeur passe de valeurs positives, à des valeurs négatives avec l'augmentation de la température initiale, indiquant les effets d'étirement distincts sur la propagation de la flamme à une température initiale élevée par rapport à celle des conditions thermodynamiques « standards ». Par exemple, lorsque la température initiale atteint 460 K, de grandes rides apparaissent à la surface de la flamme (en raison de la perturbation des électrodes).

- Influence de la pression initiale :

L'augmentation de la pression initiale induit une augmentation considérable de l'instabilité cellulaire de la flamme, ce qui complique énormément l'étude expérimentale des vitesses fondamentales de flamme [182, 201]. Pour pallier cette problématique, plusieurs solutions existent et la plus répandue d'entre elles consiste à faire une substitution au niveau du diluant. Un mélange O<sub>2</sub>/He (1/9 ou 1/7 en volume) est utilisé comme oxydant, à la place de l'air « normal » (remplacement de N<sub>2</sub> par He), afin de supprimer les instabilités hydrodynamiques et thermo-diffusives qui deviennent prédominantes à des conditions de pression initiale élevée pour des mélanges H<sub>2</sub>/CO pauvres [210]. Cependant, ce remplacement modifie les résultats, mais permet d'étudier les tendances et les ordres de grandeur sans avoir à faire des calculs sur des flammes instables. En effet, le remplacement de N<sub>2</sub> par He affecte la température et la vitesse de la flamme, mais n'affecte pas la chimie fondamentale [212]. En effet, la vitesse de flamme laminaire est nettement supérieure pour un mélange contenant du He que pour un mélange contenant N<sub>2</sub> [210].

Une augmentation de la pression initiale entraîne une diminution de la vitesse fondamentale de flamme, du rapport d'équivalence pour lequel la vitesse maximale est atteinte, et de la longueur de Markstein [210, 193, 194, 191]. Ces paramètres sont plus sensibles aux variations de la pression initiale qu'aux variations de la température initiale. Ceci est causé par la réduction de l'épaisseur de la flamme, et donc de sa surface, pour des pressions initiales plus élevées. La réaction d'inhibition :  $H + O_2 + M = HO_2 + M$  est renforcée par l'augmentation de la pression initiale, ce qui réduit la concentration d'atomes d'hydrogène et entre en compétition avec la réaction de branchement de chaîne produisant des radicaux libres O et OH :  $H + O_2 = OH + O$ . Par conséquent, l'effet de densité accrue et l'effet chimique retardateur réduisent la vitesse de la flamme laminaire. La longueur de Markstein augmente avec l'augmentation

du rapport d'équivalence, ce qui indique que la vitesse de propagation de la flamme sphérique est plus sensible aux taux d'étirement et elle est plus stable pour les mélanges riches  $H_2/CO/O_2/He$  que pour les mélanges pauvres. La longueur de Markstein diminue, passant de valeurs positives à des valeurs négatives avec l'augmentation de la pression, indiquant les effets d'étirement distincts sur la propagation de la flamme à une pression élevée par rapport à ceux des conditions thermodynamiques « standards ». De plus, la vitesse de flamme laminaire commence par augmenter avec l'augmentation du rapport d'équivalence, puis diminue lorsque celui-ci continue d'augmenter. Ravi et Petersen [191] ont conclu que la vitesse de flamme laminaire présente un comportement non monotone en fonction du rapport d'équivalence lorsque la pression initiale varie.

Comme pour l'influence de la température initiale, en raison de l'augmentation du flux de diffusion de Soret du radical H, l'influence de la diffusion de Soret sur le flux de combustion laminaire augmente avec la pression initiale [73]. Contrairement aux résultats réalisés à une pression atmosphérique, il est montré qu'à des pressions initiales élevées, la vitesse de flamme laminaire est affectée par la diffusion de Soret de  $H_2$  ainsi que du radical H. De plus, comme pour la vitesse de flamme laminaire, la longueur de Markstein est également réduite par la diffusion de Soret. Cependant, la réduction est principalement causée par la diffusion de Soret de  $H_2$  plutôt que par celle du radical H. L'influence de la diffusion de Soret sur la longueur de Markstein diminue avec la diminution de la pression initiale.

Le comportement de la structure de la flamme et la cinétique chimique sont modifiés dans des conditions subatmosphériques. Burbano et al. [187] ont conclu que le comportement de la vitesse de flamme laminaire à basse pression dépend du rapport d'équivalence considéré : elle diminue aux rapports d'équivalence pauvres et très riches lorsque la pression initiale augmente. Cependant, lorsque le rapport d'équivalence se trouve entre les deux, proche de la stœchiométrie, correspondant aux valeurs les plus élevées des vitesses de flamme laminaires, un comportement contraire peut être observé, où celle-ci augmente lorsque la pression initiale augmente. Le cas particulier pour un mélange  $H_2/CO = 50/50\%$  montre que la vitesse de flamme laminaire n'est que très peu sensible pour des mélanges pauvres, alors qu'elle devient significative pour des mélanges riches. La stabilité de la flamme augmente à des pressions subatmosphériques plus basses. Ce comportement est dû à l'augmentation de l'épaisseur de la flamme, qui réduit considérablement les instabilités hydrodynamiques dans le front de flamme. Le paramètre le plus approprié qui représente ce type d'instabilités est le nombre de Lewis, qui est défini comme le rapport entre la diffusivité de la chaleur des gaz frais et la diffusivité de la masse du réactif limitant dans l'inerte abondant.

- Influence de la présence de diluants dans le mélange initial :

L'ajout de petites quantités de vapeur d'eau dans un mélange  $H_2/CO/Air$  a un effet négligeable sur les valeurs de la vitesse de flamme laminaire [179]. De plus, Wang et al. [213] et Lapalme et al. [185] ont montré que pour une teneur en diluant donnée, le taux de réduction de la vitesse de flamme laminaire augmente lorsque le rapport d'équivalence augmente. La diffusivité thermique élevée du radical H joue un rôle important dans l'augmentation de la vitesse de flamme laminaire et affecte le taux de réduction de cette vitesse de flamme dans des conditions de dilution. Pour des mélanges ayant une teneur en  $H_2$  comprise entre 5 et 75%, et ayant une teneur en diluant fixée, la vitesse de flamme laminaire maximale augmente de manière significative en raison de la réactivité chimique élevée de  $H_2$ . Pour ce même mélange, mais avec une forte dilution ( $N_2$  ou  $CO_2$ ), la réduction remarquable de la diffusivité thermique du côté riche peut entraîner le déplacement de la vitesse de combustion laminaire maximale vers le côté relativement pauvre en raison de la prépondérance de la réduction de la température adiabatique de flamme avec l'augmentation de la dilution. L'effet de la dilution diffère en fonction du rapport  $H_2/CO$  étudié. Les effets de la dilution sur la vitesse de flamme laminaire pourraient être principalement attribués aux mécanismes suivants : effets chimiques et effets thermiques. D'une part, l'ajout de diluants diminue la température adiabatique de flamme. Ceci conduit à la diminution de la

vitesse de flamme laminaire. D'autre part, l'ajout de diluants tels que le  $\text{CO}_2$ , le  $\text{N}_2$  et le  $\text{H}_2\text{O}_{\text{vap}}$  vont également participer aux réactions élémentaires et modifier la vitesse de flamme laminaire [205].

De plus, le taux de diminution de la vitesse de flamme laminaire est plus important avec l'ajout de  $\text{CO}_2$  qu'avec l'ajout de  $\text{N}_2$  [182, 214]. Ceci est dû au fait que le  $\text{CO}_2$  présente une capacité thermique plus élevée que le  $\text{N}_2$ . L'azote supplémentaire ne participe pas à la combustion, mais le  $\text{CO}_2$  prend part à la réaction chimique. De plus, la collision avec un troisième corps a également un effet non négligeable sur la réduction des vitesses de flamme laminaire des flammes diluées au  $\text{N}_2$  et au  $\text{CO}_2$ . L'effet thermique contribue à environ 60% de la réduction de la vitesse de combustion laminaire des flammes diluées au  $\text{CO}_2$  par rapport aux flammes diluées au  $\text{N}_2$ , ce qui implique que l'effet thermique joue un rôle plus important que l'effet chimique [208]. L'effet cinétique chimique du  $\text{CO}_2$  est divisé en deux : l'effet de réaction directe, qui signifie que le  $\text{CO}_2$  agit comme un réactif dans certaines réactions, et l'effet de troisième corps, qui signifie que le  $\text{CO}_2$  a seulement agi comme un troisième corps dans les réactions connexes [214]. Pour l'effet chimique, l'effet de réaction directe contribue approximativement à 70%-90% de la réduction de la vitesse de flamme laminaire des flammes diluées au  $\text{CO}_2$  par rapport aux flammes diluées au  $\text{N}_2$ , et l'effet du troisième corps contribue à 10% [211]. Pour les mélanges de  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  dilués au  $\text{CO}_2$ , la réaction la plus dominante est  $\text{CO} + \text{OH} = \text{CO}_2 + \text{H}$ , et le coefficient de sensibilité augmente avec la teneur en diluant. Cette réaction réduit la teneur en radicaux H, et les réactions régissant la flamme sont affaiblies [208].

L'ajout de  $\text{CO}_2$  réduit considérablement (diminution linéaire) la vitesse de flamme laminaire en raison d'un changement des propriétés du mélange (capacité thermique et diffusivité thermique) et des changements subséquents dans la région de la flamme (réduction du dégagement de chaleur et de la température de la flamme) [182, 184, 211]. Le  $\text{CO}_2$  n'est pas simplement un diluant passif, il interagit également par transfert thermique radiatif. En effet, pour une pression et une température initiales élevées par rapport aux conditions thermodynamiques « normales », des effets légers de transfert thermique radiatif ont lieu sur la vitesse de flamme laminaire pour les mélanges pauvres de  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  avec ajout de  $\text{CO}_2$  (ajout pouvant aller jusqu'à 40%). Ceci suggère que le transfert de chaleur radiative entre les produits et les réactifs (dilués avec de grandes quantités de  $\text{CO}_2$ , plus de 40%) peut légèrement augmenter la vitesse de flamme laminaire pour des conditions de haute pression [212]. L'effet de la teneur en  $\text{H}_2$  dans le mélange sur la vitesse de flamme laminaire s'affaiblit avec l'augmentation de  $\text{CO}_2$  ajouté [214]. À pression atmosphérique, l'augmentation du taux de dilution en  $\text{CO}_2$  et de la température initiale, réduit la longueur de Markstein, et favorise ainsi l'instabilité thermo-diffusive. L'augmentation du taux de dilution en  $\text{CO}_2$  et de la température de préchauffage réduit le nombre de Lewis effectif, ce qui diminue généralement les longueurs de Markstein et provoque l'instabilité de la flamme [211, 213]. De plus, l'impact du  $\text{CO}_2$  sur la réduction de la vitesse de flamme laminaire s'affaiblit lorsque la température initiale du mélange augmente [215].

Lee et al. [182] ont conclu que pour une faible teneur en hydrogène (< 50%), la vitesse de flamme laminaire augmente lorsqu'une petite quantité de vapeur d'eau est ajoutée (< 20%), atteint un maximum, puis diminue progressivement lorsque l'ajout de vapeur d'eau est plus élevé [194]. En effet, la diminution de la vitesse de flamme laminaire dans un mélange à faible teneur en hydrogène pourrait être due à la prédominance de l'effet chimique (par exemple, la réaction chimique impliquant  $\text{H}_2\text{O}_{\text{vap}}$  pour produire des radicaux H, O et OH). L'ajout de vapeur d'eau au mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  favorise considérablement le processus d'oxydation du CO, ce qui augmente fortement la valeur de la vitesse de flamme laminaire. L'ajout de vapeur d'eau dans le mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  fortement carboné permet de remédier à la vacance de  $\text{H}_2$  en tant que catalyseur pour l'oxydation du CO [194]. Lorsque le rapport  $\text{H}_2/\text{CO}$  augmente, la teneur maximale du radical  $\text{OH} + \text{H}$  et du radical  $\text{HO}_2$  augmente, ce qui montre que l'effet chimique de l'eau est plus important pour le syngas à forte teneur en carbone. L'augmentation de la température initiale et de la pression initiale du mélange avec ajout d'eau conduit à des changements plus distincts de la valeur de la vitesse de flamme laminaire, que pour un mélange ne contenant pas de diluant.

Varghese et al. [184] ont déterminé que le taux de production et d'appauvrissement du radical H s'accroît avec la diminution de la fraction molaire de  $N_2$  dans le mélange. Cependant, la réduction de la teneur de  $N_2$  (dilution) augmente la vitesse de réaction, ce qui entraîne une augmentation des vitesses de flamme laminaires des mélanges  $H_2/CO/Air$ . En effet, une capacité thermique inférieure du mélange augmente la température adiabatique de flamme et accroît la vitesse de combustion globale du mélange. Une augmentation presque linéaire de la vitesse de combustion laminaire est observée en raison d'une augmentation de la teneur en CO dans la composition du mélange et d'une réduction simultanée de la fraction volumique de  $N_2$ . L'ajout de combustible réactif (CO) et la diminution de  $N_2$  dans le mélange augmentent la vitesse de flamme laminaire du mélange à la fois par une augmentation des espèces réactives H, OH et une réduction des effets de troisième corps. A contrario, une diminution substantielle de la vitesse de flamme laminaire en raison de la réduction du dégagement de chaleur et de l'augmentation de la capacité thermique des gaz frais et donc de la température adiabatique de flamme avec une augmentation de la teneur en  $N_2$  peut être observée [186, 184, 189]. La réduction de la vitesse fondamentale de flamme est toutefois légèrement plus prononcée pour les mélanges riches que pour les mélanges pauvres. Puis, un déplacement du rapport d'équivalence pour lequel la vitesse de flamme laminaire est maximale a été observé aussi. L'ajout d'azote augmente la valeur de la longueur de Markstein et rend donc la flamme plus sensible aux effets d'étirement. Une dilution à l'azote inférieure à 40% dans le mélange entraîne des vitesses de flamme laminaires élevées. Une dilution supérieure à 60% peut entraîner des vitesses de combustion très faibles et des instabilités de flottabilité.

Finalement, la vitesse de flamme laminaire diminue exponentiellement avec l'ajout de  $CH_4$  dans le mélange  $H_2/CO/Air$  [185, 215]. L'emplacement de la vitesse de flamme maximale se déplace vers les mélanges plus pauvres avec l'ajout de  $CH_4$  en raison de sa vitesse de flamme inhérente plus lente. L'impact de la dilution avec du  $CH_4$  sur la réduction de la vitesse de flamme laminaire n'est pas influencé par l'augmentation de la température initiale du mélange. De plus, l'ajout de petites quantités de méthane aux flammes de  $H_2/CO$  augmente les taux de déformation et d'extinction en accélérant la principale réaction d'oxydation du CO [215].

## 2. Régimes de propagation des flammes

La deuxième partie de l'état de l'art se concentre sur les régimes de propagation de flamme. Pour ce faire, les déflagrations seront définies dans un premier temps. Puis, seront explicités les différents mécanismes d'accélération de flamme. Finalement, dans un troisième temps seront définies et caractérisées les instabilités de flamme. Cette partie sera divisée en deux sous-parties distinctes : les instabilités hydrodynamiques (Darrieus-Landau) dans un premier temps, et les instabilités thermo-diffusives dans un deuxième temps.

### 2.1. Déflagrations

Lors de la propagation d'une zone de combustion, deux régimes de propagation peuvent se produire : la déflagration et la détonation. Le paramètre qui permet de différencier une déflagration d'une détonation est la vitesse de propagation de la zone de combustion. En effet, une déflagration est une combustion rapide, pour laquelle la propagation du front de flamme est subsonique. Contrairement, aux détonations où la propagation de la zone de combustion est supersonique. Deux mécanismes sont à l'origine du développement du front de flamme : la diffusivité thermique (flux de chaleur des gaz frais vers les gaz brûlés) et la diffusivité massique (propagation moléculaire des espèces). Une déflagration peut être décomposée en deux zones distinctes : la zone de combustion, ou zone réactionnelle, qui est le lieu où la réaction se produit (cette zone a une épaisseur non négligeable), et la zone composée par l'onde de pression qui se propage à l'avant de la zone réactionnelle. Dans le cas d'une déflagration, la vitesse de propagation du front de flamme peut varier entre 1 et quelques centaines de mètres par seconde. Lorsque la vitesse du front de flamme est relativement basse, la surpression générée par le passage de cette onde de pression est faible, voire négligeable. Cependant, lorsque la vitesse de

propagation de la zone de combustion devient suffisamment élevée, la surpression maximale atteinte suite au passage de l'onde de pression peut atteindre jusqu'à 20 fois la valeur de la pression initiale [216]. La vitesse de réaction chimique est déterminée à partir de la température adiabatique de flamme, et elle permet de déterminer l'épaisseur de la zone réactionnelle. À titre d'exemple, la vitesse de propagation d'une flamme d'hydrogène en déflagration varie entre 0,5 et 3 m.s<sup>-1</sup> [17]. La Figure 14 présente les différents modes de propagation d'un front de flamme qui existent en suivant l'évolution de la pression (ou de la vitesse) en fonction de la distance parcourue (ou du temps écoulé).

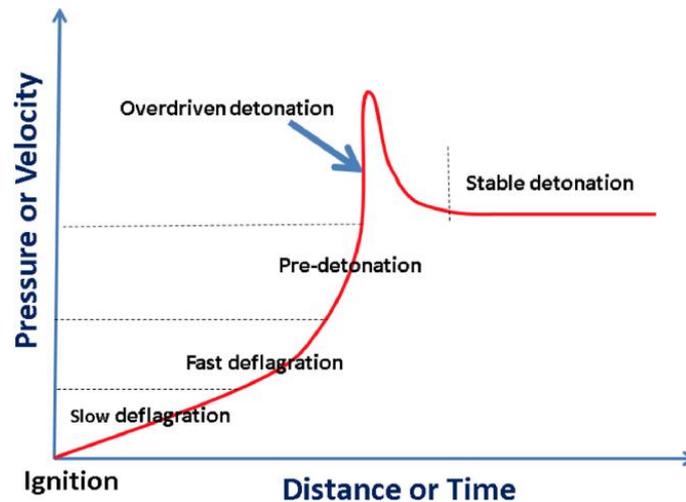


Figure 14 – Différents régimes de propagation du front de flamme en suivant l'évolution de la pression (ou de la vitesse) en fonction de la distance parcourue (ou du temps écoulé) [217].

Dans le cas où la flamme se propage dans une enceinte cylindrique, le front de flamme est incurvé vers l'avant. En effet, l'expansion des gaz brûlés repousse et donc met en mouvement les gaz frais. Ainsi, la vitesse de l'écoulement est nulle aux parois du tube à cause des frottements et de la viscosité du gaz. La vitesse maximale se trouve donc au niveau du centre du tube, et donc au milieu du front de flamme. De plus, le front de flamme est plissé par la turbulence, générée par les instabilités, ce qui va accroître sa surface, et par conséquent augmenter sa vitesse de propagation. Ceci va générer des ondes de pression successives qui vont se propager en aval du front de flamme. Finalement, dans une déflagration laminaire, le saut de pression à travers le front de flamme est quasiment négligeable, et la pression s'équilibre dans tout le volume de l'enceinte expérimentale au cours de la combustion.

## 2.2. Mécanismes d'accélération de flamme

Une déflagration est une propagation subsonique du front de flamme. Cependant, la flamme peut être accélérée par divers phénomènes variés qui peuvent rendre la flamme supersonique et la faire transiter vers la détonation. L'un des phénomènes qui rentre le plus en jeu lors de l'accélération de la flamme est « l'Effet Piston ». Cet effet a été décrit pour la première fois en 1926 par Chapman et Wheeler [218], et décrit la mise en mouvement des gaz frais par le déplacement du front de flamme. On parle d'effet piston pour le déplacement d'une flamme dans un tube lisse (cf. Chapitre 1 – partie 3.1.1), car les gaz brûlés « poussent » le front de flamme qui va pousser les gaz frais à son tour, en créant ainsi l'effet piston dont il est question. La Figure 15 présente le sens de propagation du front de flamme par effet piston dans un tube lisse.



Figure 15 – Déplacement du front de flamme par effet piston au sein d'un tube lisse.

Pour mettre en évidence le phénomène d'accélération de flamme, Chapman et Wheeler [218] ont fait une étude expérimentale. Pour ce faire, ils ont observé la propagation d'une flamme au sein d'une enceinte cylindrique orientée verticalement. Ils ont réalisé l'allumage à l'extrémité basse du tube, et ils ont observé le front de flamme se propager vers le haut, mettant ainsi en mouvement les gaz frais qui étaient en aval. Ainsi, les gaz frais, qui étaient initialement au repos avant la propagation de la flamme, sont « poussés » par le front de flamme, et donc par les gaz brûlés, et sont donc accélérés : c'est ce qu'ils ont appelé « Effet Piston ». En combinant le facteur d'expansion de la flamme et la vitesse fondamentale de celle-ci, il est possible de déterminer la vitesse de propagation des gaz frais au sein du tube :  $(\sigma - 1) * S_l^0$ , avec,  $\sigma$  le facteur d'expansion de la flamme, et  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de la flamme (en  $m.s^{-1}$ ). Par exemple, pour des conditions thermodynamiques « standards », la vitesse de propagation des gaz frais pour un mélange  $H_2$ /Air, contenant 20% d'hydrogène, est de  $4 m.s^{-1}$ . Un autre mécanisme, qui peut être à l'origine de l'accélération de la flamme, est le mécanisme lié à la turbulence. En effet, lorsque le nombre de Reynolds est suffisamment grand (supérieur au nombre qui rend un écoulement laminaire en un écoulement turbulent :  $Re > 3000$ ), les effets turbulents plisseront la flamme, ce qui agrandira sa surface, et aura comme conséquence l'accélération de celle-ci. On parle alors de boucle de rétroaction. De plus, le dernier mécanisme, qui joue un rôle prépondérant dans l'accélération de la flamme, est lié aux différentes instabilités auxquelles est soumis le front de flamme. Les trois instabilités principales sont les suivantes : instabilités hydrodynamiques (ou de Darrieus-Landau), instabilités thermo-diffusives, et instabilités liées aux effets du confinement sur la flamme (cf. Chapitre 1 – partie 2.3).

### 2.3. Instabilités de flamme

Des instabilités peuvent subvenir au niveau du front de flamme lors de sa propagation. En effet, ces instabilités peuvent être intrinsèques à la flamme, et modifier ainsi certains paramètres fondamentaux de la combustion. Ces instabilités qui se créent au niveau du front de flamme sont générées principalement par deux mécanismes distincts : les gradients de concentration des espèces composant le mélange combustible, et les gradients de température. Ces gradients vont déséquilibrer thermodynamiquement la flamme et vont par conséquent déformer le front de flamme, et donc modifier les caractéristiques de la combustion. Les deux types d'instabilités qui seront décrits par la suite sont : les instabilités hydrodynamiques (ou de Darrieus-Landau) dans un premier temps, et les instabilités thermo-diffusives dans un deuxième temps. Les premières sont liées à l'expansion des gaz brûlés, et les deuxièmes sont liées aux transferts diffusifs de masse et de chaleur au travers du front de flamme.

#### 2.3.1. Instabilités hydrodynamiques (Darrieus-Landau)

Les instabilités hydrodynamiques, ou instabilités de Darrieus-Landau, sont générées par l'expansion des gaz brûlés au travers du front de flamme [219]. Lorsque le front de flamme est, ne serait-ce qu'un peu courbé, indépendamment de la raison, les lignes de courant viendront le déformer davantage. Ce phénomène est visible sur la Figure 16.

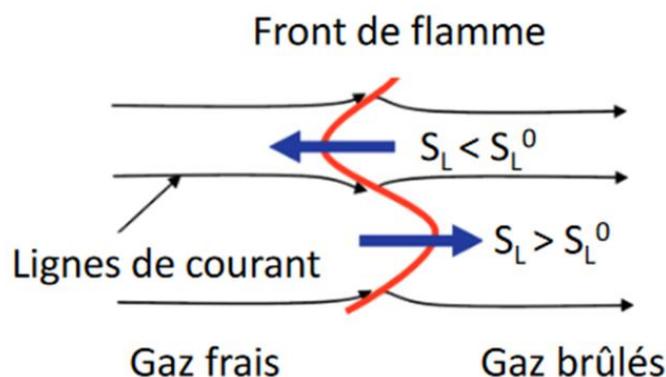


Figure 16 – Déformation du front de flamme par les lignes de courant lors du développement des instabilités de Darrieus-Landau [19].

L'écoulement est guidé par des lignes de courant. Cependant, la trajectoire de ces lignes de courant peut se voir modifiée par les changements de densité au travers du front de flamme. Ainsi, lorsque la courbure initiale est convexe, les lignes de courant convergent et lorsque la courbure initiale est concave, les lignes de courant divergent. Dans le premier cas, la vitesse de flamme laminaire est supérieure à la vitesse fondamentale de flamme. Ainsi, au travers du front de flamme, une diminution de la vitesse d'écoulement des gaz frais peut être observée. Dans le deuxième cas, la vitesse de flamme laminaire est inférieure à la vitesse fondamentale de flamme. Ainsi, au travers du front de flamme, une augmentation de la vitesse d'écoulement des gaz frais peut être observée. Ce phénomène a tendance à accentuer la courbure du front de flamme et du fait de la convergence des lignes de courant d'une part, et de leur divergence de l'autre, les lignes de courant vont avoir tendance à aller vers la partie convexe du front de flamme.

### 2.3.2. Instabilités thermo-diffusives

Dans le cadre d'un front de flamme légèrement plissé, lorsque le flux diffusif de masse et le flux diffusif de chaleur ne sont pas à l'équilibre au travers du front de flamme, celui-ci n'est pas stable. Ceci est à l'origine des instabilités thermo-diffusives. La juxtaposition de ces deux effets diffusifs est caractérisée sur la Figure 17.

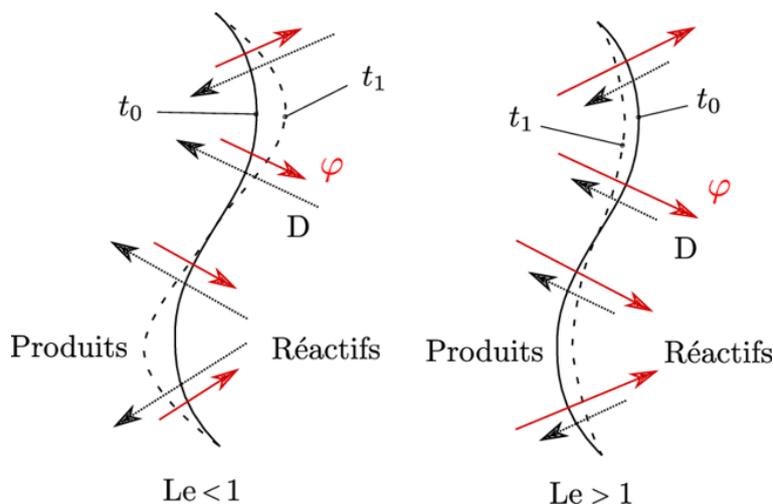


Figure 17 – Déformation du front de flamme par les instabilités thermo-diffusives. En pointillés le flux massique, et en trait plein le flux thermique [220].

Deux possibilités se présentent alors : soit le flux de masse est plus important que le flux thermique, soit le flux thermique est plus important que le flux massique. Ceci peut s'exprimer par un nombre adimensionnel : le nombre de Lewis ( $Le$ ). Le nombre de Lewis est défini comme étant le rapport

entre la diffusivité thermique et la diffusivité massique. Le nombre de Lewis est un paramètre qui permet de déterminer la stabilité ou non d'une flamme. En effet, un nombre de Lewis inférieur à 1 indique que la diffusivité massique est supérieure à la diffusivité thermique, ce qui provoque la déstabilisation du front de flamme. Cependant, un nombre de Lewis supérieur à 1 indique que la diffusivité massique est inférieure à la diffusivité thermique, ce qui provoque la stabilisation du front de flamme. Ainsi, le premier cas correspond à un nombre de Lewis inférieur à 1 (front de flamme à gauche sur la Figure 17). Dans ce cas, deux géométries de la courbure géométrique du front de flamme sont possibles : convexe ou concave. D'une part, de par l'augmentation de la diffusivité massique et la diminution de la diffusivité thermique (et donc des pertes de chaleur), la température de la flamme est augmentée dans la partie convexe du front de flamme. Ce mécanisme conduit à une augmentation locale de la vitesse de flamme (partie en haut à gauche de la figure). D'autre part, de par la diminution de la diffusivité massique et l'augmentation de la diffusivité thermique (et donc des pertes de chaleur), la température de la flamme est réduite dans la partie concave du front de flamme. Ce mécanisme conduit à une diminution locale de la vitesse de flamme (partie en bas à gauche de la figure). Dans les deux cas cités ci-dessus, le plissement de la flamme est amplifié, et le front de flamme est très affecté par les instabilités thermo-diffusives. La diffusivité massique a donc un effet déstabilisant sur la flamme. De plus, le deuxième cas correspond à un nombre de Lewis supérieur à 1 (front de flamme à droite sur la Figure 17). Dans ce cas, la flamme plissée a tendance à être lissée, et donc à être stabilisée. La diffusivité thermique a un effet stabilisant sur la flamme. Ceci est dû au fait que les pertes thermiques dans la partie concave de la flamme sont moins importantes que dans le cadre d'une flamme parfaitement plane. Ainsi, la vitesse locale de la flamme augmente, et compense la diminution liée à la diffusivité massique. Dans la partie convexe de la flamme à son tour, les pertes thermiques sont plus importantes que dans le cadre d'une flamme parfaitement plane. Ainsi, la vitesse locale de la flamme diminue, et compense l'augmentation liée à la diffusivité massique.

### 3. Propagation de déflagrations en milieux confinés

La troisième et dernière, partie de l'état de l'art, se concentre sur la propagation d'une déflagration en milieu confiné. Cette partie se divisera en deux sous-parties distinctes : la propagation d'une flamme dans un tube d'une part, et le cas particulier du mélange étudié :  $H_2/CO/Air$  d'une autre. Lors de la propagation d'une flamme dans un tube, deux scénarios peuvent se produire : soit il s'agit d'un tube lisse, soit il s'agit d'un tube encombré d'obstacles. L'étude du cas particulier du mélange étudié :  $H_2/CO/Air$  se concentrera quant à lui sur l'influence de plusieurs paramètres initiaux sur l'accélération de la flamme.

#### 3.1. Propagation d'une flamme dans un tube

Deux types d'instabilités peuvent perturber le front de flamme : les instabilités hydrodynamiques et les instabilités thermo-diffusives (cf. Chapitre 1 – partie 2.3). Cependant, un dernier type d'instabilité peut subvenir au niveau du front de flamme : les instabilités liées au confinement. Lors de la propagation d'une flamme dans un tube, ces instabilités sont importantes et ne peuvent pas être négligées. En effet, ces instabilités sont liées à l'interaction entre les ondes acoustiques, réfléchies sur les parois de l'enceinte, ou d'éventuels obstacles présents dans celle-ci, générées par la propagation de la flamme dans l'espace confiné avec le front de flamme. Ces instabilités liées au confinement dépendent du régime de propagation de la flamme (déflagration lente ou rapide) et de la configuration du tube (lisse ou encombré d'obstacles). Tamanini et Chaffee [221] ont montré que des paramètres liés aux déflagrations rapides, tels que la turbulence et les autres instabilités de flamme (hydrodynamiques et thermo-diffusives), ont tendance à réduire l'influence des instabilités liées au confinement sur l'accélération de la flamme. Donc, ces dernières ont une influence non négligeable surtout pour les flammes lentes et se propageant dans un tube lisse sans obstacle.

Un point sur les déflagrations accélérées en guise d'introduction à la propagation d'une flamme dans un tube, qu'il soit lisse ou encombré d'obstacles, peut être fait. Dans les premiers instants de la propagation de la flamme (dans un milieu non turbulent), elle se propage à une vitesse égale à la vitesse de flamme laminaire. Lorsque des instabilités de flamme rentrent en jeu, notamment des instabilités hydrodynamiques, la surface du front de flamme s'accroît, et sa vitesse augmente. Ceci accélère la propagation de la flamme par effet piston comme Chapman et Wheeler l'ont décrit dans leur étude [218]. Lors des premiers instants de la propagation de la flamme, sa vitesse peut être momentanément réduite par l'arrêt de l'augmentation de la surface du front de flamme, et par les pertes de chaleur aux parois de l'enceinte [222]. Cependant, cette accélération due aux instabilités reste relativement réduite [223]. D'autres mécanismes peuvent donc rentrer en jeu dans le phénomène d'accélération du front de flamme. En effet, pour une flamme se propageant dans un milieu confiné, comme un tube, la présence ou pas d'obstacles peut entraîner l'accélération du front de flamme. Ainsi, cette partie de l'état de l'art sera divisée en deux sous-parties : la propagation d'une flamme dans un tube lisse d'une part, et la propagation d'une flamme dans un tube encombré d'obstacles d'une autre.

### 3.1.1. Cas d'un tube lisse

Du fait de l'absence d'obstacles dans un tube lisse, l'accélération de la flamme provient principalement de l'interaction entre le front de flamme et les parois de l'enceinte. Ainsi, Salamandra et al. [222] ont conclu que la rugosité des parois joue un rôle fondamental dans les mécanismes d'accélération de la flamme. Ciccarelli et Dorofeev [219] ont travaillé sur la propagation d'une flamme, et notamment sa transition vers la détonation, dans des tubes lisses. En effet, ils ont décrit la phénoménologie de la propagation qui débute par la génération d'ondes de compression à l'avant du front de flamme. Ces ondes de compression vont générer à leur tour des couches limites turbulentes, de plus en plus épaisses lors de sa propagation, dépendantes de la rugosité des parois. Ces couches limites turbulentes se produisent plus rapidement dans le cas où la rugosité est la plus élevée. Ainsi, une accélération du front de flamme se produit lors de l'interaction entre les couches limites turbulentes et le front de flamme [222].

La propagation d'une flamme dans un tube lisse se déroule en 4 phases, ou 5 dans certains cas, distinctes : expansion hémisphérique (la flamme s'étend librement vers l'extérieur avec une vitesse presque constante), flamme en forme de doigt (le front de flamme se développe en forme de doigt lorsque la surface de la flamme augmente rapidement), la jupe de la flamme touche les parois du tube (la jupe de la flamme se forme lorsque la surface de la flamme atteint les parois latérales), inversion de la flamme en « tulipe » (la flamme plane se forme et s'inverse en flamme tulipe), et finalement, dans certains cas, la distorsion de la flamme en flamme « tulipe déformée » (ou « triple tulipe ») [224, 225, 226]. La première phase est constituée par les premiers instants de sa propagation, où l'avant de la flamme est arrondi, comme lors de la propagation d'une flamme hémisphérique. Elle formera alors une sorte de doigt, appelée « finger flame ». Puis, lors de l'accélération de la flamme, la deuxième phase débute. Au cours de cette phase, la pression à l'intérieur du tube augmente très rapidement, et la vitesse du front de flamme devient très élevée. La vitesse de propagation du front de flamme continue d'augmenter jusqu'à atteindre sa valeur maximale, qui se trouve à environ quatre fois la valeur du diamètre du tube. Cependant, après que la vitesse maximale du front de flamme soit atteinte, les pertes thermiques au niveau des parois deviennent vraiment importantes, et l'augmentation de la pression à l'intérieur du tube, et de la vitesse du front de flamme est stoppée, et ces grandeurs deviennent constantes. Lors de la troisième phase, la flamme prend une géométrie très particulière, qu'ils ont nommée flamme « tulipe » dans leur étude. Il s'agit d'un phénomène qui a été visualisé pour la première fois par Mallard et Le Chatelier en 1883. L'une des premières études à avoir défini le concept de flamme « tulipe » est celle menée par Salamandra et al. [222]. Qualitativement une flamme « tulipe » est une flamme qui oscille. En effet, elle commence par se propager dans le sens de l'écoulement initial, puis elle recule (sens de propagation de la flamme inversé par rapport au sens de propagation initial), avant d'avancer à nouveau et ainsi de suite. Son nom est dû à la forme particulière de cette flamme qui

ressemble à une tulipe. Plusieurs théories ont été émises quant à l'explication physique de ce phénomène [227, 228, 229, 230]. Entre les mécanismes physiques cités le plus souvent se trouve la vorticit   g  n  r  e dans les gaz frais (Rotman et Oppenheim [231]), les ondes de Tollmein-Schlichting (Oppenheim et Ghonheim [232]), les instabilit  s de Darrieus-Landau, et les instabilit  s de Taylor (Strehlow [233], Starke et Roth [230]). Clanet et Searby [234] ont montr   que la formation d'une flamme « tulipe », dans un tube semi-ouvert, est une manifestation des instabilit  s de Taylor g  n  r  es par la d  c  l  ration de la flamme. Le ph  nom  ne de flamme « tulipe » peut   tre stopp   par les turbulences qui viennent perturber la propagation de la flamme. Ainsi, la quatri  me phase de propagation s'entame. Lors de cette phase, le front de flamme interagit avec les parois de l'enceinte, ce qui perturbe la flamme. Cette perturbation se traduit par un ph  nom  ne oscillatoire de la pression    l'int  rieur de l'enceinte. Les oscillations sont de grande amplitude et vont s'accro  tre lorsque la perturbation devient de plus en plus importante. Finalement, une cinqui  me   tape correspondant    la distorsion de cette flamme « tulipe » peut   tre observ  e dans certains cas.

Ponizy et al. [235] ont conclu que la formation d'une flamme « tulipe » est un ph  nom  ne purement hydrodynamique. De plus, la superposition de trois mouvements de gaz provoque l'inversion du front de flamme et le d  veloppement de la flamme « tulipe » : le mouvement vers l'arri  re des gaz br  l  s d  vi  s (caus   par l'interaction du mur avec la flamme), le mouvement vers l'avant des gaz imbr  l  s et br  l  s (acc  l  r   dans la phase de la « finger flame »), et le mouvement g  n  ral impos   par le confinement. Initialement, Markstein [236] sugg  re que les ondes de choc interagissent avec le front de flamme en forme de doigt, et que la flamme s'inverse    l'aide de l'instabilit   de Taylor. Suite aux travaux de Markstein, Starke et Roth [230] sugg  rent que les effets d'extinction de la paroi provoquent un changement de vitesse significatif des gaz frais en raison de la r  duction soudaine de la surface de la flamme. Kerampran et al. [237] sugg  rent que l'oscillation acoustique provoque l'inversion de la flamme, sauf pour la premi  re inversion. Les ondes de pression ne peuvent pas provoquer directement l'inversion du front de flamme en forme de doigt. Mais elles agissent sur les l  vres de la tulipe et provoquent leur d  formation. Deux cas particuliers se distinguent. D'une part, pour les flammes se propageant    une vitesse relativement basse, la phase quatre n'a jamais lieu et la flamme s'arr  te    la phase trois. D'autre part, pour les flammes se propageant    une vitesse relativement   lev  e, la phase trois n'a jamais lieu et la flamme passe directement de la deuxi  me phase    la quatri  me phase. La Figure 18 pr  sente un exemple de propagation d'une flamme « tulipe » dans un tube lisse obtenue par Ponizy et al. [235].

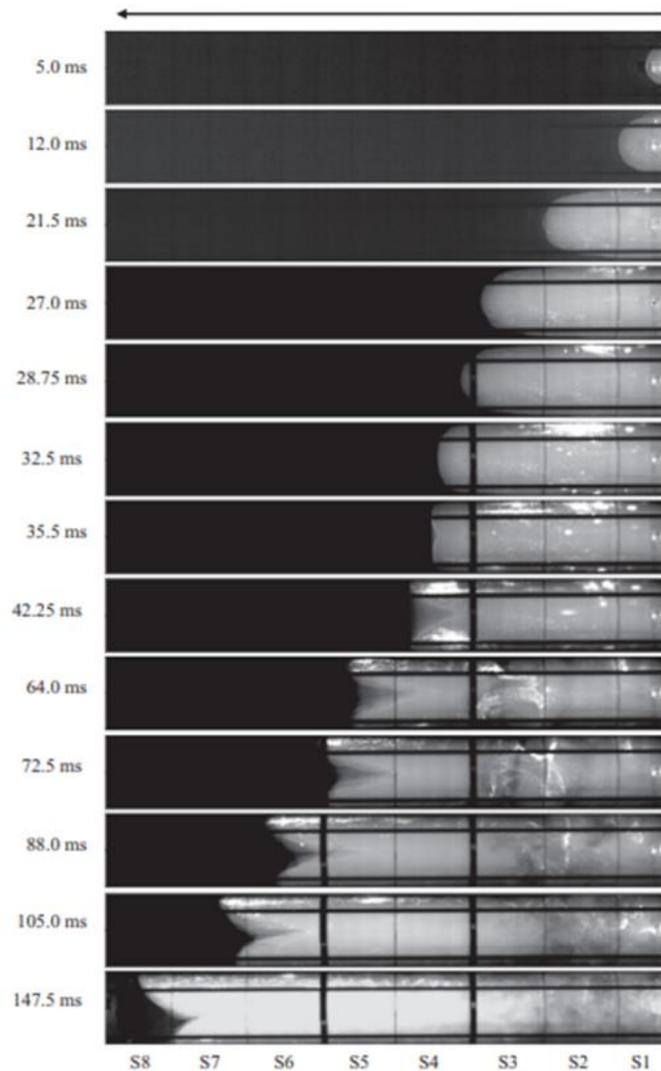


Figure 18 – Propagation d’une flamme « tulipe » dans un tube de 0,785 mètre [235].

Finalement, lors de la propagation d’une flamme dans un tube lisse, une onde de choc peut se former devant le front de flamme lorsque celle-ci se propage sur une longue distance. En effet, lorsque toutes les bonnes conditions sont réunies, à savoir lorsque le tube est suffisamment grand et suffisamment long, la flamme transite de la déflagration vers la détonation. Ce phénomène est appelé Transition Déflagration-Détonation (ou TDD) [238].

### 3.1.2. Cas d’un tube encombré d’obstacles

L’un des paramètres les plus importants à définir lorsqu’il est question de propagation d’une flamme dans un tube encombré d’obstacles est le rapport de blocage. Celui-ci est défini comme suit :

$$BR = 1 - \left( \frac{d_{int}}{D_{tube}} \right)^2 \quad (38)$$

Avec,  $BR$  le rapport de blocage,  $d_{int}$  le diamètre intérieur de l’obstacle (en mm), et  $D_{tube}$  le diamètre du tube (en mm).

Le déplacement du front de flamme dans le tube, par effet piston principalement, met en mouvement les gaz frais. Dans le cas d’un tube encombré d’obstacles, plusieurs mécanismes se mettent en place pour accélérer le front de flamme. Deux échelles de turbulence s’appliquent au front de flamme, ainsi qu’à l’écoulement des gaz frais. D’une part, les petites échelles de turbulence augmentent les

échanges de masse et de chaleur entre le front de flamme et les gaz frais. D'autre part, les grandes échelles de turbulence favorisent le plissement du front de flamme, ce qui augmente la vitesse de propagation du front de flamme. La vitesse de propagation du front de flamme peut atteindre jusqu'à 24 fois (plus lorsqu'une TDD se produit à l'intérieur du tube) la valeur de cette même vitesse en l'absence d'obstacles [239]. Lorsque le tube comporte plusieurs obstacles qui se suivent, le mécanisme à l'origine de l'accélération du front de flamme est le feed-back. Celui-ci est généré par la variation de l'écoulement des gaz frais en amont du front de flamme, ce qui provoque son étirement lorsque celui-ci atteint l'obstacle. L'augmentation de la vitesse de propagation du front de flamme résulte alors de l'augmentation de la surface de la flamme par plissement. Un gradient de vitesse se forme le long des obstacles, et un vortex derrière ce dernier. De plus, en présence d'obstacles, l'écoulement n'est plus uniforme, et des gradients des différentes grandeurs apparaissent, notamment des gradients de vitesse au niveau des gaz frais. Ceci est dû à la boucle de rétroaction qui se met en place [240, 241]. En effet, lorsque l'écoulement traverse un obstacle, le front de flamme se plisse, et par conséquent s'accroît. Ainsi, lorsque la surface de la flamme augmente, sa vitesse de propagation, et la vitesse de mise en mouvement des gaz frais augmentent à leur tour. Or, comme la mise en mouvement des gaz frais s'accélère, le front de flamme se plisse encore plus qu'avant, et la flamme s'accélère à nouveau, et ainsi de suite. Il s'agit de la première boucle de rétroaction. Dès lors, une deuxième boucle de rétroaction peut potentiellement se mettre en place. Cette deuxième boucle, est due principalement aux turbulences qui sont générées lors du contact entre le front de flamme, et les différents obstacles qui encombrant le tube. En effet, lors de la propagation du front de flamme, l'écoulement laminaire des gaz frais se transforme en écoulement turbulent du fait de l'augmentation du nombre de Reynolds. Lorsque l'écoulement devient turbulent, le front de flamme est inévitablement accéléré, ce qui augmente l'intensité turbulente à son tour, et augmente donc les turbulences, ce qui accélère le front de flamme, et ainsi de suite. Il s'agit de la deuxième boucle de rétroaction, qui mène à l'accélération du front de flamme dans le tube encombré d'obstacles [240, 241]. Cependant, cette deuxième boucle de rétroaction ne peut exister qu'en présence d'obstacles [239, 242]. En effet, dès lors que la flamme a fini de traverser les obstacles, elle arrête de s'accélérer et la deuxième boucle de rétroaction n'est plus mise en œuvre. Finalement, lors de la mise en œuvre de cette deuxième boucle de rétroaction due aux turbulences, deux possibilités coexistent, en fonction des différents paramètres initiaux de la combustion, tels que la composition du mélange combustible, la géométrie du tube dans lequel le front de flamme se propage, entre autres [240, 243].

En fonction de la vitesse de propagation du front de flamme, plusieurs régimes de propagation sont possibles : une déflagration lente, une déflagration rapide, ou une quasi-détonation. Pour différencier les déflagrations lentes des déflagrations rapides, une condition limite sur la vitesse de propagation du front de flamme peut être posée. Cette condition limite est définie comme étant la moitié du rapport de la vitesse de propagation des gaz brûlés par rapport au nombre de Mach. La première possibilité est l'obtention d'une flamme turbulente subsonique. Dans ce cas, il est possible que des extinctions locales se produisent, celles-ci vont être produites par l'augmentation trop importante de l'intensité turbulente dans les gaz frais. Ces extinctions ont comme principal effet, la réduction de la vitesse de propagation du front de flamme. Si les turbulences deviennent trop importantes, et que par conséquent les pertes de chaleur deviennent non négligeables, il est possible qu'une extinction totale de la flamme ait lieu [244, 245]. Dans ce cas, en fonction de la vitesse de propagation du front de flamme, il est possible d'obtenir soit une déflagration lente, soit une déflagration rapide. La deuxième possibilité est l'obtention d'une flamme turbulente supersonique. Dans ce cas, le front de flamme s'accélère continuellement jusqu'à atteindre une vitesse de flamme supersonique. Ainsi, une ou plusieurs ondes de choc se forment en amont du front de flamme. Lors de la propagation de ces ondes de choc, la pression et la température des gaz augmentent, et le milieu ne peut plus être considéré comme étant incompressible. Il est donc possible d'atteindre un régime de quasi-détonation dans lequel le front de flamme se couple et se découple de l'onde de choc. De même, il est possible d'atteindre une TDD. Celle-ci se produit lorsque plusieurs conditions géométriques, de composition du mélange combustible, et

thermodynamiques sont réunies. En effet, il faut qu'un point chaud se produise, et que l'onde de choc soit autoentretenu. Un récapitulatif des différents régimes de propagation auxquels peut être soumis le front de flamme, proposé par Grosseuvres [19], est donné sur la Figure 19 (a). De même, les différentes vitesses de propagation du front de flamme en fonction du régime de propagation, proposées par Ciccarelli et Dorofeev [219], sont données sur la Figure 19 (b).

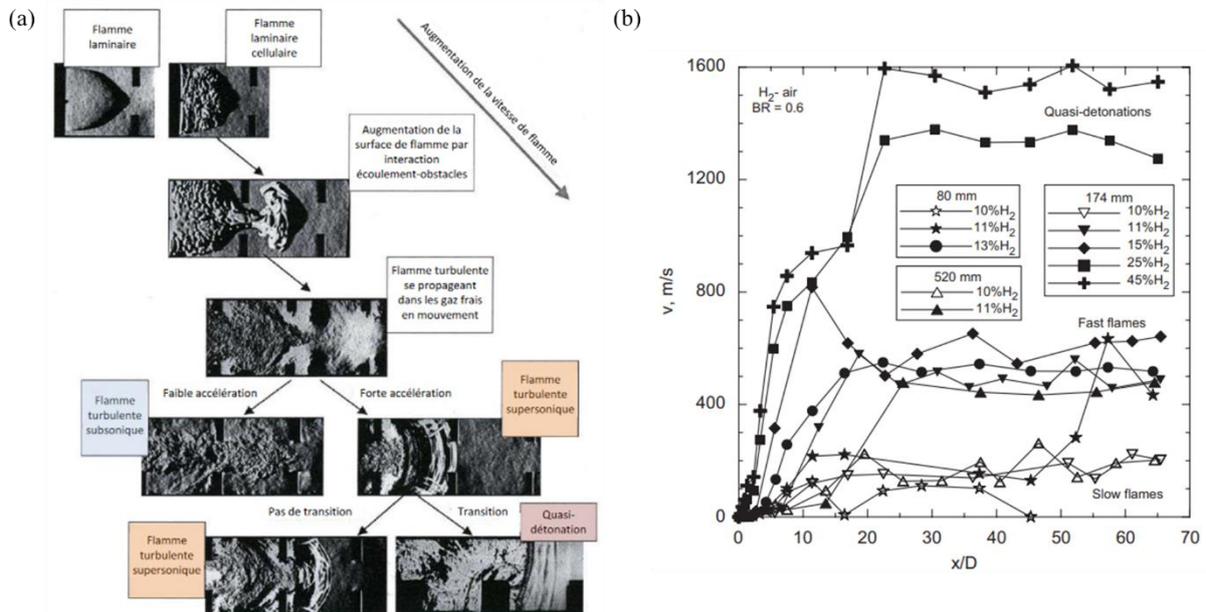


Figure 19 – Régimes de propagation d'une flamme dans un tube encombré d'obstacles. (a) : Récapitulatif des différents régimes de propagation du front de flamme au sein d'un tube encombré d'obstacles [19]. (b) : Vitesses de propagation du front de flamme pour les différents régimes de propagation d'un mélange H<sub>2</sub>/Air dans un tube encombré d'obstacles [219].

Lee et al. [244] ont conclu que la propagation du front de flamme à l'intérieur d'un tube encombré d'obstacles peut se faire selon quatre régimes distincts : quenching ou extinction, choking ou blocage, quasi-détonation, ou détonation. Le premier est défini par l'extinction locale de la flamme lorsque celle-ci atteint les obstacles. Le deuxième est défini par une vitesse de propagation du front de flamme qui se trouve entre 600 et 1000 m.s<sup>-1</sup>. Le troisième est défini par une vitesse de propagation du front de flamme qui dépasse 1000 m.s<sup>-1</sup>, et qui est susceptible de transiter vers la détonation en fonction du nombre et de la géométrie des obstacles. Lorsque c'est le cas, la vitesse de propagation de ces ondes de détonation reste inférieure à la vitesse de Chapman-Jouguet. Le quatrième se produit notamment lorsque l'intérieur de l'obstacle est 13 fois supérieur à la taille de la cellule de détonation. Lorsque c'est le cas, la vitesse de propagation de ces ondes de détonation se rapproche énormément de la vitesse de Chapman-Jouguet. En effet, dans ce cas l'influence du rapport de blocage des obstacles devient négligeable lors de la propagation des ondes de détonation.

Johansen et Ciccarelli [246] ont étudié l'écoulement des gaz frais en amont du front de flamme, dans le but de conclure sur l'influence des obstacles dans un tube sur l'accélération du front de flamme. Ils ont notamment étudié l'influence de cet écoulement sur les mécanismes menant à l'accélération du front de flamme. Pour ce faire, ils ont observé la propagation du front de flamme à l'intérieur d'un tube encombré d'obstacles. Or, dans le but de suivre la propagation de cet écoulement, ils ont introduit un gaz inerte entre deux obstacles qui sert de témoin (l'hélium), et qui est « poussé » par le front de flamme. L'intérêt d'utiliser un gaz inerte, de faible masse volumique afin de le rendre visible dans le système Schlieren utilisé, est que celui-ci ne réagit pas avec le mélange combustible et reste parmi les gaz frais, ce qui permet de suivre son évolution lorsque ceux-ci traversent les obstacles. Ils ont défini le déroulement de l'expérience en quatre étapes distinctes. La première étape est l'étape où l'hélium est injecté entre les deux obstacles. La deuxième étape est composée par les premiers instants de propagation du front de flamme. Ils ont observé l'écoulement des gaz frais et des gaz frais mélangés à

l'hélium qui traversent le premier obstacle. La troisième étape consiste en la création d'un vortex derrière les différents obstacles qui vient de l'expansion des gaz brûlés. Lors de cette étape, la turbulence de l'écoulement s'accroît de façon non négligeable. Finalement, la quatrième étape démarre lorsque les vortex sont suffisamment importants pour occuper tout l'espace entre les obstacles. Ceci a comme conséquence la création de plusieurs zones de recirculation, qui augmentent le front de flamme et donc la vitesse de celui-ci par les différentes boucles de rétroaction vues précédemment. Deux cas de figure sont alors possibles pour la suite des événements. Soit, le front de flamme rentre en contact avec un vortex avant qu'elle ne finisse de se développer, et réagit avec les gaz frais qui se trouvent au niveau des parois entre les obstacles, brûlant ainsi les gaz frais. Soit, le front de flamme rentre en contact avec un vortex après qu'elle ait fini de se développer, et il se propage donc au centre du tube entre les obstacles dans un premier temps, puis dans la zone de recirculation par la suite. La Figure 20 présente d'une part un schéma des 4 étapes déroulées expérimentalement par Johansen et Ciccarelli [246] (cf. Figure 20 (a)), et l'imagerie Schlieren associée d'une autre (cf. Figure 20 (b)).

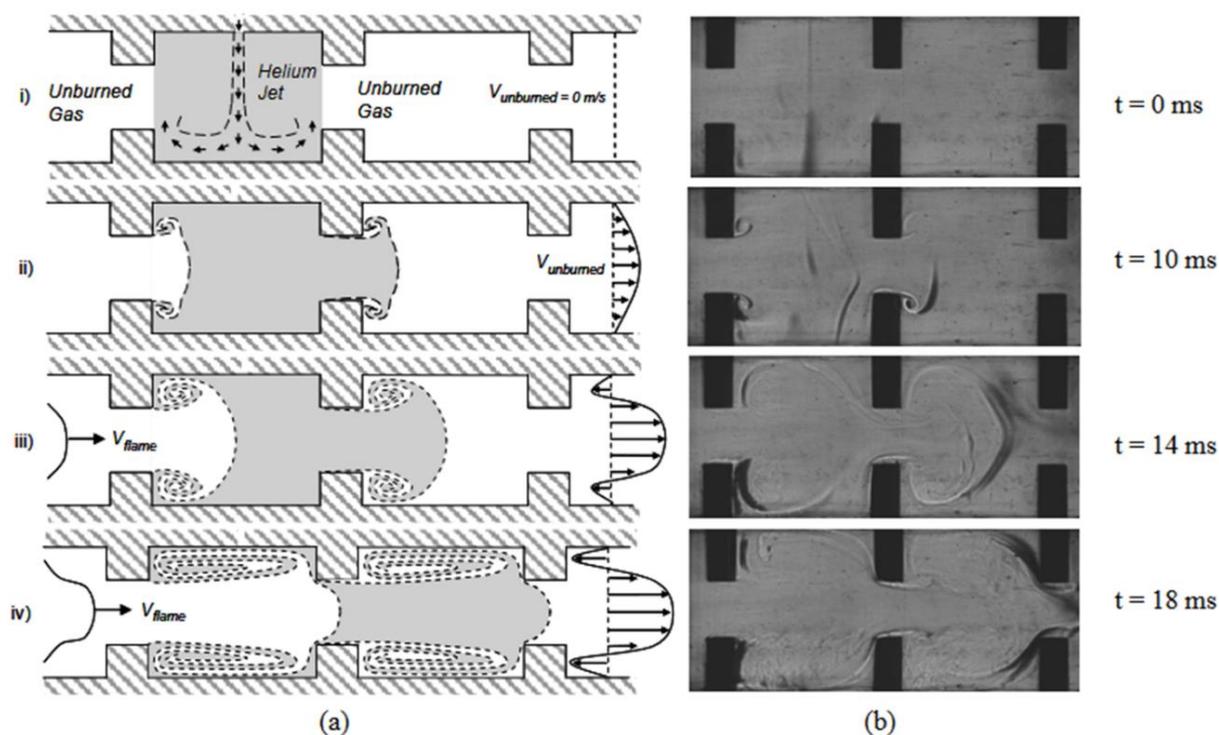


Figure 20 – Expérience menée par Johansen et Ciccarelli [246]. (a) : Schéma explicatif des 4 étapes expérimentales. (b) : Visualisation Schlieren associée.

Teodorczyk et Lee [247] ont conçu un matériau capable d'absorber les ondes acoustiques aux parois lors de l'accélération d'une flamme dans un tube encombré d'obstacles. Ils ont ainsi conclu que l'utilisation de leur matériau lors des essais permet de réduire la vitesse de propagation de la flamme de  $1000 \text{ m.s}^{-1}$  à  $100 \text{ m.s}^{-1}$ .

### 3.2. Cas du mélange étudié : $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$

La définition du cadre théorique concernant la propagation d'une flamme dans un tube, qu'il soit lisse ou bien encombré d'obstacles, ayant été faite, il est possible de se concentrer sur le cas particulier du mélange étudié :  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$ . L'influence de plusieurs paramètres initiaux sur l'accélération d'une flamme  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  sera donc traitée. Le premier paramètre initial étudié est la géométrie de l'enceinte expérimentale (tube cylindrique, tube rectangulaire, etc.), ainsi que la position d'allumage. Le deuxième paramètre initial étudié est les dimensions de l'enceinte expérimentale. Puis, seront vus dans un troisième temps, les paramètres liés aux obstacles (géométrie, dimensions, nombre).

Finalement sera traitée l'influence de la composition initiale du mélange sur l'accélération de ces flammes.

### 3.2.1. Géométrie de l'enceinte et position d'allumage

Deux types de géométries d'enceinte expérimentale sont principalement trouvées dans la littérature : les tubes cylindriques, et les tubes rectangulaires. Diao et al. [248] ont étudié l'influence de la position d'allumage sur la propagation d'une flamme  $H_2/CO/Air$  dans un tube Hele-Shaw semi-ouvert (conduit tel que la zone étudiée est située entre des plaques planes et parallèles faiblement espacées). Ils ont conclu que lorsque l'allumage se produit au milieu du tube, la flamme se propage vers les deux extrémités du tube, ouverte et fermée, et non pas seulement vers l'extrémité ouverte. Lorsqu'elle se propage vers le côté ouvert, la flamme ne forme pas de flamme « tulipe ». Lorsqu'elle se propage vers le côté fermé, la flamme ne forme pas de flamme « tulipe » pour les mélanges pauvres. L'évolution de la structure de la flamme dans le tube est significativement influencée par différentes positions d'allumage. De plus, lorsque la position d'allumage s'éloigne de l'extrémité fermée du tube, l'oscillation de la surpression devient plus intense, et la surpression beaucoup plus élevée. Ce phénomène est dû à un mélange entre les instabilités thermo-diffusives et les instabilités thermo-acoustiques. Plus le rapport d'expansion thermique est grand, plus il est probable que la flamme soit sensible aux instabilités hydrodynamiques. L'instabilité thermo-acoustique est causée, quant à elle, par le couplage de la chaleur produite par les réactions chimiques de la combustion avec les ondes acoustiques produites dans un conduit fermé ou semi-fermé. Cette instabilité au niveau du front de flamme provoque une forte oscillation de la flamme et affecte sérieusement la stabilité de la combustion. Lorsque le rapport d'équivalence est fixé, la flamme produit des oscillations secondaires et des fronts de flamme multiples en forme de doigt. Différents degrés d'oscillation accompagnent les flammes pendant leur propagation, tous apparaissent au stade tardif de celle-ci. Yu et al. [249] ont montré que la position d'allumage a un effet non négligeable sur la structure de propagation de la flamme, et sur la surpression maximale atteinte lors de la propagation d'une flamme dans un tube rectangulaire semi-ouvert. Ils ont observé la propagation d'une flamme « tulipe déformée » lorsque l'allumage se fait à 600 mm de l'extrémité fermée du tube. De même, lorsque l'allumage se fait à 0 mm de l'extrémité fermée du tube, ils ont observé la propagation d'une flamme « tulipe » classique pour une teneur en hydrogène comprise entre 10% et 30%, elle est déformée lorsque la teneur en hydrogène est inférieure à 10%. De plus, ils ont constaté une augmentation des oscillations de la pression lorsque la position d'allumage s'éloigne de l'extrémité fermée du tube. Celles-ci peuvent prendre deux formes différentes : une oscillation périodique et une oscillation irrégulière. Dans le premier cas, l'amplitude des oscillations augmente progressivement jusqu'à atteindre sa valeur maximale. Dans le deuxième, la valeur maximale de la surpression est atteinte dès la première oscillation. De même, l'amplitude des oscillations augmente lorsque la position d'allumage s'éloigne de l'extrémité fermée. Cette conclusion est partagée par Yao et al. [250]. En effet, ils ont constaté que lorsque la position d'allumage s'éloigne du côté fermé, la surpression maximale, ainsi que les oscillations du front de flamme augmentent. Ils ont montré que le temps requis pour que la flamme atteigne le côté ouvert du tube, et donc le temps requis pour que la flamme commence à osciller, devient plus court lorsque la position d'allumage s'éloigne de l'extrémité fermée du tube.

### 3.2.2. Dimensions de l'enceinte expérimentale

Les dimensions d'une enceinte expérimentale sont composées par : le diamètre, la longueur, l'ouverture, entre autres. Yang et al. [251] ont conclu que le comportement de la flamme n'est pas le même dans un tube fermé que dans un tube semi-ouvert. En effet, dans le cas d'un tube fermé, une flamme « tulipe » répétable se forme, alors que dans le cas d'un tube semi-ouvert, une flamme « tulipe » non répétable se forme. L'instabilité de Rayleigh-Taylor, qui est créée par la perturbation des ondes de pression, est responsable de la formation et de la répétition de la flamme « tulipe déformée » dans les tubes fermés. Dans le cas des tubes semi-ouverts, les ondes de pression sont insuffisantes pour créer

continuellement l'instabilité de Rayleigh-Taylor, à cause de l'ouverture d'une des extrémités du tube, et par conséquent, la flamme « tulipe déformée » ne se répète pas. L'instabilité de Rayleigh-Taylor a une grande influence sur la distorsion de la flamme « tulipe ». De plus, dans le cas des tubes semi-ouverts, l'extrémité ouverte a une influence significative sur les caractéristiques de propagation de la flamme lorsque celle-ci atteint les parois latérales. En effet, dans ce cas, la vitesse maximale de la pointe de la flamme est plus élevée et la surpression maximale est plus faible. Par conséquent, l'influence des ondes de pression sur la formation et la propagation de la flamme « tulipe déformée » est diminuée. De plus, une flamme qui se propage dans un tube avec les deux extrémités ouvertes se comporte différemment, et le nouveau volume généré dans le processus de combustion est distribué entre les flux amont et aval, vers les deux extrémités, ce qui modère l'effet, et par conséquent, une propagation de flamme régulière ou quasi régulière peut se produire au lieu d'une accélération et d'une oscillation. Lors des premiers instants de propagation de la flamme, correspondant aux propagations des flammes hémisphériques et en forme de doigt, la trajectoire de la pointe de la flamme est similaire dans les deux cas. En effet, au cours de ces deux phases, les ondes de pression et les instabilités sont négligeables. La divergence des trajectoires débute au moment où la surface de la flamme atteint les parois latérales du tube. En effet, les ondes de pression se propagent d'avant en arrière dans les tubes fermés et sont donc renforcées. Par conséquent, les ondes de pression renforcées peuvent entraver le mouvement du front de flamme vers l'avant. En revanche, l'ouverture de l'une des extrémités dans les tubes semi-ouverts réduit la force des ondes de pression, et celles réfléchies par l'extrémité fermée peuvent pousser le front de flamme vers l'avant, et par conséquent, la flamme se propage plus rapidement que dans les tubes fermés. Lorsque la largeur du canal est inférieure à l'épaisseur de la flamme, la flamme s'accélère à un taux presque constant. Cependant, lorsque la largeur du canal est supérieure à l'épaisseur de la flamme, la flamme s'accélère à un taux exponentiel après s'être propagée sur une certaine distance. Xiao et al. [252] ont constaté que la distorsion de la flamme tulipe disparaît lorsque l'ouverture de l'une des extrémités du tube est importante (valeur supérieure à 0,075).

De plus, Yang et al. [253] ont étudié la propagation d'une flamme de  $H_2/CO/Air$  stœchiométrique dans un tube ouvert des deux côtés. Ils ont conclu que lors des premiers instants de la propagation de la flamme, sa structure n'est pas modifiée par rapport à l'ouverture des extrémités. En effet, celle-ci commence par une propagation hémisphérique, qui s'étire par la suite en forme de doigt lorsqu'elle s'approche des parois du tube. Ainsi, lorsque le tube est ouvert des deux côtés, la flamme tulipe ne se développe que dans une des deux extrémités. La flamme se déplace donc plus rapidement d'un côté du tube que de l'autre. Au fur et à mesure que la flamme se déplace, le front de flamme se propageant le plus rapidement devient progressivement ridé, et la structure cellulaire émerge sur la surface convexe du front de flamme. Ceci est dû aux instabilités de Darrieus-Landau. Le front de flamme convexe évolue progressivement vers une flamme en forme de « Gamma » pendant le processus de propagation de la flamme, et la structure cellulaire s'étend également sur toute sa surface. Cette forme de « Gamma » est due surtout aux effets de flottabilité. La forme du front de flamme en « Gamma » peut être observée pour des teneurs en hydrogène comprises entre 10% et 70%. Cependant, lorsque la teneur en hydrogène augmente, la structure de flamme « tulipe » disparaît progressivement, jusqu'à disparaître totalement lorsque la teneur en hydrogène dans le mélange atteint 70%. Dans ce cas, le front de flamme gauche et le front de flamme droit sont presque symétriques. Les fronts de flamme gauche et droit subissent un changement de forme similaire, et le temps nécessaire pour que la flamme atteigne l'extrémité ouverte est presque le même. Ils ont donc conclu que les instabilités de Darrieus-Landau ne sont pas à l'origine des changements structurels du front de flamme, en particulier de son inversion. Dans le cadre d'une propagation de flamme dans un tube ayant les deux extrémités ouvertes, les ondes de pression n'auront que très peu d'effet sur les phénomènes d'accélération et de propagation de la flamme. L'effet d'ouverture de l'une des extrémités sur l'expansion de la flamme est significatif lorsque la teneur en hydrogène est inférieure à 30%, et est modéré lorsque la teneur en hydrogène dépasse les 50%.

En se basant sur le facteur d'expansion,  $\sigma$ , Bychkov et al. [254] ont proposé une théorie analytique permettant de déterminer le temps de propagation de la flamme jusqu'à ce qu'elle atteigne les parois du tube,  $t_w$ , et le temps de propagation total de la flamme,  $t_p$ . Ces deux valeurs sont données par :

$$t_w = \frac{R}{S_l^0} * \frac{1}{2\sqrt{\sigma(\sigma-1)}} * \ln\left(\frac{\sigma + \sqrt{\sigma(\sigma-1)}}{\sigma - \sqrt{\sigma(\sigma-1)}}\right) \quad (39)$$

$$t_p = t_w + \frac{\delta_l}{2\sqrt{\sigma(\sigma-1)}} * \frac{R}{S_l^0} \quad (40)$$

Avec,  $t_w$  le temps de propagation de la flamme jusqu'à ce qu'elle atteigne les parois du tube (en s),  $R$  le rayon du tube (en m),  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en  $m.s^{-1}$ ),  $\sigma$  le facteur d'expansion de la flamme,  $t_p$  le temps de propagation total de la flamme (en s), et  $\delta_l$  l'épaisseur de flamme laminaire (en m). Le Tableau 4 présente les différents paramètres thermodynamiques d'une flamme H/CO/Air stœchiométrique pour plusieurs teneurs en hydrogène.

<b>X(H<sub>2</sub>)</b>	<b><math>\rho_f</math> (kg.m<sup>-3</sup>)</b>	<b><math>T_f</math> (K)</b>	<b><math>\sigma</math></b>	<b><math>S_l</math> (m.s<sup>-1</sup>)</b>
10%	1,14	2375,5	6,94	0,50
30%	1,08	2370,5	6,91	0,78
50%	1,01	2368,6	6,89	1,14
70%	0,95	2369,5	6,88	1,45
90%	0,89	2374,6	6,87	1,80

Tableau 4 – Paramètres physiques du mélange H<sub>2</sub>/CO stœchiométrique : masse volumique des gaz frais, température adiabatique de flamme, rapport d'expansion des gaz et vitesse de flamme laminaire [253].

Cao et al. [255] ont étudié l'impact du rapport d'aspect qui est donné par L/H (Longueur/Hauteur) dans un tube rectangulaire. Le rapport d'aspect L/H affecte significativement le comportement de la propagation de la flamme après qu'elle soit rentrée en contact avec les parois du tube. En effet, plus le rapport L/H augmente, plus la structure de la flamme est modifiée. Ainsi, avec l'augmentation du rapport L/H, la flamme « tulipe » a entièrement la place pour se développer, et les lèvres de la tulipe deviennent plus fines. De plus, ils ont conclu que lorsque la longueur du tube est fixée, la vitesse de propagation de la flamme, ainsi que son accélération augmentent, et la surpression maximale diminue, lorsque la hauteur du tube diminue. De même, lorsque la hauteur du tube est fixée, la vitesse de propagation de la flamme augmente et la surpression maximale diminue, lorsque la longueur du tube diminue. Les oscillations de ces différentes grandeurs augmentent, quant à elles, avec l'augmentation de la longueur du tube. Di Sarli et al. [256] ont montré, quant à eux, que plus la température initiale diminue, plus la surpression maximale est élevée. Le rapport L/H a un effet significatif sur la surpression maximale pour une teneur en hydrogène inférieure 30%. Lorsque la teneur en H<sub>2</sub> est supérieure à 30%, l'effet du rapport L/H sur la surpression maximale est minime. La formation d'une flamme « tulipe » ne dépend pas seulement du rapport d'aspect, mais aussi du caractère ouvert ou fermé du tube. En effet, la flamme « tulipe » n'est obtenue dans un tube fermé que pour un rapport d'aspect supérieur à 2 [257], alors qu'elle n'est obtenue dans un tube semi-ouvert que pour un rapport d'aspect supérieur à 6,7 [258]. De plus, la position de la flamme tulipe augmente avec l'augmentation du rapport d'aspect dans un tube fermé [226]. Finalement, ils ont déterminé une relation permettant de calculer le temps de formation de la flamme « tulipe ». Ce temps est donné comme suit :

$$t_{tulipe} = 0,26 \left( \frac{H}{2 * S_l^0} \right) \pm 0,02 \left( \frac{H}{2 * S_l^0} \right) \quad (41)$$

Avec,  $t_{tulipe}$  le temps de formation de la flamme « tulipe » (en s),  $H$  la hauteur du tube rectangulaire (en m), et  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en  $m.s^{-1}$ ).

Clanet et Searby [234] ont déterminé, quant à eux, une relation permettant de déterminer l'instant où l'accélération de la flamme commence :

$$t_{\text{accélération}} = 0,1 \left( \frac{H}{2 * S_l^0} \right) \pm 0,02 \left( \frac{H}{2 * S_l^0} \right) \quad (42)$$

Avec,  $t_{\text{accélération}}$  le temps d'accélération de la flamme (en s),  $H$  la hauteur du tube rectangulaire (en m), et  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en m.s<sup>-1</sup>). Le taux d'augmentation de ce temps est donné par :  $\frac{\sigma * S_l^0}{H}$ .

### 3.2.3. Paramètres liés aux obstacles

Les paramètres liés aux obstacles sont : le rapport de blocage, le nombre d'obstacles, la distance entre les obstacles, la géométrie des obstacles, entre autres. La présence d'obstacles à l'intérieur du tube, lors de la propagation d'une flamme, modifie sa structure et stimule son accélération [259]. La présence d'obstacles dans l'enceinte expérimentale est à l'origine de l'accélération de la flamme par deux mécanismes distincts : la turbulence, et le jet-flow [260, 261]. Le premier mécanisme considère que l'augmentation de la surface de la flamme turbulente est le facteur principal de l'accélération de la flamme ; tandis que le second propose que le jet-flow généré par la combustion retardée dans les interstices, soit en amont des obstacles, a un effet d'accélération plus fort que la turbulence [226]. Les instabilités de Kelvin-Helmholtz peuvent étirer le front de flamme, et favoriser les turbulences [262]. En effet, la couche limite qui se trouve autour des zones de recirculation combinée avec l'interaction du front de flamme avec les tourbillons présents dans celles-ci aura comme conséquence l'étirement de la flamme. Ce comportement contribue aux forces externes, des ondes de pression, générées par l'accélération de la flamme, et réfléchies par l'extrémité fermée du tube. Les ondes de pression interagissent avec le front de flamme et provoquent le changement de son comportement. Yang et al. [259] ont conclu sur le fait que le mécanisme de développement de la flamme « tulipe » dans un tube encombré d'obstacles est très différent de celui dans un tube lisse. En effet, dans un tube lisse, la flamme « tulipe » est un phénomène purement hydrodynamique, et la lèvre et la cuspide de la flamme se propagent vers l'extrémité aval. Dans un tube fermé encombré d'obstacles, cependant, la cuspide de la tulipe se déplacera d'abord en arrière vers le champ brûlé. La présence des obstacles favorise le développement d'un vortex dans les gaz brûlés. La présence des obstacles n'a aucun effet sur la partie de la flamme touchant les parois du conduit, mais accélère l'inversion et la propagation de la flamme. La présence des obstacles dans le tube a donc un effet non négligeable sur la dynamique de propagation de la pointe de la flamme, mais n'a aucun effet sur l'expansion latérale de celle-ci. De plus, ils ont constaté en fixant la valeur de la teneur en hydrogène dans le mélange que la présence d'obstacles dans le tube a un effet de rétroaction positive sur le phénomène d'inversion du front de flamme. La présence des obstacles, a comme conséquence la création de tourbillons en aval de ceux-ci, et l'interaction flamme-tourbillons favorise la transition de la flamme de laminaire à turbulente. La vitesse de la pointe de la flamme augmente considérablement lorsque la flamme s'approche des obstacles, à cause de l'étirement du front de flamme, puis diminue après qu'elle ait fini de les traverser. De plus, l'oscillation de la flamme est étroitement liée à la turbulence de la flamme. Le profil de surpression à l'intérieur du tube est divisé en quatre phases : phase d'augmentation lente régulière, phase d'oscillation, phase d'augmentation rapide, et phase de diminution rapide. La première phase correspond à l'augmentation lente de la vitesse de flamme laminaire, et donc de la surpression et de la vitesse de la pointe de la flamme. La deuxième phase correspond au processus de propagation de la flamme à travers l'ouverture de l'obstacle. Lorsque la flamme se propage à travers l'ouverture de l'obstacle, une partie de la jupe de la flamme se déplace vers l'arrière vers les obstacles, et le reste de la flamme forme un jet vers l'avant, d'où le phénomène d'oscillation. La troisième phase correspond à la fin de la traversée de la flamme à travers les obstacles. L'interaction du front de flamme avec les vortex en sortie des obstacles crée des turbulences et donc une accélération de la flamme, d'où l'augmentation rapide de la surpression. La

quatrième, et dernière phase a lieu avant l'inversion du front de flamme, d'où la diminution de la surpression.

De plus, la forme du front de flamme est en étroite relation avec la forme des obstacles [263]. Deux paramètres sont fondamentaux pour la compréhension du comportement de la flamme au contact des obstacles : le rapport de blocage et l'espacement entre les obstacles [261]. Lorsque le rapport de blocage augmente, la vitesse de flamme augmente à son tour [246, 259, 250]. Cependant, la surpression maximale, quant à elle, diminue [250]. Cela peut s'expliquer par le fait qu'un rapport de blocage plus petit signifie une plus grande résistance, de sorte que la turbulence s'intensifie rapidement, entraînant une augmentation de la surpression maximale. Ceci est dû à l'accélération du front de flamme qui se produit à cause du jet-flow généré entre des obstacles adjacents. La présence d'obstacles dans le tube va avoir comme effet de « briser » le front de flamme, et de contribuer au développement de la turbulence. En effet, plus le rapport de blocage est important, plus la turbulence est forte, et plus le front de flamme est déformé. Par conséquent, l'interaction entre le front de flamme et la turbulence augmente, ce qui entraîne une augmentation de la vitesse de propagation de la flamme. L'inversion de la flamme a lieu plus rapidement lorsque le rapport de blocage augmente. La fréquence d'oscillation du profil de vitesse de la pointe de la flamme diminue lorsque le rapport de blocage augmente. Cependant, alors que la fréquence d'oscillation diminue, l'amplitude d'oscillation, quant à elle, augmente avec l'augmentation du rapport de blocage [259, 250]. Yao et al. [250] ont remarqué que lorsque la position d'allumage est fixée, l'augmentation du rapport de blocage entraîne la disparition de la flamme « tulipe déformée ». Par conséquent, le rapport de blocage a peu d'influence sur les deux premières étapes de la propagation, et la formation de la flamme « tulipe déformée » peut être due au fait que les ondes de surpression inversent le flux de la pointe de la tulipe avant la formation de la flamme « tulipe déformée ». Finalement, l'augmentation du rapport de blocage, à position d'allumage fixe, peut entraîner une augmentation de la vitesse de la réaction chimique.

Le taux de combustion maximal a généralement lieu à une distance de 3 à 20 diamètres de l'obstacle [238]. De plus, Han et al. [226] ont conclu que la position des obstacles dans le tube peut affecter, en fonction de la structure de la flamme, l'accélération de celle-ci. En effet, pour une fraction en hydrogène de 0,1, plus l'obstacle est éloigné du point d'allumage, plus la turbulence devient importante et l'influence sur l'accélération de la flamme augmente à son tour. Cependant, cet effet n'est pas toujours monotone, car lorsque la fraction en hydrogène est de 0,5, ils ont observé une accélération non uniforme au passage des obstacles. Lorsque la fraction d'hydrogène dans le mélange H<sub>2</sub>/CO est supérieure ou égale à 0,1, la surpression maximale au sein de l'enceinte augmente, et la vitesse de propagation maximale du front de flamme diminue, en même temps que l'obstacle recule par rapport à la position d'allumage. Ils ont séparé la propagation de la flamme à l'intérieur du tube en trois étapes distinctes en fonction de la position des obstacles dans l'enceinte. La flamme au cours de ces trois étapes se voit accélérée pour plusieurs raisons. D'une part, les obstacles augmentent les turbulences, et donc la vitesse de flamme. D'une autre part, la combustion différée peut avoir une influence plus importante que la turbulence dans certains cas. Celle-ci se produit lorsque le front de flamme est déformé par les obstacles, et vient au contact des zones de recirculation où se logent les gaz frais. Ces gaz frais brûlent de manière différée, et produisent de la chaleur derrière le front de flamme, qui crée un effet de jet-flow, et favorise l'accélération de la flamme. Pour savoir lequel des deux mécanismes est prédominant, il existe une valeur critique qui dépend de la vitesse de combustion et de la turbulence. Plus la distance entre l'obstacle et le point d'allumage est grande, plus le front de flamme sera turbulent, en raison de l'instabilité intrinsèque accrue de la flamme. L'intensité de la turbulence augmente en aval de l'obstacle, et elle atteint une valeur maximale derrière celui-ci, puis elle commence à décroître à un rythme plus ou moins régulier sur une distance relativement longue [261]. Il existe donc un espacement « optimal » entre les obstacles où la surpression et la vitesse sont maximales. Si l'espacement entre les obstacles est plus grand ou plus petit que l'espacement optimal, l'accélération de la flamme ne serait pas aussi sévère et dans les cas limites (trop près ou trop loin), l'effet des obstacles répétés serait minimal. Na'inna et al. [261] ont introduit la notion d'échelle de l'obstacle, une grandeur, notée  $b$ , qui correspond à la largeur

entre les trous d'une plaque servant d'obstacle dans un tube encombré. Pour ce faire, ils se sont basés sur la définition donnée par Baines et Peterson [264]. Elle est donnée comme suit :

$$b = M - 0,95 * d_{obstacle} \quad (43)$$

Avec,  $b$  l'échelle de l'obstacle (en m),  $M$  la taille de la grille d'obstacles (en m), et  $d_{obstacle}$  le diamètre du trou dans l'obstacle (en m).

### 3.2.4. Composition initiale du mélange

Les variations dans la composition initiale du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air peuvent avoir une influence non négligeable sur la propagation de ces flammes dans un tube. En effet, une augmentation de la teneur en hydrogène dans le mélange induit une sensibilité accrue aux instabilités de la flamme (cf. Chapitre 1 – partie 2.3) [226, 265]. Ceci est dû à la diminution de l'épaisseur de la flamme lorsque la fraction en hydrogène augmente, ce qui a comme conséquence l'augmentation de l'instabilité de la flamme et de sa sensibilité aux instabilités de Darrieus-Landau et de Rayleigh-Taylor [259]. Ainsi, la turbulence au niveau du front de flamme augmente à son tour. La structure de la flamme se voit, par conséquent, modifiée, et sa vitesse augmente. En effet, il a été montré que l'augmentation du rapport d'équivalence induit une augmentation de la vitesse de propagation du front de flamme, ainsi que de la surpression maximale atteinte dans l'enceinte [266, 267]. Cette influence sur la surpression de combustion augmente avec la diminution de la teneur en hydrogène. Les évolutions de la vitesse de flamme et de la trajectoire du front de flamme peuvent être divisées en deux étapes : une augmentation exponentielle, et une augmentation lente [267]. De même, la vitesse de réaction chimique augmente également avec l'augmentation de la teneur en hydrogène, augmentant ainsi les instabilités thermo-acoustiques. Ceci a comme conséquence l'augmentation de la vitesse de propagation de la flamme. De plus, la surpression est maximale lorsque la surface de réaction atteint sa valeur maximale [249]. Cependant, le temps nécessaire pour atteindre cette surpression maximale diminue progressivement lorsque le rapport d'équivalence augmente [248]. L'accélération de la flamme et les ondes de pression s'influencent mutuellement, puisqu'elles ont une tendance similaire avec le rapport d'équivalence. L'effet d'accélération des obstacles lorsque le rapport d'équivalence augmente, s'affaiblit, et par conséquent l'augmentation de la vitesse de flamme maximale et de la surpression maximale décélère. Ceci est dû à l'effet combiné de la combustion retardée et de la turbulence accrue lorsque l'obstacle s'éloigne du point d'allumage et que la fraction d'hydrogène dans le mélange H<sub>2</sub>/CO est supérieure ou égale à 0,1. Finalement, la flamme turbulente peut avoir un impact négatif sur l'effet de la combustion retardée pour l'accélération de la flamme lorsque celle-ci est égale à 0,1. Lorsque la flamme turbulente entre dans la zone obstruée, l'influence de la combustion retardée sur l'accélération de la flamme devient faible [226]. Tran et al. [159] ont montré que pour un mélange (50% H<sub>2</sub>/50% CO)/Air, la surpression maximale est obtenue à un rapport d'équivalence de 1,2 ; alors que le temps de propagation le plus court, à un rapport d'équivalence de 1,6. Le premier résultat peut s'expliquer par le fait que la température adiabatique maximale d'une flamme H<sub>2</sub>/CO = 50%/50% est obtenue à un rapport d'équivalence de 1,2. Le deuxième résultat, quant à lui, provient de la combinaison entre la température adiabatique maximale atteinte à un rapport d'équivalence de 1,2, et de la vitesse de flamme laminaire maximale atteinte à un rapport d'équivalence de 2.

Il existe deux types d'inversion de flamme différents : les flammes « tulipes » classiques et les flammes « tulipes déformées » (cf. Chapitre 1 – partie 3.1.1) [265]. Lorsque la teneur en hydrogène dans le mélange initial augmente, l'inversion de la flamme se « complique » par rapport à une flamme « tulipe » classique. Ceci peut être expliqué par les instabilités thermo-acoustiques, les instabilités de Kelvin-Helmholtz, et par les mouvements tourbillonnaires des écoulements. Lorsque la teneur en hydrogène est supérieure à 50%, il est possible d'obtenir une flamme « tulipe fortement déformée », et ce quel que soit le rapport d'équivalence. En outre, lorsque la teneur en hydrogène augmente, la flamme « tulipe » s'allonge, et se déforme de plus en plus. En effet, le plissement de la flamme devient plus

important lorsque le rapport d'équivalence est supérieur à 2, et la flamme « tulipe déformée » peut être clairement identifiée [267].

L'amplitude des oscillations du profil de vitesse de la pointe de la flamme augmente avec l'augmentation de la teneur en hydrogène [248, 265]. C'est-à-dire que les lèvres de la tulipe se déforment, et que la double cuspide de la flamme « tulipe » et le front de flamme multi-têtes sont ensuite atteints. Ensuite, le front de flamme à têtes multiples est déformé et reconstruit, et la flamme subit ce processus plusieurs fois jusqu'à la fin de sa propagation. La teneur en hydrogène a une influence considérable sur la vitesse de propagation de la flamme, ainsi que sur l'instabilité du front de flamme [259, 248]. Les ondes de pression jouent un rôle important dans la déformation et l'oscillation de la flamme. En effet, l'interaction entre les ondes de pression, dont leur force augmente progressivement, et le front de flamme génère ces oscillations. Plus la vitesse de propagation de la flamme est élevée, plus les ondes de pression sont fortes.

La tendance de la surpression en fonction du temps peut être divisée en trois étapes. La première correspond à la surpression qui augmente simultanément avec l'augmentation de la vitesse de la pointe de la flamme. Puis, elle diminue progressivement. L'interaction entre les ondes de pression et la surface du front de la flamme accompagne toujours la propagation de la flamme, ce qui augmente l'accélération, la décélération et la déformation de la flamme. La diminution de la surpression peut être expliquée par une vitesse de propagation lente. La surpression augmente à nouveau, mais très lentement. La diminution du temps de formation de la flamme plane, a une tendance en fonction du rapport d'équivalence qui est inversement proportionnelle à la vitesse de flamme laminaire [267]. La période du mode d'onde de pression est déterminée par le temps nécessaire à l'onde de pression pour se déplacer de l'avant de la flamme à l'extrémité fermée et inversement. Ainsi, l'oscillation de la flamme peut être divisée en deux modes lorsque la teneur en hydrogène augmente. Le mode I correspond à une oscillation légère qui augmente progressivement jusqu'à atteindre sa valeur maximale, avant de diminuer par la suite. La vitesse de la pointe de la flamme oscille lentement dans la phase initiale, puis l'oscillation s'accroît progressivement. Le mode II correspond à une oscillation violente dans la phase initiale atteignant la valeur maximale, avant de diminuer par la suite. Lorsque la flamme oscille en mode I, la surpression et la vitesse de la pointe de la flamme partagent la même fréquence d'oscillation. Seules les oscillations de Helmholtz ont été observées dans des conditions pauvres, mais dans des conditions riches, les oscillations de Helmholtz se transforment en oscillations acoustiques. Lorsque la flamme oscille en mode I, l'oscillation de Helmholtz ne peut pas être observée [268].

Finalement, il est possible de définir l'indice de déflagration. Celui-ci est donné par la relation ci-dessous :

$$K_G = \left( \frac{dP}{dt} \right)_{max} * V^{1/3} \quad (44)$$

Avec,  $K_G$  l'indice de déflagration (en m.bar.s<sup>-1</sup>),  $P$  la pression (en bar),  $V$  le volume de la chambre de combustion (en m<sup>3</sup>).

Tran et al. [266] ont constaté que lorsque la teneur en hydrogène dans le mélange augmente, l'indice de déflagration augmente à son tour. De même, lors de cette augmentation de la teneur en hydrogène, le temps d'explosion est raccourci. Ainsi, plus la teneur en hydrogène est élevée, plus le mélange présente un risque d'explosion important. Cependant, la pression maximale d'explosion diminue avec l'ajout de H<sub>2</sub>O<sub>vap</sub>, en raison d'une diminution de la température adiabatique de flamme, alors qu'elle diminue légèrement avec l'augmentation de la teneur en hydrogène.

Finalement, Jafarholi et al. [102] ont étudié numériquement, à l'aide d'une DNS, la propagation d'une flamme de H<sub>2</sub>/CO/Air pauvre dans un tube rectangulaire. La principale conclusion qu'ils ont pu tirer de leur étude est que le temps nécessaire à la consommation des 10% initiaux de combustible et des 10% finaux de combustible dans le mélange est environ cinq fois plus long que la

consommation des autres 80% de combustible, qui sont consommés quant à eux à un taux presque constant.

#### 4. Conclusions sur l'état de l'art

Ce premier chapitre consacré à l'état de l'art sur les différents concepts théoriques, ainsi qu'au mélange étudié lors de cette étude :  $H_2/CO/Air$ , présente des concepts généraux qui seront pris en compte dans cette étude. La première partie se concentre sur les propriétés fondamentales des flammes de prémélange. Pour ce faire, les flammes laminaires de prémélange ont été définies dans un premier temps. Puis, une étude sur les limites d'inflammabilité, d'une manière générale dans un premier temps, puis du mélange  $H_2/CO/Air$ , a été réalisée. L'influence de plusieurs paramètres initiaux (température initiale, pression initiale, ajout de diluants, entre autres) sur les limites d'inflammabilité de ce mélange a été caractérisée. Il a été conclu que le mélange  $H_2/Air$  a été largement étudié dans la littérature, tandis que quelques lacunes existent encore concernant le mélange  $H_2/CO/Air$ . En effet, les données concernant l'influence de la pression initiale, ainsi que de la température initiale, et de l'appauvrissement en oxygène sont rares. Les données concernant la limite en inertage en  $CO_2$  du mélange stœchiométrique sont inexistantes. Finalement, la dernière sous-partie de cette première partie a consisté en l'étude des vitesses de flamme laminaires, que ce soit le cadre théorique comme le cas particulier du mélange  $H_2/CO/Air$ . Les valeurs de ces vitesses de flamme laminaires des mélanges  $H_2/CO/Air$  en fonction des différents paramètres initiaux sont nombreuses dans la littérature.

La seconde partie de l'état de l'art s'est concentrée sur les régimes de propagation des flammes. Cette section a abordé la définition et la caractérisation du cadre théorique relatif aux déflagrations, aux mécanismes d'accélération de la flamme, ainsi qu'aux instabilités de flamme, notamment hydrodynamiques et thermo-diffusives. Finalement, la troisième partie de l'état de l'art a été faite sur la propagation de déflagrations en milieux confinés. Pour ce faire, le cadre théorique (propagation dans un tube lisse et dans un tube encombré d'obstacles) a été défini dans un premier temps. Puis, le cas particulier du mélange étudié :  $H_2/CO/Air$  a été traité par la suite. La conclusion principale qui a pu être tirée de cette partie de l'étude est que les résultats expérimentaux concernant la propagation d'une flamme  $H_2/CO/Air$  dans un tube encombré d'obstacles sont très rares dans la littérature. Les résultats concernant l'influence des conditions thermodynamiques initiales sur la propagation de ces flammes, sont inexistantes. Il est donc intéressant d'étudier l'influence de plusieurs valeurs de pression et de température initiales différentes sur la propagation des flammes  $H_2/CO/Air$  dans un tube encombré d'obstacles. Concernant les études traitant de l'influence de la composition initiale du mélange sur la propagation de ces flammes, les résultats expérimentaux trouvés dans la littérature sont rares. En effet, il n'existe pas à ce jour de résultats pour des mélanges proches des limites d'inflammabilité, et les seuls résultats existants concernent des mélanges 50% $H_2$ /50% $CO$ . Ainsi étudier l'influence de plusieurs compositions du mélange initial différentes, ainsi que des mélanges proches des limites d'inflammabilité permettrait d'obtenir une première base de ces données.



## Chapitre 2

### Dispositifs expérimentaux et méthodologie



Ce deuxième chapitre est dédié à la description des différents dispositifs expérimentaux utilisés pour la réalisation des travaux de cette thèse. Il s'articulera autour de 3 grands axes : la bombe sphérique (BSI) pour l'étude sur les limites d'inflammabilité, l'enceinte d'accélération de flamme ENACCEF-II pour l'étude de la propagation de flammes proches des limites d'inflammabilité dans un tube fermé encombré d'obstacles, et le logiciel COSILAB appliqué ici à la simulation de la combustion de flammes de prémélange (calculs à l'équilibre et calcul des paramètres de ces flammes). Pour chaque système les dispositifs expérimentaux sont décrits, ainsi que la méthodologie développée pour analyser les résultats. Les conclusions sur les dispositifs expérimentaux et sur la méthodologie employée pour la réalisation des différentes campagnes expérimentales seront tirées.

## 1. Étude des limites d'inflammabilité

La première partie de l'étude porte sur la détermination des limites d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. Les résultats ont été obtenus avec une bombe sphérique dont le principe de fonctionnement général est détaillé avant de décrire la bombe sphérique de 8L (BSI) utilisée. La méthodologie permettant de déterminer les limites d'inflammabilité sera explicitée. Finalement, il sera détaillé les conditions expérimentales étudiées lors de cette partie de l'étude.

### 1.1. Principe de fonctionnement général d'une bombe sphérique

Le principe général de fonctionnement de la bombe sphérique consiste au remplissage de l'enceinte avec un mélange combustible, auquel une énergie suffisante sera fournie dans le but de permettre la propagation d'une flamme. Pour ce faire, une étincelle est créée, à l'aide d'une source d'énergie, entre deux électrodes placées à l'intérieur de l'enceinte expérimentale. En fonction de la teneur initiale du mélange, ainsi que de ses conditions thermodynamiques initiales, cette énergie suffira, ou non, à la propagation de la flamme. Ceci permet la réalisation de l'étude statistique menant à la détermination du domaine d'inflammabilité du mélange. Lorsque l'énergie est suffisante, et que par conséquent la flamme se développe, l'expansion du front de flamme est due au dégagement de chaleur généré par la combustion du mélange combustible. Cette expansion du front de flamme entraîne l'augmentation de la pression dans la bombe sphérique en créant une compression adiabatique des gaz frais, ce qui va générer une augmentation, non seulement de la pression à l'intérieur de l'enceinte, mais aussi de la température des gaz. L'augmentation des paramètres thermodynamiques, que ce soit la pression ou la température, peut être suivie à l'aide de différents capteurs qui seront détaillés par la suite. La variation de la pression en fonction du temps fournit des informations nécessaires à la compréhension de la propagation de la flamme. Ces informations proviennent des paramètres suivants : la pression maximale  $P_{max}$ , le taux de croissance de la pression  $\left(\frac{dP}{dt}\right)_{max}$ , le temps pour lequel la pression est maximale  $t_{P_{max}}$ , et finalement le temps pour lequel le taux de croissance de la pression est maximal  $t\left(\frac{dP}{dt}\right)_{max}$ . Le taux de combustion est déterminé par la propagation du front de flamme : soit il s'agit d'une propagation ascendante d'un noyau de flamme qui se développe, soit il s'agit d'une propagation sphérique symétrique autour des électrodes. Le premier cas correspond à une combustion incomplète, tandis que le deuxième à une combustion complète. Lorsque la combustion est complète, la pression est maximale lorsque le front de flamme atteint les parois de la bombe sphérique. Ainsi,  $t_{P_{max}}$  correspond au temps pour lequel la pression est maximale, mais aussi au temps pour lequel la combustion est complète. La propagation spatiale et temporelle de la flamme peut être suivie à l'aide de différentes techniques d'imagerie, pour lesquelles l'utilisation d'une caméra rapide est indispensable.

### 1.2. Description de la bombe sphérique BSI

La bombe sphérique utilisée, ou BSI, est une enceinte fermée à volume constant, en acier inoxydable de 8 litres, et de 250 mm de diamètre interne, capable de tenir des pressions allant jusqu'à 50 bars, et des températures allant jusqu'à 100°C. Elle est équipée de deux hublots, disposés à l'opposé

sur une diagonale, qui permettent l'accès optique à l'intérieur de l'enceinte. Les hublots sont constitués de disques en quartz, ayant les faces polies, de  $97\pm 0,2$  mm de diamètre, et de  $30\pm 0,2$  mm d'épaisseur. Les techniques d'imagerie mises en place pour suivre la propagation du front de flamme nécessitent l'utilisation d'une source de lumière ainsi que d'une caméra rapide. Pour pallier à ce besoin, la bombe sphérique a été traitée il y a quelques années pour être noircie à l'aide d'un traitement EBONOL<sup>®</sup>. Ce traitement permet de limiter les réflexions des émissions lumineuses à l'intérieur de l'enceinte, ce qui évite donc que les réflexions de la lumière viennent polluer les images prises par la caméra rapide. Tous les dispositifs de mesure, le système d'introduction et d'évacuation des gaz, et les électrodes sont installés à l'aide des bossages se trouvant tout autour dans la bombe sphérique. Tous les bossages sont faits en acier inoxydable, et sont vissés par un système de 6 vis et isolés à l'aide de joints toriques dans le but de rendre l'enceinte étanche. Les électrodes sont en tungstène et ont un diamètre de 2 mm. Le tungstène a été choisi pour ses propriétés mécaniques : son point de fusion parmi les plus élevés, sa très grande densité, et son module d'élasticité particulièrement grand. De plus, sa résistance mécanique et sa rigidité sont conservées à des températures très élevées, allant jusqu'à 2273 K. Les électrodes sont placées sur la diagonale de l'enceinte, et l'étincelle est créée sur la partie basse de la bombe sphérique. En effet, lors de l'étude des mélanges pauvres, la flamme aura une propagation ascendante du front de flamme. Afin d'assurer l'isolation thermique de l'enceinte, celle-ci a été recouverte par de la laine de verre. En complément, cette laine de verre a été recouverte par de la bande Zetex permettant de tenir la laine de verre sur la surface extérieure de la bombe sphérique et d'améliorer l'isolation thermique. Le schéma, ainsi que la photo, donnés sur la Figure 21, permettent de visualiser la disposition de la bombe sphérique utilisée.

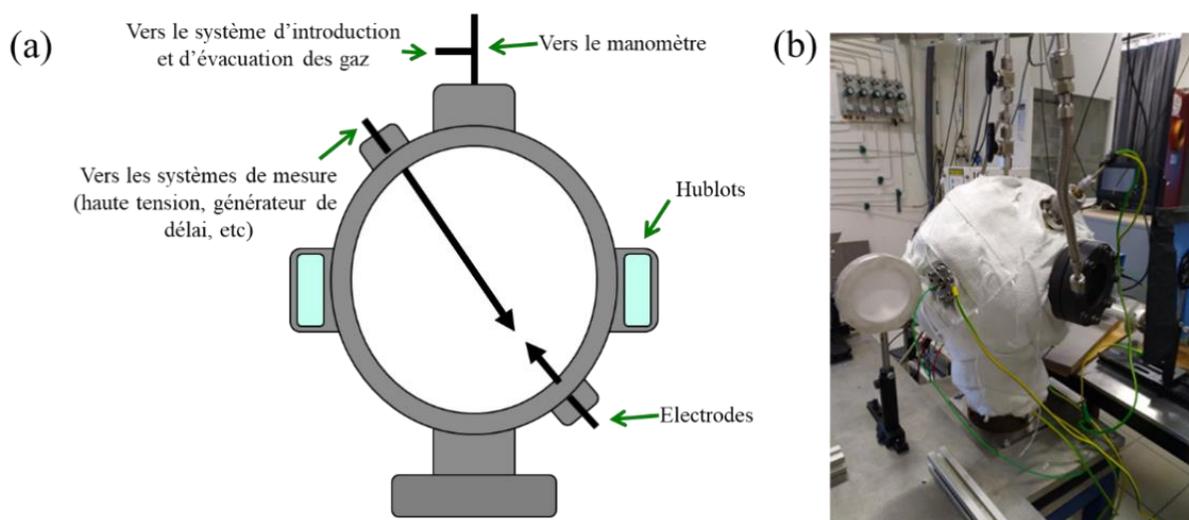


Figure 21 – Dispositif expérimental BSI. (a) : Schéma détaillé de l'enceinte vue sur une coupe de côté avec la position des différents composants. (b) : Photo du dispositif expérimental.

### 1.2.1. Composition du mélange

Le premier paramètre à définir lors de la réalisation de chaque essai est la composition du mélange. Pour ce faire, la méthode des pressions partielles a été employée. Avant d'explicitier la méthode des pressions partielles, il sera détaillé le système d'introduction et d'évacuation des gaz.

#### 1.2.1.1. Système d'introduction et d'évacuation des gaz

Le système d'introduction des gaz consiste en une série de vannes Swagelok, qui mènent à un panneau central, donnant sur les bouteilles de gaz qui se trouvent dans un entrepôt adjacent. Toutes les bouteilles de gaz utilisées :  $H_2$ ,  $H_2/CO$ , Air,  $N_2$ ,  $CO_2$ , sont des bouteilles fournies par Air Liquide. Le mélange  $H_2/CO$  utilisé lors de la campagne expérimentale est composé de 50% de monoxyde de carbone  $CO$ , et de 50% d'hydrogène  $H_2$ . De même, l'air utilisé lors de la campagne expérimentale est composé

de 79,1% d'azote  $N_2$ , et de 20,9% d'oxygène  $O_2$ . Pour l'évacuation des gaz, deux pompes sont utilisées. Une pompe à huile qui permet l'évacuation des gaz au niveau de l'enceinte, et une pompe sèche qui permet l'évacuation des gaz dans les canalisations faisant le lien entre les bouteilles de gaz et la bombe sphérique. La pompe à huile est une pompe triphasée Alcatel Adixen pascal 2015 C1. La vitesse nominale de la pompe est de  $15 \text{ m}^3/\text{h}$ , et la capacité d'évacuation de vapeur d'eau est de  $110 \text{ g/h}$ . Elle a une pression minimale totale sous vide de  $10^{-2} \text{ mbar}$ . La pompe sèche, est une pompe monophasée à spirales sèches nXDS10ic. La vitesse nominale de la pompe est de  $11,4 \text{ m}^3/\text{h}$ , et la capacité d'évacuation de vapeur d'eau est de  $145 \text{ g/h}$ . Elle a une pression minimale totale sous vide de  $7 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$ .

### 1.2.1.2. Méthode des pressions partielles

Le remplissage de l'enceinte par le mélange combustible se fait par la méthode des pressions partielles, ou loi de Dalton. Cette méthode se base sur le principe qui stipule que, pour une température initiale fixée, la pression totale d'un mélange combustible est égale à la somme des pressions partielles de tous les gaz combustibles le composant. Dans le but de pallier aux problèmes d'homogénéisation qui peuvent subvenir au cours des essais, un réservoir, placé en amont de la bombe sphérique, muni d'un mélangeur a été installé. Le mélange se fait donc, dans un premier temps dans le réservoir adjacent, puis est introduit dans l'enceinte pour la réalisation de l'essai.

## 1.2.2. Instrumentations

La deuxième série de paramètres à définir lors de la description de tous les systèmes gravitant autour de la bombe sphérique sont les différentes instrumentations utilisées. Pour cela, il faut s'intéresser de plus près à la source d'énergie, aux capteurs de pression, au système de chauffage, à l'enregistrement des signaux, et au dispositif de visualisation du front de flamme.

### 1.2.2.1. Source d'énergie

L'énergie fournie pour la création de l'étincelle entre les deux électrodes provient, en fonction des essais réalisés, de 3 sources d'énergie différentes : SI3, SI5, et Technix. Les deux premières ont été fabriquées au sein du laboratoire. La dernière est une source d'énergie de type SR80-N-300 SP, contrôlable à distance. Contrairement aux deux premières sources d'énergie utilisées, la tension et le courant sont réglables, et ont été réglés pour fournir une tension maximale en sortie de  $80 \text{ kV}$ , et un courant maximal en sortie de  $3,75 \text{ mA}$ . Ces deux grandeurs en sortie, qui sont la tension et le courant, sont indispensables pour caractériser correctement la source d'énergie. La tension en sortie est déterminée par la sonde haute tension, qui permet d'atténuer la tension délivrée par la source d'énergie pour qu'elle puisse être lue par l'oscilloscope. La sonde haute tension choisie est un générateur Tektronix P6015A, qui transforme  $1000 \text{ Volts}$  délivrés par la source d'énergie en  $1 \text{ Volt}$  en sortie. Elle est capable de tenir des tensions allant jusqu'à  $20 \text{ kV}$  en courant continu, et jusqu'à  $40 \text{ kV}$  en pulse. Le courant quant à lui, est déterminé par un transformateur de courant Magnelab de type CT-D1.0-BNC. Le courant, en sortie étant en ampères, une résistance de  $50 \text{ Ohms}$  a été installée entre le transformateur de courant et l'oscilloscope, dans le but de rendre le signal lisible par ce dernier, rendant ainsi l'output de  $0,5 \text{ V/A}$ . Le transformateur de courant a une bande passante basse à  $-3\text{dB}$  de  $200 \text{ Hz}$ , et une bande passante haute à  $-3\text{dB}$  de  $500 \text{ MHz}$ .

### 1.2.2.2. Détermination de la pression

La méthode employée pour le remplissage de la bombe sphérique étant la méthode des pressions partielles, la lecture de la pression à l'intérieur de l'enceinte est indispensable. Pour cela, 3 manomètres, ainsi que leurs capteurs de pression associés, ont été utilisés en fonction de la pression initiale fixée.

Lorsque la pression initiale est comprise entre 0 et 1 bar, un manomètre Edwards, couplé à un capteur de pression de type 600AB a été utilisé. Celui-ci est capable de mesurer des pressions comprises entre 0 et  $1000 \text{ mbar}$ , pour des températures comprises entre 0 et  $65^\circ\text{C}$ . La précision du capteur de

pression est de 0,15%. Pour une température initiale supérieure à 65°C, s'ajoute à cette précision, une précision de 0,02%/°C.

En revanche, pour les essais pour lesquels la pression initiale est supérieure à 1 bar, un manomètre MKS 946, couplé à un capteur de pression de type BARATRON® 722B53, a été utilisé. Celui-ci lui permet d'atteindre, en même temps, des valeurs précises du vide, ainsi que des pressions allant jusqu'à 5000 Torr, ou 6,7 bars, pour des températures comprises entre 0 et 50°C. La précision du capteur de pression est de 0,5%. Lorsque la température initiale est supérieure à 50°C, s'ajoute à cette précision, une précision de 0,04%/°C.

Pour les essais nécessitant l'utilisation du mélangeur pour assurer l'homogénéisation, et pour lesquels la pression est comprise entre 0 et 1 bar, un dernier manomètre a été utilisé. Il s'agit d'un manomètre MKS, couplé à un capteur de pression de type 122AA-01000 DD. Celui-ci est capable de mesurer des pressions comprises entre 0 et 1000 Torr, pour des températures comprises entre 0 et 50°C. La précision du capteur de pression est de 0,15%. Pour une température initiale supérieure à 50°C, alors à cette précision s'ajoute une précision de 0,04%/°C.

Un capteur de pression, couplé à un amplificateur de charge, Kistler de type 5011B10 a été utilisé dans le but de suivre l'évolution de la surpression à l'intérieur de la bombe sphérique en fonction du temps au cours de la propagation du front de flamme.

### 1.2.2.3. Système de chauffage

La campagne expérimentale concernant l'étude des limites d'inflammabilité a été faite à deux températures initiales différentes : température ambiante (~290-298 K) et 363 K. Pour les essais réalisés à température ambiante, la mesure de la température ambiante de la salle d'expérimentation est utilisée comme température initiale. Cependant, pour la partie de la campagne expérimentale concernant les essais à 363 K, un système de chauffage de la bombe sphérique, ainsi que des canalisations d'introduction des gaz, a été mis en place. Pour ce faire, deux systèmes de chauffage délivrant 1100 Watts chacun, fabriqués au laboratoire, ont été installés. Des fils chauffants, branchés à deux transistors Legrand 48 Volts, ont été enroulés autour des canalisations et de la bombe sphérique. La chaleur est gardée à l'intérieur de l'enceinte à l'aide de la laine de verre et du bandage qui recouvrent le dispositif expérimental. La mesure de la température initiale à la paroi de la bombe sphérique et des canalisations se fait à l'aide de 4 thermocouples de type K qui ont été disposés à différents endroits de l'enceinte. Deux des thermocouples ont été placés sur chacun des deux hublots, un troisième a été installé au contact de la bombe sphérique sur une des parois externes, et le dernier a été disposé au niveau des canalisations. Les deux premiers sont des thermocouples de type K montés sur clinquant en acier inoxydable. Les deux derniers sont des thermocouples chemisés de type K en acier inoxydable 304L, de 3 mm de diamètre.

La détermination de la température à l'intérieur de la bombe sphérique peut être faite à partir de la mesure de la température à la paroi de l'enceinte. Pour ce faire, un thermocouple a été placé temporairement à l'intérieur de la bombe sphérique à la place de l'une des électrodes. Plusieurs relevés de température, au niveau de la paroi et à l'intérieur, ont été faits en fonction de la consigne initiale de température (entre 303 K et 363 K) et de la hauteur du thermocouple à l'intérieur de l'enceinte (partie basse, partie centrale, et partie haute). La température à l'intérieur de l'enceinte est plus élevée que la température à la paroi. Par exemple, pour une température de consigne initiale de 363 K, il y a une correspondance de  $T_{paroi} = 358,9^{\circ}\text{C}$  à la paroi pour  $T_{int} = 364,4^{\circ}\text{C}$  à l'intérieur. Une correspondance a donc été faite entre la température à la paroi et la température à l'intérieur de l'enceinte, de telle sorte à ce que la mesure de la température à la paroi de la bombe sphérique suffise à déterminer la température initiale du mélange. La Figure 22 présente d'une part la température réelle mesurée à plusieurs endroits de l'enceinte expérimentale en fonction de la température donnée en consigne (cf. Figure 22 (a)), et d'autre part la température intérieure de la partie basse de l'enceinte en fonction de la température de la paroi de la BSI (cf. Figure 22 (b)). La correspondance entre la température intérieure de la partie basse

de l'enceinte expérimentale et la température de la paroi de la BSI a été établie, car lors des différentes campagnes expérimentales réalisées, les électrodes étaient positionnées dans cette partie basse de l'enceinte. Cela permettait de visualiser l'ensemble du développement de la flamme dans la bombe sphérique.

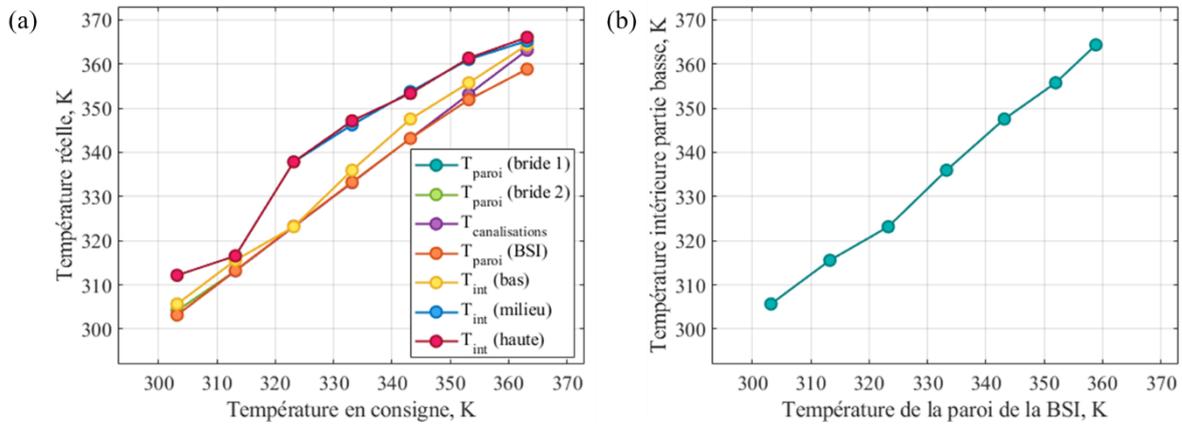


Figure 22 – Correspondance entre la température de l'enceinte expérimentale et la température initiale du mélange. (a) : Température réelle en fonction de la température en consigne pour les différentes positions des thermocouples. (b) : Température intérieure de la partie basse de l'enceinte en fonction de la température de la paroi de la BSI.

Le plus gros écart de température entre la température réelle mesurée et la température de consigne se trouve au niveau de la température intérieure sur la partie haute et sur la partie centrale de l'enceinte expérimentale. La correspondance entre la température intérieure (partie basse de l'enceinte) et la température de la paroi de la BSI a été faite car le thermocouple in situ est enlevé lors des expériences, et il est donc possible de connaître la température réelle des gaz frais en connaissant la température de la paroi de la BSI.

#### 1.2.2.4. Enregistrement des signaux

L'enregistrement des signaux, que ce soit la tension, le courant, ou la surpression, se fait à l'aide d'un oscilloscope. Il s'agit d'un oscilloscope 200 MHz, à 8 bits, Teledyne LeCroy de type wavesurfer 3024. Il est numérique et possède 4 voies analogiques. Sa fréquence d'échantillonnage est de 4 GS/s. Un générateur de délai a été installé dans le but de rendre simultané le déclenchement de la caméra rapide, de l'oscilloscope, et de l'étincelle générée par la source d'énergie. Il s'agit d'un générateur de délai Stanford Research Systems, modèle DG645, à 8 voies. Il a une résolution de 5 ps, une impédance de 50 Ohms, un output de 10 MHz, et une amplitude de tension allant de 0,5 Volt à 5 Volts. Il possède une précision de  $100 \text{ mV} \pm 5\%$  de l'amplitude choisie pour faire les essais.

#### 1.2.2.5. Dispositif de visualisation : Schlieren

La méthode de visualisation optique, de la propagation du front de flamme à l'intérieur de la bombe sphérique, choisie est le Schlieren en Z. La strioscopie ou Schlieren est une méthode optique d'imagerie qui permet de visualiser les faibles variations d'indice optique, de densité ou de défauts sur une surface (rayures par exemple), dues entre autres à la compression de l'air ou de tout autre fluide autour de l'objet étudié. La particularité d'un montage de Schlieren en Z par rapport à un Schlieren dit « classique », est que deux miroirs placés diamétralement opposés sont ajoutés au montage. La source lumineuse n'est donc pas mise directement en face de l'objet à étudier. En effet, le premier objet optique rencontré par les rayons lumineux est un miroir concave. Ce miroir est placé exactement à une distance focale de la source de lumière. Il a pour but de collimater la lumière. Concrètement, le fait de collimater le faisceau lumineux à l'aide du miroir fait que les rayons lumineux seront parallèles. Ces rayons parallèles traverseront la « zone d'essai » où se trouve l'objet à étudier, ici la bombe sphérique, jusqu'au deuxième miroir concave. Une partie des rayons lumineux seront déviés, ce qui générera la variation

d'indice optique. Le faisceau collimaté traversera le « couteau de Foucault », jusqu'à atteindre l'écran qui se trouve devant la caméra rapide. Un schéma explicatif du montage Schlieren en Z mis en place est donné sur la Figure 23.

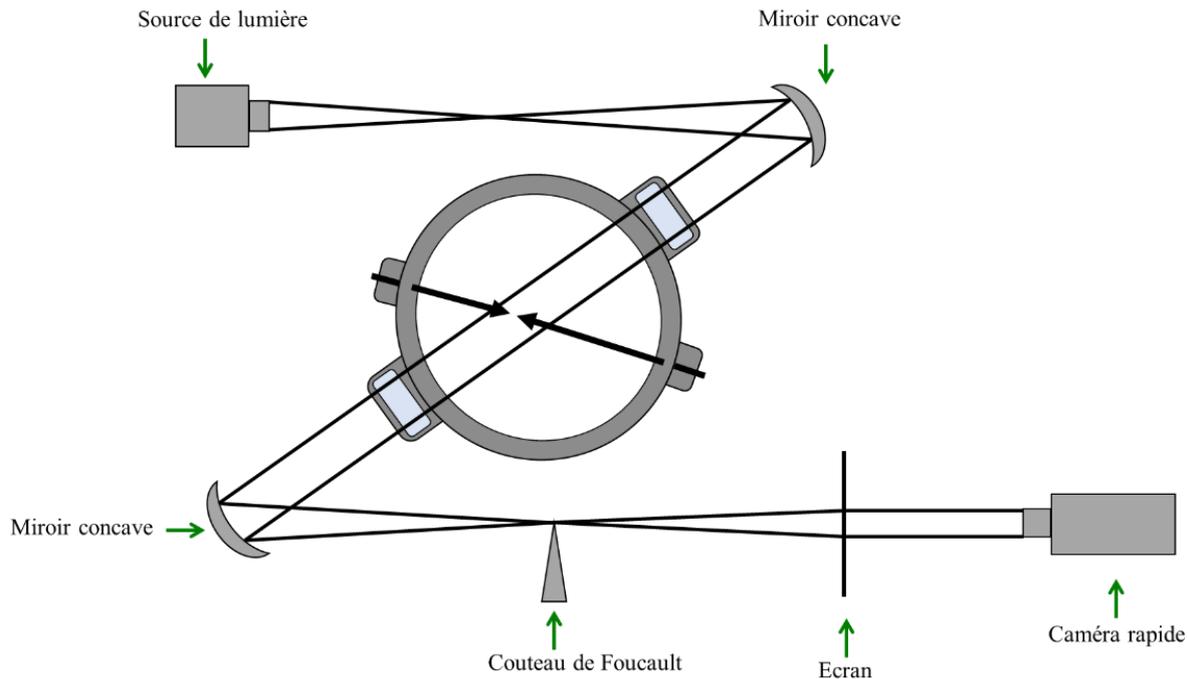


Figure 23 – Schéma explicatif du système de Schlieren en Z mis en place.

La source de lumière utilisée est une source de lumière ABET Technologies, modèle LS-150-Xe. Elle génère un arc de lumière de 150 Watts de Xe. Un tube en carton a été ajouté sur la source de lumière dans le but de réduire l'amplitude du faisceau lumineux. Le premier élément optique rencontré par le faisceau de lumière est une lentille de 50 mm. Un écran noir a été mis autour de la lentille dans le but de ne récupérer que les rayons lumineux qui la traversent. En aval de la lentille, on retrouve un filtre de 1 mm, suivi d'un diaphragme modulable. Puis, s'en suivent les deux miroirs concaves, de focale :  $f = 50 \text{ cm}$ , disposés diamétralement opposés des deux côtés de la bombe sphérique. Une lame de cutter a été utilisée en guise de « couteau de Foucault ». L'enregistrement visuel de la propagation du front de flamme se fait à l'aide d'une caméra rapide Phantom V1210. Sa résolution maximale est de 1280x800, et son débit maximal est de 12 Gpx/s. Sa vitesse d'acquisition maximale varie entre 650.000 et 1.000.000 images par seconde, images étant stockées sur une carte mémoire de 48 GB.

### 1.3. Méthodologie de détermination des limites d'inflammabilité

La détermination du domaine d'inflammabilité d'un mélange combustible se base sur une étude probabiliste. Il s'agit d'une étude statistique pour laquelle chaque essai est répété un certain nombre de fois. En effet, pour des teneurs proches des limites d'inflammabilité, que ce soit la LII ou bien la LIS, le mélange combustible a un comportement stochastique (inflammation ou non-inflammation). Une loi probabiliste, notée  $P(x)$ , peut donc être utilisée pour caractériser la probabilité d'inflammation du mélange en fonction de sa teneur en combustible, notée  $x_i$ . Celle-ci se base sur un système binaire. Un 0 est attribué aux essais où il n'y a pas d'inflammation du mélange combustible. A contrario, un 1 est attribué aux essais où le noyau de la flamme a réussi à se développer et à se propager dans l'enceinte expérimentale.

Pour une composition initiale du mélange, ainsi que pour des conditions thermodynamiques initiales, pression et température, données, la loi de probabilité  $P(x)$  peut être définie à partir d'une régression logistique standard comme suit :

$$P(x) = \frac{1}{1 + e^{-\beta_0 - \beta_1 x}} \quad (45)$$

Avec,  $P(x)$  la probabilité d'inflammation du mélange en fonction de sa teneur en combustible,  $\beta_0$  et  $\beta_1$  deux coefficients constants à déterminer, et  $x$  la teneur en combustible dans le mélange.

Le calcul de cette loi de probabilité repose donc sur la détermination des coefficients  $\beta_0$  et  $\beta_1$ . Pour ce faire, la maximisation d'une fonction de vraisemblance, ou fonction de Likelihood, est nécessaire. Cette fonction a pour rôle, de faire en sorte que la loi de probabilité qui décrit un évènement, ici l'inflammation ou non du mélange combustible, soit la plus en adéquation possible avec la réalité du comportement de l'échantillon étudié, ici la valeur de la teneur en combustible dans le mélange.

La fonction de vraisemblance, ou fonction de Likelihood, notée  $L$ , peut être définie comme suit [269] :

$$L = \prod_{i=1}^n P(x_i)^{y_i} (1 - P(x_i))^{1-y_i} \quad (46)$$

Avec,  $L$  la fonction de Likelihood,  $n$  le nombre total d'essais,  $P(x_i)$  la probabilité d'inflammation du mélange en fonction de sa teneur en combustible pour le  $i^{\text{ème}}$  essai,  $x_i$  la teneur en combustible dans le mélange pour le  $i^{\text{ème}}$  essai,  $y_i$  le résultat binaire (0 ou 1) pour le  $i^{\text{ème}}$  essai.

De cette probabilité d'inflammation en fonction de la teneur en combustible dans le mélange, 3 valeurs remarquables peuvent être extraites : la probabilité d'inflammation à 1%, celle à 50%, et finalement, celle à 99%. Dans le cadre de la sécurité nucléaire, qui est le cadre dans lequel s'inscrit cette étude, la valeur de référence est la probabilité d'inflammation à 1%. En effet, celle-ci correspond à la probabilité de n'avoir que 1% des essais, à une teneur en combustible fixée, pour lesquels il y a inflammation du mélange.

Une fois la méthode théorique de détermination du domaine d'inflammabilité établi, le protocole expérimental doit être validé. Pour cela, un mélange pour lequel plusieurs données sont présentes dans la littérature a été étudié : ici le mélange H<sub>2</sub>/Air. Puis, il est important de définir les paramètres de la combustion à l'aide du code de calcul utilisé (COSILAB).

### 1.3.1. Validation du protocole expérimental : étude du mélange H<sub>2</sub>/Air

Une fois le protocole expérimental établi, il est important de le valider avant de commencer la campagne expérimentale. Le protocole expérimental englobe, non seulement la manière dont les essais sont réalisés, mais aussi les différents composants du dispositif expérimental. Pour ce faire, un mélange étudié à de nombreuses reprises dans la littérature, et pour lequel le domaine d'inflammabilité est bien défini, a été analysé : le mélange H<sub>2</sub>/Air. Les paramètres devant être définis sont : le critère de détermination du domaine d'inflammabilité (critère visuel ou critères de pression), le choix de la source d'énergie, le choix de la géométrie des électrodes, et la distance inter-électrodes).

#### 1.3.1.1. Critère de détermination du domaine d'inflammabilité

Le domaine d'inflammabilité peut être déterminé à l'aide de plusieurs critères de détermination différents : soit par le critère visuel, soit par les différents critères de pression. Le but de cette étude préliminaire est de caractériser l'influence du critère de détermination sur le domaine d'inflammabilité, et de choisir le critère le plus adapté pour la réalisation de la campagne expérimentale.

##### 1.3.1.1.1. Détermination du domaine d'inflammabilité par le critère visuel

La première méthode de détermination du domaine d'inflammabilité est le critère visuel. Il s'agit d'un critère basé sur une étude statistique, cf. Chapitre 2 – partie 1.3, par lequel l'inflammation ou non

du mélange combustible à l'intérieur de la bombe sphérique est déterminée à partir de l'imagerie rapide Schlieren, cf. Chapitre 2 – partie 1.2.2.5.

Pour ce faire, il faut différencier les trois types d'images qu'il est possible d'obtenir suite aux essais. La première configuration correspond au cas où il n'y a pas d'inflammation du mélange. Dans ce cas, il est possible de voir sur les images la création d'une étincelle entre les deux électrodes, mais aucun noyau de flamme ne se développe. La visualisation de cette non-inflammation ( $\{H_2/CO\} = 6,9\%$  ;  $T_{ini} = 292\text{ K}$  ; et  $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ) est présentée sur la Figure 24 (a).

La deuxième configuration correspond au cas où il y a inflammation d'un mélange pauvre. Dans ce cas, il est possible de voir sur les images la création d'une étincelle entre les deux électrodes, qui génère le développement d'un noyau de flamme qui se développe et qui se propage verticalement. Les effets de flottabilité font que la propagation de la flamme soit ascendante, c'est ce que l'on appelle propagation « upwards ». Il s'agit d'une combustion partielle. La visualisation de l'inflammation du mélange pauvre ( $\{H_2/CO\} = 8,2\%$  ;  $T_{ini} = 291,5\text{ K}$  ;  $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ) est présentée sur la Figure 24 (b).

La troisième, et dernière configuration, correspond au cas où il y a inflammation d'un mélange riche. Dans ce cas, il est possible de voir sur les images la création d'une étincelle entre les deux électrodes, qui génère le développement d'une flamme sphérique qui se propage symétriquement autour des électrodes. Il s'agit d'une combustion complète. La visualisation de l'inflammation du mélange riche ( $\{H_2/CO\} = 68,8\%$  ;  $T_{ini} = 291,5\text{ K}$  ;  $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ) est présentée sur la Figure 24 (c).

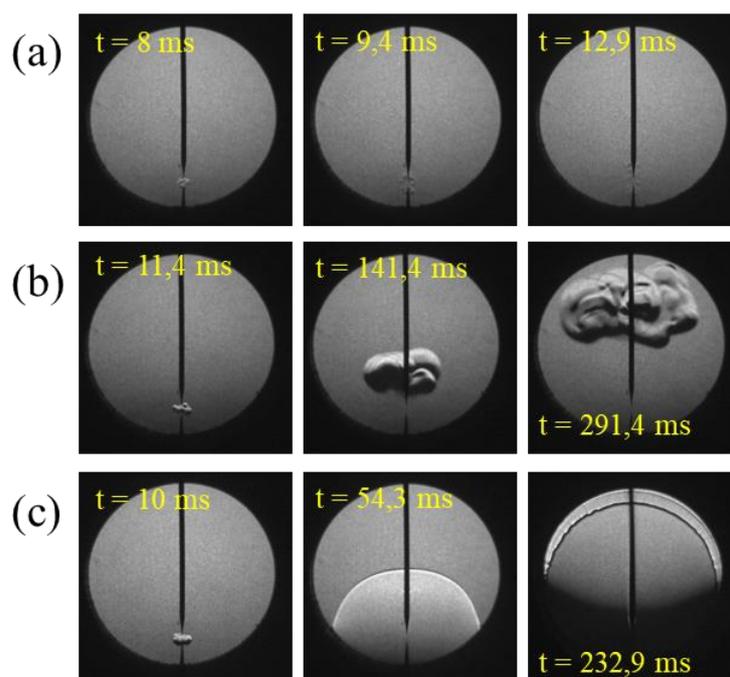


Figure 24 – Définition du critère visuel : visualisation de la propagation de la flamme à l'intérieur de la bombe sphérique. (a) : Pas d'inflammation du mélange ( $\{H_2/CO\} = 6,9\%$  ;  $T_{ini} = 292\text{ K}$  ; et  $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ). (b) : Inflammation d'un mélange pauvre ( $\{H_2/CO\} = 8,2\%$  ;  $T_{ini} = 291,5\text{ K}$  ; et  $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ). (c) : Inflammation d'un mélange riche ( $\{H_2/CO\} = 68,8\%$  ;  $T_{ini} = 291,5\text{ K}$  ;  $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ).

#### 1.3.1.1.2. Détermination du domaine d'inflammabilité par les critères de pression

La deuxième méthode de détermination du domaine d'inflammabilité est le critère de pression. Il s'agit d'un critère basé sur une étude statistique, cf. Chapitre 2 – partie 1.3, par lequel l'inflammation ou non du mélange combustible à l'intérieur de la bombe sphérique est déterminée à partir de l'évolution temporelle de la surpression, et donc du signal de pression, cf. Chapitre 2 – partie 1.2.2.2.

Pour ce faire, il faut différencier les trois critères de pression qu'il est possible d'appliquer en fonction de l'augmentation de la pression par rapport à la pression initiale au sein du dispositif expérimental. Les trois critères de pression sont appelés des « critères de pression à x% » et ils sont définis comme suit : il y a inflammation du mélange combustible lorsque la pression à l'intérieur de la bombe sphérique augmente de x% par rapport à la pression initiale lorsque la flamme se propage. Le premier critère à définir est le critère à 2%, ou critère Français. Le deuxième critère à définir est le critère à 5%, ou critère Européen. Le dernier critère à définir est le critère à 7%, aussi appelé critère Américain.

Tout comme pour le critère visuel, il est important de différencier les trois types de signaux de surpression qu'il est possible d'obtenir suite aux essais. La première configuration correspond au cas où il n'y a pas d'inflammation du mélange. Dans ce cas, la pression reste constante, et égale à la pression initiale, au cours du temps. Le signal de pression au cours du temps de cette non-inflammation ( $\{H_2/CO\} = 6,9\%$  ;  $T_{ini} = 292\text{ K}$  ; et  $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ) est présenté sur la Figure 25 (a).

La deuxième configuration correspond au cas où il y a inflammation d'un mélange pauvre. Dans ce cas, la pression à l'intérieur de la bombe sphérique augmente légèrement, par rapport à la pression initiale, au cours du temps. Le signal de pression au cours du temps de l'inflammation du mélange pauvre ( $\{H_2/CO\} = 8,2\%$  ;  $T_{ini} = 291,5\text{ K}$  ; et  $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ) est présenté sur la Figure 25 (b).

La troisième, et dernière configuration, correspond au cas où il y a inflammation d'un mélange riche. Dans ce cas, la pression à l'intérieur de la bombe sphérique augmente considérablement, par rapport à la pression initiale, au cours du temps. Cette pression augmente jusqu'à atteindre quasiment la valeur de la  $P_{AICC}$ . Le signal de pression au cours du temps de l'inflammation du mélange riche ( $\{H_2/CO\} = 68,7\%$  ;  $T_{ini} = 294\text{ K}$  ;  $P_{ini} = 2\text{ bars}$ ) est présenté sur la Figure 25 (c).

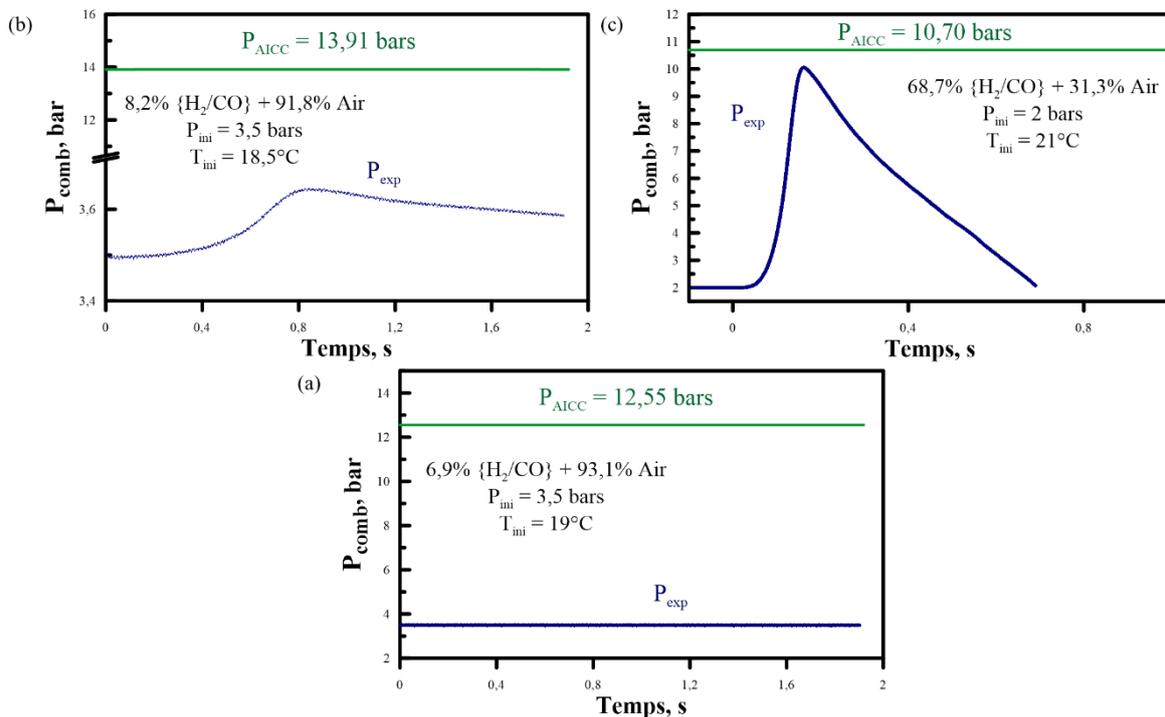


Figure 25 – Définition des critères de pression : signaux de pression lors de la propagation de la flamme à l'intérieur de la bombe sphérique. (a) : Pas d'inflammation du mélange ( $\{H_2/CO\} = 6,9\%$  ;  $T_{ini} = 292\text{ K}$  ; et  $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ). (b) : Inflammation d'un mélange pauvre ( $\{H_2/CO\} = 8,2\%$  ;  $T_{ini} = 291,5\text{ K}$  ; et  $P_{ini} = 3,5\text{ bars}$ ). (c) : Inflammation d'un mélange riche ( $\{H_2/CO\} = 68,7\%$  ;  $T_{ini} = 294\text{ K}$  ;  $P_{ini} = 2\text{ bars}$ ).

### 1.3.1.1.3. Comparaison et choix du critère retenu

Une fois les deux critères de détermination du domaine d'inflammabilité définis, il est possible de comparer les résultats obtenus dans le but de choisir le critère le plus adapté pour la réalisation de la

campagne expérimentale. Pour cela, une étude dans la bombe sphérique a été effectuée, dans laquelle les conditions initiales expérimentales ont été fixées :

- Forme géométrique des électrodes : *Pointe – Pointe*
- Distance inter-électrodes : *6 mm*
- Énergie d'inflammation :  $2,8 \pm 1,76 \text{ mJ}$
- Pression initiale :  $1,016 \pm 0,015 \text{ bar}$
- Température initiale :  $294,6 \pm 0,46 \text{ K}$
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Le domaine d'inflammabilité (composé par la LII, cf. Figure 26 (a), et la LIS, cf. Figure 26 (b)) a été étudié en appliquant le critère visuel d'une part, et en appliquant 2 des critères de pression (à 5% et à 7%) d'une autre. Le critère à 2% n'a pas pu être retenu à cause du bruit du signal brut. En effet, pour la LII, le critère à 2% du signal de pression se trouve dans le bruit du signal brut, et il est donc impossible de savoir si le critère est respecté ou s'il ne s'agit que du bruit.

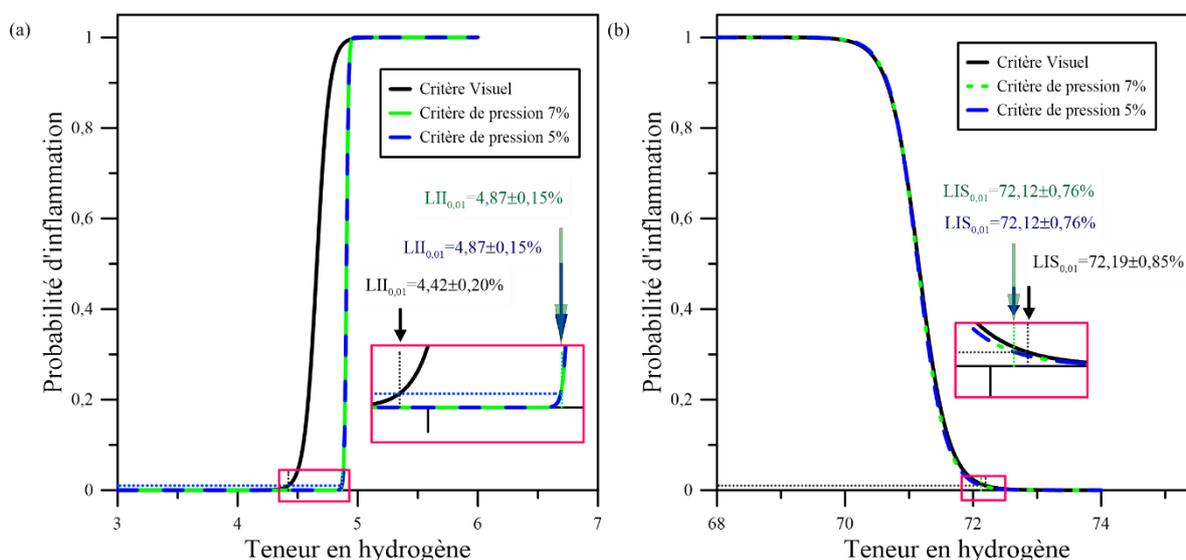


Figure 26 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/Air déterminés à partir du critère visuel d'une part, et des deux critères de pression (5% et 7%) d'une autre pour  $P_{ini} = 1,016 \pm 0,015 \text{ bar}$ ,  $T_{ini} = 294,6 \pm 0,46 \text{ K}$ , et  $E_{inflammation} = 2,8 \pm 1,76 \text{ mJ}$ . (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures.

L'étude du domaine d'inflammabilité peut être séparée en deux parties distinctes : l'étude de la LII d'une part, et l'étude de la LIS d'une autre. Concernant la détermination de la LII à partir des deux critères de pression, il est possible de remarquer que la limite obtenue dans les deux cas est identique. Il n'y a donc pas de différenciation à faire sur le critère de pression. Cependant, la limite d'inflammabilité inférieure déterminée à partir du critère visuel est inférieure à la valeur obtenue à partir des deux critères de pression. Ce résultat a été montré dans plusieurs études de la littérature [57, 32, 62]. Ceci peut être dû au choix des critères de pression. En effet, il est possible que pour certains essais, l'imagerie montre le développement et la propagation d'une flamme relativement faible, combustion partielle, pour laquelle la pression maximale atteinte dans la bombe sphérique ne soit pas supérieure à 5% de la pression initiale. Ces essais sont donc considérés comme un échec du point de vue des critères de pression, alors qu'ils sont considérés comme un succès du point de vue du critère visuel.

L'étude sur la LIS, quant à elle, montre que les résultats obtenus à partir du critère visuel, ainsi que des deux critères de pression sont très proches, et que le critère choisi n'a pas réellement d'influence sur la limite déterminée. Ceci peut être expliqué par le fait que la combustion est complète dans ce cas, et que l'augmentation de la pression à l'intérieur de la bombe sphérique par rapport à la pression initiale

est considérable. En effet, cette pression se rapproche de la valeur de la  $P_{AICC}$ , et par conséquent, le critère de pression, que ce soit celui à 5% ou bien celui à 7%, est respecté sans difficulté.

Dans le cadre des études de sûreté nucléaire, l'approche consiste à considérer les configurations les plus défavorables, et par conséquent le domaine d'inflammabilité le plus large possible. Donc, le critère choisi pour la réalisation de la campagne expérimentale est donc celui correspondant au domaine d'inflammabilité le plus large : le critère visuel.

### 1.3.1.2. Choix de la source d'énergie

Le premier paramètre expérimental qu'il faut définir avant le début de la campagne expérimentale est la source d'énergie. Trois sources d'énergie ont été analysées lors de l'étude préliminaire, cf. Chapitre 2 – partie 1.2.2.1. L'énergie fournie pour la création de l'étincelle entre les deux électrodes a été déterminée, à partir des mesures de la tension et du courant, pour plusieurs conditions initiales expérimentales différentes (variation de la géométrie des électrodes, et de la distance inter-électrodes). Les essais ont été faits à pression et à température initiales ambiantes. Deux formes d'électrodes ont été étudiées : soit deux électrodes pointues, ou Pointe-Pointe, soit une électrode pointue et une autre plate, ou Pointe-Plat. Trois distances inter-électrodes ont été mises en place : 1, 3, et 6 mm.

La détermination de l'énergie fournie par les 3 sources d'énergie se fait dans la bombe sphérique, remplie uniquement avec 1 bar d'air. Une fois l'enceinte remplie, 50 essais sont réalisés. Une attente de 1 minute entre chaque essai est nécessaire pour que le plasma généré entre les électrodes ait le temps de se dissiper, et n'ait pas d'influence sur l'essai suivant. Une fois la première série d'essais réalisée, la bombe sphérique est vidée et remplie à nouveau pour permettre la réalisation d'une deuxième série de 50 essais. En effet, l'énergie déposée par chaque source d'énergie est déterminée en moyennant 100 essais.

La Figure 27 récapitule les histogrammes de la répartition de l'énergie d'inflammation déposée dans la bombe sphérique pour les deux sources d'énergie suivantes : SI3 (cf. Figure 27 (a)) et SI5 (cf. Figure 27 (b)).

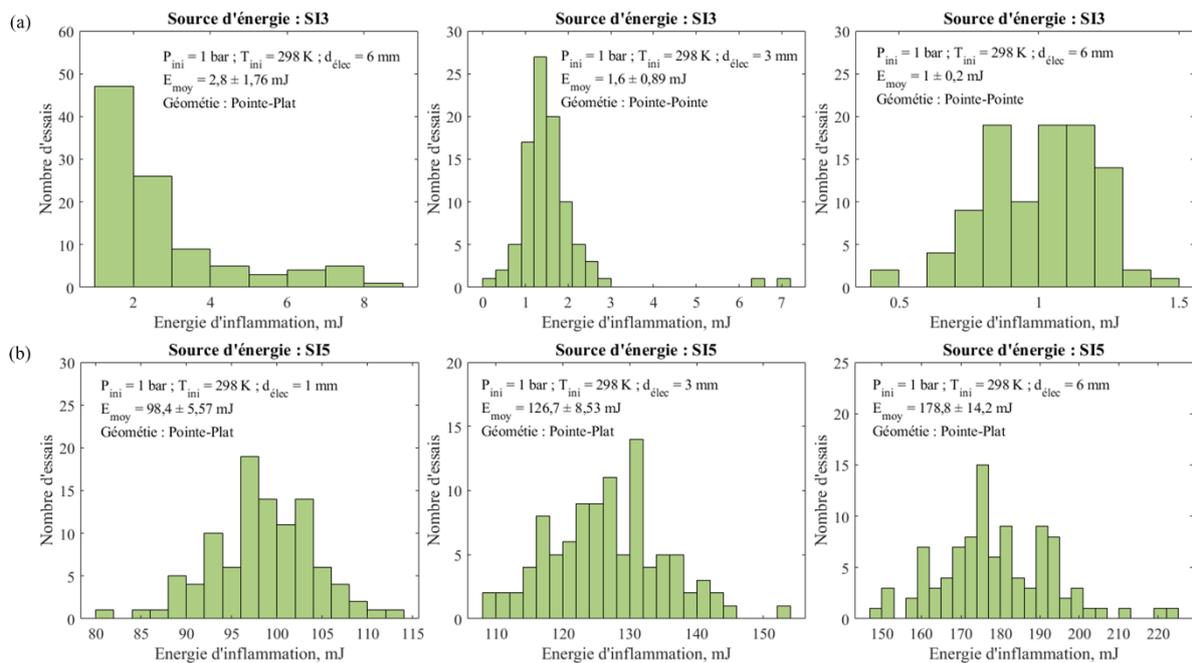


Figure 27 – Répartition de l'énergie d'inflammation déposée dans la bombe sphérique pour chaque essai permettant de déterminer l'énergie moyenne. (a) : Répartition d'énergie pour la source d'énergie SI3. (b) : Répartition d'énergie pour la source d'énergie SI5.

Un récapitulatif de l'énergie moyenne déterminée pour les différentes conditions initiales expérimentales est présenté dans le Tableau 5.

Énergie (mJ)	Énergie dans l'air								
	Pointe-Plat						Pointe-Pointe		
	P = 1 bar // T = 298 K								
	6 mm		3 mm		1 mm		6 mm	3 mm	
	SI3	SI5	SI3	SI5	SI3	SI5	SI3	SI3	Technix
	2,8±1,76	178,8±14,2	/	126,7±8,53	/	98,4±5,57	1±0,20	1,6±0,89	264,9±38

Tableau 5 – Récapitulatif des énergies déterminées pour les différentes conditions initiales expérimentales en fonction de la géométrie (forme et distance) des électrodes.

L'influence de l'énergie déposée entre les électrodes sur la détermination du domaine d'inflammabilité est étudiée sur un mélange H<sub>2</sub>/Air. Pour cela, deux configurations, parmi celles énoncées ci-dessus, ont été scrutées : 2,8 ± 1,76 mJ et 179 ± 14,2 mJ. Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Forme géométrique des électrodes : *Pointe – Plat*
- Distance inter-électrodes : 6 mm
- Pression initiale : 1,011 ± 0,008 bar
- Température initiale : 296 ± 1,3 K
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Les domaines d'inflammabilité (composés par la LII, cf. Figure 28 (a), et la LIS, cf. Figure 28 (b)) obtenus pour les deux sources d'énergie sont présentés sur la Figure 28.

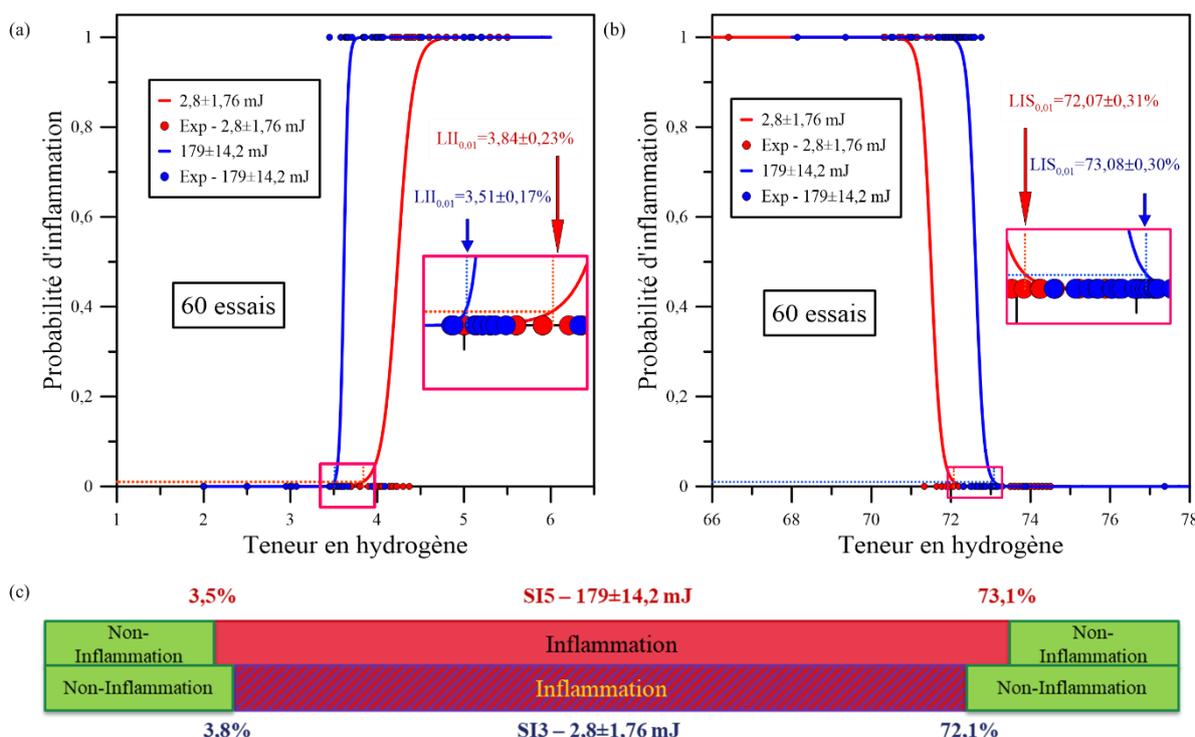


Figure 28 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/Air déterminés pour les deux sources d'énergie pour P<sub>ini</sub> = 1,011±0,008 bar, et T<sub>ini</sub> = 296±1,3 K. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d'inflammabilité complets.

L'augmentation de l'énergie fournie pour générer l'étincelle, entraîne la diminution de la LII, et l'augmentation de la LIS. Cette influence semble être plus importante du côté LIS que du côté LII. En effet, l'écart absolu entre les deux valeurs de LIS trouvées est de 1,01%, alors qu'il n'est que de 0,33% pour la LII. Par conséquent, le domaine d'inflammabilité s'élargit avec l'augmentation de l'énergie d'inflammation. Pour la source d'énergie délivrant  $179 \pm 14,2$  mJ, le domaine d'inflammabilité est 1,3% plus étendu que pour la source d'énergie délivrant  $2,8 \pm 1,76$  mJ.

Tout comme pour le choix du critère à utiliser pour la campagne expérimentale, le but est d'étudier le domaine d'inflammabilité le plus étendu possible. Le choix de la source d'énergie doit donc être fait de sorte qu'elle délivre la plus grande énergie. D'après le Tableau 5, il est constaté que l'énergie déposée entre les électrodes est maximale pour la source d'énergie Technix pour une géométrie des électrodes telle que : la distance inter-électrodes est de 3 mm et leur forme est Pointe-Pointe.

La source d'énergie choisie pour la réalisation des essais est la Technix. Elle délivre une énergie moyenne de  $265 \pm 38$  mJ. Une répartition de l'énergie d'inflammation déposée dans la bombe sphérique pour chaque essai permettant de déterminer l'énergie moyenne est donnée sur la Figure 29.

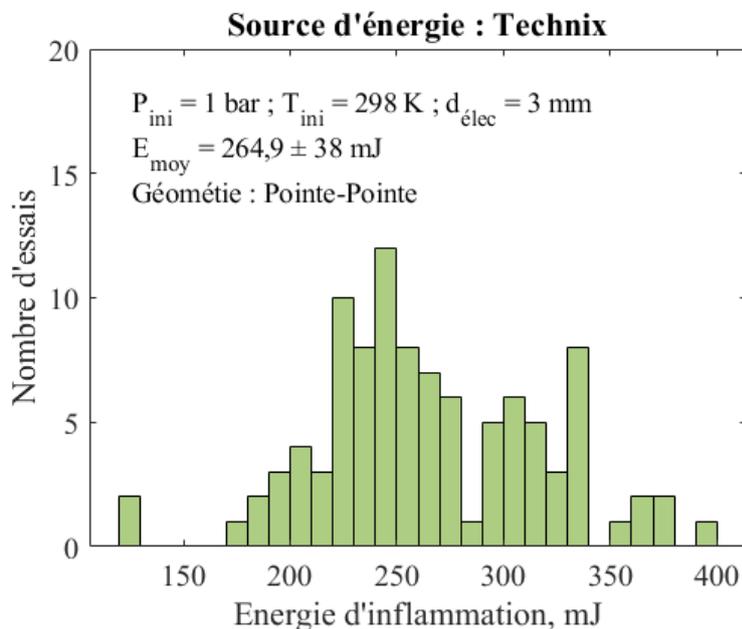


Figure 29 – Répartition de l'énergie d'inflammation déposée dans la bombe sphérique pour chaque essai permettant de déterminer l'énergie moyenne.

### 1.3.1.3. Choix de la géométrie des électrodes

Le deuxième paramètre expérimental à définir est la géométrie des électrodes. La géométrie des électrodes se divise en deux paramètres distincts : la forme des électrodes, et la distance inter-électrodes. Deux formes d'électrodes ont été étudiées : Pointe-Pointe et Pointe-Plat. Trois distances inter-électrodes ont été mises en place : 1, 3, et 6 mm.

#### 1.3.1.3.1. Forme des électrodes

L'influence de la forme des électrodes a été étudiée, comme énoncé précédemment, en faisant une étude sur deux formes géométriques d'électrodes différentes. D'une part, le domaine d'inflammabilité du mélange  $H_2/Air$  a été déterminé en utilisant une électrode pointue et une électrode plate, ou Pointe-Plat. D'une autre part, ce même domaine d'inflammabilité a été déterminé en utilisant deux électrodes pointues, ou Pointe-Pointe. Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Distance inter-électrodes : 6 mm
- Pression initiale :  $1,016 \pm 0,017$  bar
- Énergie d'inflammation :  $2,8 \pm 1,76$  mJ (*Pointe – Plat*)/ $1 \pm 0,2$  mJ (*Pointe – Pointe*)
- Température initiale :  $295,3 \pm 0,79$  K
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Les domaines d'inflammabilité (composés par la LII, cf. Figure 30 (a), et la LIS, cf. Figure 30 (b)) obtenus pour les deux formes géométriques des électrodes sont présentés sur la Figure 30.

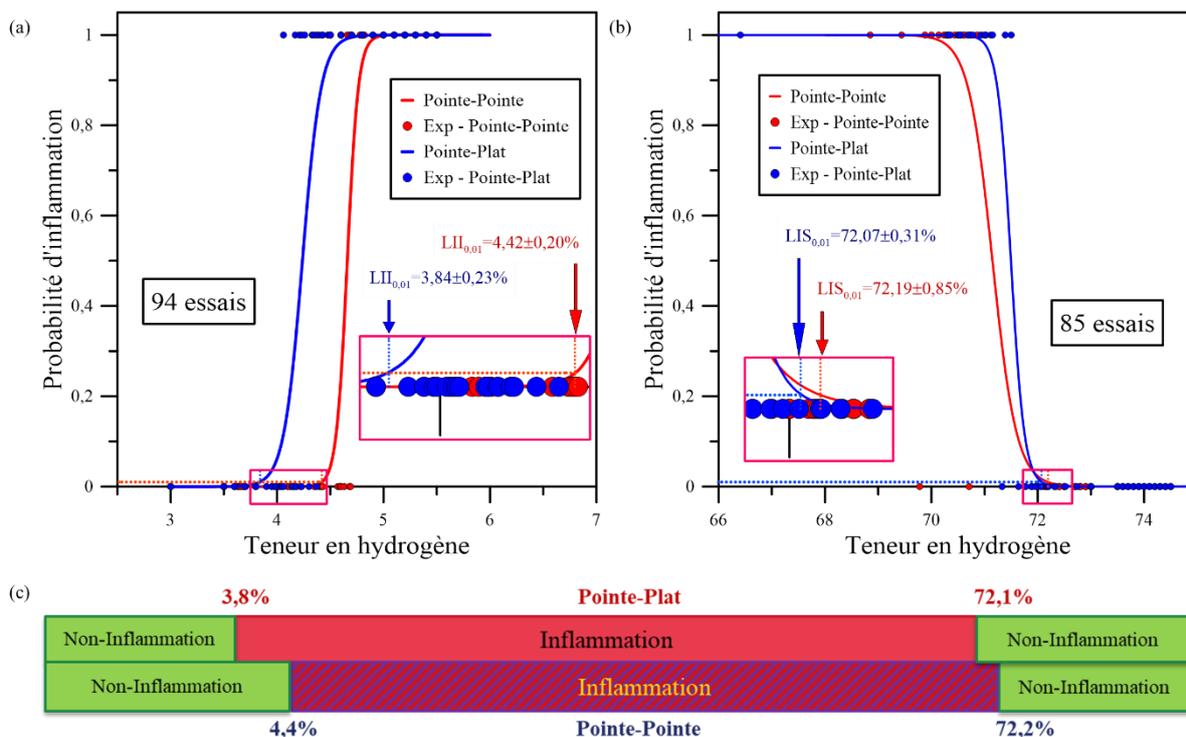


Figure 30 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange  $H_2$ /Air déterminés pour les deux formes géométriques d'électrodes étudiées pour  $P_{ini} = 1,016 \pm 0,017$  bar, et  $T_{ini} = 295,3 \pm 0,79$  K. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d'inflammabilité complets.

La valeur de la LII est inférieure dans le cas où une forme géométrique Pointe-Plat a été utilisée. L'écart absolu entre les deux valeurs de LII déterminées est de 0,58%. Cet écart reste relativement faible au vu des résultats obtenus. Concernant la LIS, la forme géométrique des électrodes ne semble pas avoir d'influence sur la détermination de celle-ci. En effet, les deux valeurs sont très proches, l'écart absolu étant de 0,12%, et elles semblent être dans l'intervalle de confiance à 95% l'une de l'autre. Le domaine d'inflammabilité du mélange  $H_2$ /Air étudié est 0,46% plus étendu pour une configuration Pointe-Plat que pour une configuration Pointe-Pointe.

Cependant, un deuxième concept est nécessaire pour bien comprendre l'influence de la forme des électrodes sur la détermination du domaine d'inflammabilité. En effet, le chemin parcouru par l'arc électrique entre les deux électrodes est indispensable. En effet, ce chemin permet de quantifier l'énergie qui sera déposée dans l'enceinte. Lorsque l'une des deux électrodes est plate, ce chemin n'est pas contrôlé, l'arc électrique pouvant se former à plusieurs endroits de celle-ci (cf. Figure 31). La dispersion de la quantité d'énergie d'inflammation déposée dans la bombe sphérique est donc plus importante.

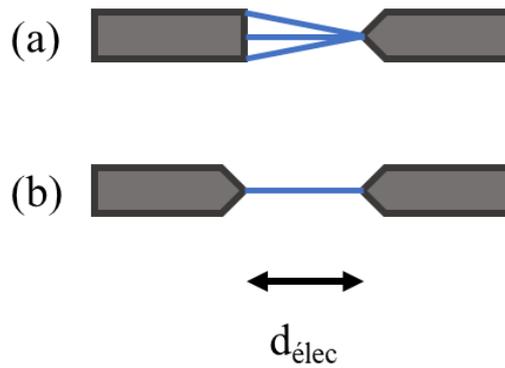


Figure 31 – Schéma explicatif du chemin moyen emprunté par l'arc électrique entre deux électrodes en fonction de leur forme. (a) : Pointe-Plat. (b) : Pointe-Pointe.

Le but étant d'obtenir des conditions expérimentales stables et reproductibles, l'utilisation de deux électrodes pointues semble être le choix le plus adapté. De plus, la forme géométrique de ces électrodes ne semble pas avoir une réelle influence sur la détermination du domaine d'inflammabilité. En prenant en compte les deux arguments qui viennent d'être énoncés, il a été choisi d'utiliser une forme d'électrodes Pointe-Pointe pour la réalisation de la campagne expérimentale.

#### 1.3.1.3.2. Distance inter-électrodes

Une fois la forme géométrique des électrodes définie, le deuxième paramètre caractérisant la géométrie de celles-ci peut être étudié : la distance inter-électrodes. L'influence de ce paramètre est analysée, comme énoncé précédemment, en comparant les domaines d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/Air pour deux distances inter-électrodes différentes : 3 mm, et 6 mm. Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Forme géométrique des électrodes : *Pointe – Pointe*
- Pression initiale :  $1,016 \pm 0,015$  bar
- Énergie d'inflammation :  $1,6 \pm 0,89$  mJ (3 mm) et  $1 \pm 0,2$  mJ (6 mm)
- Température initiale :  $294,4 \pm 0,46$  K
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Les domaines d'inflammabilité (composés par la LII, cf. Figure 32 (a), et la LIS, cf. Figure 32 (b)) obtenus pour les deux distances inter-électrodes sont présentés sur la Figure 32.

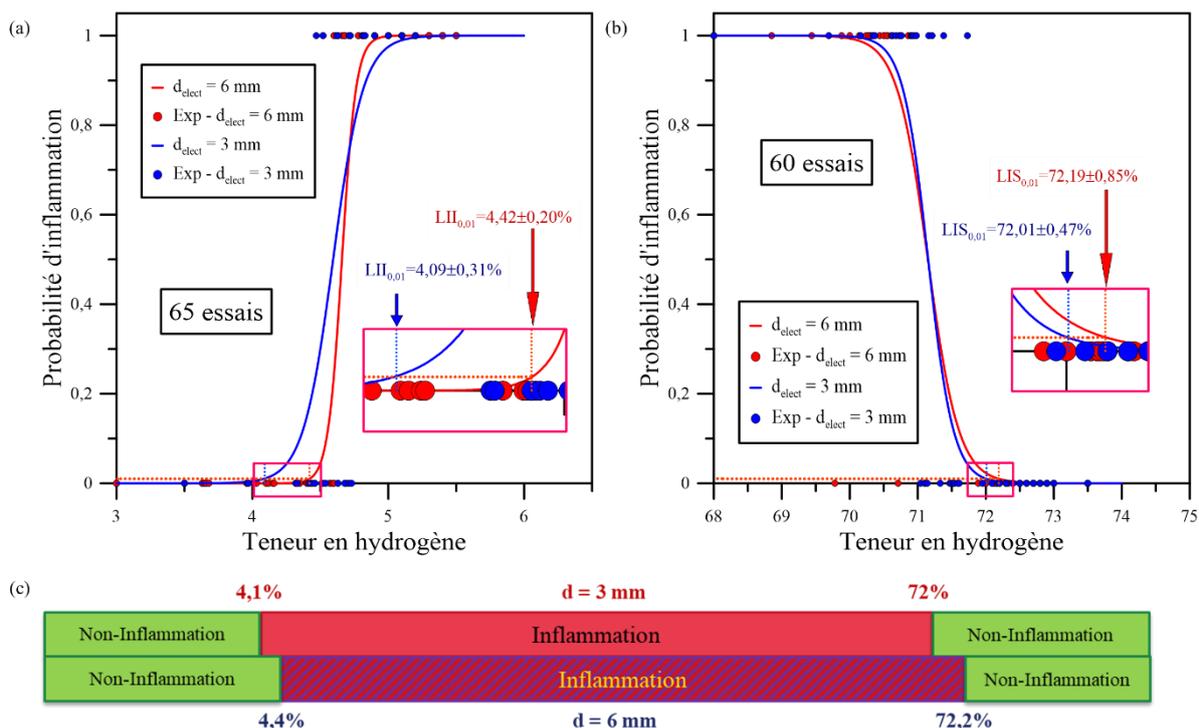


Figure 32 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange  $\text{H}_2/\text{Air}$  déterminés pour deux distances inter-électrodes étudiées pour  $P_{\text{ini}} = 1,016 \pm 0,015 \text{ bar}$ , et  $T_{\text{ini}} = 294,4 \pm 0,46 \text{ K}$ . (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d'inflammabilité complets.

L'augmentation de la distance inter-électrodes induit une augmentation de la valeur de la LII. En effet, pour une distance inter-électrodes de 3 mm, la valeur de la LII est inférieure à cette même valeur pour une distance inter-électrodes de 6 mm. L'écart absolu entre les deux valeurs de LII déterminées est de 0,33%. Tout comme pour l'étude de la forme géométrique des électrodes, cet écart reste relativement faible au vu des résultats obtenus. Concernant la LIS, la distance inter-électrodes ne semble pas avoir d'influence sur la détermination de celle-ci. En effet, les deux valeurs sont très proches, l'écart absolu étant de 0,18%, et elles semblent être dans l'intervalle de confiance à 95% l'une de l'autre. Le domaine d'inflammabilité du mélange  $\text{H}_2/\text{Air}$  étudié est 0,15% plus étendu pour une distance inter-électrodes de 3 mm que pour une distance inter-électrodes de 6 mm.

L'influence de la distance inter-électrodes sur la détermination du domaine d'inflammabilité du mélange semble négligeable. Le choix de cette distance doit donc se faire en fonction d'un autre critère : l'énergie d'inflammation. En effet, pour une configuration Pointe-Pointe, lorsque la distance inter-électrodes augmente, l'énergie d'inflammation diminue (cf. Chapitre 2 – partie 1.3.1.2). Il a donc été choisi de fixer la distance inter-électrodes à 3 mm pour la réalisation de la campagne expérimentale.

#### 1.3.1.4. Conclusions sur la validation du protocole expérimental

Les conditions expérimentales ont pu être déterminées et fixées à partir de l'étude préliminaire effectuée sur le mélange  $\text{H}_2/\text{Air}$ . Tout d'abord, il a été décidé du critère de détermination du domaine d'inflammabilité. Puis, la source d'énergie la plus adaptée à la réalisation de l'étude a été définie. Finalement, la géométrie des électrodes (forme géométrique et distance inter-électrodes) a été fixée. Ces conditions expérimentales ont donc été définies telles que :

- Critère de détermination du domaine d'inflammabilité : Critère visuel
- Source d'énergie : *Technix* ( $265 \pm 38 \text{ mJ}$ )
- Forme géométrique des électrodes : Pointe – Pointe
- Distance inter-électrodes : 3 mm

La dernière étape est donc de valider le protocole expérimental. Pour ce faire, les résultats obtenus au cours de cette étude préliminaire doivent être en accord avec les résultats déterminés lors d'autres études. Le domaine d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/Air défini dans le cadre de cette étude préliminaire est : [4,09 ; 72,01]%. Ce domaine d'inflammabilité est en accord avec les données disponibles dans la littérature. En effet, pour une flamme H<sub>2</sub>/Air, la limite d'inflammabilité inférieure ascendante se trouve aux alentours de 4%, alors que la limite d'inflammabilité supérieure se trouve aux alentours de 72,5% [126]. Ceci valide le protocole expérimental.

### 1.3.2. Code de calcul pour la détermination des limites d'inflammabilité

Une fois la campagne expérimentale finie, la détermination du domaine d'inflammabilité doit être effectuée à partir des données collectées. Celles-ci, en plus des signaux de pression, de tension et de courant, sont constituées d'un ensemble de 0 et de 1 (non-inflammation ou inflammation du mélange combustible). À partir de ces données, il est possible de déterminer la probabilité d'inflammation en fonction de la teneur en combustible dans le mélange, cf. Chapitre 2 – partie 1.3. Pour ce faire, un code de calcul a été développé sur Matlab au laboratoire (par Dr Kouamé N'Guessan [28]). Ce code de calcul se base sur la résolution de la fonction de Likelihood (cf. Figure 33 (1)). Il détermine aussi la probabilité d'inflammation à 10%, 50% et 90% en fonction de la teneur en combustible dans le mélange (cf. Figure 33 (3)). La détermination de la probabilité d'inflammation à 1%, comme c'est le cas lors de cette étude, doit être faite manuellement à partir des fichiers bruts. Finalement, la dernière information qui peut être extraite du code de calcul est la déviation standard (cf. Figure 33 (2)), et l'intervalle de confiance à 95%. Tout comme pour la probabilité d'inflammation, la détermination de l'intervalle de confiance à 95% pour la probabilité d'inflammation à 1% doit se faire manuellement à partir des fichiers bruts. L'erreur sur les différentes valeurs des limites d'inflammabilité provient donc de cet intervalle de confiance à 95%.

Un exemple de l'interface, et du résultat, extraits du code de calcul Matlab est donné sur la Figure 33. L'exemple pris pour illustrer le fonctionnement du code de calcul est la détermination de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air et pour des conditions thermodynamiques initiales telles que : T<sub>ini</sub> = 363 K et P<sub>ini</sub> = 1 bar.

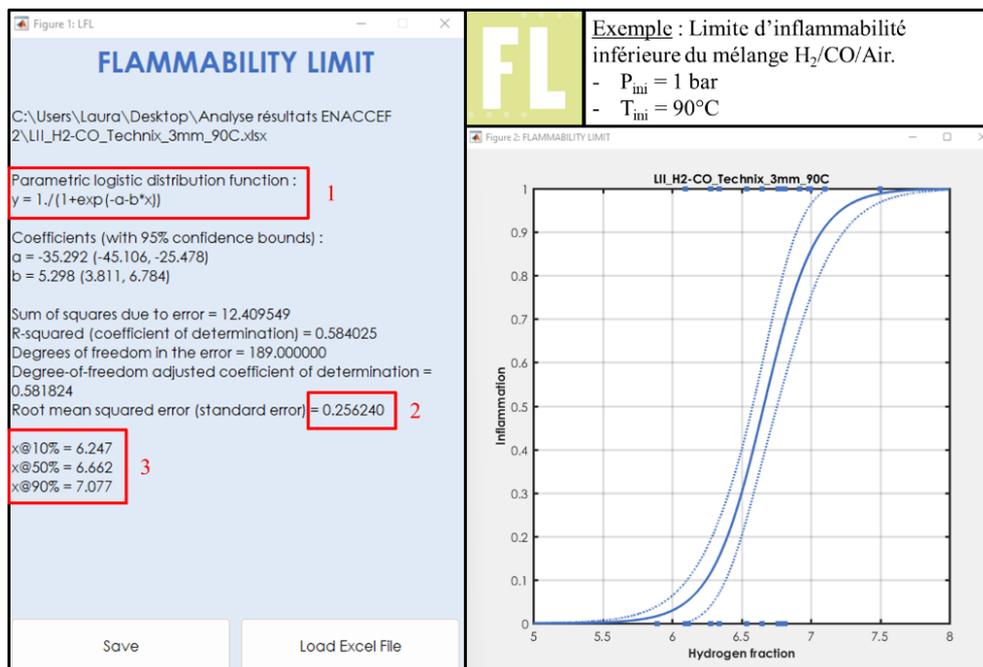


Figure 33 – Code de calcul Matlab permettant la détermination des limites d'inflammabilité d'un mélange combustible. (1) : Loi de régression logistique permettant de déterminer les limites d'inflammabilité. (2) : Intervalle de confiance à 95%. (3) : Limites d'inflammabilité à 1%, à 50%, et à 90%.

## 1.4. Conditions expérimentales de l'étude

La description du dispositif expérimental, la validation du protocole expérimental, ainsi que la définition de la méthodologie de détermination du domaine d'inflammabilité, ayant été faites, il faut désormais définir les conditions expérimentales qui constituent la campagne expérimentale. Cette étude a pour vocation de compléter les données manquantes à la connaissance concernant la propagation de flammes, générées par la combustion de H<sub>2</sub> et de CO, dans des conditions représentatives de la phase tardive d'un accident grave dans un REP. Elle s'inscrit dans le cadre du projet européen AMHYCO. Cette campagne expérimentale est constituée de 1743 essais durant lesquels l'influence de plusieurs paramètres initiaux sur le domaine d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air/Diluant a été étudiée. Les paramètres initiaux étudiés sont les suivants :

- Énergie d'inflammation :  $1,6 \pm 0,89$  mJ et  $265 \pm 38$  mJ
- Pression initiale : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars
- Ajout de diluants : CO<sub>2</sub>
- Température initiale : 293 K et 363 K
- Appauvrissement en oxygène :  $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$  et  $\frac{O_2}{N_2} = 0,11$

Un récapitulatif du nombre d'essais qui ont été faits pour chacune des conditions initiales expérimentales est présenté dans le Tableau 6.

	H <sub>2</sub> /CO/Air						
	Pointe-Pointe : 3 mm // 50H <sub>2</sub> /50CO						
	P = 1 bar				P = 2 bars	P = 3,5 bars	
	O <sub>2</sub> /N <sub>2</sub> = 0,264			O <sub>2</sub> /N <sub>2</sub> = 0,11	O <sub>2</sub> /N <sub>2</sub> = 0,264		
	T = 298 K		T = 363 K	T = 298 K	T = 298 K		
	1,6 mJ	265 mJ	265 mJ	265 mJ	265 mJ		
Diluants	/	/	CO <sub>2</sub>	/	/	/	/
N° d'essais Énergie	/	100	/	/	/	/	/
N° d'essais LII	45	103	/	179	104	147	101
N° d'essais LIS	65	119	/	/	175	96	96
N° d'essais LI	/	/	413	/	/	/	/
<b>Total</b>	<b>110</b>	<b>322</b>	<b>413</b>	<b>179</b>	<b>279</b>	<b>243</b>	<b>197</b>

Tableau 6 – Récapitulatif du nombre d'essais effectués pour chaque condition initiale expérimentale étudiée.

## 2. Étude de la propagation de flamme dans un tube fermé encombré d'obstacles

La deuxième partie de l'étude porte sur la propagation de flammes d'un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air/Diluant dans un tube fermé encombré d'obstacles. Pour ce faire, une campagne expérimentale à l'aide d'une enceinte d'accélération de flamme a été menée. Dans un premier temps, le dispositif expérimental sera présenté. Puis, il sera détaillé la méthodologie de traitement des signaux obtenus. Pour finir, les conditions expérimentales étudiées lors de cette partie de l'étude seront explicitées.

### 2.1. Enceinte d'accélération de flamme : ENACCEF-II

La première étape permettant d'expliciter le protocole expérimental est de décrire de façon détaillée l'enceinte d'accélération de flamme (ENACCEF-II) utilisée lors de cette campagne

expérimentale. Pour ce faire, le dispositif expérimental général sera décrit dans un premier temps. Puis, les deux autres parties en lien avec la réalisation de la campagne expérimentale dans l'enceinte d'accélération de flamme seront détaillées : la composition du mélange, et les différentes instrumentations mises en place dans le montage expérimental.

### 2.1.1. Dispositif expérimental

L'enceinte d'accélération de flamme utilisée, ou ENACCEF-II, est un dispositif expérimental entièrement conçu et construit au laboratoire dans le cadre du projet MITHYGENE [15] dans le but de recréer le plus fidèlement possible les conditions rencontrées lors d'un accident grave dans un REP. Il s'agit d'un tube fermé de 7,65 mètres de hauteur, et de 230 mm de diamètre interne, disposé à la verticale. ENACCEF-II est une enceinte en acier inoxydable capable de supporter des pressions allant jusqu'à 120 bars (234 bars lorsque les hublots sont retirés), et des températures atteignant les 200°C. Elle est constituée de 9 éléments tubulaires de 850 mm de hauteur, séparés et soutenus par des contrepoids. Les neuf éléments tubulaires sont interchangeables et peuvent être déplacés horizontalement. En effet, en fonction du régime de propagation de la flamme à l'intérieur de l'enceinte, deux configurations sont possibles. La première configuration correspond aux essais où la pression atteinte à l'intérieur de l'enceinte ne dépasse pas 120 bars. Dans ce cas, deux des sections tubulaires sont équipées d'une paire de fenêtres rectangulaires en saphir qui permettent l'accès optique à l'intérieur de l'enceinte (cf. Figure 34 (b)). Le deuxième scénario correspond aux essais où la détonation est atteinte, et par conséquent la pression dépasse 120 bars. Dans ce cas, les deux sections équipées de fenêtres sont remplacées par des sections tubulaires « pleines » sans fenêtres (cf. Figure 34 (a)). Ceci est fait dans le but de ne pas casser les fenêtres lors de la propagation du choc à l'intérieur de l'enceinte. De plus, tous les dispositifs de mesure sont installés à l'aide des bossages (3 séries de 3 bossages par section tubulaire) se trouvant tout au long de l'enceinte. Tous les bossages sont faits en acier inoxydable, et sont vissés par système de 6 vis et isolés à l'aide de joints toriques dans le but de rendre l'enceinte étanche.

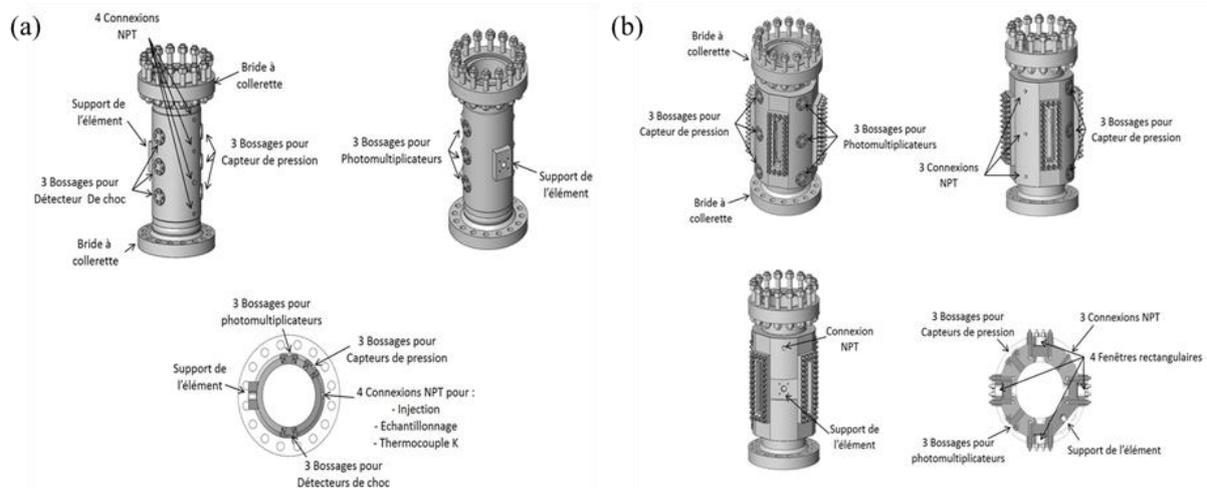


Figure 34 – Schémas de la disposition des différents éléments tubulaires [19]. (a) : Élément tubulaire « plein » sans fenêtres. (b) : Élément tubulaire équipé de fenêtres.

Le dernier élément composant le dispositif expérimental général concerne les obstacles. Ceux-ci ont pour but de reproduire les conditions turbulentes rencontrées lors d'un accident grave dans un REP. Ainsi, 9 obstacles équidistants ont été installés le long des trois premiers éléments tubulaires. Le rapport de blocage des obstacles est de  $BR = 0,63$ .

### 2.1.2. Composition du mélange

Le premier paramètre à définir pour la réalisation de chaque essai est la composition du mélange. Pour ce faire, un débitmètre a été mis en place. Le calcul permettant de faire la correspondance entre la teneur des différents composants du mélange et le débit doit être effectué. Le système d'introduction et d'évacuation des gaz et le débitmètre seront explicités dans un premier temps. Puis, l'analyse chromatographique effectuée sur le mélange prélevé dans l'enceinte avant chaque essai sera détaillée.

#### 2.1.2.1. Débitmètre et système d'introduction et d'évacuation des gaz

Le système d'introduction et d'évacuation des gaz se compose de 4 connexions de type NPT (filetage National Pipe Thread) donnant sur le système de gestion des gaz (régulateurs de débit massiques) auquel les bouteilles sont connectées. Toutes les bouteilles de gaz utilisées : H<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>/CO, N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, sont des bouteilles fournies par Air Liquide. L'air utilisé lors des essais est fourni par le compresseur du laboratoire après avoir été filtré et asséché. Un système d'introduction d'eau est aussi présent pour les essais où la dilution avec de la vapeur d'eau est étudiée. Le mélange H<sub>2</sub>/CO utilisé lors de la campagne expérimentale est composé de 50% de monoxyde de carbone CO, et de 50% d'hydrogène H<sub>2</sub>. De même, l'air utilisé lors de la campagne expérimentale est composé de 79,1% d'azote N<sub>2</sub>, et de 20,9% d'oxygène O<sub>2</sub>. L'introduction des gaz se fait à trois points de l'enceinte expérimentale : le premier dans la partie haute (à 7 mètres), le deuxième dans la partie centrale (à 3,6 mètres), et le dernier dans la partie basse (à 1,4 mètre). Toutes les canalisations d'introduction des gaz sont régulées en température. Pour l'évacuation des gaz, une pompe sèche est utilisée. Il s'agit d'une pompe sèche monophasée Adixen (Pfeiffer vacuum) de type ACP 40, équipée d'un ballast de gaz. La vitesse nominale de la pompe est de 37 m<sup>3</sup>/h, et la capacité d'évacuation de vapeur d'eau est de 120 g/h. Elle a une pression minimale totale sous vide de 4.10<sup>-2</sup> mbar.

Deux types de débitmètres différents ont été mis en place en fonction du composant du mélange à injecter dans l'enceinte. D'une part, pour tous les composants gazeux (H<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>/CO, N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, Air), un débitmètre massique Bronkhorst de type F-201CV est utilisé. Son fonctionnement est normal pour des pressions allant jusqu'à 64 bars, et pour des températures comprises entre -10°C et 70°C. La précision du débitmètre est de 0,5%. Lorsque la température est supérieure à 70°C, à cette précision s'ajoute une précision de 0,05%/°C. D'autre part, l'injection de vapeur d'eau est régulée grâce à un débitmètre à effet Coriolis. Il s'agit d'un débitmètre Bronkhorst de type M13V14I. Son fonctionnement est normal pour des pressions allant jusqu'à 200 bars, et pour des températures comprises entre 0°C et 70°C. La précision du débitmètre est de 0,2%. Lorsque la température est supérieure à 70°C, à cette précision s'ajoute une précision de 0,001%/°C.

#### 2.1.2.2. Analyse chromatographique

La composition du mélange combustible introduit dans l'enceinte via les débitmètres massiques est vérifiée par chromatographie en phase gazeuse. Pour ce faire, des prélèvements sont effectués à la fin de chaque remplissage. Une présentation du principe de fonctionnement général sera faite dans un premier temps. Puis, une description du chromatographe en phase gazeuse utilisé sera réalisée. Finalement, la calibration, ainsi que l'obtention des résultats seront explicitées.

##### 2.1.2.2.1. Principe de fonctionnement

La chromatographie est une méthode d'analyse chimique qui, à partir de l'étalonnage du chromatographe, permet de quantifier les espèces présentes dans un mélange en les séparant. L'échantillon à analyser va être décomposé pour permettre la séparation de toutes les espèces chimiques présentes. Celles-ci vont être entraînées par une phase mobile, communément appelée le gaz vecteur, et par une phase stationnaire, la colonne chromatographique. Or, tous les composés n'ayant pas le même temps d'élution (temps de mise en solution), le temps de sortie de la colonne n'est pas le même. Un détecteur est mis en place en sortie de la colonne pour identifier les différentes espèces présentes dans le mélange.

2.1.2.2.2. Chromatographe en phase gazeuse

Une fois l'enceinte remplie avec le mélange combustible, et avant la réalisation de l'essai, quatre prélèvements à différents endroits de l'enceinte sont réalisés. Ceci est fait dans le but de vérifier l'homogénéité et la composition du mélange des gaz frais. Pour la réalisation des prélèvements, 4 réservoirs Swagelok en acier inoxydable sont utilisés. Les points de prélèvement sont répartis comme suit : 1 dans la partie haute de l'enceinte, 2 dans la partie centrale de l'enceinte, et 1 dans la partie basse de l'enceinte (cf. Tableau 7 et Chapitre 2 – partie 2.1.3 : rectangles verts sur la Figure 36 (a)).

Point de prélèvement	Position dans l'enceinte (en m)	
1	0,577	Avant les obstacles
2	3,127	À la sortie des obstacles
3	4,052	Au milieu de l'enceinte
4	7,227	À l'extrémité de l'enceinte

Tableau 7 – Position des quatre points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale.

L'analyse se fait à l'aide d'un chromatographe en phase gazeuse SRA Instruments de type Micro-GC. Un système d'injection, constitué d'un piston, en amont du dispositif, est mis en place dans le but de contrôler la pression injectée dans le chromatographe. L'augmentation de la pression d'injection augmente la précision de l'analyse en définissant plus clairement les pics obtenus par le chromatographe. Un filtre, composé par un fritté et une membrane en téflon, est installé dans le but de protéger le système des éventuelles pollutions (liquide, poussière ou autre) qui pourraient endommager le dispositif. Trois modules analytiques différents (gaz vecteurs) sont installés dans le chromatographe. Le premier permettant de détecter les espèces suivantes : H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, et N<sub>2</sub>. Le gaz vecteur utilisé est l'Argon. Le deuxième permet de détecter les espèces suivantes : CH<sub>4</sub>, et CO. Le gaz vecteur utilisé est l'Hélium. Le dernier permet de détecter les espèces suivantes : COS, H<sub>2</sub>S, CO<sub>2</sub>, C<sub>2</sub> à C<sub>3</sub>. Le gaz vecteur utilisé est l'Hélium. Ce chromatographe est équipé de détecteurs TCD (Thermal Conductivity Detector) dont le fonctionnement se base sur une différence de conductivité thermique entre la phase mobile (gaz vecteur) et les espèces à analyser.

Une pompe Edwards à palettes bi-étagées RV3, équipée d'un ballast de gaz, a été mise en place dans le but d'évacuer les gaz du chromatographe, ainsi que des 4 réservoirs métalliques utilisés pour le prélèvement dans l'enceinte. La vitesse nominale de la pompe est de 3 m<sup>3</sup>/h, et la capacité d'évacuation de vapeur d'eau est de 220 g/h. Celle-ci a une pression minimale totale sous vide de 2.10<sup>-3</sup> mbar.

2.1.2.2.3. Calibration et obtention des résultats

Une droite de calibration est réalisée en amont de l'utilisation du chromatographe dans le but d'obtenir des valeurs précises des teneurs de chaque espèce dans le mélange. Cette calibration se fait en préparant des échantillons « étalons », à des teneurs en combustible différentes dans le mélange, à l'aide de réservoirs en verre de 10 litres. La composition des mélanges combustibles réalisés dans les ballons étalons se fait par la méthode des pressions partielles (cf. Chapitre 2 – partie 1.2.1.2). Pour ce faire, un manomètre est utilisé. Il s'agit d'un manomètre Keller 2000 de type LEO 1. Celui-ci est capable de mesurer des pressions comprises entre 0 et 3 bars, pour des températures comprises entre 0 et 50°C. La précision du capteur de pression est de 0,1%. Lorsque la température initiale est supérieure à 50°C, une précision de 0,2%/°C s'ajoute à cette valeur. Dans le but de vérifier que la calibration du chromatographe est encore valide, un échantillon étalon est analysé tous les jours de sorte que la teneur en combustible dans celui-ci soit toujours la même.

Les résultats en sortie du chromatographe sont présentés sous forme de pics de surfaces et de temps d'élutions différents. La teneur de l'espèce dans le mélange correspond alors à la surface du pic associé à celle-ci. Cette surface est comparée à la surface associée au pic du ballon étalon. L'incertitude de mesure liée à la détermination de la teneur en chaque espèce dans le mélange est de ±0,16% mol. Un

exemple des résultats déterminés à partir de l'analyse chromatographique est donné sur la Figure 35. La composition du mélange donné dans l'exemple choisi est : 9,4% H<sub>2</sub> + 8,8% CO + 17,7% H<sub>2</sub>O + 13,6% CO<sub>2</sub> + 50,5% Air. Les différentes espèces déterminées sont : H<sub>2</sub> (cf. Figure 35 (1)), O<sub>2</sub> (cf. Figure 35 (2)), N<sub>2</sub> (cf. Figure 35 (3)), CO (cf. Figure 35 (4)), et CO<sub>2</sub> (cf. Figure 35 (5)).

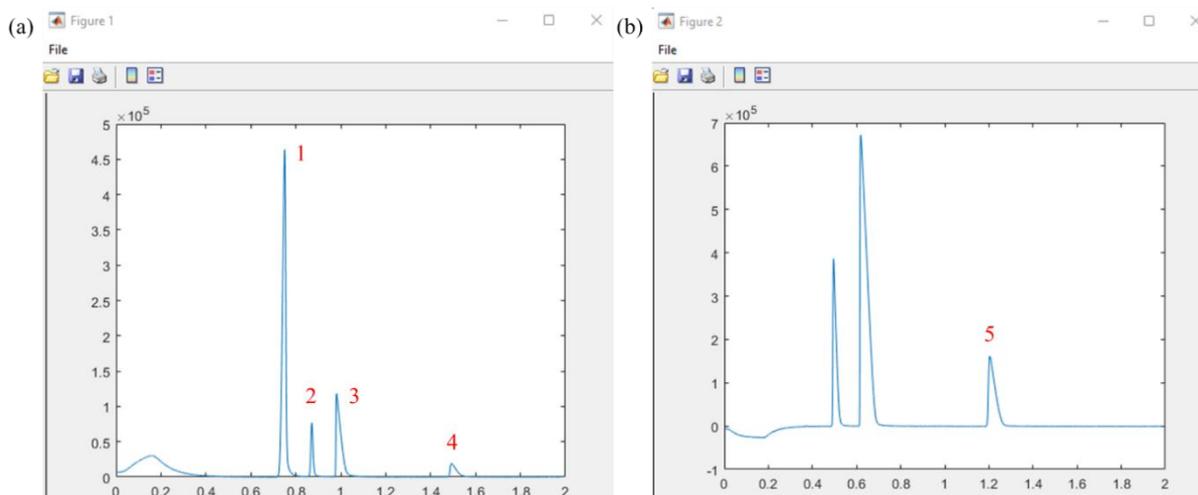


Figure 35 – Exemple de résultats tirés du chromatographe. (a) : Pics obtenus pour les espèces H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, et CO. (b) : Pic obtenu pour l'espèce CO<sub>2</sub>.

### 2.1.3. Instrumentations : caractérisation de la propagation de la flamme

La deuxième série de paramètres à définir lors de la description de tous les systèmes gravitant autour du dispositif expérimental concerne les différentes instrumentations qui ont été utilisées. Pour cela, il faut s'intéresser de plus près à la source d'énergie, aux photomultiplicateurs (cf. PM sur la Figure 36 (a)), aux capteurs de pression (cf. K et PCB sur la Figure 36 (a)), aux capteurs de choc (cf. SD sur la Figure 36 (a)), au système de chauffage, à l'enregistrement des signaux, et au dispositif de visualisation du front de flamme. Un schéma, ainsi qu'une photo, du dispositif expérimental sont présentés sur la Figure 36.

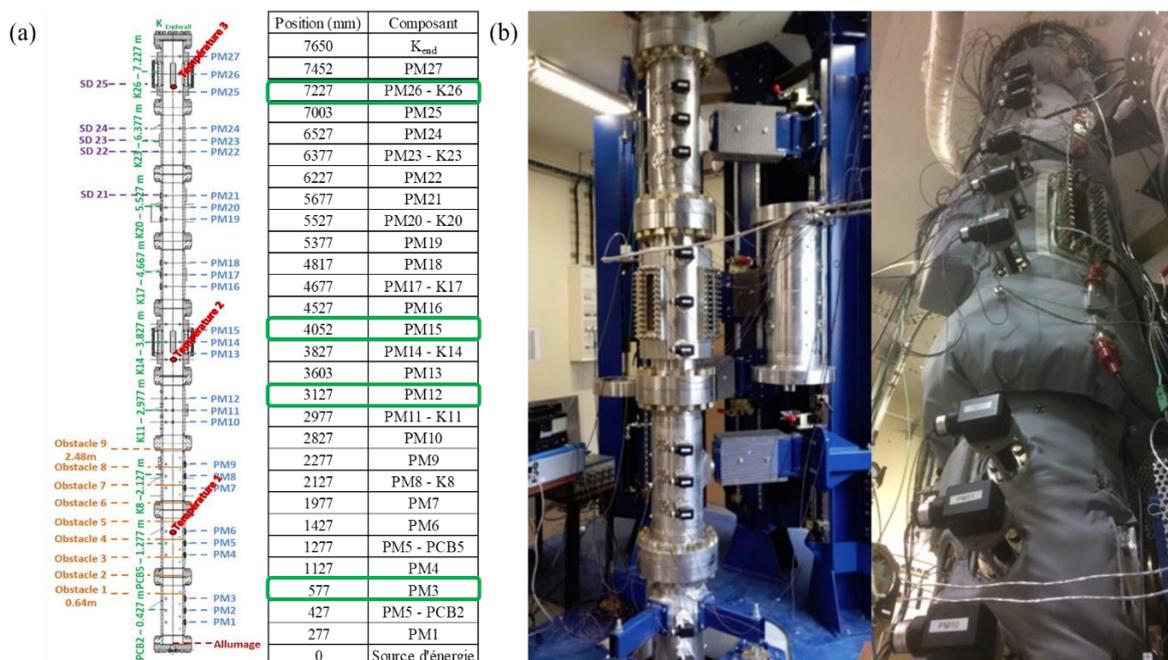


Figure 36 – Dispositif expérimental ENACCEF-II. (a) : Schéma détaillé de l'enceinte avec la position des différents composants. (b) : Photo du dispositif expérimental.

### 2.1.3.1. Source d'énergie

L'énergie fournie pour l'inflammation du mélange provient de la même source d'énergie : Technix. Comme vu précédemment, il s'agit d'une source d'énergie de type SR80-N-300 SP, qui peut être contrôlée à distance. Les spécifications de cette source d'énergie sont données dans le Chapitre 2 – partie 1.2.2.1.

Trois autres sources d'énergie sont placées dans le dispositif expérimental. En effet, ces sources d'énergie ont pour but d'alimenter les différents photomultiplicateurs qui sont placés tout au long d'ENACCEF-II. Il s'agit de trois sources d'énergie identiques : une alimentation stabilisée P. Fontaine Electronique de type PMT1B, capable de délivrer des tensions comprises entre 0,3 et 3 kV, et un courant de 10 mA. La tension délivrée par les sources d'énergie est fixée en fonction des signaux attendus.

Finalement, le dernier composant à expliciter pour bien comprendre la source d'énergie est la bougie d'allumage. Une bougie d'allumage est un système composé par deux électrodes entre lesquelles un arc électrique est créé. Cet arc électrique génère de l'énergie qui, au contact d'un mélange combustible, l'allume. L'inflammation du mélange se fait en bas de l'enceinte. La propagation de la flamme se fera donc verticalement de façon ascendante. Pour la plupart des essais, une bougie d'allumage gorge en « V » NGK est utilisée. Elle est composée par deux électrodes, dont l'une d'entre elles est munie d'une gorge en « V » (angle de 90°), séparées de 1 mm. Ceci a pour but de favoriser l'inflammation du mélange combustible. Un arc électrique est alors créé entre les deux électrodes, produisant ainsi l'inflammation du mélange et la propagation de la flamme. Certains essais ont été menés en utilisant une bougie de préchauffage à la place de la bougie d'allumage. La différence entre les bougies d'allumage et les bougies de préchauffage est que ces dernières ne fonctionnent pas sur la base de la création d'un arc électrique entre deux électrodes. En effet, celles-ci créent un point chaud au contact du mélange combustible dans le but de l'allumer. La bougie de préchauffage utilisée est une bougie BERU de type GV 106 (tension : 8V, courant : 10A).

### 2.1.3.2. Spectrophotométrie d'émission spontanée

La détection de la position du front de flamme à l'intérieur du dispositif expérimental se fait à l'aide de photomultiplicateurs. Un photomultiplicateur est un dispositif expérimental, constitué par une photocathode, une anode, et plusieurs dynodes, capable de détecter les photons émis lors de la combustion des gaz frais. Son fonctionnement général se base sur l'amplification de l'intensité du courant électrique dégagé par des cellules photoélectriques suite à leur exposition à une source lumineuse. Il est ainsi possible de compter le nombre de photons individuellement. Toutes les longueurs d'onde comprises entre l'ultraviolet et l'infrarouge proches sont détectables. Le temps de réponse moyen d'un photomultiplicateur est de l'ordre de la nanoseconde.

Plus spécifiquement, 27 photomultiplicateurs sont installés dans ENACCEF-II (cf. Figure 36). Il s'agit de photomultiplicateurs Hamamatsu de type R928. Ils sont capables de détecter des longueurs d'onde comprises entre 185 et 900 nm, pour des températures comprises entre -30 et 50°C. Le pic de longueur d'onde qu'ils sont capables de détecter est de 400 nm. Leur temps de réponse est de 2,2 ns. La partie sensible du PM étant réduite, il faut focaliser les radiations. Pour ce faire, chacun d'entre eux est couplé à une lentille convergente de focale :  $f = 100 \text{ mm}$ , et à une fente rectangulaire de (9 mm x 1 mm). Dans le but d'adapter les photomultiplicateurs aux conditions expérimentales étudiées, un filtre laissant passer les longueurs d'onde associées à la désexcitation des radicaux OH\* (306 nm) a été couplé à ceux-ci. Il s'agit d'un filtre Schott de type UG11. En effet, lors de la combustion du mélange H<sub>2</sub>/CO, et donc de la propagation du front de flamme, des radicaux OH\* sont produits par désexcitation. La Figure 37 présente la plage de transmission du filtre utilisé en fonction de la longueur d'onde émise.

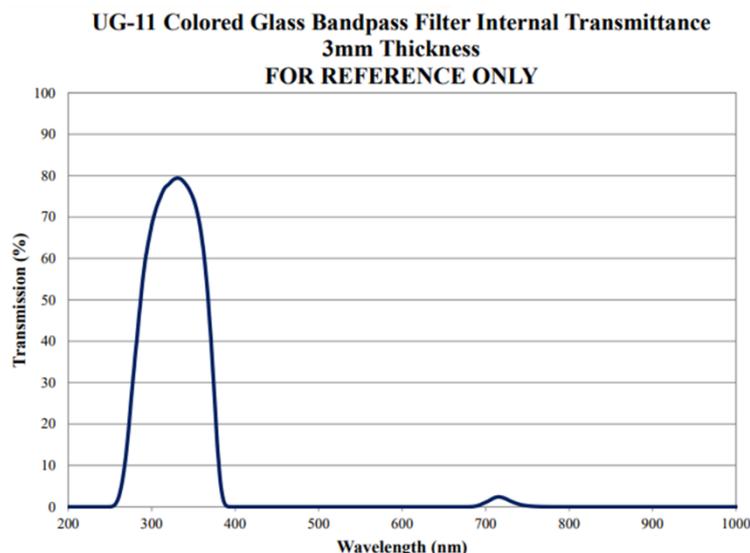


Figure 37 – Transmission en fonction de la longueur d'onde pour le filtre utilisé [270].

Ce filtre laisse donc passer des longueurs d'onde comprises entre 250 et 400 nm d'une part, et une petite plage comprise entre  $\sim 700$  nm et  $\sim 720$  nm d'autre part. Il est donc possible que des radiations infrarouges produites par les gaz brûlés, suite au passage du front de flamme, à haute température soient vues par les photomultiplicateurs.

### 2.1.3.3. Détermination de la pression

La pression à l'intérieur de l'enceinte, lors du remplissage de celle-ci par le mélange combustible, est suivie grâce à un manomètre placé dans la partie haute d'ENACCEF-II. Il s'agit d'un manomètre Keller 2000 de type LEO 1. Celui-ci est capable de mesurer des pressions comprises entre 0 et 3 bars, pour des températures comprises entre 0 et  $50^{\circ}\text{C}$ . La précision du capteur de pression est de 0,1%. Lorsque la température initiale est supérieure à  $50^{\circ}\text{C}$ , alors à cette précision s'ajoute une précision de  $0,2\%/^{\circ}\text{C}$ .

De plus, plusieurs capteurs de pression sont installés tout au long de l'enceinte expérimentale dans le but de suivre l'évolution de la pression à l'intérieur d'ENACCEF-II lors de la propagation de la flamme, et des chocs lorsque ceux-ci sont présents. Ceux-ci sont composés de 2 capteurs PCB, 8 capteurs Kistler, et 27 capteurs SD. Les 10 capteurs de pression sont répartis tout au long de l'enceinte : 1 par élément tubulaire, et le dernier au niveau de la bride supérieure (cf. Figure 36 (a)). Il s'agit de 10 capteurs piézo-électriques. Les deux premiers capteurs sont des capteurs PCB Piezotronics de type 113B03, couplés à un amplificateur de charge 482C. Les 8 capteurs suivants sont des capteurs Kistler de type 601CA, couplés à un amplificateur de charge 5080A. Les spécifications techniques des différents capteurs de pression sont données dans le Tableau 8.

Paramètres	113B03 (PCB Piezotronics)	601A (Kistler)
Mesure de pression (bar)	0 – 1034	0 – 250
Sensibilité (pC/bar)	5,6	-37
Température de fonctionnement ( $^{\circ}\text{C}$ )	-240 – 204	-196 – 350
Fréquence de mesure (kHz)	500	215

Tableau 8 – Caractéristiques des différents capteurs de pression.

En plus des capteurs de pression, des capteurs de choc sont présents tout au long de l'enceinte. Ces capteurs ont pour but de détecter la propagation d'une éventuelle onde de choc qui pourrait s'en suivre à la propagation de la flamme. Pour ce faire, 27 capteurs de choc, en face des 27 photomultiplicateurs (cf. Chapitre 2 – partie 2.1.3.2), sont installés. Cependant, parmi les 27 capteurs de

choc, seulement les 5 derniers sont enregistrés et analysés. En effet, c'est à cet endroit que le choc sera bien formé. Il s'agit de capteurs MétalProcess, de type A25L05B, de très petit diamètre, ayant une surface sensible de seulement 0,75 mm<sup>2</sup>.

#### 2.1.3.4. Système de chauffage

Pour étudier l'impact de la température initiale sur la propagation de la flamme, un système de chauffage d'ENACCEF-II et des canalisations d'introduction des gaz, a été mis en place. Il s'agit d'un système de chauffage mis en place au laboratoire. Le système a été conçu dans le but de pouvoir faire varier la température initiale entre 0 et 200°C. Celui-ci est composé d'une série de rubans adhésifs et de colliers repartis sur les 9 éléments tubulaires. Des résistances chauffantes permettent de réguler la température de l'enceinte. Ces résistances chauffantes sont des régulateurs de température PID de type STATOP série 30. L'isolation thermique de l'enceinte est effectuée grâce à différents systèmes de protection fabriqués sur-mesure (cf. Figure 36 (b)). Plusieurs thermocouples de type K sont installés dans chaque élément tubulaire dans le but de déterminer la température initiale de chaque essai. Quatre des thermocouples sont installés sur la partie métallique extérieure de chaque élément tubulaire : 2 sur chacune des brides (cf. Figure 38 (1) et Figure 38 (5)), et 2 sur le tube central ((cf. Figure 38 (3) et Figure 38 (4)). Le dernier est installé à l'intérieur de ces éléments (cf. Figure 38 (2)), et est utilisé pour déterminer la température initiale du mélange gazeux. L'erreur sur la température initiale est de  $\pm 1$  K. Un schéma représentant le positionnement des différents thermocouples dans chacun des éléments tubulaires est donné sur la Figure 38.

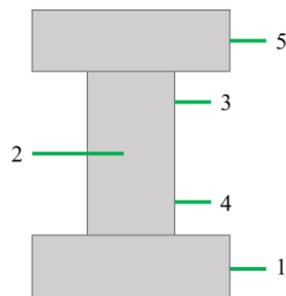


Figure 38 – Positionnement des 5 thermocouples placés dans chacun des 9 éléments tubulaires composant ENACCEF-II.

Les canalisations utilisées pour l'introduction des gaz sont également chauffées. Cette température est régulée par un système de régulation manufacturé par l'entreprise VEGATEC (cf. Chapitre 2 – partie 2.1.2.1). Ceci est fait de façon à ce que, lorsque les gaz sont introduits dans l'enceinte, ils soient déjà à la bonne température initiale, et ainsi limiter le plus possible les effets de condensation.

#### 2.1.3.5. Enregistrement des signaux

L'enregistrement des signaux, que ce soit les signaux extraits des photomultiplicateurs, la pression, ou les signaux correspondant aux capteurs de choc, se fait à l'aide de deux oscilloscopes. Le premier est un Hioki memory Hicorder de type MR8847-03. Il s'agit d'un oscilloscope à 24 voies. Sa fréquence d'échantillonnage est de 20 MS/s. Il a une précision de 0,01% sur la base de temps. Le deuxième est un Hioki memory Hicorder de type MR8827. Il s'agit d'un oscilloscope à 32 voies. Sa fréquence d'échantillonnage est de 20 MS/s et possède une précision de 0,01% sur la base de temps. Un générateur de délai a été installé dans le but de rendre simultané le déclenchement de la caméra rapide, de l'oscilloscope, et de l'étincelle générée par la source d'énergie. Il s'agit d'un générateur de délai Stanford Research Systems, modèle DG645, à 8 voies. Il a une résolution de 5 ps, une impédance de 50 Ohms, un output de 10 MHz, et une amplitude de tension allant de 0,5 Volt à 5 Volts. Sa précision est de 100 mV  $\pm$  5% de l'amplitude choisie pour faire les essais.

### 2.1.3.6. Dispositif de visualisation : Schlieren

La visualisation de la propagation de la flamme, ainsi que des chocs lorsqu'ils sont présents, se fait sur la partie centrale de l'enceinte en sortie des obstacles. En effet, les fenêtres se trouvent au niveau du photomultiplicateur 14 à 3,827 mètres de l'origine (cf. Figure 36). Tout comme pour l'étude des limites d'inflammabilité, le dispositif de visualisation mis en place pour suivre la propagation du front de flamme, ainsi que des chocs lorsqu'ils sont présents, est le Schlieren en Z. Une explication détaillée de cette méthode a été faite dans la partie 1.2.2.5 du Chapitre 2. La source de lumière utilisée est un pilote LED rouge (660 nm) Thorlabs de type LEDD1B capable de fournir des courants compris entre 200 et 1200 mA. Sa fréquence maximale est de 5 kHz. Le premier élément optique rencontré par le faisceau de lumière est une lentille LMR2/M de 2 mm. En aval de la lentille se trouve un diaphragme modulable. Puis, se trouve un premier miroir plat d'un diamètre de 75 mm, suivi d'un autre miroir concave de focale :  $f = 50 \text{ cm}$ , disposés diamétralement opposés. Le faisceau lumineux traverse ensuite le tube à travers deux fenêtres en saphir. Il arrive ainsi sur un deuxième miroir concave de focale :  $f = 50 \text{ cm}$ , suivi d'un deuxième miroir plat d'un diamètre de 75 mm. Une lame de cutter a été utilisée en guise de « couteau de Foucault ». L'enregistrement visuel de la propagation du front de flamme se fait à l'aide d'une caméra rapide Phantom V1210 (cf. Chapitre 2 – partie 1.2.2.5). Sa résolution maximale est de 1280x800, et son débit maximal est de 12 Gpx/s. Sa vitesse d'acquisition maximale varie entre 650.000 et 1.000.000 images par seconde, images stockées sur une carte mémoire de 48 GB.

Un schéma détaillant les différents composants, ainsi que leur positionnement, du Schlieren en Z mis en place dans ENACCEF-II est donné sur la Figure 39.

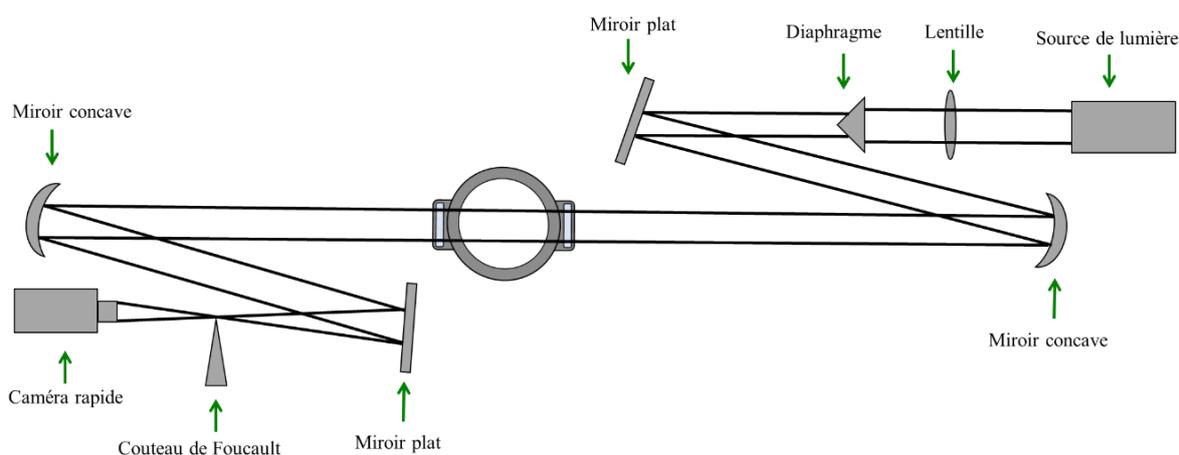


Figure 39 – Schéma du système Schlieren en Z mis en place dans ENACCEF-II pour la visualisation de la propagation du front de flamme, et des chocs lorsqu'ils sont présents.

## 2.2. Traitement des signaux

Une fois la campagne expérimentale finie, plusieurs données caractérisant la propagation de la flamme peuvent être extraites. En effet, il est possible de déterminer la position, ainsi que la vitesse de propagation de la flamme. De plus, la détermination de l'évolution de la pression lors de la propagation de la flamme pour des flammes subsoniques, ainsi que pour des flammes supersoniques, peut également être faite.

### 2.2.1. Détermination de la position et de la vitesse de propagation de la flamme

Le premier paramètre qu'il est possible de déterminer est la position du front de flamme au cours du temps lors de sa propagation dans ENACCEF-II. Pour ce faire, les signaux extraits des 27 photomultiplicateurs ont été utilisés. En effet, la position de chaque photomultiplicateur est connue, il ne reste plus qu'à déterminer le temps de passage du front de la flamme devant chacun d'entre eux. Un

exemple des signaux obtenus pour 4 des photomultiplicateurs (PM7 à PM10) est donné sur la Figure 40. L'exemple choisi est la propagation d'une flamme  $H_2/CO/Air$ , telle que : la composition initiale est de 4,5%  $H_2$  + 4,5%  $CO$  + 91%  $Air$ , la température initiale est de  $T_{ini} = 363$  K, et la pression initiale est de  $P_{ini} = 1$  bar. La méthodologie de détermination du temps de passage du front de flamme peut ainsi être explicitée. Pour ce faire, une régression linéaire du signal plat, signal à 0 Volt, qui précède le pic (correspondant au passage du front de flamme) est effectuée sur chacun des signaux. De plus, la tangente associée au pic du signal est tracée. Le temps de passage du front de flamme, devant chaque photomultiplicateur, correspond donc à l'intersection entre ces deux droites. Il est donc possible de déterminer la position du front de flamme au cours du temps lors de sa propagation dans ENACCEF-II pour les différents photomultiplicateurs.

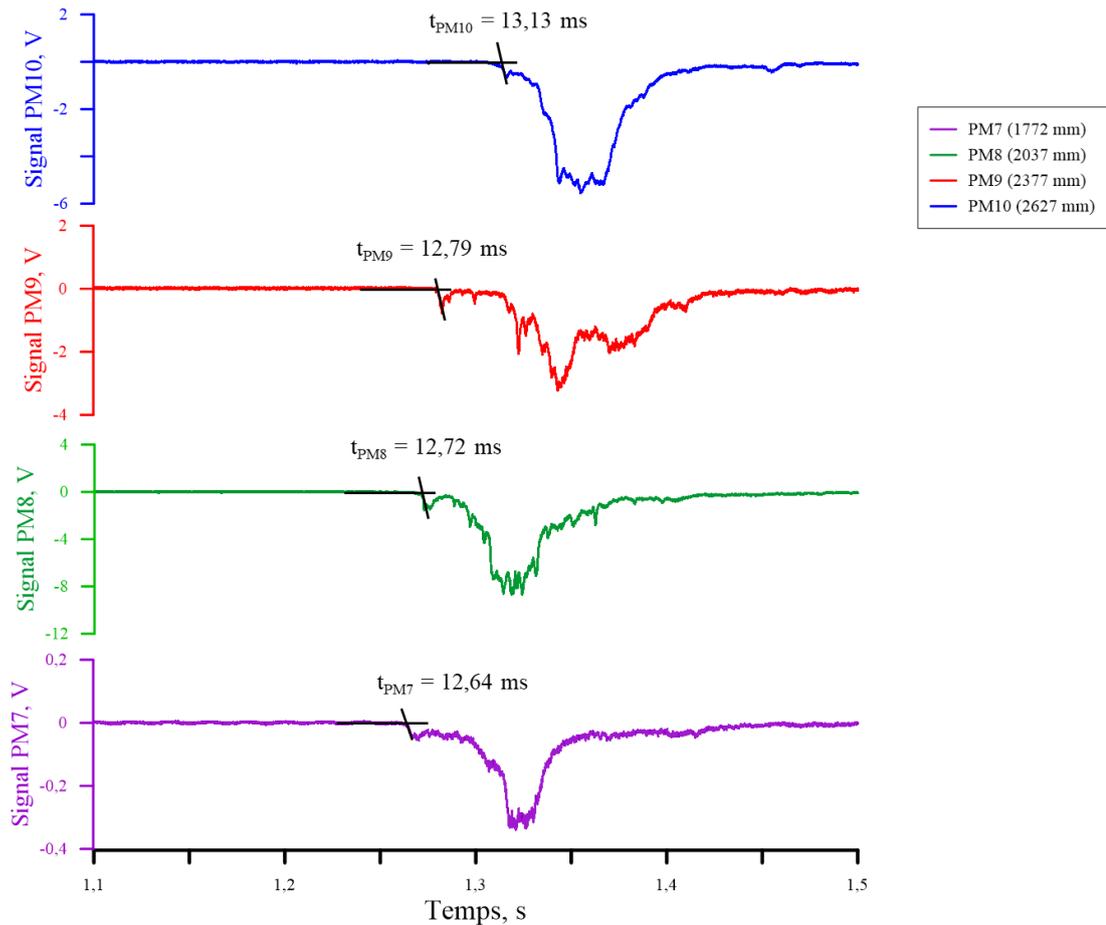


Figure 40 – Signaux extraits de 4 des photomultiplicateurs de ENACCEF-II pour une flamme 4,5%  $H_2$  + 4,5%  $CO$  + 91%  $Air$  à  $P_{ini} = 1$  bar et  $T_{ini} = 363$  K.

L'une des principales difficultés lors de l'étude des signaux des photomultiplicateurs dans le cas des flammes lentes, est l'identification du pic principal correspondant au passage du front de flamme. En effet, lors de l'étude de ces signaux, il est possible de voir plusieurs pics différents correspondant à une augmentation de la teneur en radicaux OH. Ce double pic est visible sur la Figure 41.

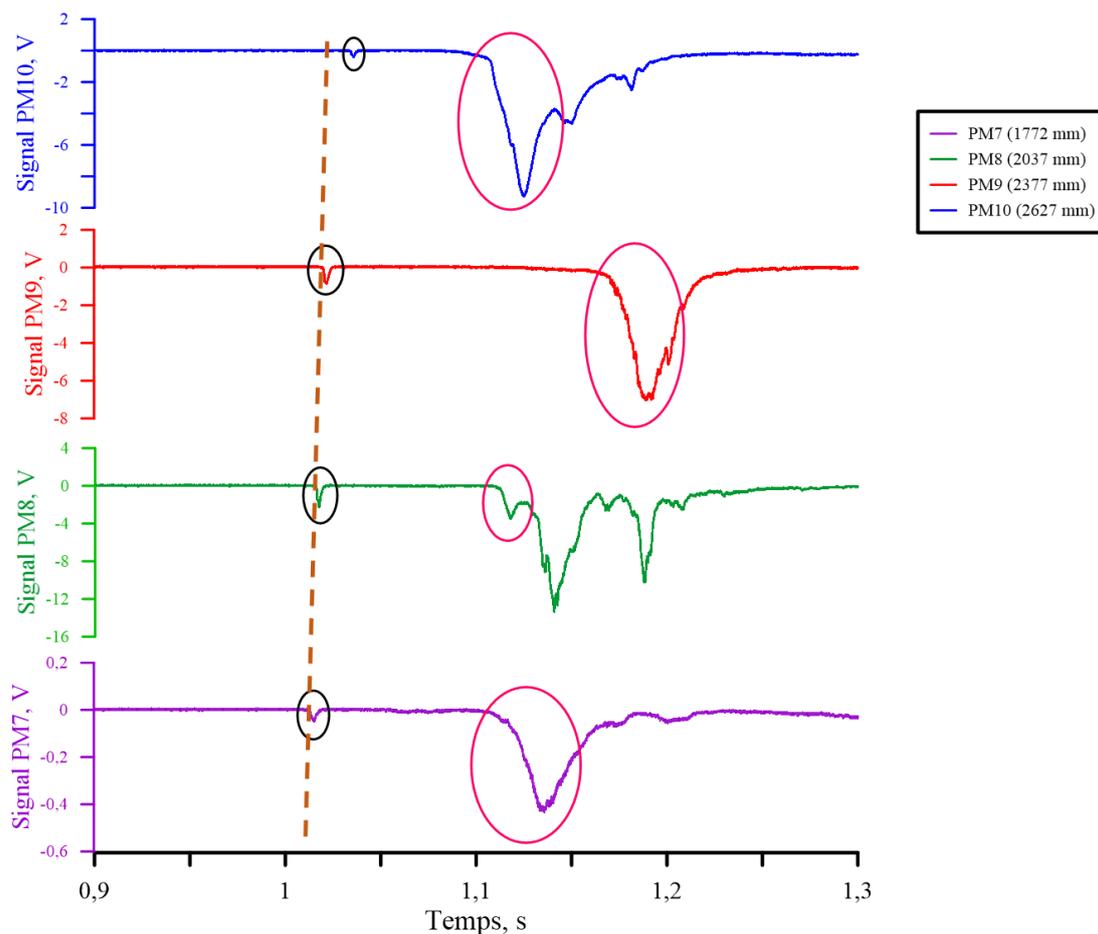


Figure 41 – Propagation du front de flamme entre le septième et le dixième photomultiplicateur. Les cercles noirs correspondent au passage de la flamme, et les cercles roses correspondent à un pic de OH généré par la recirculation des gaz brûlés.

Un premier pic identifiable sur l'ensemble des signaux (entouré en noir) est celui qui correspond à la propagation du front de flamme en fonction du temps (en abscisse). L'avancement temporel de ce pic en fonction du temps est linéaire pour les trois premiers PM (7, 8 et 9) montrant l'accélération constante de la flamme, puis le positionnement temporel du pic du PM 10 montre le ralentissement de la flamme. En effet, les photomultiplicateurs PM 7, 8 et 9 sont situés dans la zone où se trouvent les obstacles responsables de l'accélération de la flamme. À la fin de cette zone, après le dernier obstacle, la flamme est ralentie comme le montre la présence du PM 10 car celui-ci se trouve en aval de la zone obstruée, où la flamme est ralentie.

La propagation de la flamme commence par être une propagation parallèle au tube en son intérieur (première flèche verte sur la Figure 42). Puis, lorsque la flamme traverse les obstacles, une partie de la flamme continue sa propagation à l'intérieur du tube entre les obstacles (deuxième et troisième flèche verte sur la Figure 42). Une autre partie se propage vers les côtés et crée une zone de recirculation des gaz brûlés entre les obstacles (flèches orange sur la Figure 42). Ainsi, les photomultiplicateurs captent dans un premier temps le passage du jet central, correspondant au passage du front de flamme (cercles noirs sur la Figure 41). Puis, lors de la recirculation des gaz brûlés, les photomultiplicateurs reçoivent alors un deuxième signal correspondant à l'émission de radicaux OH (cercles roses sur la Figure 41). La Figure 42 schématise le passage d'une flamme dans un tube encombré d'obstacles.



Figure 42 – Propagation d’une flamme dans un tube encombré d’obstacles.

L’incertitude liée à la détermination de la position du front de flamme peut être déterminée à partir de ces signaux. Ainsi, il faut déterminer l’incertitude temporelle (incertitude sur l’utilisation de l’oscilloscope, et incertitude sur le choix de la tangente), et l’incertitude spatiale (incertitude liée à l’utilisation des photomultiplicateurs).

Tout d’abord, il faut commencer par l’incertitude temporelle. Le choix de la position de la tangente est fait par le jugement de l’utilisateur, et donc par la méthode choisie. Ceci est source d’erreur dans la détermination du temps de passage du front de flamme. Dans le but de quantifier cette source d’erreur, il faut déterminer les temps de passage du front de flamme correspondant aux deux tangentes « extrêmes » pour les 7 photomultiplicateurs. Ces tangentes extrêmes correspondent aux pentes, minimale et maximale, des signaux des photomultiplicateurs. Le signal du photomultiplicateur 10, ainsi que la régression linéaire (signal à 0 Volt) et les deux pentes « maximales », de l’exemple cité précédemment sont donnés sur la Figure 43.

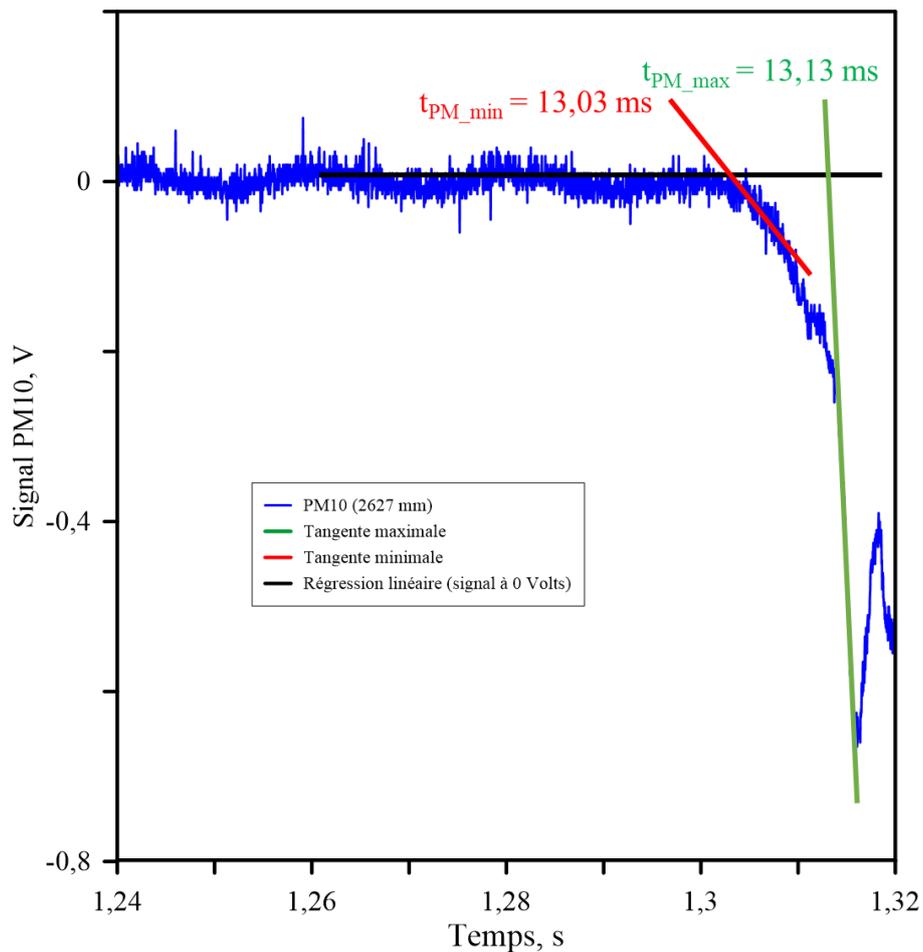


Figure 43 – Signal du photomultiplicateur 10, régression linéaire, et pentes "maximales" pour une flamme 4,5% H<sub>2</sub> + 4,5% CO + 91% Air à P<sub>ini</sub> = 1 bar et T<sub>ini</sub> = 363 K.

Cette incertitude a été déterminée à 4,33%. À cette valeur s’ajoute l’incertitude provenant de l’utilisation de l’oscilloscope. Cette erreur peut être déterminée par la formule suivante :

$$\Delta t_{PM,oscillo} = \frac{t_{oscillo}}{N} \quad (47)$$

Avec,  $\Delta t_{PM,oscillo}$  l'incertitude sur le temps de passage du front de flamme due à l'utilisation de l'oscilloscope (en ms),  $t_{oscillo}$  la base de temps de l'oscilloscope (en ms), et  $N$  le nombre de points enregistrés par division. À partir de cette équation, l'erreur provenant de l'utilisation de l'oscilloscope est égale à  $1,38 \cdot 10^{-4}$  ms, ou 0,01%. Cette erreur est négligeable face à l'incertitude liée au choix de la tangente.

En appliquant la méthode de propagation des erreurs indépendantes (cf. équation (48)), il est alors possible de déterminer l'incertitude maximale sur la mesure du temps de passage du front de flamme. Celle-ci est donc égale à 4,33%.

$$\frac{\Delta t_{PM}}{t_{PM}} = \sqrt{\left(\frac{\Delta t_{PM,tangente}}{t_{PM,tangente}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta t_{PM,oscillo}}{t_{PM,oscillo}}\right)^2} \quad (48)$$

Avec,  $\Delta t_{PM}$  l'incertitude sur le temps de passage du front de flamme (en ms),  $t_{PM}$  le temps de passage du front de flamme (en ms),  $\Delta t_{PM,tangente}$  l'incertitude sur le temps de passage du front de flamme due au choix de la tangente (en ms),  $t_{PM,tangente}$  le temps de passage du front de flamme due au choix de la tangente (en ms),  $\Delta t_{PM,oscillo}$  l'incertitude sur le temps de passage du front de flamme due à l'utilisation de l'oscilloscope (en ms), et  $t_{PM,oscillo}$  le temps de passage du front de flamme due à l'utilisation de l'oscilloscope (en ms).

Maintenant que l'incertitude temporelle a été déterminée, il faut déterminer l'incertitude spatiale. En effet, cette erreur est le résultat de l'incertitude de détection du passage du front de flamme par le photomultiplicateur. Cette incertitude de détection provient de la fente optique présente devant le photomultiplicateur (cf. Chapitre 2 – partie 2.1.3.2). Cette fente a une épaisseur de 1 mm. Ainsi, si l'on considère le  $n^{\text{ième}}$  photomultiplicateur, alors la position du front de flamme peut être détectée pour des hauteurs comprises entre  $d_{PM_n} - 0,5 \text{ mm}$  et  $d_{PM_n} + 0,5 \text{ mm}$ . Ainsi, l'erreur sur la détection de la position du front de flamme est de  $\pm 0,5 \text{ mm}$ . Cette erreur étant fixe, l'incertitude sur la distance parcourue par la flamme depuis l'origine est maximale lorsque la distance entre deux photomultiplicateurs est minimale. La distance minimale entre deux photomultiplicateurs consécutifs dans ENACCEF-II est de 150 mm. Ainsi, l'incertitude relative sur la détermination de la position du front de flamme est de 0,33%.

Le deuxième paramètre qu'il est possible de déterminer est la vitesse de propagation du front de flamme. Pour ce faire, deux paramètres ont été utilisés : la position du front de flamme et le temps de passage de celui-ci. En effet, en déterminant le temps de passage du front de flamme au niveau de deux photomultiplicateurs consécutifs, et en connaissant leur position, il est possible de calculer la vitesse de propagation de la flamme entre ces deux photomultiplicateurs en appliquant la formule suivante :

$$v_{PM_n} = \frac{d_{PM_{n+1}} - d_{PM_{n-1}}}{t_{PM_{n+1}} - t_{PM_{n-1}}} \quad (49)$$

Avec,  $n \in \llbracket 1, 27 \rrbracket$  le numéro du photomultiplicateur,  $v_{PM_n}$  la vitesse du front de flamme (en  $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ),  $d_{PM_{n+1}}$  la position du photomultiplicateur  $n + 1$  (en m),  $d_{PM_{n-1}}$  la position du photomultiplicateur  $n - 1$  (en m),  $t_{PM_{n+1}}$  le temps de passage du front de flamme devant le photomultiplicateur  $n + 1$  (en s), et  $t_{PM_{n-1}}$  le temps de passage du front de flamme devant le photomultiplicateur  $n - 1$  (en s).

L'incertitude de mesure sur la détermination de la vitesse de propagation du front de flamme peut être déterminée à partir des valeurs des incertitudes liées à la position de la flamme (0,33%) et au temps de passage du front de flamme (4,33%). Cette incertitude vaut donc 4,34%.

La méthode de propagation des erreurs indépendantes a été utilisée. Elle est donnée par l'équation (50) :

$$\frac{\Delta v}{v} = \sqrt{\left(\frac{\Delta t_{PM}}{t_{PM}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta d_{PM}}{d_{PM}}\right)^2} \quad (50)$$

Avec,  $\Delta v$  l'incertitude sur la vitesse de propagation de la flamme (en  $\text{m.s}^{-1}$ ),  $v$  la vitesse de propagation de la flamme (en  $\text{m.s}^{-1}$ ),  $\Delta t_{PM}$  l'incertitude sur le temps de passage du front de flamme (en s),  $t_{PM}$  le temps de passage du front de flamme (en s),  $\Delta d_{PM}$  l'incertitude sur la position de la flamme (en m),  $d_{PM}$  la position de la flamme (en m).

### 2.2.2. Détermination de l'évolution de la pression lors de la propagation de la flamme

La dernière étape de l'analyse des résultats est l'étude de la propagation d'une flamme dans un tube fermé encombré d'obstacles est la détermination de l'évolution de la pression. Cette variation de la pression à l'intérieur de l'enceinte est déterminée à partir des 10 capteurs de pression placés tout au long d'ENACCEF-II (cf. Chapitre 2 – partie 2.1.3.3). Deux cas de figure peuvent subvenir en fonction de la vitesse maximale du front de flamme lors de sa propagation dans l'enceinte. La première configuration correspond aux flammes subsoniques. La deuxième configuration, qui s'avère être un peu plus complexe, correspond aux flammes supersoniques. En effet, lors de cette dernière configuration, il est possible que des chocs se forment dans ENACCEF-II. Ces chocs interagissent avec le front de flamme.

#### 2.2.2.1. Flammes subsoniques

Le premier scénario, qui est aussi le plus simple à étudier, survient lorsque le front de flamme se déplace à une vitesse subsonique, c'est-à-dire à une vitesse inférieure à la vitesse du son. Dans ce cas, les seules informations qui peuvent être extraites des différents signaux de pression sont la pression maximale atteinte à l'intérieur de l'enceinte, et la vitesse d'augmentation de cette pression au cours du temps. Cette valeur de pression de combustion maximale va pouvoir par la suite être comparée à la valeur de la  $P_{AICC}$ .

Un exemple de signal de pression de combustion obtenu au niveau du capteur Kistler  $K_{end}$  (7650 mm) pour une flamme 4,5%  $\text{H}_2$  + 4,5%  $\text{CO}$  + 91% Air, pour  $T_{ini} = 363 \text{ K}$ , et pour  $P_{ini} = 1 \text{ bar}$ , est donné sur la Figure 44.

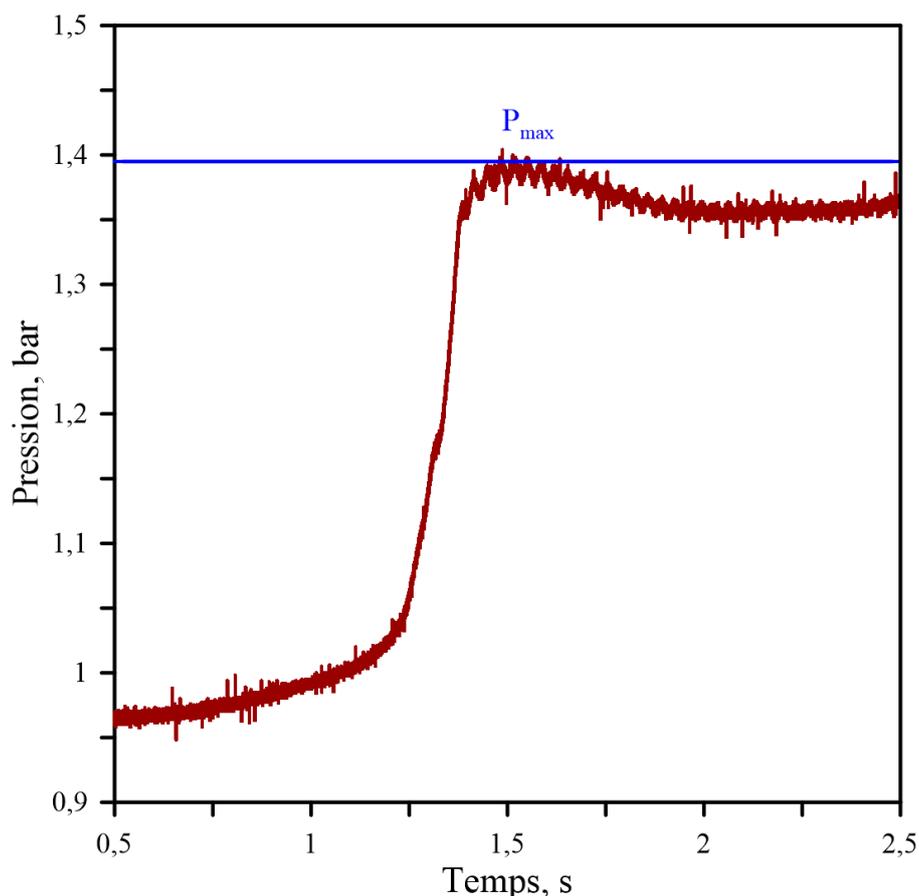


Figure 44 – Signal de pression obtenu au niveau du capteur Kistler  $K_{end}$  (7650 mm) pour une flamme 4,5%  $H_2$  + 4,5%  $CO$  + 91% Air, pour  $P_{ini} = 1$  bar, et  $T_{ini} = 363$  K.

Cette pression de combustion maximale est déterminée pour tous les capteurs de pression lors de la propagation de la flamme dans ENACCEF-II. Ainsi, la valeur de la pression de combustion maximale pour l'essai est la plus grande des valeurs déterminées précédemment. La pression de combustion maximale n'est jamais atteinte dans les premières sections du tube (où se trouvent les capteurs PCB). Ainsi, l'incertitude sur cette valeur peut être déterminée uniquement à partir de l'incertitude générée par les capteurs Kistler. Cette incertitude est donc de 0,3%.

#### 2.2.2.2. Flamme supersoniques

Le deuxième scénario, qui est un peu plus complexe à étudier, survient lorsque le front de flamme se déplace à une vitesse supersonique, c'est-à-dire à une vitesse supérieure à la vitesse du son. Dans ce cas, plusieurs données peuvent être extraites des différents signaux de pression. Le premier est la pression de combustion maximale atteinte dans l'enceinte. Cette pression maximale est déterminée de la même façon que pour les flammes subsoniques (cf. Chapitre 2 – partie 2.2.2.1). Pour les mêmes raisons que précédemment, l'incertitude de mesure sur la détermination de la pression de combustion maximale est de 0,3%.

La propagation d'une flamme supersonique dans un tube fermé encombré d'obstacles crée des chocs dans l'enceinte. Ces chocs se présentent sous forme de plusieurs augmentations successives très rapides (quasiment instantanées) du signal de pression. La première augmentation correspond au choc incident. Toutes les augmentations qui suivent correspondent aux chocs réfléchis successifs. Il est donc possible de suivre la trajectoire des chocs, et d'en déduire leur vitesse de propagation. Un exemple des différents signaux de pression de combustion obtenus au niveau des capteurs Kistler :  $K_{11} - K_{end}$  (2977 – 7650 mm) pour une flamme 11%  $H_2$  + 11%  $CO$  + 59% Air + 19%  $H_2O$ , pour  $T_{ini} = 353$  K, et pour  $P_{ini} = 2$  bars, est donné sur la Figure 45.

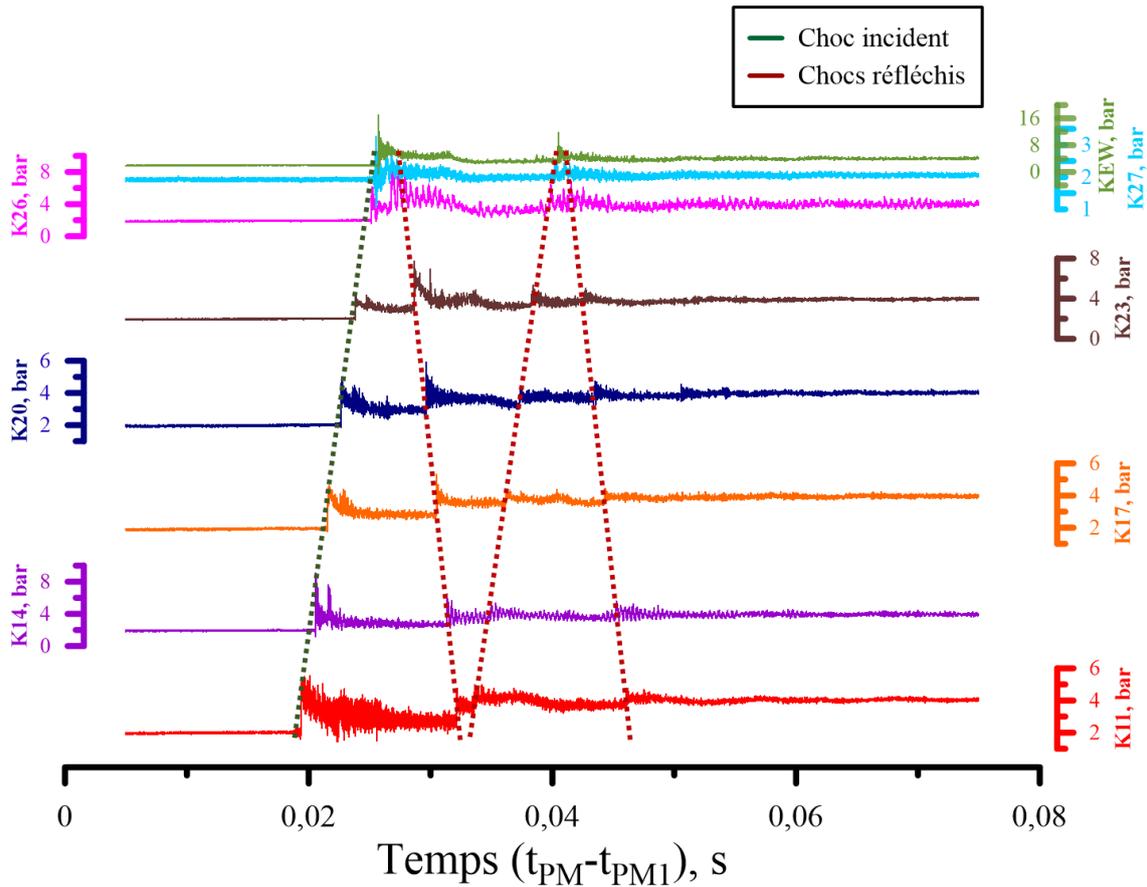


Figure 45 – Signaux de pression obtenus au niveau des capteurs Kistler K11 – K<sub>end</sub> (2977 – 7650 mm) pour une flamme 11% H<sub>2</sub> + 11% CO + 59% Air + 19% H<sub>2</sub>O, pour P<sub>ini</sub> = 2 bars, et T<sub>ini</sub> = 353 K.

Ainsi, en plus de la valeur de la pression de combustion maximale, il est important de caractériser les différents paramètres de choc. Le premier paramètre qu'il est possible de déterminer est la vitesse de propagation du choc. Pour commencer, il faut déterminer le temps de passage de l'onde de choc à l'aide des différents capteurs de pression (leur position dans le tube est connue). Un exemple de détermination de ce temps de passage est donné sur la Figure 46. L'exemple choisi pour illustrer la détermination du temps de passage de l'onde de choc est le même que ci-dessus : une flamme 11% H<sub>2</sub> + 11% CO + 59% Air + 19% H<sub>2</sub>O, pour T<sub>ini</sub> = 353 K, et pour P<sub>ini</sub> = 2 bars.

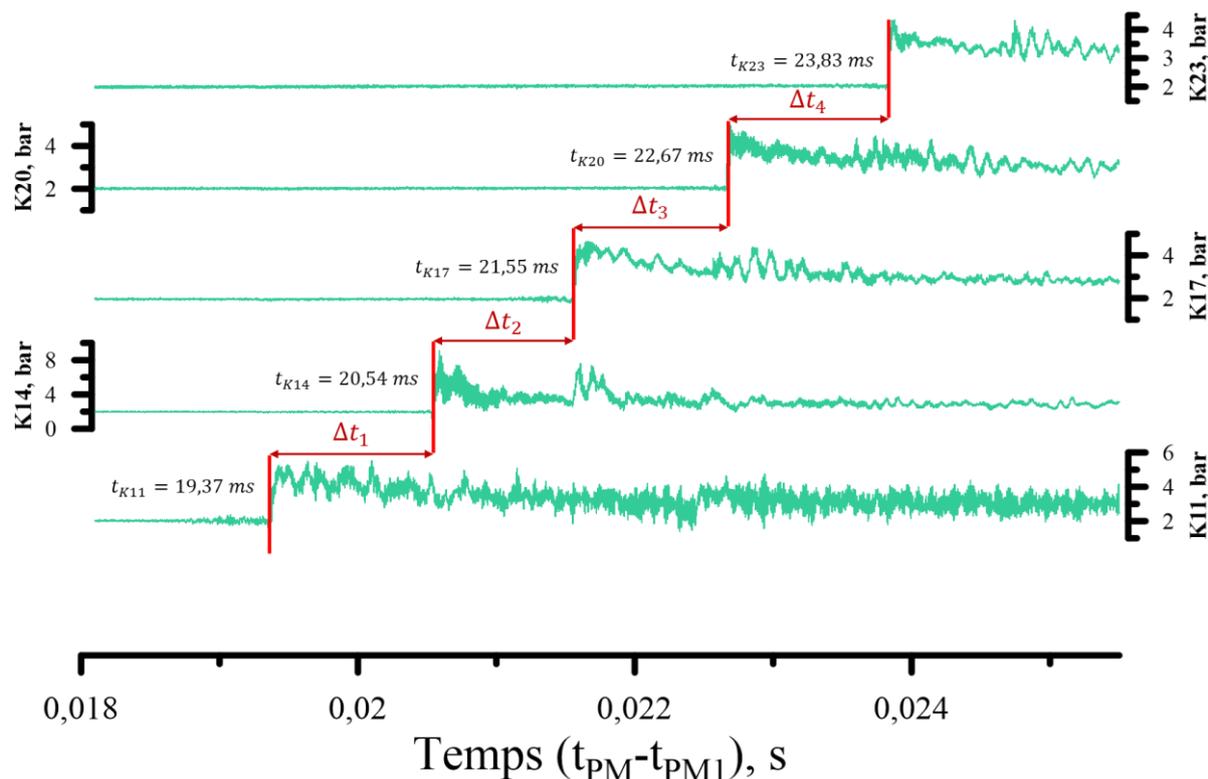


Figure 46 – Détermination du temps de passage de l'onde de choc incidente devant les différents capteurs de pression Kistler pour une flamme 11% H<sub>2</sub> + 11% CO + 59% Air + 19% H<sub>2</sub>O, pour P<sub>ini</sub> = 2 bars, et T<sub>ini</sub> = 353 K.

Lorsque le temps de passage de l'onde de choc est déterminé, il est ainsi possible de déterminer non seulement la vitesse de cette onde de choc, mais aussi son nombre de Mach. Le nombre de Mach est défini comme suit :

$$M_a = \frac{v}{a} \quad (51)$$

Avec,  $M_a$  le nombre de Mach,  $v$  la vitesse de l'onde de choc (en m.s<sup>-1</sup>), et  $a$  la vitesse du son dans le milieu considéré (en m.s<sup>-1</sup>). La vitesse du son peut être définie à partir de la formule suivante :

$$a = \sqrt{\frac{\gamma RT}{M}} \quad (52)$$

Avec,  $a$  la vitesse du son dans le milieu considéré (en m.s<sup>-1</sup>),  $\gamma$  le coefficient adiabatique (défini comme étant le rapport entre les capacités thermiques, à pression constante  $c_p$  (en J.K<sup>-1</sup>.kg<sup>-1</sup>) et à volume constant  $c_v$  (en J.K<sup>-1</sup>.kg<sup>-1</sup>) :  $\gamma = c_p/c_v$ ),  $R = 8,314$  la constante universelle des gaz parfaits (en J.mol<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>),  $T$  la température initiale (en K),  $M$  la masse molaire du mélange considéré (en kg.mol<sup>-1</sup>).

L'étape qui suit la détermination de la vitesse de l'onde de choc, ainsi que son nombre de Mach, est la détermination des conditions thermodynamiques atteintes derrière l'onde de choc incidente, et l'onde de choc réfléchi. Pour ce faire, les gaz composant le mélange seront considérés comme des gaz parfaits. Ainsi, il est possible d'appliquer les équations de conservation [271] permettant de déterminer la température et la pression atteintes derrière les chocs. Ces équations, lorsque l'on considère le mélange gazeux comme étant calorifiquement parfait, sont données par :

- Pour le choc incident :

$$\frac{P_2}{P_1} = \frac{2\gamma M_a^2 - (\gamma - 1)}{\gamma + 1} \quad (53)$$

$$\frac{T_2}{T_1} = \frac{\left(\gamma M_a^2 - \frac{\gamma - 1}{2}\right) \left(\frac{\gamma - 1}{2} M_a^2\right)}{\left(\frac{\gamma + 1}{2}\right) M_a^2} \quad (54)$$

- Pour le choc réfléchi :

$$\frac{P_5}{P_1} = \left(\frac{2\gamma M_a^2 - (\gamma - 1)}{\gamma + 1}\right) \left(\frac{(3\gamma - 1)M_a^2 - 2(\gamma - 1)}{(\gamma - 1)M_a^2 + 2}\right) \quad (55)$$

$$\frac{T_5}{T_1} = \frac{\left(2(\gamma - 1)M_a^2 + (3 - \gamma)\right) \left((3\gamma - 1)M_a^2 - 2(\gamma - 1)\right)}{(\gamma + 1)^2 M_a^2} \quad (56)$$

Avec,  $P_1$ ,  $T_1$ , la pression initiale (en bar), et la température initiale (en K),  $P_2$ ,  $T_2$ , la pression atteinte derrière l'onde de choc incidente (en bar), et la température atteinte derrière l'onde de choc incidente (en K),  $P_5$ ,  $T_5$ , la pression atteinte derrière l'onde de choc réfléchie (en bar), et la température atteinte derrière l'onde de choc réfléchie (en K),  $M_a$  le nombre de Mach, et  $\gamma$  le coefficient adiabatique (défini comme étant le rapport entre les capacités thermiques, à pression constante  $c_p$  (en  $J.K^{-1}.kg^{-1}$ ) et à volume constant  $c_v$  (en  $J.K^{-1}.kg^{-1}$ ) :  $\gamma = c_p/c_v$ ). Le calcul des différents paramètres, aussi bien derrière l'onde de choc incidente, que derrière l'onde de choc réfléchie, prennent en compte la variation de  $\gamma$  en fonction de la température.

Finalement, la dernière étape consiste à déterminer les incertitudes de mesure liées à toutes les grandeurs précédemment calculées. Toutes les grandeurs calculées ( $P_2$ ,  $T_2$ ,  $P_5$ ,  $T_5$ ) dépendent du nombre de Mach  $M_a$ . Or, ce nombre de Mach dépend de la détermination de la vitesse de propagation de l'onde de choc, et de la température initiale. Ainsi, l'incertitude de mesure liée à toutes les grandeurs calculées ne dépend que de l'incertitude de mesure de la vitesse de propagation de l'onde de choc, et de l'incertitude de mesure liée à la température initiale.

Tout d'abord, l'incertitude de mesure liée à la détermination de la vitesse de propagation de l'onde de choc est calculée de la même façon que l'incertitude de mesure liée à la détermination de la vitesse de propagation du front de flamme (cf. Chapitre 2 – partie 2.2.1). Ainsi, il faut déterminer l'incertitude temporelle (incertitude sur l'utilisation de l'oscilloscope, et incertitude sur la détermination de la position du choc), et l'incertitude spatiale (incertitude liée à l'utilisation des capteurs de pression). En appliquant l'équation (47), il est possible de déterminer l'incertitude de mesure liée à l'utilisation de l'oscilloscope, et elle est égale à : 0,039%. Contrairement, à l'incertitude de mesure liée au choix de la tangente pour la détermination de la vitesse de propagation du front de flamme, l'incertitude liée à la détermination de la position du choc est très faible et négligeable devant l'incertitude liée à l'utilisation de l'oscilloscope. Donc, l'incertitude de mesure temporelle est égale à 0,039%.

L'incertitude spatiale, quant à elle, est provoquée par l'utilisation des différents capteurs de pression. En effet, cette erreur est le résultat de l'incertitude de détection du passage du choc devant le capteur de pression. Cette incertitude de détection provient de la surface de celui-ci. Les diamètres des deux capteurs de pression : PCB et Kistler sont respectivement de 5,54 et 5,55 mm. Ainsi, l'erreur sur la détection de la position du choc est de  $\pm 2,75$  mm (choix de la plus grande surface pour la maximisation de l'erreur). Tout comme pour l'incertitude spatiale provoquée par l'utilisation des photomultiplicateurs (cf. Chapitre 2 – partie 2.2.1), l'incertitude de mesure liée à l'utilisation des capteurs de pression est maximale lorsque la distance entre deux capteurs de pression est minimale. La

distance minimale entre deux capteurs de pression consécutifs dans ENACCEF-II est de 427 mm. Ainsi, l'incertitude relative sur la détermination de la position du front de flamme est de 1,29%.

L'incertitude de mesure liée à la détermination de la vitesse de propagation de l'onde de choc peut être déterminée à partir de la méthode de propagation des erreurs indépendantes, et est de 1,29% (l'incertitude liée à l'utilisation de l'oscilloscope étant négligeable).

L'erreur de lecture de la température initiale  $T_1$  dans ENACCEF-II est de  $\pm 1$  K. Ainsi, l'incertitude liée à la lecture de la température initiale est de 0,33% et l'incertitude relative à la détermination de la vitesse du son est de 0,11%. Cette valeur est négligeable devant l'incertitude liée à la détermination de la vitesse de propagation de l'onde de choc. L'incertitude de mesure liée à la détermination du nombre de Mach est égale à 1,29%. Il est donc possible de déterminer les incertitudes relatives au calcul de toutes les autres grandeurs ( $P_2$ ,  $T_2$ ,  $P_5$ ,  $T_5$ ) à partir de la méthode de propagation des erreurs indépendantes.

### 2.3. Conditions expérimentales de l'étude

La description du dispositif expérimental, la définition du protocole expérimental, ainsi que l'explicitation de la méthodologie de la caractérisation de la propagation de flamme dans ENACCEF-II, ayant été faites, il faut désormais définir les conditions expérimentales qui constituent cette campagne expérimentale. Cette étude a pour vocation de caractériser, de façon générale dans un premier temps, puis pour des concentrations proches des limites d'inflammabilité, la propagation d'une flamme  $H_2/CO/Air$  et  $H_2/CO/Air/Diluant$  dans un tube encombré d'obstacles. En effet, comme énoncé auparavant, cette étude s'inscrit dans le cadre du projet européen AMHYCO, ayant pour vocation de compléter les données manquantes à la connaissance concernant la propagation de flammes, générées par la combustion de  $H_2$  et de  $CO$ , dans des conditions représentatives de la phase tardive d'un accident grave dans un REP. Cette campagne expérimentale est constituée de 120 essais durant lesquels l'influence de plusieurs paramètres initiaux sur les régimes de propagation des flammes  $H_2/CO/Air$  et  $H_2/CO/Air/Diluant$  a été étudiée. Les paramètres initiaux étudiés sont les suivants :

- Variation de la composition initiale du mélange :  $H_2 \in [4; 14]\%$  et  $CO \in [1,3; 12,5]\%$
- Pression initiale :  $P_{ini} \in [1; 3,5]$  bars
- Température initiale :  $T_{ini} \in [298; 398]$  K
- Ajout de diluants :  $CO_2$  et  $H_2O$

Chaque essai (correspondant à une composition du mélange combustible, et à des conditions thermodynamiques données) est répété 3 fois dans le but de tester sa répétabilité. Un tableau détaillé de tous les essais réalisés est donné en ANNEXE 1.

## 3. Logiciel de simulation de la combustion : COSILAB

La troisième partie de l'étude porte sur l'obtention des différents paramètres de la combustion. Cette modélisation est faite pour toute la campagne expérimentale, que ce soit pour l'étude des limites d'inflammabilité comme pour l'étude sur la propagation de flamme dans un tube fermé encombré d'obstacles. Pour ce faire, un logiciel de simulation de la combustion a été utilisé : COSILAB. La détermination des différents paramètres de combustion se fait en deux parties. Dans un premier temps, les calculs à l'équilibre seront détaillés. Puis, les calculs des paramètres des flammes de prémélange seront explicités.

### 3.1. Calculs à l'équilibre

La modélisation de la combustion au cours des différentes études a été faite à l'aide du logiciel de simulation de la combustion COSILAB [272]. Il s'agit d'un logiciel permettant la résolution de problèmes complexes de cinétique chimique. Il est possible de réaliser des modélisations allant du 0D à

des modélisations beaucoup plus complexes. Dans le cadre des deux études présentées ici, la modélisation faite est une modélisation 0D. Pour ce faire, le module « Equilibrium » a été utilisé. Celui-ci, comme son nom l'indique, permet de réaliser les calculs à l'équilibre. La réalisation des calculs se fait à partir de trois fichiers devant être renseignés en amont :

- Le premier fichier est le fichier de données thermodynamiques. Ce fichier permet la détermination de l'enthalpie, de l'entropie et de la chaleur spécifique.
- Le deuxième fichier est le fichier de données de transport. Ce fichier comporte toutes les données moléculaires relatives aux espèces déclarées.
- Le troisième, et dernier fichier est le fichier contenant le mécanisme cinétique utilisé pour la réalisation des calculs à l'équilibre. Ce fichier comporte toutes les espèces impliquées dans la réaction, ainsi que toutes les réactions élémentaires qui la composent. Ce fichier comporte aussi les différents paramètres cinétiques qui caractérisent la réaction. Le mécanisme choisi pour cette étude est le mécanisme Polimi-Mech [203], après avoir été démontré comme étant le mécanisme cinétique détaillé le plus en accord avec la modélisation de la vitesse de flamme laminaire des mélanges à base d'hydrogène [273].

Une fois les trois fichiers fournis, ils sont compilés par COSILAB pour n'obtenir qu'un seul fichier qui sera utilisé pour la réalisation des calculs. L'étape suivante est de rentrer les différentes conditions initiales (composition du mélange, température initiale, pression initiale, et type de calcul à réaliser) nécessaires. Lorsque toutes les données initiales ont été rentrées dans le logiciel, la simulation peut débuter. Les résultats obtenus sont regroupés dans un fichier « Output ».

Maintenant que le fonctionnement général de COSILAB a été explicité, il est possible de détailler les calculs réalisés dans le cadre de cette étude. Tout d'abord, les deux premiers paramètres qui ont été calculés sont la température adiabatique de flamme  $T_f$ , et la pression adiabatique, isochore, pour une combustion complète  $P_{AICC}$ . Ces deux paramètres sont nécessaires pour les deux études réalisées. La température adiabatique de flamme est déterminée en faisant un calcul à pression et à enthalpie constantes (cf. Figure 47 (a)). La pression adiabatique, isochore, pour une combustion complète, quant à elle, est déterminée en faisant un calcul à volume constant (cf. Figure 47 (b)). Robledo et al. [274] ont défini la  $P_{AICC}$ , en considérant un mélange initial de gaz parfaits, comme suit :

$$P_{AICC} = P_{ini} \left( \frac{T_f}{T_{ini}} \right) \left( \frac{n_b}{n_{ini}} \right) \quad (57)$$

Avec,  $P_{AICC}$  la pression adiabatique isochore pour une combustion complète (en bar),  $P_{ini}$  la pression initiale (en bar),  $T_f$  la température adiabatique de flamme (en K),  $T_{ini}$  la température initiale (en K),  $n_b$  le nombre de moles des gaz brûlés (en mol), et  $n_{ini}$  le nombre de moles des gaz frais (en mol).

Concernant l'étude de la propagation d'une flamme dans un tube fermé encombré d'obstacles des paramètres supplémentaires sont nécessaires à l'analyse des données. En effet, en plus de la  $T_f$ , et de la  $P_{AICC}$ , les paramètres suivants ont été calculés : les masses volumiques des gaz frais et des gaz brûlés ( $\rho_f$ ,  $\rho_b$ ), les capacités thermiques à pression constante des gaz frais et des gaz brûlés ( $c_{p_f}$ ,  $c_{p_b}$ ), la viscosité dynamique des gaz frais et des gaz brûlés ( $\mu_f$ ,  $\mu_b$ ), la conductivité thermique des gaz frais et des gaz brûlés ( $\lambda_f$ ,  $\lambda_b$ ), le nombre de Lewis des différents composants du mélange ( $L_e$ ) (cf. Figure 47 (c)). Tous ces calculs sont réalisés à pression et à enthalpie constantes. Le critère d'expansion est déterminé à partir des valeurs de la masse volumique. La diffusivité thermique est calculée, quant à elle, à partir des valeurs de la capacité thermique à pression constante, de la viscosité dynamique, et de la conductivité thermique. De même, il est possible de calculer le coefficient adiabatique, la vitesse du son, et le nombre de Mach.

Un exemple des calculs à l'équilibre faits avec COSILAB est donné sur la Figure 47. L'exemple choisi est la propagation d'une flamme 12,58% H<sub>2</sub> + 12,54% CO + 44,88% Air + 30% H<sub>2</sub>O, à P<sub>ini</sub> = 1 bar, et à T<sub>ini</sub> = 373,15 K dans ENACCEF-II.

(a) equilibrium at constant P and H

	Reactants	Equilibrium
P [atm]	9.8692E-01	9.8692E-01
T [K]	3.6315E+02	1.3572E+03
V [m3/kg]	8.9883E-01	3.1044E+00
R [kg/m3]	1.1126E+00	3.2212E-01
H [J/kg]	-5.4418E+06	-5.4418E+06
U [J/kg]	-5.5317E+06	-5.7523E+06
S [J/kg-K]	6.4412E+03	7.5501E+03
W [kg/mol]	3.3592E-02	3.6349E-02

(b) equilibrium at constant V and U

	Reactants	Equilibrium
P [atm]	9.8692E-01	3.9032E+00
T [K]	3.6315E+02	1.5541E+03
V [m3/kg]	8.9883E-01	8.9883E-01
R [kg/m3]	1.1126E+00	1.1126E+00
H [J/kg]	-5.4418E+06	-5.1762E+06
U [J/kg]	-5.5317E+06	-5.5317E+06
S [J/kg-K]	6.4412E+03	7.4183E+03
W [kg/mol]	3.3592E-02	3.6348E-02

(c) Mixture Thermodynamic and Transport Data

cp_mix [J/kg/K]	1.0122E+03	1.3297E+03
cp_mix [J/mol/K]	3.4001E+01	4.8334E+01
vis_mix [Pa*s]	1.9542E-05	5.0996E-05
cond_mix [W/m/K]	3.4129E-02	9.4717E-02
Lewis Numbers		
NH3	1.0464E+00	7.3395E-01
H2	2.7165E-01	2.3152E-01
O2	1.1153E+00	8.9643E-01
N2	1.0646E+00	8.4547E-01
H	1.8280E-01	1.3716E-01
O	7.0002E-01	5.6888E-01
H2O	1.0204E+00	6.7947E-01
OH	7.1479E-01	5.8127E-01
H2O2	1.1294E+00	9.1093E-01
HO2	1.1207E+00	9.0377E-01
CO	1.1072E+00	9.0450E-01
CO2	1.6050E+00	1.3186E+00
HOCO	1.6568E+00	1.1757E+00
CH4	1.0179E+00	8.0230E-01

Figure 47 – Calculs à l'équilibre permettant de déterminer les différents paramètres de la combustion pour la propagation d'une flamme 12,58% H<sub>2</sub> + 12,54% CO + 44,88% Air + 30% H<sub>2</sub>O, à P<sub>ini</sub> = 1 bar, et à T<sub>ini</sub> = 373,15 K. (a) : Calculs à pression constante permettant de déterminer T<sub>f</sub>. (b) : Calculs à volume constant permettant de déterminer P<sub>acc</sub>. (c) : Calculs à pression constante permettant de déterminer les autres paramètres de combustion.

Finalement, le dernier paramètre à calculer est le nombre de Lewis effectif du mélange. Pour ce faire, le nombre de Lewis des composants du mélange combustible doit être déterminé (cf. Figure 47 (c)). Addabbo et al. [275] ont caractérisé une méthode de détermination du nombre de Lewis effectif, en séparant les composants du mélange en deux catégories : espèce excédentaire, et espèce déficitaire. Ce nombre peut être calculé en utilisant la formule donnée dans l'équation (58).

$$L_{eff} = 1 + \frac{(L_{e_1} - 1) + [(L_{e_2} - 1) * A]}{1 + A} \quad (58)$$

Avec,  $L_{eff}$  le nombre de Lewis effectif du mélange combustible,  $L_{e_1}$  le nombre de Lewis de l'espèce en excès dans le mélange combustible,  $L_{e_2}$  le nombre de Lewis de l'espèce en déficit dans le mélange combustible, et  $A$  un coefficient qui dépend de la richesse du mélange combustible. Ce coefficient peut être déterminé par l'équation (59).

$$A = 1 + \beta(\Phi - 1) \quad (59)$$

Avec,  $A$  un coefficient dépendant de la richesse du mélange combustible,  $\beta$  le nombre de Zel'dovich,  $\Phi$  le rapport entre la masse des réactifs en excès et celle des réactifs en déficit dans le mélange frais par rapport à leur rapport à la stœchiométrie. Ce rapport dépend de la valeur du rapport d'équivalence : si celui-ci est supérieur ou égal à 1, alors ce rapport est égal au rapport d'équivalence ( $\Phi = \phi$ ), cependant, s'il est inférieur à 1, alors ce rapport est égal à l'inverse du rapport d'équivalence ( $\Phi = \frac{1}{\phi}$ ).

### 3.2. Calculs des paramètres des flammes de prémélange

Dans un deuxième temps, le logiciel de simulation de la combustion COSILAB [272] a été utilisé dans le but de déterminer les paramètres des flammes de prémélange, à savoir la vitesse de flamme laminaire, ainsi que l'énergie d'activation, et le nombre de Zel'dovich qui ont pour but de caractériser

le critère d'accélération de flamme. Contrairement à la partie précédente, la modélisation faite est une modélisation 1D. Pour ce faire, le module « One dimensional freely propagating flame » a été utilisé. Les mécanismes de fonctionnement de ce module ont la même architecture que le module « Equilibrium » présenté dans la partie précédente. De même, le mécanisme cinétique choisi pour la réalisation de ces calculs est le mécanisme déterminé par Polimi-Mech [203]. Les trois mêmes fichiers que ceux utilisés précédemment sont nécessaires pour la réalisation des calculs. La valeur de deux grandeurs indispensables à la caractérisation du critère d'accélération de flamme doit être déterminée. D'une part, l'énergie d'activation peut être obtenue à partir de l'équation (60) :

$$2 * \ln(S_l^0) = \ln(A) - \frac{E_a}{R * T_b} \quad (60)$$

Avec,  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en  $\text{m.s}^{-1}$ ),  $A$  une constante de calcul,  $E_a$  l'énergie d'activation (en  $\text{J.mol}^{-1}$ ),  $R = 8,314$  la constante universelle des gaz parfaits (en  $\text{J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ), et  $T_b$  la température des gaz brûlés (en K).

Ainsi, il est possible de voir que la vitesse de flamme laminaire varie en fonction de la température des gaz brûlés, de façon plus ou moins importante en fonction de la valeur de l'énergie d'activation. La détermination de l'énergie d'activation se fait donc par la variation linéaire de la vitesse de flamme laminaire obtenue à partir de la variation de la température des gaz brûlés. Pour ce faire, deux méthodes peuvent être employées : variation de la température initiale [276], ou variation de la teneur en diluant du mélange (ici l'azote) [277]. Dans le cadre de cette étude, la deuxième méthode (variation de la teneur en azote) a été retenue comme méthode de détermination des vitesses de flamme laminaires, ainsi que des énergies d'activation. Une étude comparative sur la meilleure méthode à employer lors de l'étude de flammes  $\text{H}_2/\text{Air}$  à des conditions thermodynamiques « standard » ( $T_{\text{ini}} = 296 \text{ K}$  et  $P_{\text{ini}} = 1 \text{ bar}$ ) a été menée par Grosseuvres [19]. Il a conclu sur l'intérêt de l'utilisation de la méthode de variation de la teneur en azote par rapport à la variation de la température initiale.

À partir de l'énergie d'activation calculée ci-dessus, il est possible de déterminer le nombre de Zel'dovich. Celui-ci est donné par l'équation (61) :

$$\beta = E_a * \frac{T_b - T_u}{R * T_b^2} \quad (61)$$

Avec,  $\beta$  le nombre de Zel'dovich,  $E_a$  l'énergie d'activation (en  $\text{J.mol}^{-1}$ ),  $R = 8,314$  la constante universelle des gaz parfaits (en  $\text{J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ),  $T_u$  la température des gaz frais (en K) et  $T_b$  la température des gaz brûlés (en K).

Les vitesses de flamme laminaires utilisées lors de ces différents calculs peuvent provenir de la modélisation numérique, comme c'est le cas dans cette étude, ou bien de valeurs expérimentales [19, 188]. Dans le cas de l'utilisation d'une modélisation numérique permettant de déterminer les vitesses de flamme laminaires, un ajustement des mailles de calcul (en utilisant « GRAD » et « CURV ») peut être fait. Dans les zones où les variables calculées varient de manière importante, alors la taille des mailles a été fixée à  $5.10^{-5}$ . Le domaine spatial de calcul a été fixé le plus large possible [-10 ; 10] cm dans le but d'assurer la convergence des résultats vers les solutions les convenables au cas d'étude.

## 4. Conclusions sur les dispositifs expérimentaux et la méthodologie

Ce deuxième chapitre présente les différents dispositifs expérimentaux utilisés lors des deux campagnes expérimentales, ainsi que la méthodologie de détermination des différents paramètres ont été détaillés. La première campagne expérimentale concernant l'étude des limites d'inflammabilité des mélanges  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  et  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}/\text{CO}_2$  a été faite dans la bombe sphérique BSI. L'analyse des données a été faite à partir d'un code de calcul fait au sein du laboratoire et de COSILAB. La deuxième campagne expérimentale concernant l'étude de la propagation de flamme dans un tube fermé encombré d'obstacles

pour des mélanges  $H_2/CO/Air$  et  $H_2/CO/Air/Diluant$  a été faite dans l'enceinte d'accélération de flamme ENACCEF-II. Cette enceinte a été conçue dans le but de reproduire la configuration, toute proportion gardée, d'un réacteur à eau pressurisée. L'analyse des données a été faite à l'aide du logiciel de simulation de la combustion : COSILAB.

## Chapitre 3

### Résultats expérimentaux sur les limites d'inflammabilité



Ce troisième chapitre détaille la campagne expérimentale concernant l'étude des limites d'inflammabilité des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air et H<sub>2</sub>/CO/Air/CO<sub>2</sub> menée dans la bombe sphérique BSI. Il s'articulera autour de 3 grands axes avant de conclure sur les différents résultats expérimentaux concernant les limites d'inflammabilité de ces mélanges. Dans un premier temps, le cas général du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air sera étudié. Cette partie de l'étude traite de l'influence de plusieurs paramètres initiaux (appauvrissement en oxygène de l'atmosphère, pression initiale, température initiale) sur les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, de ces mélanges. Dans un deuxième temps, le cas particulier du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air/CO<sub>2</sub> sera détaillé. Lors de cette partie de l'étude, la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> sur un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique a été déterminée expérimentalement. Dans un troisième temps, la mise en place de corrélations pour la détermination des limites d'inflammabilité a été explicitée. Pour ce faire, les corrélations pour les limites d'inflammabilité inférieures et supérieures en fonction de la pression initiale seront tout d'abord détaillées, suivies par la corrélation pour la limite d'inflammabilité inférieure en fonction de la température initiale. Finalement, les conclusions concernant les résultats expérimentaux sur les limites d'inflammabilité, et sur les corrélations établies seront tirées.

## 1. Cas du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air

La première partie de cette campagne expérimentale porte sur la détermination des limites d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. L'influence de plusieurs paramètres initiaux (appauvrissement en oxygène de l'atmosphère, pression initiale, température initiale) sur ces limites d'inflammabilité a été étudiée. Pour ce faire, le dispositif expérimental utilisé est la bombe sphérique BSI (cf. Chapitre 2 – partie 1.2). Cette partie de l'étude a été divisée en plusieurs sous-parties. Dans un premier temps, le domaine d'étude de la campagne expérimentale sera déterminé. Puis, la détermination des limites d'inflammabilité inférieures, suivie par la détermination des limites d'inflammabilité supérieures, seront explicitées. Ceci a pour but d'établir les domaines d'inflammabilité correspondant à chaque condition initiale étudiée. Une discussion des résultats sera proposée pour toutes les parties.

### 1.1. Détermination du domaine d'étude

Les conditions expérimentales ont été définies lors du Chapitre 2 – partie 1.3. Pour rappel, une étude sur le mélange H<sub>2</sub>/Air a été effectuée dans le but de faire un choix sur les différents paramètres expérimentaux à utiliser au cours de la campagne expérimentale (géométrie des électrodes, distance inter-électrodes, et source d'énergie à choisir). Concernant le choix de la source d'énergie, une vérification a été réalisée avec le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, en menant une étude similaire à celle de la campagne expérimentale préliminaire (cf. Chapitre 2 – partie 1.3.1.2). Pour ce nouveau mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, deux sources d'énergie ont été comparées : SI3 et Technix. L'énergie délivrée par ces deux sources d'énergie, et pour les conditions initiales expérimentales choisies, a été calculée (cf. Tableau 5) :  $1,6 \pm 0,89$  mJ pour la SI3, et  $264,9 \pm 38$  mJ pour la Technix.

Le domaine d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air a donc été déterminé à partir des 332 essais réalisés, pour chacune des sources d'énergie dans le but de les comparer. Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Forme géométrique des électrodes : *Pointe – Pointe*
- Distance inter-électrodes : *3 mm*
- Pression initiale :  $1,013 \pm 0,005$  bar
- Température initiale :  $296 \pm 1,28$  K
- Air normal  $\left(\frac{O_2}{N_2} = 0,264\right)$

Les domaines d'inflammabilité (composés par la LII, cf. Figure 48 (a), et la LIS, cf. Figure 48 (b)) obtenus pour les deux sources d'énergie sont présentés sur la Figure 48.

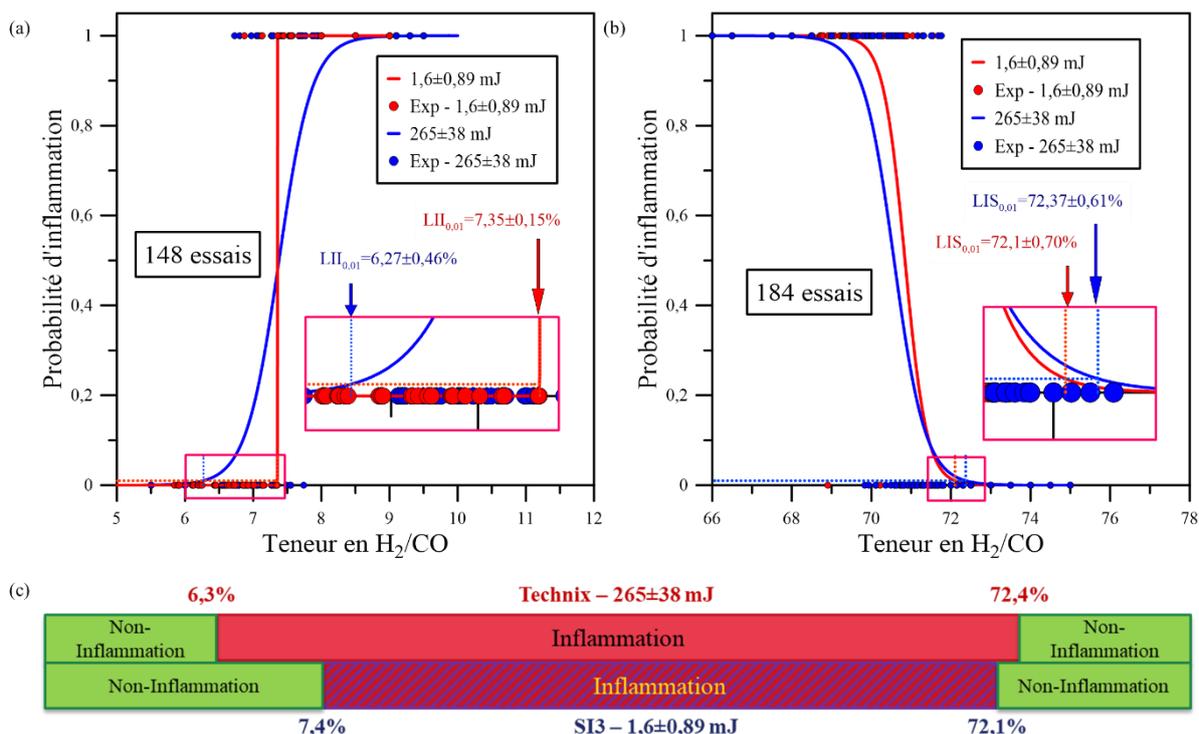


Figure 48 – Comparaison des domaines d’inflammabilité du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air déterminés pour les deux sources d’énergie pour  $P_{ini} = 1,013 \pm 0,005$  bar ; et  $T_{ini} = 296 \pm 1,28$  K. (a) : Limites d’inflammabilité inférieures. (b) : Limites d’inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d’inflammabilité complets.

Les graphiques présentent l’évolution des probabilités d’inflammation du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, ainsi que les valeurs de la LII et de la LIS, en fonction de la teneur en H<sub>2</sub>/CO, obtenues pour les deux sources d’énergie étudiées. L’augmentation de l’énergie fournie par la source d’énergie pour générer l’étincelle, entraîne la diminution de la LII, et l’augmentation de la LIS. Cependant, contrairement aux résultats trouvés lors de l’étude préliminaire, cette influence semble être plus importante du côté de la LII que du côté de la LIS. En effet, l’écart absolu entre les deux valeurs de LII trouvées est de 1,08%, alors qu’il n’est que de 0,27% pour la LIS. Ce résultat laisse penser que le domaine d’inflammabilité s’élargit avec l’augmentation de l’énergie d’inflammation. Cependant, à partir d’une certaine valeur d’énergie d’étincelle, la limite d’inflammabilité atteint une valeur seuil. Pour la source d’énergie délivrant 265 ± 38 mJ, le domaine d’inflammabilité est 1,4% plus étendu que pour la source d’énergie délivrant 1,6 ± 0,89 mJ. Ces résultats sont en accord avec les résultats obtenus lors de l’étude préliminaire (cf. Chapitre 2 – partie 1.3.1.2). Il est donc possible de conclure, pour les mêmes raisons que lors de cette étude préliminaire, que le choix de la source d’énergie doit donc être fait de sorte qu’elle délivre la plus grande énergie. L’énergie déposée entre les électrodes est maximale pour la source d’énergie Technix (265 ± 38 mJ). Ainsi, la source d’énergie choisie pour la réalisation de la campagne expérimentale est la Technix. Elle délivre une énergie moyenne de 265 ± 38 mJ. Une répartition de l’énergie d’inflammation déposée dans la bombe sphérique pour chaque essai permettant de déterminer l’énergie moyenne est donnée sur la Figure 29 du Chapitre 2 – partie 1.3.1.2.

## 1.2. Détermination des domaines d’inflammabilité

La première partie de la campagne expérimentale consiste à déterminer des limites d’inflammabilité, inférieures et supérieures, du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air pour plusieurs conditions initiales différentes. Ceci est fait dans le but de déterminer les domaines d’inflammabilité qui correspondent à ces conditions initiales. Dans un premier temps, le domaine d’inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air pour des conditions thermodynamiques « standards » ( $P_{ini} = 1$  bar et  $T_{ini} = 298$  K) a été déterminé. Puis, l’influence des conditions initiales a été étudiée : pression initiale, température initiale, appauvrissement

de l'atmosphère en oxygène. Finalement, une discussion sur les différents résultats obtenus sera proposée pour conclure.

### 1.2.1. Conditions thermodynamiques « standards » : $P_{ini} = 1 \text{ bar}$ et $T_{ini} = 298 \text{ K}$

La première étape consiste à définir le domaine d'inflammabilité du mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  pour des conditions thermodynamiques « standards » :  $P_{ini} = 1 \text{ bar}$  et  $T_{ini} = 298 \text{ K}$ . Les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, ont été déterminées en appliquant le critère visuel (cf. Chapitre 2 – partie 1.3.1.1.3). Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Forme géométrique des électrodes : *Pointe – Pointe*
- Distance inter-électrodes :  $3 \text{ mm}$
- Énergie d'inflammation :  $265 \pm 38 \text{ mJ}$
- Pression initiale :  $1,013 \pm 0,005 \text{ bar}$
- Température initiale :  $296 \pm 1,28 \text{ K}$
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Le domaine d'inflammabilité (composé par la LII, cf. Figure 49 (a), et la LIS, cf. Figure 49 (b)) obtenu pour le mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  est présenté sur la Figure 49.

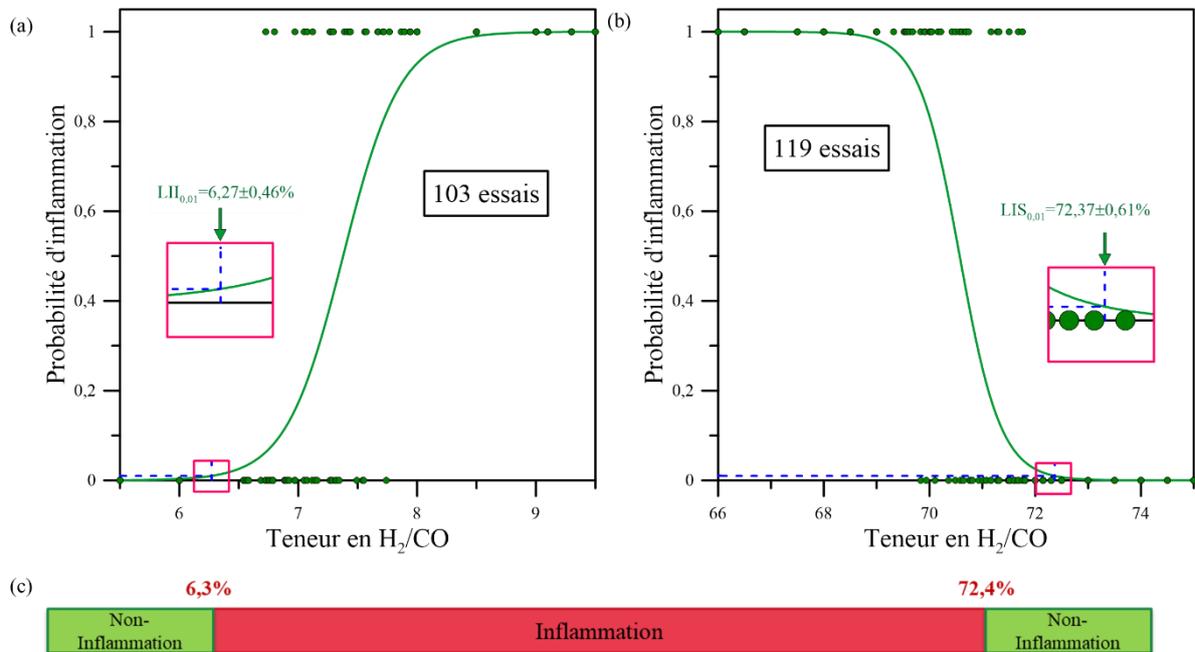


Figure 49 – Domaine d'inflammabilité du mélange  $\{50\% \text{H}_2 + 50\% \text{CO}\}/\text{Air}$  déterminé à partir du critère visuel pour  $P_{ini} = 1,013 \pm 0,005 \text{ bar}$  ;  $T_{ini} = 296 \pm 1,28 \text{ K}$  ; et  $E_{inflammation} = 265 \pm 38 \text{ mJ}$ . (a) : Limite d'inflammabilité inférieure. (b) : Limite d'inflammabilité supérieure. (c) : Domaine d'inflammabilité complet.

Les valeurs des limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, sont déterminées par le critère visuel, et sont égales à :  $6,27 \pm 0,46\%$  pour la LII et  $72,37 \pm 0,61\%$  pour la LIS. Ce domaine d'inflammabilité pour le mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  obtenu pour des conditions thermodynamiques « standards » va donc être utilisé comme point de comparaison pour tous les autres domaines d'inflammabilité qui ont été déterminés par la suite. Ces valeurs peuvent être comparées avec les valeurs trouvées dans la littérature, et avec les valeurs déterminées à partir d'un calcul théorique.

La littérature présente des valeurs de LII et de LIS déterminées, d'une part, à partir du critère visuel, et d'autre part, en considérant les critères de pression. Cette étude comparative a donc pour but de prendre en compte cette distinction. Ainsi, il est important de comparer les valeurs déterminées à

partir du critère visuel avec les valeurs déterminées à partir des deux critères de pression : à 5% et à 7%. Cette comparaison est présentée sur la Figure 50 (a). Pour cela trois flammes correspondant à trois teneurs en  $H_2/CO$  différentes ont été étudiées. La Figure 50 (b) montre trois séries de trois images permettant de suivre la propagation de la flamme dans l'enceinte pour les trois mélanges étudiés. Une même propagation de flamme donne lieu à trois probabilités d'inflammation différentes en fonction du critère étudié (cf. séries d'étoiles sur la Figure 50 (a)). La comparaison a été faite pour la LII puisque dans le cas de la LIS, la combustion étant complète, il n'y a pas de différence entre les différents critères de détermination de la limite d'inflammabilité.

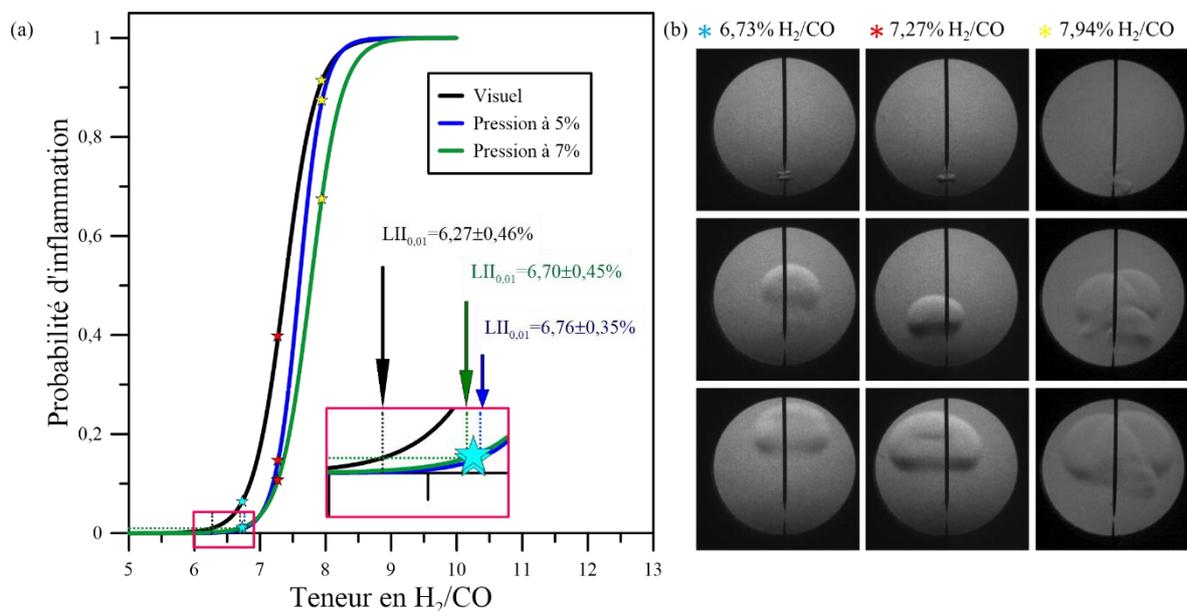


Figure 50 – Critère de détermination du domaine d'inflammabilité et imagerie rapide pour  $P_{ini} = 1,013 \pm 0,005$  bar ;  $T_{ini} = 296 \pm 1,28$  K ; et  $E_{inflammation} = 265 \pm 38$  mJ. (a) : Comparaison du critère visuel avec les critères de pression à 5% et à 7% pour la détermination de la LII. (b) : Images correspondant à la propagation d'une flamme ( $50\%H_2+50\%CO$ )/Air pour trois compositions différentes, et donc à trois probabilités d'inflammation différentes.

À partir de la comparaison présente sur la Figure 50 (a) il est possible de voir que la valeur de la LII déterminée à partir du critère visuel est plus basse que les valeurs déterminées à partir des critères de pression à 5% et à 7%. En effet, il est possible d'observer d'une part un écart de 0,43% entre la valeur obtenue par le critère visuel et la valeur obtenue par le critère de pression à 5%, et d'autre part, l'écart est de 0,49% entre la valeur obtenue par le critère visuel et la valeur obtenue par le critère de pression à 7%. De plus, la valeur déterminée à partir du critère de pression à 5% est très légèrement inférieure à celle déterminée à partir du critère de pression à 7%. L'écart absolu entre ces deux valeurs est de 0,06%. Néanmoins, tous ces écarts sont négligeables, compte tenu des écarts-types respectifs.

Le mélange contenant  $6,73 \pm 0,15\%$  de  $H_2/CO$ , correspond à une probabilité d'inflammation de 6,4% pour le critère visuel, et de 0,85% et 1,17% pour les critères de pression à 5% et à 7% respectivement. Le mélange contenant  $7,27 \pm 0,15\%$  de  $H_2/CO$ , correspond à une probabilité d'inflammation de 39,8% pour le critère visuel, et de 14,7% et de 10,7% pour les critères de pression à 5% et à 7% respectivement. Finalement, le mélange contenant  $7,94 \pm 0,15\%$  de  $H_2/CO$ , correspond à une probabilité d'inflammation de 91,4% pour le critère visuel, et de 87,4% et de 67,5% pour les critères de pression à 5% et à 7% respectivement.

La deuxième partie de l'analyse correspond aux images obtenues à la suite des différents essais. Sur la Figure 50 (b), trois séries d'images sont présentées. Celles-ci correspondent à trois compositions différentes du mélange initial, donnant lieu à trois probabilités d'inflammation différentes. Une augmentation de la teneur en  $H_2/CO$  entraîne une augmentation du volume du noyau de la flamme. Les deux premières séries d'images montrent une flamme ascendante en forme de « champignon ». Cette

propagation ascendante est due aux effets de flottabilité. L'augmentation du volume du noyau de la flamme est due à l'augmentation du taux de combustion. De plus, pour la teneur la plus élevée en H<sub>2</sub>/CO, correspondant à une probabilité d'inflammation de plus de 90%, le noyau de la flamme est beaucoup plus plissé. Finalement, il est possible de comparer les pressions maximales obtenues à l'intérieur de l'enceinte, ainsi que le délai pour lequel la pression maximale est atteinte. Cette comparaison peut être faite à partir des valeurs données dans le Tableau 9.

H <sub>2</sub> /CO (%mol)	6,73±0,15%	7,27±0,15%	7,94±0,15%
$P_{max}$ (bar)	1,049	1,055	1,086
$t_{P_{max}}$ (s)	0,81	0,78	0,66

Tableau 9 – Comparaison des pressions maximales et des temps nécessaires pour les atteindre pour les trois compositions du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO} étudiées.

Tout d'abord, plus la teneur en H<sub>2</sub>/CO dans le mélange initial est élevée, plus la pression maximale de combustion atteinte dans l'enceinte est élevée. Ceci se traduit par le volume d'oxygène consommé qui est plus important lorsque la teneur en combustible est plus élevée. Le taux de combustion est donc plus élevé, ce qui induit une augmentation de la pression maximale. De plus, le temps nécessaire pour atteindre la pression initiale dans l'enceinte est réduit avec l'augmentation de cette teneur en H<sub>2</sub>/CO. Ceci est dû au fait que plus la teneur en combustible est élevée, plus il y a de molécules pour interagir avec l'oxygène et débiter la réaction de combustion. La consommation des gaz frais est donc accélérée, et par conséquent la pression maximale est plus rapidement atteinte.

Il est possible de faire le lien entre le comportement de l'évolution temporelle de la pression de combustion et le comportement des limites d'inflammabilité, supérieures dans ce cas, pour trois compositions initiales différentes proches de la LIS. La Figure 51 compare trois pressions de combustion en fonction du temps pour trois teneurs en H<sub>2</sub>/CO.

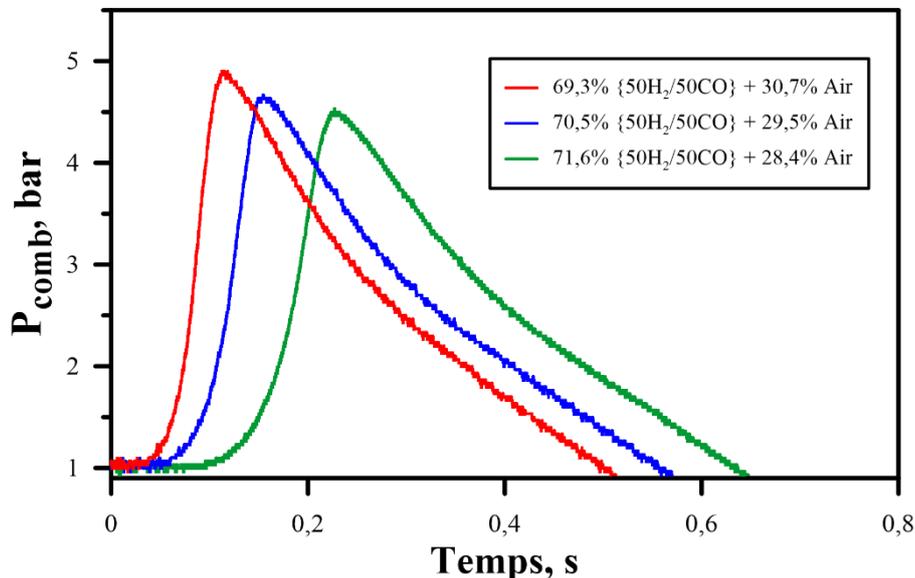


Figure 51 – Comparaison des pressions de combustion en fonction du temps pour trois teneurs en H<sub>2</sub>/CO pour  $P_{ini} = 1,013 \pm 0,005$  bar ;  $T_{ini} = 296 \pm 1,28$  K ; et  $E_{inflammation} = 265 \pm 38$  mJ.

Tout comme pour la LII (cf. Tableau 9), la pression maximale atteinte dans l'enceinte augmente lorsque la teneur en combustible s'éloigne de la valeur de la LIS (dans ce cas lorsque la teneur en H<sub>2</sub>/CO diminue). De même, le temps nécessaire pour atteindre cette pression maximale est réduit à son tour lorsque la teneur en H<sub>2</sub>/CO diminue. En effet, l'augmentation de la pression dans l'enceinte est plus rapide (pente) lorsque la teneur en H<sub>2</sub>/CO est plus basse.

La Figure 52 présente la comparaison entre la  $P_{AICC}$  et la  $P_{max}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  dans le mélange pour la LII (cf. Figure 52 (a)) et pour la LIS (cf. Figure 52 (c)). Elle présente aussi la tendance du temps requis pour atteindre la pression maximale à l'intérieur de l'enceinte en fonction de la teneur en  $H_2/CO$ , pour la LII (cf. Figure 52 (b)) et pour la LIS (cf. Figure 52 (d)).

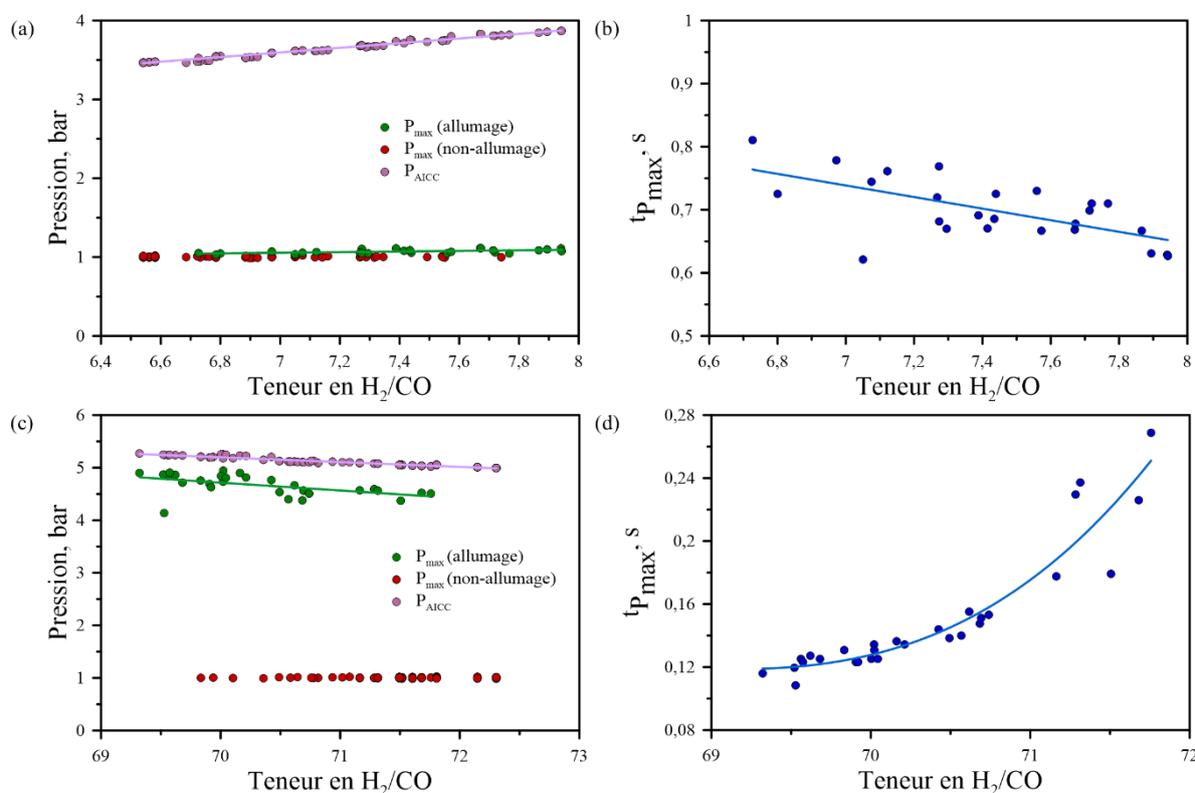


Figure 52 – Comparaison entre la  $P_{AICC}$  et la  $P_{max}$ , et détermination du temps nécessaire à l'obtention de la pression maximale à l'intérieur de l'enceinte en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour le mélange  $\{50\%H_2+50\%CO\}$ . (a) : Comparaison entre la  $P_{AICC}$  et la  $P_{max}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LII. (b) : Détermination de  $t_{p_{max}}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LII. (c) : Comparaison entre la  $P_{AICC}$  et la  $P_{max}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LIS. (d) : Détermination de  $t_{p_{max}}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LIS.

Concernant la comparaison entre la  $P_{AICC}$  et la pression maximale atteinte dans l'enceinte, deux observations distinctes peuvent en découler. La première montre qu'il y a une différence non négligeable entre la pression maximale, et la  $P_{AICC}$  pour la LII. En effet, cette dernière est 3 fois plus importante que la pression maximale. De plus, les deux pressions ont tendance à augmenter, même si l'augmentation de la  $P_{AICC}$  est un peu plus rapide que celle de la  $P_{max}$ , lorsque la teneur en  $H_2/CO$  est plus élevée. Cette observation a déjà été faite par Marshall [278], et par Cheikhavat [16] pour un mélange  $H_2/Air$ . La deuxième montre que pour la LIS, lorsqu'il y a inflammation du mélange combustible, la pression maximale est très proche de la  $P_{AICC}$ . En conclusion, la tendance de ces deux pressions décroît lorsque la teneur en  $H_2/CO$  est modifiée pour se rapprocher du domaine des mélanges non inflammables.

Concernant le temps requis pour atteindre la pression maximale au sein de l'enceinte expérimentale, deux tendances similaires sont présentes en fonction de la limite regardée. En effet, ce temps est réduit lorsque la teneur en  $H_2/CO$  est modifiée de manière à se rapprocher du domaine des mélanges inflammables. Ceci peut être expliqué à partir du comportement de la température de flamme, de la vitesse de propagation de la flamme, et des pertes radiatives. En effet, la quantification des pertes radiatives est proportionnelle à la température de flamme à la puissance 4 ( $\Delta Q \sim T_f^4$ ). Or, la température de flamme augmente dans un premier temps avec l'augmentation de la teneur en combustible jusqu'à atteindre un maximum, pour diminuer par la suite. La vitesse de propagation du front de flamme suit les mêmes variations en fonction de la teneur en combustible que la température de flamme. Les pertes radiatives sont donc maximales au niveau du maximum de ces deux courbes. Ainsi, les teneurs en  $H_2/CO$

correspondantes aux valeurs proches des limites d'inflammabilité se trouvent proches des extrêmes des deux courbes. Dans les deux cas, la vitesse de propagation du front de flamme augmente lorsque la teneur en H<sub>2</sub>/CO est modifiée de sorte à se rapprocher du domaine des mélanges inflammables. De plus, au niveau des extrêmes, la quantité d'énergie libérée par la combustion est minimale, ce qui fait que le rapport entre les pertes radiatives et cette quantité d'énergie est élevé. Donc, pour des teneurs en H<sub>2</sub>/CO proches des limites d'inflammabilité, la propagation de la flamme est régie par les pertes radiatives. La tendance du temps requis pour atteindre la pression maximale à l'intérieur de l'enceinte s'explique donc par la variation de la vitesse de propagation du front de flamme au niveau des deux limites, et à la prédominance des pertes radiatives à ces teneurs en H<sub>2</sub>/CO.

Désormais, il est possible de comparer les valeurs déterminées expérimentalement avec les valeurs trouvées dans la littérature. La première comparaison est liée aux valeurs déterminées à partir du calcul théorique des limites d'inflammabilité pour des conditions initiales énoncées comme ci-dessus. Ce calcul se fait en appliquant les lois de Le Chatelier. Mathématiquement, les lois de Le Chatelier se traduisent par les formules données dans l'équation (62). Pour un mélange composé par *i* composants, les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, sont données par les formules suivantes :

$$LII = \frac{100}{\sum_i \frac{x_i}{LII_i}} \text{ et } LIS = \frac{100}{\sum_i \frac{x_i}{LIS_i}} \quad (62)$$

Avec, *LII* et *LIS* les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange composé par *i* espèces, *LII<sub>i</sub>* et *LIS<sub>i</sub>* les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, de la *i*<sup>ème</sup> espèce, et *x<sub>i</sub>* la teneur en la *i*<sup>ème</sup> espèce dans le mélange combustible.

Ainsi, il est possible de déterminer les limites d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO, en prenant comme valeurs des limites d'inflammabilité de H<sub>2</sub> et de CO, les valeurs données par Coward et Jones [126]. Celles-ci sont données par les valeurs suivantes :

$$LII_{H_2} = 4\% ; LIS_{H_2} = 75\% ; LII_{CO} = 12,5\% ; LIS_{CO} = 74,2\% ; \text{ et } H_2/CO = 50/50$$

Ainsi, les valeurs des limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange H<sub>2</sub>/CO dans l'air pour des conditions thermodynamiques « standards » sont respectivement :

- Limite d'inflammabilité inférieure :

$$LII_{H_2/CO} = \frac{100}{\frac{x_{H_2}}{LII_{H_2}} + \frac{x_{CO}}{LII_{CO}}} = \frac{100}{\frac{50}{4} + \frac{50}{12,5}} = 6,06\% \quad (63)$$

- Limite d'inflammabilité supérieure :

$$LIS_{H_2/CO} = \frac{100}{\frac{x_{H_2}}{LIS_{H_2}} + \frac{x_{CO}}{LIS_{CO}}} = \frac{100}{\frac{50}{75} + \frac{50}{74,2}} = 74,57\% \quad (64)$$

En combinant les valeurs des limites d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/Air déterminées lors de l'étude préliminaire (*LII<sub>H<sub>2</sub></sub>* = 4,42 ± 0,20% ; *LIS<sub>H<sub>2</sub></sub>* = 72,19 ± 0,85%, cf. Chapitre 2 – partie 1.3.1), et des valeurs déterminées par Coward and Jones [126] pour le mélange CO/Air, il est possible de déterminer les valeurs de la *LII* et de la *LIS* à partir des lois de Le Chatelier. Il en résulte : *LII<sub>H<sub>2</sub>/CO</sub>* = 6,53% et *LIS<sub>H<sub>2</sub>/CO</sub>* = 73,18%. Ceci montre que le domaine d'inflammabilité est alors plus restreint que celui déterminé en prenant uniquement les valeurs de Coward and Jones [126]. Ceci est dû au fait que le domaine d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/Air déterminé dans cette étude est moins étendu que celui déterminé par Coward and Jones [126]. Ce résultat laisse penser qu'en utilisant la méthode expérimentale de cette étude pour déterminer les limites d'inflammabilité du mélange CO/Air, les

limites d'inflammabilité déterminées à partir des lois de Le Chatelier devraient se rapprocher de celles déterminées avec uniquement les valeurs de Coward and Jones [126].

La valeur de la limite d'inflammabilité inférieure déterminée expérimentalement est plus élevée que celle calculée à partir des lois de Le Chatelier. L'écart absolu entre ces deux valeurs est de 0,21%. Cependant, cet écart est négligeable, surtout en tenant compte du fait que la valeur calculée à partir des lois de Le Chatelier se trouve dans l'intervalle de confiance à 95% de la valeur déterminée expérimentalement. Ce résultat permet d'avancer que la valeur trouvée expérimentalement lors de cette étude est bien reproduite par les lois de Le Chatelier. De plus, la valeur de la limite d'inflammabilité supérieure déterminée expérimentalement est moins élevée que cette même valeur calculée à partir des lois de Le Chatelier. L'écart absolu entre ces deux valeurs est de 2,2%. Cet écart n'est pas négligeable, et la valeur calculée ne se trouve pas dans l'intervalle de confiance à 95% de la valeur déterminée expérimentalement. Les lois de Le Chatelier ne reproduisent donc pas correctement la limite d'inflammabilité supérieure. Finalement, en comparant les différentes valeurs, il est possible de se rendre compte que le domaine d'inflammabilité déterminé en utilisant les lois de Le Chatelier est 2,41% plus étendu que le domaine déterminé expérimentalement lors de cette étude.

La deuxième comparaison confronte les résultats expérimentaux avec les valeurs trouvées dans la littérature. Toutes les valeurs des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, pour des conditions thermodynamiques « standards », trouvées dans la littérature, ainsi que les valeurs déterminées dans cette étude expérimentale, sont récapitulées dans le Tableau 10.

<b>P<sub>ini</sub> (bar)</b>	<b>T<sub>ini</sub> (K)</b>	<b>LII (%mol)</b>	<b>LIS (%mol)</b>	<b>Critère</b>	<b>Référence</b>
1	298	6,05	71,8	Visuel	Coward and Jones [126]
1	291	5,62	73,6	Visuel	Wierzba et Kilchyk [123]
1	300	6,07	70,3	Visuel	Coudoro [17]
1	300	6,45	/	Pression 5%	Shang et al. [279]
1	298	7,3	67,8	Pression 5%	Li et al. [280]
1	298	6,40	/	Température	Karim et al. [130]
1	296 ± 1,43	6,27 ± 0,46	72,37 ± 0,61	Visuel	Ce travail
1	296 ± 1,43	6,76 ± 0,35	72,37 ± 0,61	Pression 5%	Ce travail

Tableau 10 – Comparaison des valeurs déterminées expérimentalement au cours de ce travail avec les valeurs trouvées dans la littérature.

La Figure 53 présente la comparaison, pour les limites d'inflammabilité inférieures (partie basse de la figure) et pour les limites d'inflammabilité supérieures (partie haute de la figure), entre les valeurs déterminées expérimentalement dans cette étude, et les valeurs trouvées dans la littérature. Dans le cas des limites d'inflammabilité déterminées lors de cette étude, l'intervalle de confiance à 95% a été également tracé dans le but de savoir où se placent les valeurs trouvées dans la littérature par rapport à cet intervalle.

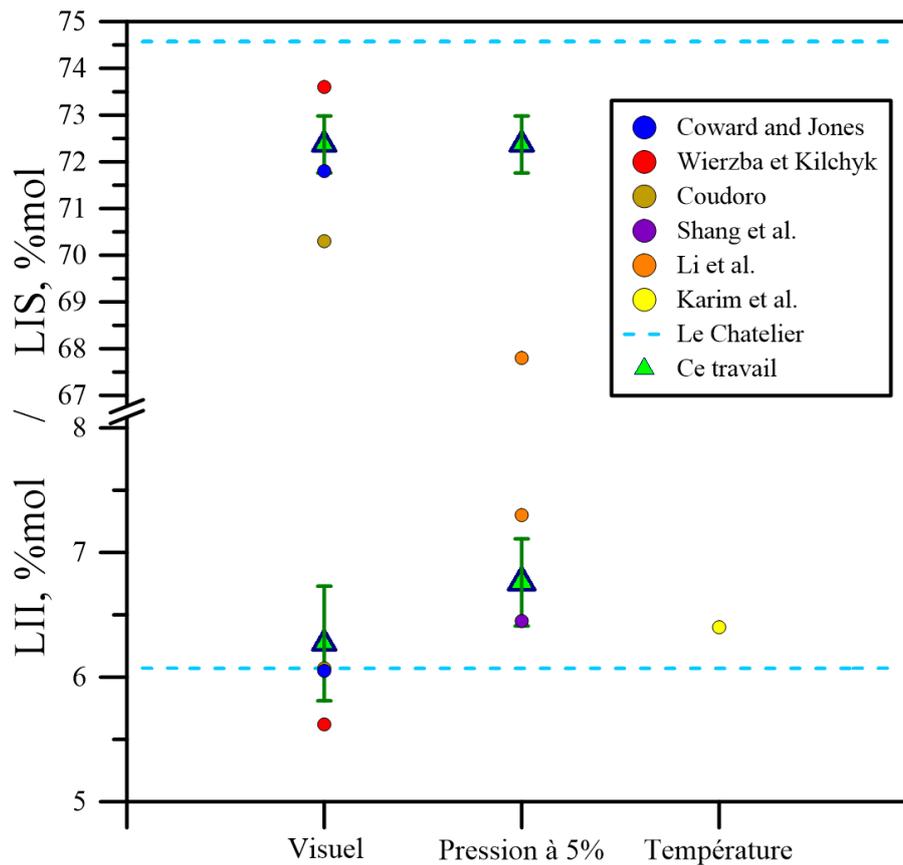


Figure 53 – Comparaison des valeurs des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, trouvées dans la littérature avec les valeurs déterminées expérimentalement au cours de cette étude.

Concernant la LII, toutes les valeurs déterminées à partir du critère visuel sont relativement proches. En effet, toutes les valeurs, à l'exception de celle déterminée par Wierzba et al. [123], se trouvent dans l'intervalle de confiance à 95% de la valeur déterminée expérimentalement au cours de cette étude. Pour les valeurs déterminées à partir du critère de pression à 5%, l'écart entre les trois valeurs est faible. Elles se trouvent aussi dans l'intervalle de confiance à 95% de la valeur déterminée expérimentalement, ou assez proches. Finalement, la valeur déterminée à partir du critère sur la température se trouve dans l'intervalle de confiance à 95% des valeurs déterminées expérimentalement, que ce soit pour le critère visuel ou pour le critère de pression à 5%. D'une autre part, les valeurs des limites d'inflammabilité supérieures sont plus dispersées. Il n'y a que la valeur déterminée par Coward and Jones [126] qui se trouve dans l'intervalle de confiance à 95% de la valeur expérimentale. Cependant, il y a une valeur qui se trouve vraiment éloignée de toutes les autres valeurs : la LIS déterminée par Li et al. [280]. En effet, cette valeur est 4,57% plus basse que la valeur déterminée expérimentalement.

### 1.2.2. Pressions initiales supérieures à 1 bar

La deuxième étape consiste à définir des domaines d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air pour des pressions initiales supérieures à la pression atmosphérique. Deux pressions initiales ont été étudiées, en plus de la pression initiale P<sub>ini</sub> = 1 bar : P<sub>ini</sub> = 2 bars et P<sub>ini</sub> = 3,5 bars. Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Forme géométrique des électrodes : *Pointe – Pointe*
- Distance inter-électrodes : 3 mm
- Énergie d'inflammation : 265 ± 38 mJ
- Température initiale : 294,9 ± 0,61 K

- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Les domaines d'inflammabilité (composés par la LII, cf. Figure 54 (a), et la LIS, cf. Figure 54 (b)) obtenus pour le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air et pour les trois pressions initiales étudiées (1 ; 2 ; 3,5 bars) sont présentés sur la Figure 54.

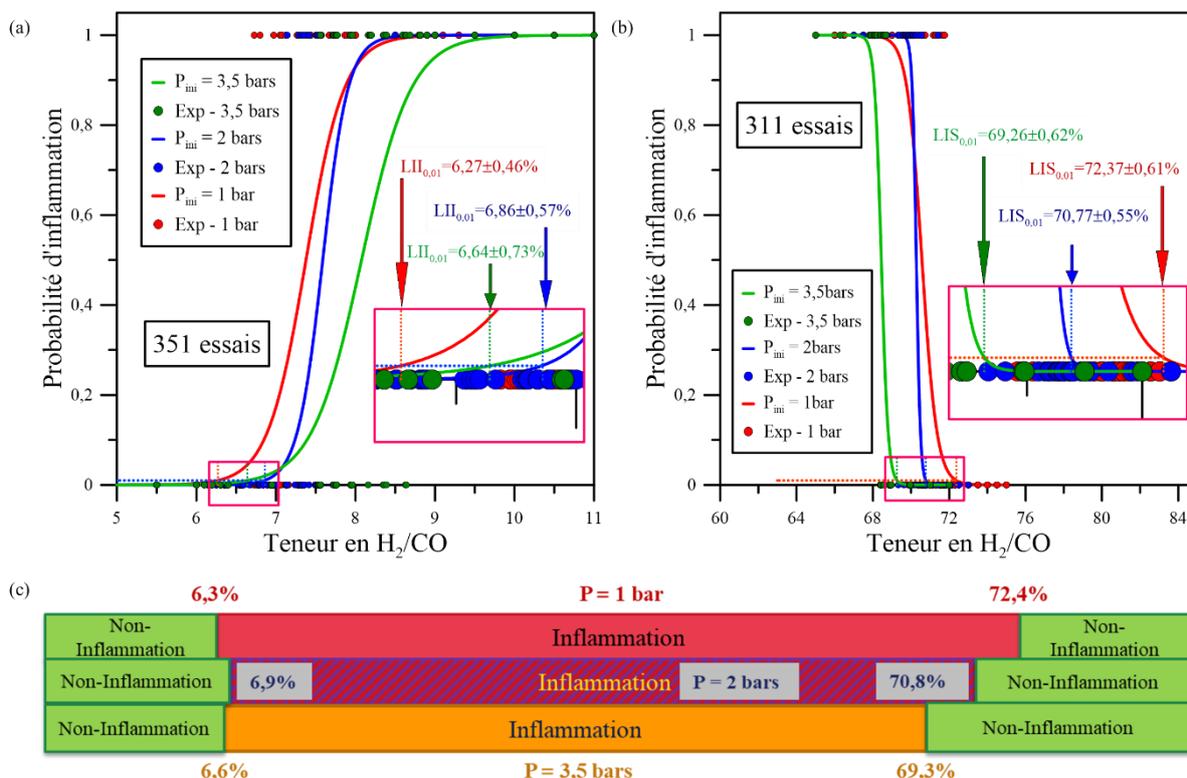


Figure 54 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air déterminés pour les trois pressions initiales étudiées (1 ; 2 ; 3,5 bars) pour T<sub>ini</sub> = 294,9 ± 0,61 K, et E<sub>inflammation</sub> = 265 ± 38 mJ. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d'inflammabilité complets.

Tout d'abord, l'augmentation de la pression initiale entraîne une très légère augmentation de la LII. En effet, la valeur de la LII déterminée pour une pression initiale de 1 bar est bien moins élevée que les valeurs des LII déterminées pour des pressions initiales de 2 et de 3,5 bars. Pourtant, cette même valeur pour une pression initiale de 2 bars est légèrement supérieure à la valeur pour une pression initiale de 3,5 bars. Une augmentation de la pression initiale de 1 bar à 2 bars produit une augmentation de la LII de 0,59%, et une diminution de 0,22% lorsque la pression initiale augmente de 2 bars à 3,5 bars. Ces deux écarts sont négligeables, et il est possible d'affirmer que la pression initiale n'a que très peu d'influence sur la limite d'inflammabilité inférieure. Concernant la LIS, l'augmentation de la pression initiale entraîne une diminution de la valeur de celle-ci. L'écart absolu entre la valeur à 1 bar et celle à 2 bars est de 1,6%. Ainsi, ce même écart entre la valeur à 2 bars et la valeur à 3,5 bars est de 1,51%. Aucun des deux écarts ne peut être négligé. La pression initiale a donc une plus forte influence sur la limite d'inflammabilité supérieure. Par conséquent, le domaine d'inflammabilité rétrécit avec l'augmentation de la pression initiale comme le montre la Figure 54 (c). Pour une pression initiale de 1 bar, le domaine d'inflammabilité est 2,19% plus étendu que pour une pression initiale de 2 bars. De même, pour une pression initiale de 2 bars, le domaine d'inflammabilité est 1,29% plus étendu que pour une pression initiale de 3,5 bars.

Une comparaison visuelle de la propagation du front de flamme dans l'enceinte pour les trois pressions initiales étudiées est présentée sur la Figure 55.

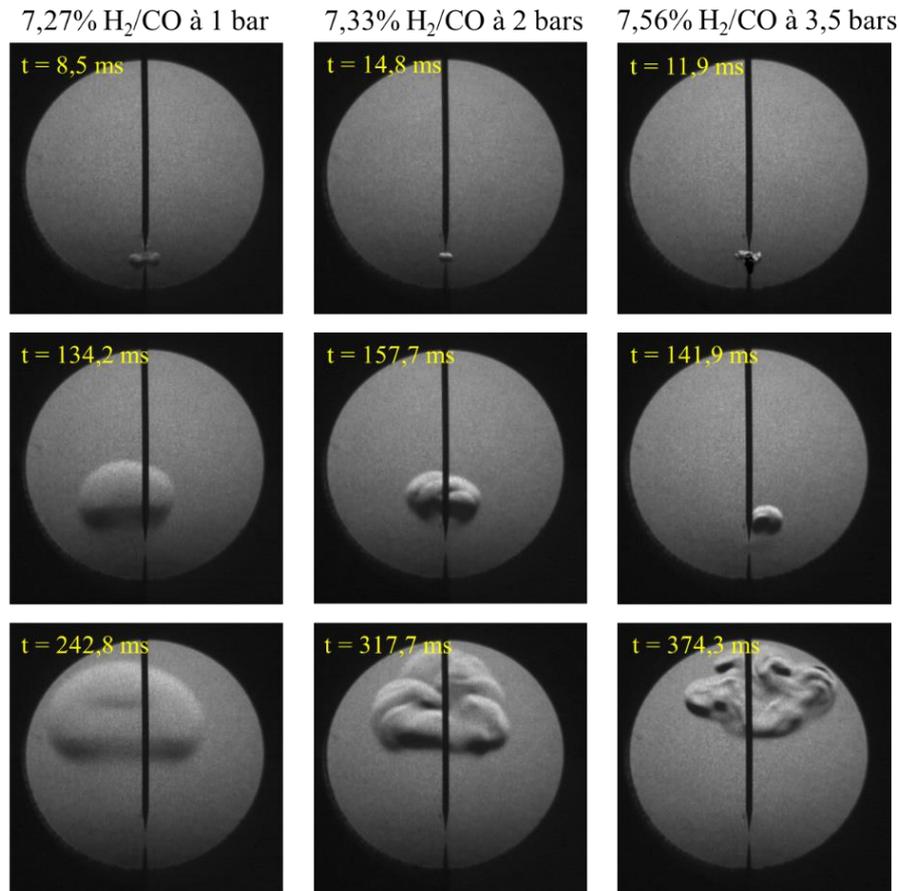


Figure 55 – Comparaison visuelle de la propagation du front de flamme du mélange {50% $H_2$ +50% $CO$ } dans l'enceinte pour trois pressions initiales : 1 ; 2 et 3,5 bars pour  $T_{ini} = 294,9 \pm 0,61$  K, et  $E_{inflammation} = 265 \pm 38$  mJ.

Dans le but de faire une comparaison de la propagation du front de flamme, trois flammes ayant une composition initiale comparable et pour les trois pressions initiales étudiées ont été sélectionnées. Tout d'abord, la première remarque qu'il est possible de faire à partir de la figure ci-dessus est que plus la pression initiale est élevée, plus le noyau de la flamme est aplati et déformé. En effet, pour une pression initiale de 1 bar, le front de flamme a une forme de « champignon », et aucun pli n'est visible sur la flamme. Pour une pression initiale de 2 bars, le front de flamme conserve cette forme de « champignon », mais beaucoup plus déformé et également plus plissé. Finalement, pour une pression initiale de 3,5 bars, le front de flamme n'a plus du tout la même forme, il est beaucoup plus aplati et complètement plissé. En effet, Li et al. [281] ont montré que lorsque la pression initiale augmente, la longueur caractéristique de la structure cellulaire diminue de manière significative et le niveau de plissement de la flamme augmente en conséquence. Compte tenu du fait que le rapport de la diffusivité thermique sur la diffusivité massique est insensible aux variations de la pression initiale [177], les effets de celle-ci sur la déstabilisation de la flamme pourraient être attribués aux instabilités hydrodynamiques. Kwon et al. [177] ont souligné que les instabilités hydrodynamiques sont générées principalement par le rapport de densité à travers le front de flamme, et par l'épaisseur de ce dernier. En effet, un front de flamme plus fin pourrait entraîner une plus forte propension à la déstabilisation. Or, il a été montré que l'épaisseur de la flamme diminue de façon logarithmique avec l'augmentation de la pression initiale. L'ensemble de ces résultats explique l'augmentation du plissement du front de flamme avec l'augmentation de la pression initiale. Finalement, il est possible de voir sur la figure ci-dessus que le temps de développement et de propagation, de la flamme est plus important lorsque la pression initiale augmente.

Finalement, il est possible de comparer les surpressions maximales obtenues à l'intérieur de l'enceinte, ainsi que le délai pour lequel la surpression maximale est atteinte. Dans le but de faire une

comparaison cohérente, il ne faut pas comparer la pression maximale, mais la surpression maximale. Cette comparaison peut être faite à partir des valeurs données dans le Tableau 11.

H <sub>2</sub> /CO (%mol) / P <sub>ini</sub>	7,27±0,15% / 1 bar	7,36±0,5% / 2 bars	7,56±0,5% / 3,5 bars
$\Delta P_{max}$ (bar)	1,055	1,069	1,069
$t_{P_{max}}$ (s)	0,78	0,89	0,95

Tableau 11 – Comparaison des surpressions maximales et des temps nécessaires pour les atteindre pour les trois pressions initiales étudiées, et pour une même composition initiale du mélange {50%H<sub>2</sub>+50%CO}.

Tout d'abord, plus la pression initiale dans l'enceinte est élevée, pour une même teneur en H<sub>2</sub>/CO dans le mélange initial, plus la surpression maximale de combustion dans l'enceinte augmente. Cependant, cette augmentation n'est pas très importante. Ceci se traduit par l'augmentation de la pression initiale qui induit l'augmentation du nombre de molécules et donc de la fréquence de collision de ces molécules, ainsi que le taux de combustion. Lorsque ce taux de combustion est plus élevé, la surpression de combustion maximale est plus élevée à son tour. De plus, le différentiel de pression est plus important lorsque la pression initiale est plus élevée. En outre, le temps nécessaire pour atteindre la surpression initiale dans l'enceinte est augmenté avec l'augmentation de la pression initiale. Ceci est dû aussi au fait que le différentiel de pression est plus important lorsque la pression initiale est plus élevée. Les effets de flottabilité sont donc concurrencés par les effets de la pression initiale, ce qui ralentit la propagation ascendante du front de flamme. De plus, le taux d'étirement de la flamme augmente avec l'augmentation de la pression initiale, ce qui va inévitablement réduire la vitesse de propagation du front de flamme [120]. Ainsi, le temps nécessaire pour atteindre la pression initiale dans l'enceinte est augmenté avec l'augmentation de la pression initiale.

La comparaison des courbes de surpression de combustion en fonction du temps, pour trois pressions initiales différentes et pour la même composition initiale du mélange combustible, est présentée sur la Figure 56.

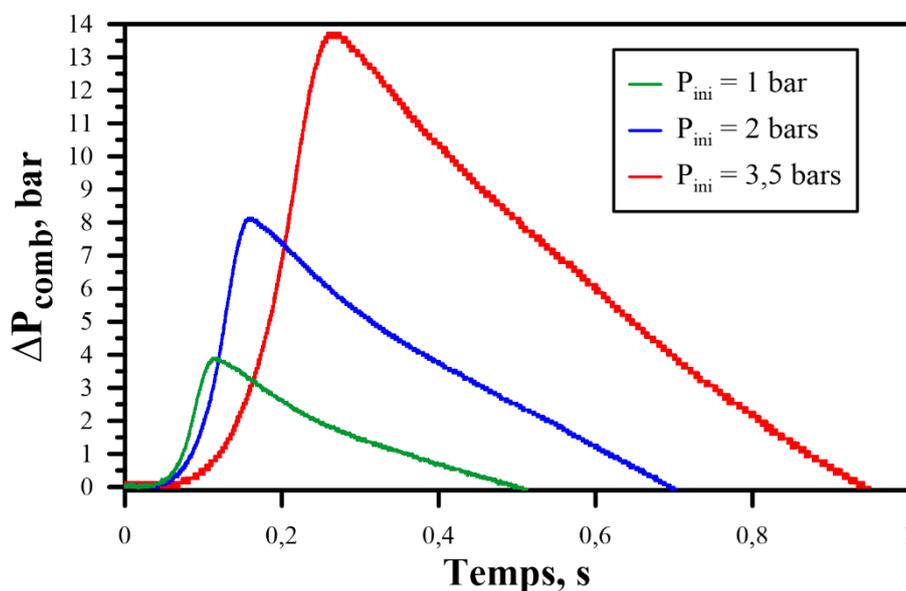


Figure 56 – Comparaison des surpressions de combustion en fonction du temps pour les trois pressions initiales étudiées, pour une même composition initiale du mélange {50%H<sub>2</sub>+50%CO}/Air ; et pour T<sub>ini</sub> = 294,9±0,61 K ; et E<sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ.

Tout comme pour la LII (cf. Tableau 11), la surpression maximale atteinte dans l'enceinte augmente lorsque la pression initiale augmente. Cependant, contrairement à la LII cette augmentation n'est pas légère dans le cas de la LIS. De même, le temps nécessaire pour atteindre cette surpression

maximale est augmenté à son tour lorsque la pression initiale augmente. En effet, l'augmentation de la surpression de combustion dans l'enceinte est plus rapide (pente) lorsque la pression initiale pour une même composition initiale du mélange combustible est plus basse.

La Figure 57 présente le rapport entre la pression maximale de combustion et la  $P_{AICC}$  pour les trois pressions initiales étudiées en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LII (cf. Figure 57 (a)) d'une part et pour la LIS (cf. Figure 57 (b)) d'une autre. Elle présente aussi la tendance du temps requis pour atteindre la pression maximale à l'intérieur de l'enceinte pour les trois pressions initiales étudiées en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  dans le mélange, pour la LII (cf. Figure 57 (c)), et pour la LIS (cf. Figure 57 (d)).

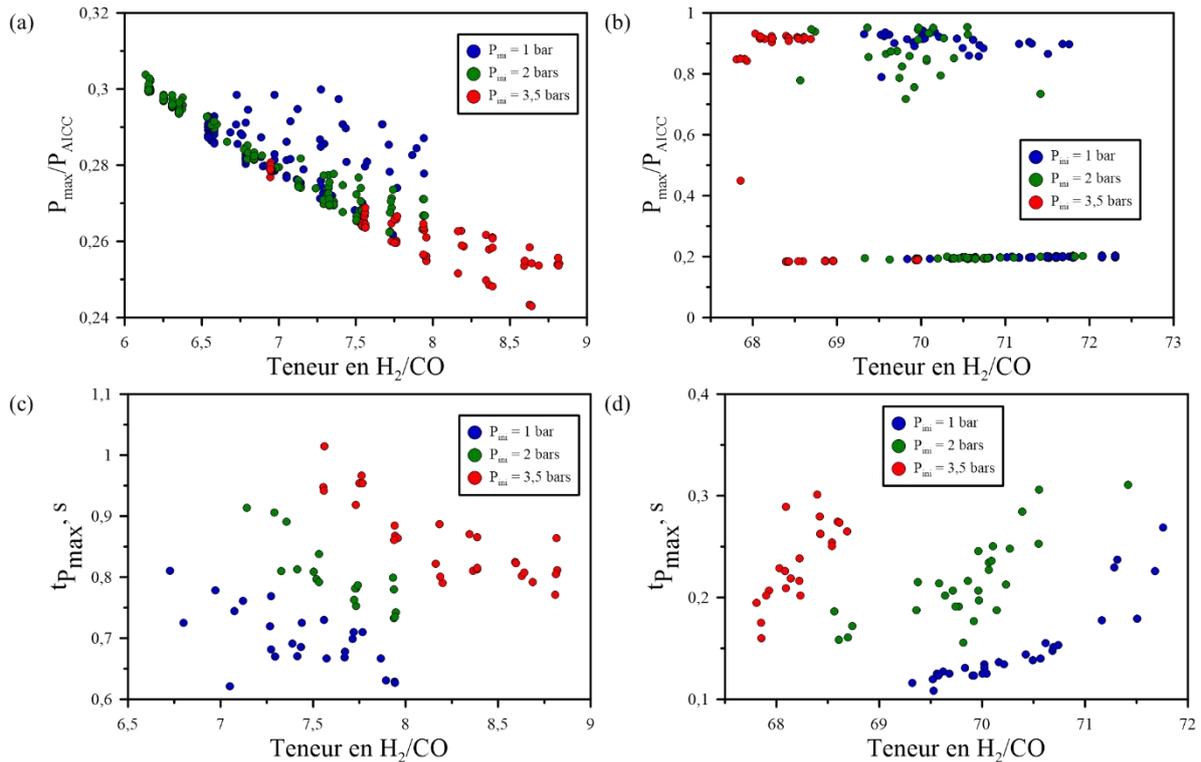


Figure 57 – Comparaison des rapports de la pression maximale sur la  $P_{AICC}$ , et du temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion, en fonction de la teneur en  $\{50\%H_2+50\%CO\}$  dans le mélange pour les trois pressions initiales étudiées pour  $T_{ini} = 294,9 \pm 0,61$  K ; et  $E_{inflammation} = 265 \pm 38$  mJ. (a) :  $P_{max}/P_{AICC}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LII. (b) :  $P_{max}/P_{AICC}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LIS. (c) : Détermination de  $t_{p_{max}}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LII. (d) : Détermination de  $t_{p_{max}}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LIS.

Concernant la comparaison des rapports de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  pour les trois pressions initiales étudiées, deux observations distinctes peuvent être tirées. Tout d'abord, pour la LII il est possible de remarquer une tendance commune de ce rapport en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour les trois pressions initiales. En effet, le rapport de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  diminue, de façon linéaire, en fonction de cette teneur en  $H_2/CO$ , indépendamment de la pression initiale. Concernant la dispersion des points, elle semble être plus importante pour une pression initiale de 1 bar. Lorsque la teneur initiale en  $H_2/CO$  se rapproche de 6%, la pression maximale de combustion vaut approximativement 30% de la valeur de la  $P_{AICC}$ , alors que cette valeur s'approche plus des 25% lorsque la teneur initiale en  $H_2/CO$  est proche des 9%. D'autre part, pour la LIS, il est possible de remarquer une tendance commune de ce rapport en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour les trois pressions initiales. Le rapport se sépare en deux parties, la première correspondant aux essais où il n'y a pas eu d'allumage, et la deuxième aux essais où il y a eu allumage du mélange combustible. Pour les essais où il n'y a pas d'allumage du mélange combustible, le rapport de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  est constant en fonction de la teneur en  $H_2/CO$ . En effet, la pression maximale

de combustion vaut approximativement 20% de la valeur de la  $P_{AICC}$ , et ce pour les trois pressions initiales étudiées. Pour les essais où il y a eu allumage du mélange combustible, la pression maximale de combustion vaut approximativement entre 80% et 95% de la valeur de la  $P_{AICC}$ , et ce pour les trois pressions initiales étudiées. Concernant la dispersion des points, elle semble être plus importante pour des pressions initiales de 1, et 2 bars que pour une pression initiale de 3,5 bars.

Concernant le temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion au sein de l'enceinte expérimentale, deux tendances similaires sont présentes en fonction de la limite regardée. En effet, tout comme pour la pression initiale de 1 bar, ce temps est réduit lorsque la teneur en  $H_2/CO$  est modifiée de sorte à se rapprocher du domaine des mélanges inflammables. Les raisons qui expliquent cette tendance ont été données dans le Chapitre 3 – partie 1.2.1. Pour la LII, et pour la même composition initiale du mélange, le temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion semble être plus court pour une pression initiale de 1 bar, que pour une pression initiale de 2 bars, qui est plus court à son tour que pour une pression initiale de 3,5 bars. Ainsi, il est possible de conclure que la vitesse de propagation de la flamme diminue avec l'augmentation de la pression initiale. Cette tendance semble valable aussi pour la LIS. De plus, pour la LIS l'augmentation de ce temps avec l'augmentation de la teneur en  $H_2/CO$  semble être plus raide pour une pression initiale plus élevée.

L'influence de la pression initiale sur le domaine d'inflammabilité d'un mélange combustible est complexe. En effet, celle-ci dépend de plusieurs paramètres, comme par exemple la nature du mélange combustible. Cette influence est souvent attribuée à deux paramètres : la densité moléculaire des différents composants du mélange, et la probabilité d'auto-inflammation du mélange en lui-même [79]. Lorsque la pression initiale augmente, la densité moléculaire des différents composants du mélange augmente (plus de molécules sont présentes dans un même volume). Ceci fait que le libre parcours moyen entre deux molécules est réduit, et la fréquence de collision entre les molécules augmente à son tour. Ainsi, l'auto-inflammation du mélange est favorisée par l'augmentation des réactions chimiques et des transferts de chaleur entre les molécules [282]. Cependant, ce phénomène ne permet pas d'expliquer à lui tout seul le comportement du domaine d'inflammabilité du mélange en fonction de la variation de la pression initiale. En effet, il faut tenir compte par la même occasion du mécanisme cinétique détaillé et de la compétition entre les réactions de propagation et de terminaison qui peuvent être à l'origine du comportement non monotone du domaine d'inflammabilité en fonction de la pression initiale. Des études portant sur les limites d'inflammabilité de mélanges à base d'hydrogène à des pressions élevées ont montré que le domaine d'inflammabilité rétrécit lorsque la pression initiale augmente jusqu'à une certaine valeur limite, puis ce domaine commence à s'élargir avec une nouvelle augmentation de la pression au-delà de cette valeur [129, 140, 141, 142, 126, 283]. En effet, un point d'inflexion au niveau de l'augmentation de la LII avec l'augmentation de la pression initiale fait que celle-ci diminue à partir d'une certaine valeur de pression initiale [143]. L'augmentation de la LII avec l'augmentation de la pression initiale a été aussi observée par Schroeder et Holtappels [135] et par Zhang et al. [145]. Ce dernier phénomène est expliqué comme suit : avec l'augmentation de la pression initiale, les fractions molaires maximales des radicaux OH restent quasiment inchangées et les taux de production maximaux augmentent. Par conséquent, pour maintenir la même fraction molaire de OH, la consommation d'hydrogène doit être augmentée, ce qui entraîne une augmentation de la LII. Cependant, d'après quelques études [118, 64], l'augmentation de la pression initiale, jusqu'à une certaine valeur, n'a pas réellement d'influence sur la valeur de la LII. Ceci a été expliqué par Britton et Frurip [118] comme suit : en négligeant les facteurs cinétiques lorsque la pression initiale est augmentée, l'augmentation de la chaleur nette de combustion par unité de volume devrait être compensée par l'augmentation de la capacité thermique, ce qui donne à peu de choses près la même température adiabatique de flamme (cf. Tableau 12). Il s'ensuit que l'effet de la pression initiale sur la température adiabatique de flamme devrait être négligeable sur une large gamme de pressions initiales. Ceci implique que l'augmentation de la pression initiale n'a pas d'influence sur la température adiabatique de flamme, et donc sur la valeur de la LII. Cependant, contrairement à l'influence sur la LII, la pression initiale semble avoir une influence non négligeable sur la valeur de LIS [138]. Une autre explication au

rétrécissement du domaine d'inflammabilité avec l'augmentation de la pression initiale pourrait être donnée comme suit : le rétrécissement du domaine d'inflammabilité peut être expliqué par un mécanisme de réaction de l'hydrogène où l'influence de la réaction de terminaison en chaîne à trois corps devient plus forte lorsque la pression augmente. Ceci entraîne une diminution de la vitesse de la réaction de combustion globale, et réduit ainsi le domaine d'inflammabilité.

<b>H<sub>2</sub>/CO (%mol) / P<sub>ini</sub></b>	<b>7,57±0,15% / 1 bar</b>	<b>7,53±0,5% / 2 bars</b>	<b>7,56±0,5% / 3,5 bars</b>
<i>T<sub>f</sub></i> (K)	946	943	944

Tableau 12 – Comparaison des températures adiabatiques de flamme pour les trois pressions initiales étudiées, et pour une même composition initiale du mélange {50%H<sub>2</sub>+50%CO}/Air.

Une comparaison des différentes valeurs déterminées expérimentalement avec les valeurs trouvées, ainsi qu'avec les corrélations données, dans la littérature peut être faite. Pour rappel, la corrélation permettant de décrire l'influence de la pression initiale sur les limites d'inflammabilité inférieures du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, trouvée dans la littérature est donnée par :

- Jaimés et al. [120] :

Jaimés et al. [120] ont établi une corrélation, basée sur une régression logistique, qui permet de déterminer les limites d'inflammabilité inférieures du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air en fonction de la pression initiale. La corrélation établie est donnée par l'équation suivante :

$$LII_{H_2/CO}(P) = [a * T + b] * P + c * T + d \quad (14)$$

Avec,  $LII_{H_2/CO}(P)$  la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO à la pression initiale  $P$  souhaitée,  $T$  la température initiale du mélange (en °C),  $P$  la pression initiale souhaitée (en bar), et  $a$ ,  $b$ ,  $c$  et  $d$  les coefficients calculés pour différents rapports H<sub>2</sub>/CO ( $a$  en bar<sup>-1</sup>.°C<sup>-1</sup>,  $b$  en bar<sup>-1</sup>,  $c$  en °C<sup>-1</sup>, et  $d$  sans dimension). Cette corrélation est valable pour des températures initiales allant jusqu'à 200°C, et pour des pressions allant jusqu'à 9 bars. Les 4 coefficients ont été calculés et sont donnés dans le Tableau 13.

<b>H<sub>2</sub>/CO</b>	<b>a</b>	<b>b</b>	<b>c</b>	<b>d</b>
20/80	4,3714. 10 <sup>-4</sup>	1,6857. 10 <sup>-1</sup>	-12,14. 10 <sup>-3</sup>	10,282
40/60	-1,7143. 10 <sup>-4</sup>	1,5629. 10 <sup>-1</sup>	-6,7543. 10 <sup>-3</sup>	7,8609
60/40	0,28571. 10 <sup>-4</sup>	1,1429. 10 <sup>-1</sup>	-7,0457. 10 <sup>-3</sup>	6,4371

Tableau 13 – Coefficients caractérisant la corrélation de Jaimés et al. [120] pour différents rapports H<sub>2</sub>/CO.

Bien que les coefficients pour le mélange étudié lors de cette étude (H<sub>2</sub>/CO = 50/50) ne soient pas déterminés, il est possible de trouver un intervalle encadrant les valeurs des limites d'inflammabilité inférieures. En effet, la variation de la LII en fonction du rapport H<sub>2</sub>/CO étant monotone, il est possible d'encadrer cette limite comme suit :

$$LII_{H_2/CO}(60/40)\% < LII_{H_2/CO}(50/50)\% < LII_{H_2/CO}(40/60)\% \quad (65)$$

Ainsi, les limites d'inflammabilité inférieures à 2 et à 3,5 bars, en prenant la température initiale  $T_{ini} = 25^\circ\text{C}$ , sont données par :

$$6,49\% < LII_{H_2/CO}(2 \text{ bars}) < 8\%$$

$$6,66\% < LII_{H_2/CO}(3,5 \text{ bars}) < 8,22\%$$

En plus des corrélations, il est possible de trouver des valeurs de limites d'inflammabilité en fonction de la pression initiale dans la littérature. Toutes les valeurs des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, pour des pressions initiales supérieures à 1 bar, trouvées dans la littérature, ainsi que les valeurs déterminées dans cette étude expérimentale, sont récapitulées dans le Tableau 14.

$P_{ini}$ (bar)	$T_{ini}$ (K)	LII (%mol)	LIS (%mol)	Référence
2	293	5,5	/	Shang et al. [284]
2	298	6,6	71,1	Coudoro [17]
2	$295 \pm 0,66$	$6,86 \pm 0,57$	$70,77 \pm 0,55$	Ce travail
3	293	5,1	/	Shang et al. [284]
3,5	$295 \pm 0,66$	$6,64 \pm 0,73$	$69,26 \pm 0,62$	Ce travail
5	293	4,6	/	Shang et al. [284]

Tableau 14 – Comparaison des valeurs déterminées expérimentalement au cours de ce travail avec les valeurs trouvées dans la littérature en fonction de la pression initiale.

Il est ainsi possible de tracer dans un même graphique les différentes limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, afin de les comparer. Dans le cas des limites d'inflammabilité déterminées lors de cette étude, l'intervalle de confiance à 95% a été tracé également dans le but de savoir où se placent les valeurs trouvées dans la littérature par rapport à cet intervalle. La Figure 58 présente cette comparaison, pour les limites d'inflammabilité inférieures (partie basse de la figure) et pour les limites d'inflammabilité supérieures (partie haute de la figure).

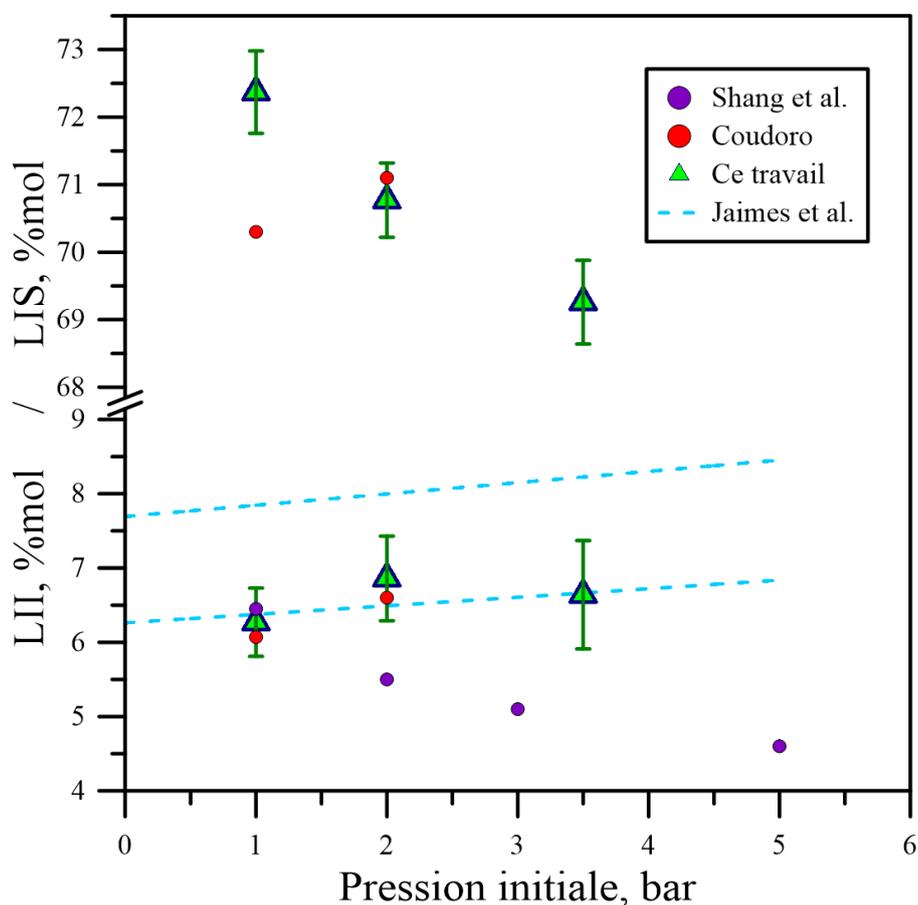


Figure 58 – Comparaison des valeurs des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, en fonction de la pression initiale, trouvées dans la littérature avec les valeurs déterminées expérimentalement au cours de cette étude.

Il est ainsi possible de comparer, séparément pour la LII et pour la LIS, ces différentes valeurs de limites d'inflammabilité. Une première remarque générale met en exergue le manque de données expérimentales concernant les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange  $H_2/CO/Air$  pour des pressions initiales supérieures à la pression atmosphérique, présentes dans la littérature.

Concernant les limites d'inflammabilité inférieures, il est possible de voir que les valeurs déterminées expérimentalement lors de cette étude se trouvent bien comprises dans l'intervalle prévu par Jaimes et al. [120]. De même, la tendance des LII trouvées expérimentalement est bien la même que celle déterminée par Coudoro [17]. Cependant, les résultats expérimentaux ne sont pas en accord avec les résultats déterminés par Shang et al. [284]. En effet, leurs résultats montrent une nette diminution de la LII lorsque la pression initiale augmente. D'autre part, concernant la LIS, il n'y a pas beaucoup de résultats concernant l'influence de la pression initiale sur cette valeur pour le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. Contrairement à la LII, la tendance de la LIS déterminée expérimentalement lors de cette étude n'est pas la même que celle déterminée par Coudoro [17]. En effet, dans le premier cas, la valeur de la LIS diminue drastiquement avec l'augmentation de la pression initiale, alors qu'elle augmente dans le deuxième cas. En conclusion, l'augmentation de la pression initiale (entre 1 et 5 bars dans ce cas) entraîne une diminution du domaine d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air.

### 1.2.3. Températures initiales supérieures à 298 K

La troisième étape consiste à déterminer le domaine d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air pour des températures initiales supérieures à la température ambiante. Une autre température initiale a été étudiée, en plus de la température ambiante ( $T_{ini} = 298 \text{ K}$ ) :  $T_{ini} = 363 \text{ K}$ . Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Forme géométrique des électrodes : *Pointe – Pointe*
- Distance inter-électrodes : *3 mm*
- Énergie d'inflammation :  $265 \pm 38 \text{ mJ}$
- Pression initiale :  $1,005 \pm 0,75 \text{ bar}$
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Les limites d'inflammabilité inférieures pour le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air pour les deux températures initiales étudiées (298 K et 363 K) sont présentées sur la Figure 59.

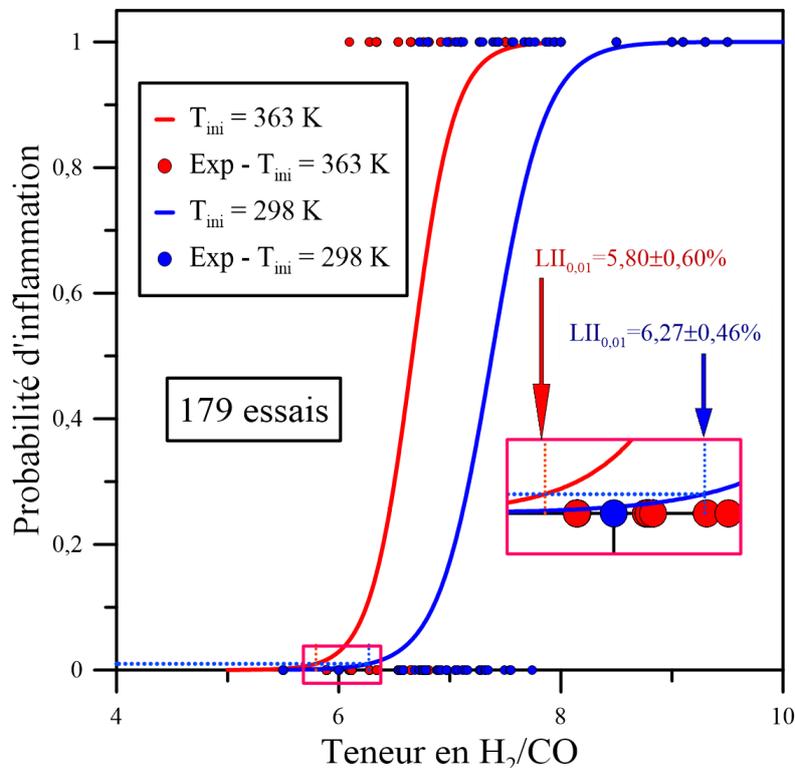


Figure 59 – Comparaison des limites d'inflammabilité inférieures du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air pour les deux températures initiales étudiées :  $T_{ini} = 298 \text{ K}$  et  $T_{ini} = 363 \text{ K}$  ; pour  $P_{ini} = 1,005 \pm 0,75 \text{ bar}$  ; et  $E_{inflammation} = 265 \pm 38 \text{ mJ}$ .

Il est à remarquer que l'augmentation de la température initiale entraîne une diminution de la valeur de la limite d'inflammabilité inférieure. L'écart absolu entre la valeur de la LII déterminée à 298 K et la valeur de la LII déterminée à 363 K est de 0,47%. Cet écart n'est pas négligeable, et il est possible d'affirmer que la température initiale a une réelle influence sur la détermination de la LII. Dans le but de compléter cette étude, la limite d'inflammabilité supérieure de ce mélange à une température initiale de 363 K doit être déterminée. Cependant, à partir des données trouvées dans la littérature, il est possible de supposer que le domaine d'inflammabilité du mélange s'élargit avec l'augmentation de la température initiale.

Une comparaison visuelle de la propagation du front de flamme dans l'enceinte pour les deux températures initiales étudiées a été faite sur la Figure 60.

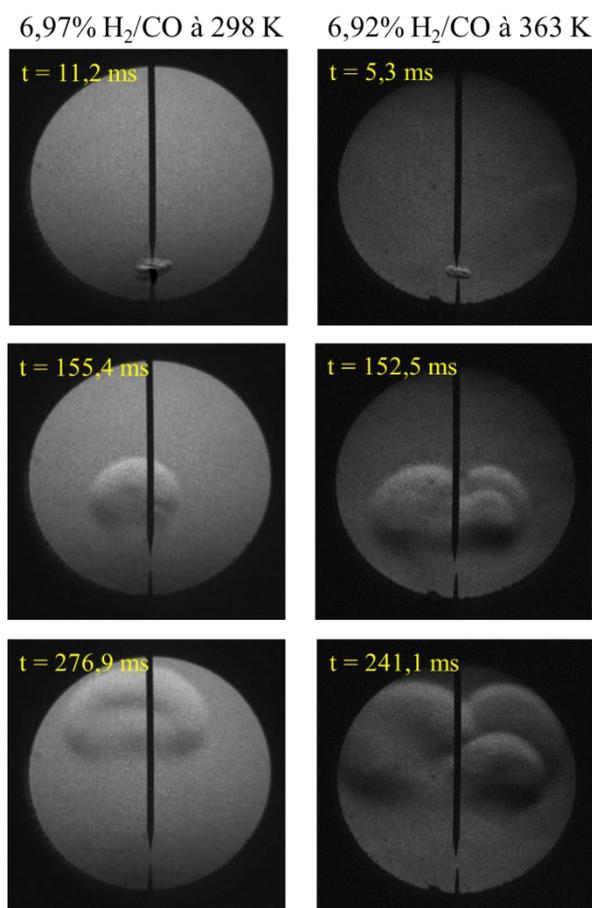


Figure 60 – Comparaison visuelle de la propagation du front de flamme du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air dans l'enceinte pour deux températures initiales : 298 K et 363 K.

Deux flammes ayant une composition initiale comparable et aux deux températures initiales étudiées ont été examinées. Tout d'abord, la première remarque souligne que plus la température initiale est élevée, plus le noyau de la flamme est volumineux et déformé. En effet, pour une température initiale de 298 K, le front de flamme a une forme de « champignon », et aucun pli n'est visible sur la flamme. Pour une température initiale de 363 K, le front de flamme ne conserve pas cette forme de « champignon ». Dans ce cas, le noyau de la flamme est beaucoup plus volumineux, et est composé par trois « champignons ». Le front de flamme est donc plissé. Finalement, il est possible de voir sur la figure que le temps de développement, et de propagation, de la flamme est réduit lorsque la température initiale augmente. En effet, le front de flamme est plus rapide dans ce cas.

Les pressions maximales obtenues à l'intérieur de l'enceinte, ainsi que le délai pour lequel la pression maximale est atteinte, et ce pour les deux températures initiales étudiées, sont comparées dans le Tableau 15.

H <sub>2</sub> /CO (%mol) / T <sub>ini</sub>	6,97±0,15% / 298 K	6,92±0,52% / 363 K
P <sub>max</sub> (bar)	1,071	1,061
t <sub>P<sub>max</sub></sub> (s)	0,78	0,74

Tableau 15 – Comparaison des pressions maximales et des temps nécessaires pour les atteindre pour les deux températures initiales étudiées, et pour une même composition initiale du mélange {50%H<sub>2</sub>+50%CO}/Air.

Pour une température initiale plus élevée, et pour une même composition initiale, la pression maximale atteinte dans l'enceinte est légèrement moins élevée. Cette diminution n'est pas très importante. Cependant, l'augmentation de la température initiale ne semble pas avoir de réelle influence sur le temps requis pour atteindre cette pression maximale.

La Figure 61 présente le rapport entre la pression maximale de combustion et la P<sub>AICC</sub> pour les deux températures initiales étudiées en fonction de la teneur en H<sub>2</sub>/CO pour la LII. La tendance du temps requis pour atteindre la pression maximale à l'intérieur de l'enceinte pour les deux températures initiales étudiées en fonction de la teneur en H<sub>2</sub>/CO dans le mélange pour la limite d'inflammabilité inférieure est aussi présentée.

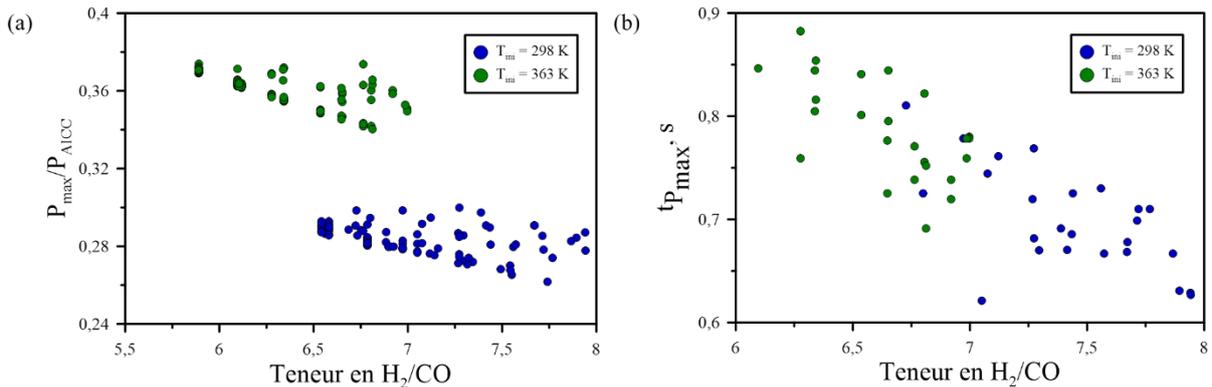


Figure 61 – Comparaison des rapports de la pression maximale sur la P<sub>AICC</sub>, et du temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion, en fonction de la teneur en H<sub>2</sub>/CO dans le mélange {50%H<sub>2</sub>+50%CO}/Air pour les deux températures initiales étudiées pour P<sub>ini</sub> = 1,005±0,75 bar, et E<sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. (a) : P<sub>max</sub>/P<sub>AICC</sub> en fonction de la teneur en H<sub>2</sub>/CO pour la LII. (b) : Détermination de t<sub>P<sub>max</sub></sub> en fonction de la teneur en H<sub>2</sub>/CO pour la LII.

À partir de la comparaison des rapports de la pression maximale de combustion sur la P<sub>AICC</sub> pour les deux températures initiales étudiées, il est possible d'affirmer que les deux nuages de points suivent la même tendance décroissante en fonction de la teneur en H<sub>2</sub>/CO. En effet, le rapport de la pression maximale de combustion sur la P<sub>AICC</sub> diminue, de façon linéaire, en fonction de cette teneur en H<sub>2</sub>/CO, et ce indépendamment de la température initiale. Cette tendance a été aussi observée par Coudoro [17] pour d'autres mélanges dans l'air. Le rapport de la pression maximale de combustion sur la P<sub>AICC</sub> est compris entre 0,26 et 0,30 pour une température initiale de 298 K, et entre 0,34 et 0,38 pour une température initiale de 363 K. En effet, en règle générale, la valeur de la P<sub>AICC</sub> est moins élevée pour une température initiale de 363 K que pour une température initiale de 298 K. Or, la pression maximale de combustion étant du même ordre de grandeur dans les deux cas présents, le rapport de la pression maximale de combustion sur la P<sub>AICC</sub> sera plus élevé. Les valeurs de la P<sub>AICC</sub> en fonction de la température initiale sont déterminées avec le code de calcul COSILAB, qui a tendance à sous-estimer les valeurs de la P<sub>AICC</sub>, tout comme les valeurs de la température adiabatique de flamme pour des températures initiales plus élevées. Ceci pourrait expliquer le comportement de la P<sub>AICC</sub> avec

l'augmentation de la température initiale, et donc les rapports de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  présentés.

Concernant le temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion au sein de l'enceinte expérimentale, une tendance commune pour les deux températures initiales semble se mettre en place. En effet, ce temps diminue linéairement, lorsque la teneur en  $H_2/CO$  dans le mélange augmente. Les raisons qui expliquent cette tendance ont été données dans le Chapitre 3 – partie 1.2.1. Il est donc possible de conclure que la température initiale ne semble pas avoir d'influence sur le temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion au sein de l'enceinte expérimentale. La vitesse de propagation de la flamme est donc la même dans les deux cas.

L'influence de la température initiale sur le domaine d'inflammabilité d'un mélange combustible a été largement étudiée dans la littérature. Tout comme pour l'influence de la pression initiale, celle-ci dépend de plusieurs paramètres, dont la nature du mélange combustible. Les théories qui relient les limites d'inflammabilité à la perte de chaleur indiquent que la température de la flamme pour un combustible donné doit être supérieure à la température minimale nécessaire à la propagation de la flamme pour que le mélange s'allume [100, 124]. Kim et al. [125] ont déterminé ces températures seuil pour l'hydrogène et le monoxyde de carbone. En effet, les valeurs de ces températures sont respectivement 610K, compte tenu de la perte de chaleur, et 1491K.

Lorsque la température initiale du mélange est augmentée, la valeur de la LII diminue et la valeur de la LIS augmente, rendant le domaine d'inflammabilité du mélange  $H_2/CO/Air$  plus étendu [126, 125, 127, 128, 129]. De plus, plusieurs études dans la littérature ont permis de démontrer que la diminution de la valeur de la LII est linéaire avec l'augmentation de la température initiale [121, 119, 130, 123, 279]. Britton et Frurip [118] ont montré que cette diminution linéaire de la LII se fait entre la température initiale du mélange, et la température de flamme à la teneur correspondant à la valeur de la LII. De plus, White [132] a montré que la température limite de la flamme est maintenue constante, et ce indépendamment de la température initiale expérimentale. En prenant cette hypothèse, la limite d'inflammabilité inférieure évolue bien linéairement en fonction de la température initiale. En outre, il a été montré que la LIS se voit plus affectée par les variations de la température initiale que la LII [128, 122]. L'influence de la température initiale peut être expliquée de plusieurs façons différentes. D'une part, l'explication la plus intuitive est que pour une température initiale plus élevée, l'énergie nécessaire pour allumer le mélange combustible, et donc pour chauffer ce mélange jusqu'à la température seuil permettant la propagation de la flamme, est moindre [125]. En regardant plus en détail la phénoménologie physique, il est possible de voir que la réaction d'oxydation du mélange  $H_2/CO$  proche de la limite d'inflammabilité inférieure est riche en oxygène, et cet excès d'air devient un gaz inerte dans la réaction. Ainsi, une quantité réduite de  $H_2/CO$  est difficile à faire réagir avec l'oxygène. Lorsque la température augmente, la vitesse des molécules est accélérée, de sorte que la probabilité de collision entre les molécules dans le mélange combustible et les molécules d'oxygène augmente. De plus, l'augmentation de la température initiale permet à davantage de molécules réactives d'absorber de l'énergie et de se dissocier en radicaux libres, qui sont devenus le centre d'activation de la réaction. La vitesse de réaction est continuellement accélérée et davantage de chaleur est libérée pour assurer la progression continue de la réaction. Par conséquent, l'inflammation peut être déclenchée à une plus faible teneur en  $H_2/CO$  dans le mélange combustible. Ainsi, l'augmentation de la température initiale raccourcit le délai d'inflammation et accélère le processus de réaction [128]. En d'autres termes, pour des températures initiales élevées, l'inflammation et la propagation de la flamme sont favorisées par une augmentation de la vitesse de réaction et de la vitesse de propagation de la flamme [131].

Un paramètre à ne pas négliger lorsque les essais sont réalisés à des températures supérieures à 298 K est le temps de séjour (ou temps de résidence). Ce temps correspond au temps d'attente des gaz frais dans l'enceinte à la température initiale élevée choisie avant de procéder à l'inflammation du mélange. En effet, il est possible qu'à des températures initiales élevées, le mélange combustible subisse d'importantes réactions de préallumage, notamment lorsque le mélange testé est laissé au repos pendant

un certain temps avant l'inflammation et que la température initiale est suffisante [122, 59]. Ceci est dû au potentiel développement de réactions d'oxydation lentes de préallumage, lesquelles peuvent modifier le mélange avant l'inflammation. Wierzba et Wang [122] ont montré, pour des conditions initiales isothermes avant l'inflammation du mélange par arc électrique, que les valeurs mesurées des limites d'inflammabilité du mélange  $H_2/CO$  dépendent, pour une température initiale élevée, du temps de séjour du mélange. En effet, plus le temps de séjour est élevé, plus le domaine d'inflammabilité sera réduit [123]. Cependant, la valeur de la LIS se voit beaucoup plus affectée par ce temps de séjour que la LII. Plus la température initiale est élevée, plus le temps de séjour a une influence importante sur ces limites d'inflammabilité. L'influence du temps de séjour est considérablement réduite lorsque le temps de séjour atteint ~15 minutes [123].

Reste la question de la pertinence de l'utilisation des lois de Le Chatelier pour calculer ces limites d'inflammabilité en fonction de la température initiale. Les diverses études faites jusqu'à présent convergent sur le fait qu'il est possible de déterminer les limites d'inflammabilité des mélanges  $H_2/CO$  en utilisant les lois de Le Chatelier si l'on prend les limites d'inflammabilité des différents composants du mélange à la bonne température initiale [122]. Cependant, il faut différencier les limites inférieures des limites supérieures. En effet, Wierzba et Kilchyk [123] ont montré que les limites d'inflammabilité inférieures des mélanges  $H_2/CO$  peuvent être déterminées en utilisant les lois de Le Chatelier. Cependant, il est énoncé que les limites d'inflammabilité supérieures s'écartent sensiblement des valeurs correspondantes déterminées à l'aide des lois de Le Chatelier (notamment lorsque la teneur en hydrogène n'est pas très élevée). Ceci est dû à l'augmentation de l'enthalpie du mélange initial [129]. De même, la limite d'inflammabilité supérieure du mélange  $H_2/CO$  augmente avec l'augmentation de la température initiale, mais cette augmentation se stabilise pour des températures initiales supérieures à 150°C [123]. Toutefois, la LII ne peut pas diminuer indéfiniment. En effet, lorsque la teneur en  $H_2/CO$  est réduite jusqu'à atteindre une valeur seuil, une quantité trop faible de combustible ne serait pas en mesure de maintenir la réaction, et la propagation de la flamme ne pourrait pas se poursuivre. De même, la LIS du mélange  $H_2/CO$  n'augmente pas toujours avec l'augmentation de la température initiale, il existe une valeur critique.

Une comparaison des différentes valeurs déterminées expérimentalement avec les valeurs ou les corrélations données dans la littérature peut être faite. La plupart de ces corrélations concernent plutôt la détermination de la limite d'inflammabilité inférieure, que la détermination de la limite d'inflammabilité supérieure. Ceci peut s'expliquer physiquement. En effet, lors de la combustion d'un mélange réactif, indépendamment de sa nature, des instabilités thermo-diffusives auront lieu. Ces instabilités thermo-diffusives se produisent au niveau du front de flamme par des échanges de masse (diffusivité moléculaire) et de chaleur (diffusivité thermique). En fonction de la richesse du mélange, ainsi que de sa nature, l'une des deux diffusivités citées ci-dessus aura une prédominance par rapport à l'autre. La nature du mélange réactif peut être catégorisée en deux groupes : les mélanges réactifs à base d'hydrogène, et les mélanges réactifs à base d'hydrocarbures. Le comportement de l'un de ces deux groupes par rapport à l'autre est inversé, à savoir, un mélange riche à base d'hydrocarbures se comportera comme un mélange pauvre à base d'hydrogène, et inversement. Dans le cadre de cette étude, ce sont les mélanges réactifs à base d'hydrogène qui seront intéressants. Ainsi, lors de l'étude des mélanges pauvres, et donc de la LII, la diffusivité thermique est prédominante par rapport à la diffusivité moléculaire. Cependant, lors de l'étude des mélanges riches, et donc de la LIS, c'est la diffusivité moléculaire qui sera prédominante. Étant donné que, d'après les relations thermodynamiques, il est moins complexe de modéliser les réactions découlant de la diffusivité thermique que celles découlant de la diffusivité moléculaire, la détermination de corrélations décrivant la LII est plus simple que pour la LIS. Ainsi, les corrélations permettant de déterminer la LII en fonction de la température initiale sont beaucoup plus nombreuses dans la littérature que celles permettant de déterminer la LIS.

Pour rappel, les corrélations permettant de décrire l'influence de la température initiale sur la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, trouvées dans la littérature, sont données ci-dessous :

- Zabetakis et al. [64] :

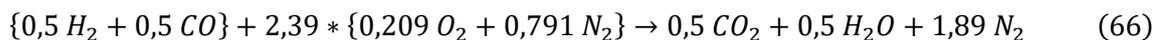
Zabetakis et al. [64] se sont servis de la loi de Burgess-Wheeler, et de la méthode CAFT (Combustion Adiabatic Flame Temperature) pour déterminer deux corrélations qui permettent de déterminer la LII, et la LIS, en fonction de la température initiale. Celles-ci sont données par les équations suivantes :

$$LII(T_{ini}) = LII(25^{\circ}C) - \frac{0,75}{\Delta_r H} (T_{ini} - 25) \quad (11)$$

$$LIS(T_{ini}) = LIS(25^{\circ}C) + \frac{0,75}{\Delta_r H} (T_{ini} - 25) \quad (12)$$

Avec,  $LII(T_{ini})$  et  $LIS(T_{ini})$  les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange à la température initiale  $T_{ini}$  souhaitée,  $LII(25^{\circ}C)$  et  $LIS(25^{\circ}C)$  les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange à la température initiale  $T_{ini} = 25^{\circ}C$ ,  $\Delta_r H$  l'enthalpie de réaction de la combustion (en kcal.mol<sup>-1</sup>), et  $T_{ini}$  la température initiale souhaitée (en °C). Cette corrélation est valable pour des températures initiales comprises entre 400 et 1500 K, et pour une pression atmosphérique.

L'équation de la réaction du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air est donnée par :



Ainsi, l'enthalpie de réaction de la combustion est donnée par :

$$\Delta_r H = -(0,5 * \Delta_r H(CO_2) + 0,5 * \Delta_r H(H_2O) - 0,5 * \Delta_r H(CO)) = 62,71 \text{ kcal.mol}^{-1}$$

Il est donc possible de déterminer la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO, en prenant comme valeur de la LII du mélange à 298 K, la valeur déterminée expérimentalement au cours de cette étude (cf. Chapitre 3 – partie 1.2.1). Celle-ci et les autres valeurs nécessaires au calcul sont données par les valeurs suivantes :

$$LII(25^{\circ}C) = 6,27\% ; \Delta_r H = 62,71 \text{ kcal.mol}^{-1} ; \text{et } T_{ini} = 90^{\circ}C$$

Ainsi, la valeur de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO dans l'air pour une pression initiale de 1 bar et pour une température initiale de 363 K vaut :

$$LII(90^{\circ}C) = 6,27 - \frac{0,75}{62,71} (90 - 25) = 5,5\%$$

- Britton et Frurip [118] :

Britton et Frurip [118] ont établi une corrélation permettant de déterminer la limite d'inflammabilité inférieure en fonction de la température initiale. Celle-ci est donnée par l'équation suivante :

$$LII(T_{ini}) = LII(T_0) * \frac{T_f - T_{ini}}{T_f - T_0} \quad (13)$$

Avec,  $LII(T_{ini})$  et  $LII(T_0)$  les limites d'inflammabilité inférieures du mélange à la température initiale  $T_{ini}$  souhaitée et à la température de référence  $T_0$  respectivement,  $T_f$  la température adiabatique de flamme (en K),  $T_{ini}$  la température initiale souhaitée (en K), et  $T_0$  la température de référence (en K).

Cette corrélation est valable pour des températures initiales comprises entre 400 et 1500 K, et pour une pression atmosphérique.

Les valeurs choisies pour appliquer cette corrélation permettant de déterminer l'influence de la température initiale sur la limite d'inflammabilité inférieure sont données ci-dessous :

$$LII(T_0) = 6,27\% ; T_f = 844,24 \text{ K} ; T_{ini} = 363,15 \text{ K} ; T_0 = 298,15 \text{ K}$$

La valeur de la limite d'inflammabilité inférieure choisie comme étant la valeur de la LII du mélange à 298 K est la valeur déterminée expérimentalement au cours de cette étude (cf. Chapitre 3 – partie 1.2.1), et la température adiabatique de flamme a été calculée à partir d'un calcul à l'équilibre à l'aide de COSILAB (cf. Chapitre 2 – partie 3.1).

À partir de toutes les données fournies ci-dessus, il est possible de calculer la limite d'inflammabilité inférieure à une température initiale de 363 K et une pression initiale de 1 bar, à partir de la corrélation déterminée par Britton et Frurip [118]. La valeur de la LII du mélange à 298 K, choisie pour le calcul, est la valeur déterminée expérimentalement au cours de cette étude (cf. Chapitre 3 – partie 1.2.1) : 6,27%. La valeur de la LII à  $T_{ini} = 90^\circ\text{C}$  est donc donnée ci-dessous :

$$LII(90^\circ\text{C}) = 6,27 * \frac{844,24 - 363,15}{844,24 - 298,15} = 5,52\%$$

- Jaimés et al. [120] :

La corrélation établie par Jaimés et al. [120] est la même que celle utilisée pour la détermination de la LII en fonction de la pression initiale. Celle-ci permet aussi, en fixant la valeur de la pression initiale à 1 bar dans ce cas, de déterminer la valeur de la LII en fonction de la température initiale. Celle-ci a été donnée dans le Chapitre 3 – partie 1.2.2, équation (54) et Tableau 13. Cette corrélation est valable pour des températures initiales allant jusqu'à 200°C, et pour des pressions allant jusqu'à 9 bars.

Tout comme pour l'influence de la pression initiale, si bien qu'ils n'aient pas déterminé les coefficients pour le mélange étudié lors de cette étude ( $\text{H}_2/\text{CO} = 50/50$ ), il est possible de déterminer un intervalle encadrant les valeurs de la limite d'inflammabilité inférieure. Cet intervalle a été donné dans le Chapitre 3 – partie 1.2.2, équation (65).

Ainsi, la limite d'inflammabilité inférieure à 363 K, en prenant la pression initiale  $P_{ini} = 1 \text{ bar}$ , est donnée par :

$$5,92\% < LII_{\text{H}_2/\text{CO}}(90^\circ\text{C}) < 7,39\%$$

- Hustad et Sønju [121] :

Hustad et Sønju [121] ont établi une corrélation à partir de la relation établie par Schroeder et al. [135] et des lois de Le Chatelier, qui permet de déterminer la valeur de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  en fonction de la température initiale. Cette corrélation est donnée ci-dessous :

$$\frac{1}{LII_{\text{H}_2/\text{CO}}(T_{ini})} = \frac{y_{\text{H}_2}}{5 * (1 - 0,00129 * (T_0 - 25))} + \frac{y_{\text{CO}}}{15 * (1 - 0,00095 * (T_0 - 25))} \quad (15)$$

Avec,  $LII_{\text{H}_2/\text{CO}}(T_{ini})$  la limite d'inflammabilité inférieure du mélange  $\text{H}_2/\text{CO}$  à la température initiale  $T_{ini}$  souhaitée,  $y_{\text{H}_2}$  et  $y_{\text{CO}}$  les fractions massiques de  $\text{H}_2$  et de  $\text{CO}$  respectivement, et  $T_0$  la température de référence (en °C). Cette corrélation est valable pour des températures initiales comprises

entre 25°C et 520°C, et pour une pression atmosphérique. Les teneurs en H<sub>2</sub> et en CO peuvent varier entre 10 et 30%, et la teneur en N<sub>2</sub> entre 40 et 80%.

D'où, l'inverse de la limite d'inflammabilité inférieure, et par conséquent la valeur de la LII en elle-même sont données ci-dessous :

$$\frac{1}{LII_{H_2/CO}(90^\circ C)} = \frac{0,5}{5 * (1 - 0,00129 * (90 - 25))} + \frac{0,5}{15 * (1 - 0,00095 * (90 - 25))} = 0,145$$

$$LII_{H_2/CO}(90^\circ C) = \frac{1}{0,145} = 6,9\%$$

- Kondo et al. [119] :

Kondo et al. [119] ont établi deux corrélations permettant de déterminer la valeur de la limite d'inflammabilité inférieure, et de la limite d'inflammabilité supérieure, du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air en fonction de la température initiale. Ces corrélations sont données ci-dessous :

$$LII_{H_2/CO}(T_{ini}) = LII_{H_2/CO}(25^\circ C) - \frac{100 * c_p}{Q} (T_{ini} - 25) \quad (16)$$

$$LIS_{H_2/CO}(T_{ini}) = LIS_{H_2/CO}(25^\circ C) * \left[ 1 + \frac{100 * c_p}{LII_{H_2/CO}(25^\circ C) * Q} (T_{ini} - 25) \right] \quad (17)$$

Avec,  $LII_{H_2/CO}(T_{ini})$  et  $LIS_{H_2/CO}(T_{ini})$  les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange H<sub>2</sub>/CO à la température initiale  $T_{ini}$  souhaitée,  $LII_{H_2/CO}(25^\circ C)$  et  $LIS_{H_2/CO}(25^\circ C)$  les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange à la température initiale  $T_{ini} = 25^\circ C$ ,  $c_p$  la capacité thermique à pression constante des gaz frais à  $LII_{H_2/CO}(25^\circ C)$  (en J.K<sup>-1</sup>.mol<sup>-1</sup>),  $Q$  la chaleur de combustion molaire (en J.mol<sup>-1</sup>), et  $T_{ini}$  la température initiale souhaitée (en °C). Cette corrélation est valable pour des températures initiales comprises entre 5°C et 100°C, et pour une pression atmosphérique.

La chaleur de combustion molaire peut être calculée à partir de l'enthalpie de formation. Celle-ci est donnée comme suit :

$$Q = -\Delta_f H^0 = -\left( \Delta_f H^0 (\text{produits}) - \Delta_f H^0 (\text{réactifs}) \right) \quad (67)$$

Avec,  $Q$  la chaleur de combustion (en J.mol<sup>-1</sup>),  $\Delta_f H^0$  l'enthalpie de formation molaire (en J.mol<sup>-1</sup>),  $\Delta_f H^0(\text{produits})$  l'enthalpie de formation molaire des produits (en J.mol<sup>-1</sup>), et  $\Delta_f H^0(\text{réactifs})$  l'enthalpie de formation molaire des réactifs (en J.mol<sup>-1</sup>).

Ainsi, la valeur de la chaleur de combustion est donnée par :

$$Q = -\Delta_f H^0 = -\left( 0,5 * \Delta_f H^0(H_2O) + 0,5 * \Delta_f H^0(CO_2) - 0,5 * \Delta_f H^0(H_2) - 0,5 * \Delta_f H^0(CO) \right)$$

Avec,  $\Delta_f H^0(H_2O) = -285,8$  kJ.mol<sup>-1</sup>,  $\Delta_f H^0(CO_2) = -393,51$  kJ.mol<sup>-1</sup>,  $\Delta_f H^0(H_2) = 0$  kJ.mol<sup>-1</sup>, et  $\Delta_f H^0(CO) = -110,5$  kJ.mol<sup>-1</sup>. D'où,

$$Q = -\Delta_f H^0 = 284\,410 \text{ J.mol}^{-1}$$

À partir de l'équation (66), la capacité thermique à pression constante de la réaction pour les gaz frais à  $LII_{H_2/CO}(25^\circ C)$  peut être déterminée. Cette valeur est donnée ci-dessous :

$$c_p = 0,0627 * \{0,5 * c_p(H_2) + 0,5 * c_p(CO)\} + 0,9373 * \{0,209 * c_p(O_2) + 0,791 * c_p(N_2)\}$$

Avec,  $c_p(H_2) = 28,84 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $c_p(CO) = 29,14 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $c_p(O_2) = 29,36 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , et  $c_p(N_2) = 29,13 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . D'où,

$$c_p = 29,17 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$$

La valeur de la LII du mélange à 298 K, choisie pour le calcul, est la valeur déterminée expérimentalement au cours de cette étude (cf. Chapitre 3 – partie 1.2.1) : 6,27%. La valeur de la limite d'inflammabilité inférieure à une température initiale de 363 K et une pression atmosphérique de 1 bar est donnée par la relation suivante :

$$LII_{H_2/CO}(90^\circ C) = 6,27 - \frac{100 * 29,17}{284\,410} (363 - 298) = 5,60\%$$

En plus des corrélations citées ci-dessus, il est possible de trouver des valeurs de limites d'inflammabilité en fonction de la température initiale dans la littérature. Toutes les valeurs des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, pour des températures initiales supérieures à 298 K, trouvées dans la littérature, ainsi que les valeurs déterminées dans cette étude expérimentale, sont récapitulées dans le Tableau 16.

<b>T<sub>ini</sub> (K)</b>	<b>P<sub>ini</sub> (bar)</b>	<b>LII (%mol)</b>	<b>LIS (%mol)</b>	<b>Référence</b>
296 ± 1,43	1	6,27 ± 0,46	72,37 ± 0,61	Ce travail
298	1	5,6	/	Shang et al. [279]
298	1	5,6	73,6	Kilchyk [285]
303	1	9,5	76,1	Jiao et al. [128]
323	1	5,2	/	Shang et al. [279]
363	1	5,80 ± 0,60	/	Ce travail
373	1	4,6	/	Shang et al. [279]
393	1	6,9	80,1	Jiao et al. [128]
423	1	5	78,3	Kilchyk [285]
423	1	4,0	/	Shang et al. [279]
473	1	3,4	/	Shang et al. [279]
573	1	3,5	80,4	Kilchyk [285]

Tableau 16 – Comparaison des valeurs déterminées expérimentalement au cours de ce travail avec les valeurs trouvées dans la littérature en fonction de la température initiale.

La Figure 62 présente cette comparaison sous forme de graphique, pour les limites d'inflammabilité inférieures. Dans le cas des limites d'inflammabilité déterminées lors de cette étude, l'intervalle de confiance à 95% a été tracé également dans le but de déterminer où se placent les valeurs trouvées dans la littérature par rapport à cet intervalle.

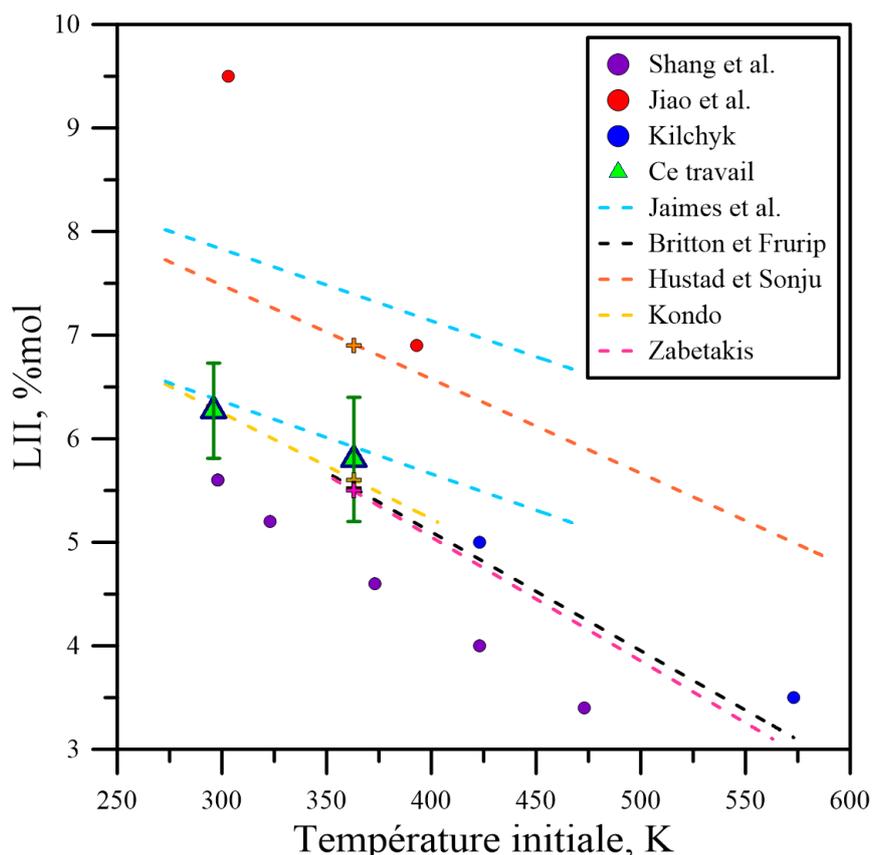


Figure 62 – Comparaison des valeurs des limites d'inflammabilité inférieures, en fonction de la température initiale, trouvées dans la littérature avec les valeurs déterminées expérimentalement au cours de cette étude.

En s'intéressant de plus près aux valeurs des limites d'inflammabilité inférieures, il est possible de remarquer qu'il y a une quantité importante de données dans la littérature concernant l'influence de la température initiale sur ces limites. Comme cela a été énoncé précédemment, la limite d'inflammabilité inférieure a une tendance décroissante linéaire en fonction de la température initiale. Concernant les différentes corrélations trouvées dans la littérature, il est possible de voir qu'il y a quelques divergences, notamment lorsque la température initiale augmente. La corrélation qui diverge le plus du comportement des résultats expérimentaux déterminés lors de ce travail est celle déterminée par Hustad et Sønju [121]. En effet, la valeur déterminée expérimentalement pour une température initiale de 363 K se trouve comprise, en tenant compte de l'intervalle de confiance à 95%, dans l'intervalle prévu par Jaimes et al. [120]. De plus, les corrélations prévues par Zabetakis [64], Kondo [119] et Britton et Frurip [118] prédisent avec précision cette valeur déterminée expérimentalement. En effet, les trois valeurs se trouvent dans l'intervalle de confiance à 95% de la valeur expérimentale. Les trois corrélations sont très proches sur l'intervalle étudié, et semblent compléter correctement les deux plages de température suivantes : température inférieure à 373 K (Kondo [119]) et température supérieure à 373 K (Zabetakis [64] et Britton et Frurip [118]). Les valeurs déterminées expérimentalement par Kilchyk [285] semblent être également en accord avec ces trois corrélations et avec la tendance suivie par les valeurs expérimentales déterminées lors de cette étude pour une température initiale supérieure à 373 K. Concernant la corrélation déterminée par Hustad et Sønju, la tendance semble être la même, mais avec des valeurs de LII plus importantes. En effet, pour une température initiale de 363 K, la valeur prévue est 1,1% plus élevée que la valeur expérimentale. Les valeurs déterminées par Jiao et al. [128] semblent être trop élevées par rapport à toutes les autres valeurs, de la littérature et expérimentales. De plus, la tendance suivie par ces résultats ne semble pas coller aux tendances trouvées dans la littérature. De même, les valeurs expérimentales déterminées par Shang et al. [279] semblent sous-estimer la valeur de la LII pour l'intervalle de température étudié. En conclusion, l'augmentation de la température initiale entraîne une diminution linéaire de la valeur de la limite

d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. Les trois corrélations décrites par Zabetakis [64], Kondo [119] et Britton et Frurip [118], ainsi que les résultats expérimentaux déterminés par Kilchyk [285], sont celles qui sont le mieux en accord avec les résultats expérimentaux déterminés lors de cette étude, et permettent de décrire l'influence de la température initiale sur la limite d'inflammabilité inférieure.

#### 1.2.4. Atmosphère appauvrie en oxygène

La quatrième et dernière étude consiste à déterminer le domaine d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> pour une atmosphère appauvrie en oxygène. Le rapport d'oxygène sur azote étudié équivaut à 0,11. Pour avoir un ordre de grandeur, il faut savoir que ce même rapport pour l'air équivaut à 0,264. Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Forme géométrique des électrodes : *Pointe – Pointe*
- Distance inter-électrodes : 3 mm
- Énergie d'inflammation : 265 ± 38 mJ
- Température initiale : 294,9 ± 1,46 K
- Pression initiale : 1,008 ± 0,006 bar

L'atmosphère appauvrie en oxygène est créée en rajoutant un surplus d'azote dans le mélange contenant de l'air. En effet, la même méthode des pressions partielles (cf. Chapitre 2 – partie 1.2.1.2) a été utilisée, en introduisant dans un premier temps le mélange combustible, à savoir H<sub>2</sub>/CO, puis de l'air (ayant un rapport d'oxygène sur azote « normal » de 0,264), et finalement de l'azote pur. Il s'agit donc d'une dilution à l'azote, telle que le rapport d'oxygène par rapport à celui-ci dans le mélange soit de 0,11.

Les domaines d'inflammabilité (composés par la LII, cf. Figure 63 (a), et la LIS, cf. Figure 63 (b)) obtenus pour le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air et pour les deux rapports d'oxygène sur azote étudiés (0,11 ; et 0,264) sont présentés sur la Figure 63.

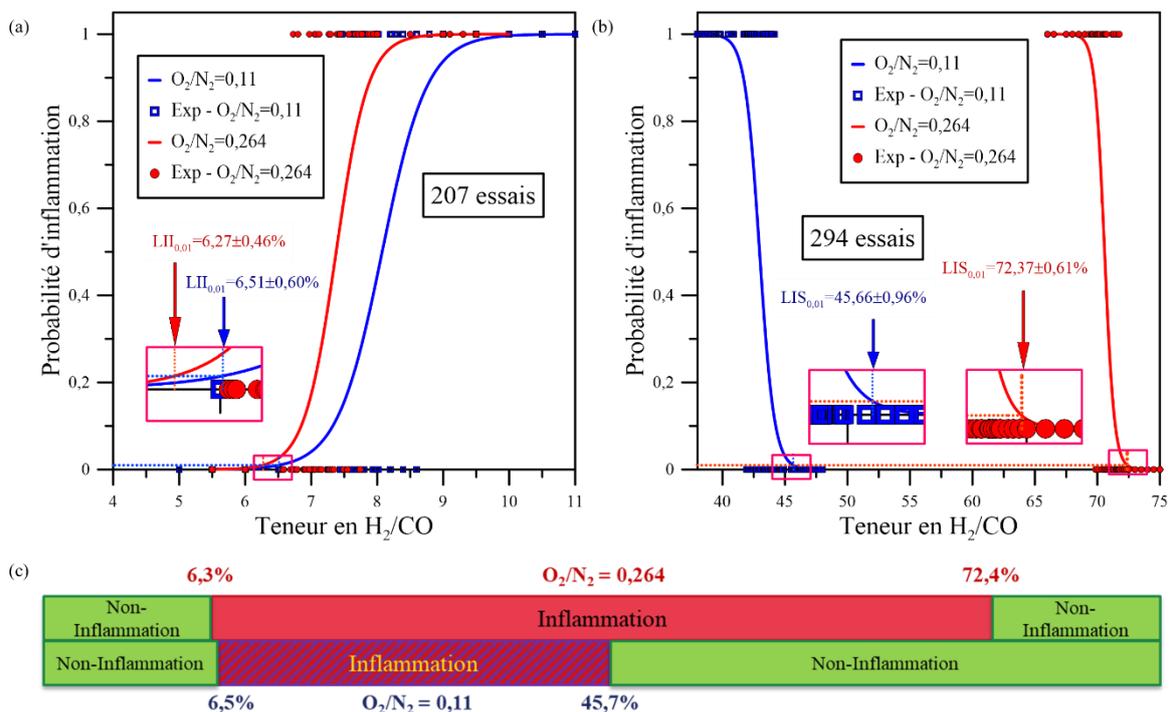


Figure 63 – Comparaison des domaines d'inflammabilité du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> déterminés pour les deux rapports oxygène sur azote étudiés (0,11 ; et 0,264) et pour P<sub>ini</sub> = 1,008±0,006 bar ; T<sub>ini</sub> = 294,9±1,46 K ; et E<sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ. (a) : Limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Limites d'inflammabilité supérieures. (c) : Domaines d'inflammabilité complets.

Un appauvrissement en oxygène de l'atmosphère pour un mélange  $H_2/CO$ , entraîne une légère augmentation de la LII. Cependant, cette variation n'est pas très importante. En effet, la valeur de la LII déterminée pour un rapport de 0,264 correspondant à l'air « normal » est moins élevée que cette même valeur pour un rapport de 0,11 correspondant à une atmosphère appauvrie en oxygène. L'écart absolu entre ces deux valeurs pour les deux rapports étudiés est de 0,24%. Cet écart est négligeable, et il est possible d'affirmer que l'appauvrissement en oxygène n'a pas d'influence sur la limite d'inflammabilité inférieure. Cependant, concernant la LIS, l'appauvrissement en oxygène entraîne une diminution très conséquente de la valeur de celle-ci. L'écart absolu entre ces deux valeurs pour les deux rapports étudiés est de 26,7%. Cet écart est très significatif, et il est possible d'affirmer que l'appauvrissement en oxygène a une réelle influence sur la limite d'inflammabilité supérieure.

Par conséquent, le domaine d'inflammabilité est largement réduit lorsque l'atmosphère est appauvrie en oxygène. En effet, lorsque le rapport d'oxygène sur l'azote passe de 0,264 (rapport correspondant à l'air « normal ») à 0,11 (atmosphère appauvrie en oxygène), le domaine d'inflammabilité du mélange  $H_2/CO$  est 26,1% moins étendu.

Une comparaison visuelle de la propagation du front de flamme dans l'enceinte pour une atmosphère appauvrie en oxygène, ainsi que pour l'air « normal », est proposée sur la Figure 64.

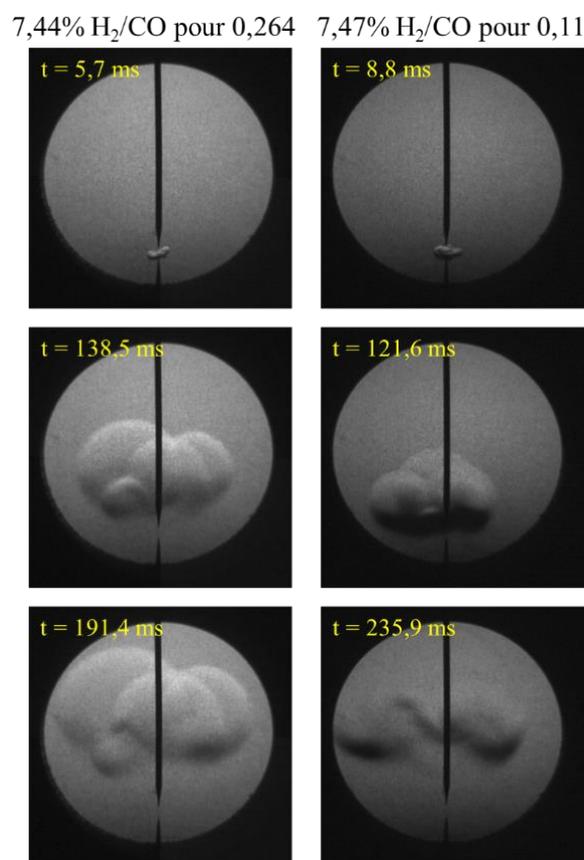


Figure 64 – Comparaison visuelle de la propagation du front de flamme du mélange  $\{50\%H_2+50\%CO\}/Air$  dans l'enceinte pour deux rapports d'oxygène sur azote étudiés : 0,264 (air « normal ») et 0,11 (atmosphère appauvrie en oxygène) et pour  $P_{ini} = 1,008 \pm 0,006$  bar ;  $T_{ini} = 294,9 \pm 1,46$  K ; et  $E_{inflammation} = 265 \pm 38$  mJ.

Dans le but de comparer la propagation du front de flamme, deux flammes ayant une composition initiale comparable et aux deux rapports étudiés ont été examinées. Tout d'abord, il est observé que l'appauvrissement en oxygène ne semble pas influencer la propagation spatiale du front de flamme à l'intérieur de l'enceinte expérimentale. En effet, dans les deux cas, le front de flamme a une forme de « champignon », et plusieurs plis sont visibles sur la flamme. Enfin, il est à noter que le

développement et la propagation de la flamme sont significativement plus lents lorsque l'atmosphère est appauvrie en oxygène.

Le Tableau 17 présente les pressions maximales de combustion obtenues à l'intérieur de l'enceinte expérimentale, ainsi que le délai pour lequel la pression maximale est atteinte.

$H_2/CO$ (%mol) / $\frac{O_2}{N_2}$	<b>7,44±0,15% / 0,264</b>	<b>7,47±0,15% / 0,11</b>
$P_{max}$ (bar)	1,088	1,084
$t_{P_{max}}$ (s)	0,69	0,65

Tableau 17 – Comparaison des pressions maximales et des temps nécessaires pour les atteindre pour les deux rapports d'oxygène sur azote étudiés, et pour une même composition initiale du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air.

L'appauvrissement de l'atmosphère en oxygène n'a pas d'influence sur la pression maximale atteinte dans l'enceinte ni sur le délai pour lequel la pression maximale est atteinte. En effet, il est possible de conclure sur le fait que dans le cadre de l'étude des limites d'inflammabilité inférieures, l'appauvrissement en oxygène de l'atmosphère n'a aucune influence sur la valeur de la LII en elle-même, ou sur la propagation du front de flamme aux teneurs proches de ces limites. Effectivement, lorsque l'étude se concentre sur la limite d'inflammabilité inférieure, le combustible est le composant limitant, tandis que l'air (et donc l'oxygène qu'il contient) est en excès. En diluant l'atmosphère avec de l'azote, ce qui appauvrit l'atmosphère en oxygène, il y a moins d'oxygène disponible pour réagir avec le combustible. Cependant, étant donné que le comburant est en excès, tant qu'il reste suffisamment d'oxygène pour allumer le mélange, cette dilution n'aura aucun effet sur cette limite. En d'autres termes, la dilution de l'atmosphère en oxygène n'affectera pas la limite d'inflammabilité inférieure, car le comburant est toujours en quantité suffisante pour soutenir une combustion autoentretenu, à condition qu'il y ait assez d'oxygène pour initier la réaction.

Ainsi, il est possible de définir une teneur en oxygène particulière : la Limiting Oxygen Concentration (ou LOC). La LOC est la teneur minimale en oxygène nécessaire pour qu'un mélange combustible puisse s'allumer. La corrélation utilisée lors de cette étude pour déterminer la teneur minimale en oxygène à respecter est la corrélation déterminée par Grune et al. [150], et elle est donnée par :

$$[x_{O_2} - 3] * [x_{CO} + x_{H_2} - 10] = 4 \quad (68)$$

Avec,  $x_{O_2}$ ,  $x_{CO}$ , et  $x_{H_2}$  les teneurs en O<sub>2</sub>, en CO, et en H<sub>2</sub> respectivement dans le mélange combustible en % mol. En fixant les valeurs des teneurs en H<sub>2</sub> et en CO, il est possible d'obtenir la valeur de la teneur minimale en O<sub>2</sub> qui doit être présente dans le mélange pour que celui-ci soit inflammable. Cette équation est valable pour des températures initiales comprises entre 25 et 250°C avec une pression atmosphérique de 1 bar. Lorsque la partie gauche de l'équation est inférieure à 4, la teneur en oxygène ne sera pas suffisante pour allumer le mélange. Cette inéquation peut être résolue en fonction de deux intervalles de teneur en H<sub>2</sub>/CO différents. Les valeurs de la LII et de la LIS à 1 bar et 298 K valent : LII = 6,27% et LIS = 72,37%. Le premier intervalle est défini comme suit : [6,27, 10[% et le deuxième ]10, 72,37]%. Concernant le premier intervalle, ce sont notamment des mélanges pauvres proches de la limite d'inflammabilité inférieure. Parler de LOC dans ce cas n'a pas vraiment de sens car l'air, et donc l'oxygène, est en excès, et c'est le mélange H<sub>2</sub>/CO qui sera limitant. Concernant le deuxième intervalle, la Figure 65 montre l'évolution de la LOC en fonction de la teneur en H<sub>2</sub>/CO dans le mélange.

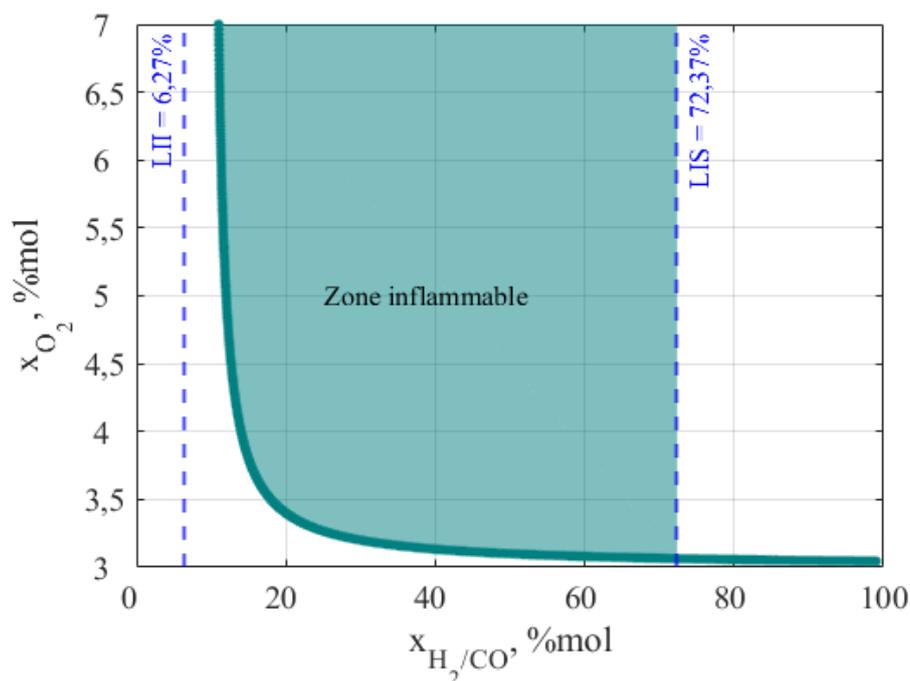


Figure 65 – Évolution de la LOC en fonction de la teneur en H<sub>2</sub>/CO dans le mélange {50%H<sub>2</sub>+50%CO}/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>.

La zone verte correspond à la zone inflammable, pour laquelle la teneur en oxygène dans le mélange est suffisante pour ne pas limiter l'allumage, et donc modifier la valeur de la limite d'inflammabilité supérieure. Pour des teneurs en H<sub>2</sub>/CO comprises entre 17% et 72,37% (valeur de la LIS), la LOC est comprise entre 3% et 3,5% de O<sub>2</sub> dans le mélange. Pour des teneurs en H<sub>2</sub>/CO comprises entre 10% et 11%, déterminer la LOC à partir de l'équation (68) n'a pas de sens car la valeur de la LOC est asymptotique et elle tend vers l'infini. Ceci correspond donc à une limite de cette équation.

D'après Grune et al. [150], la teneur minimale en oxygène, pour qu'un mélange 50% H<sub>2</sub> + 50% CO puisse s'allumer, est comprise entre 3% et 3,5%. Cette valeur est en accord avec les résultats déterminés par Van den Schoor [133]. En effet, ils ont déterminé la LOC pour un mélange 44%H<sub>2</sub>/56%CO. D'après leur étude la LOC calculée vaut 3%, et la LOC déterminée expérimentalement est de  $4,18 \pm 0,08\%$ . Or, lors de cette étude expérimentale, la valeur du rapport entre l'oxygène et l'azote choisi est de 0,11. Celui-ci correspond à une teneur en oxygène de 8,70% (en considérant une teneur en azote constante, égale à 79,1%, correspondant à l'air « normal »). Cette teneur étant largement supérieure à la LOC, l'appauvrissement en oxygène ne peut avoir de réelle influence sur la limite d'inflammabilité supérieure.

La Figure 66 compare deux pressions de combustion en fonction du temps pour les deux rapports d'oxygène sur azote étudiés et pour une composition initiale du mélange proche de la limite d'inflammabilité dans les deux cas, dans le cadre de l'étude des limites d'inflammabilité supérieures.

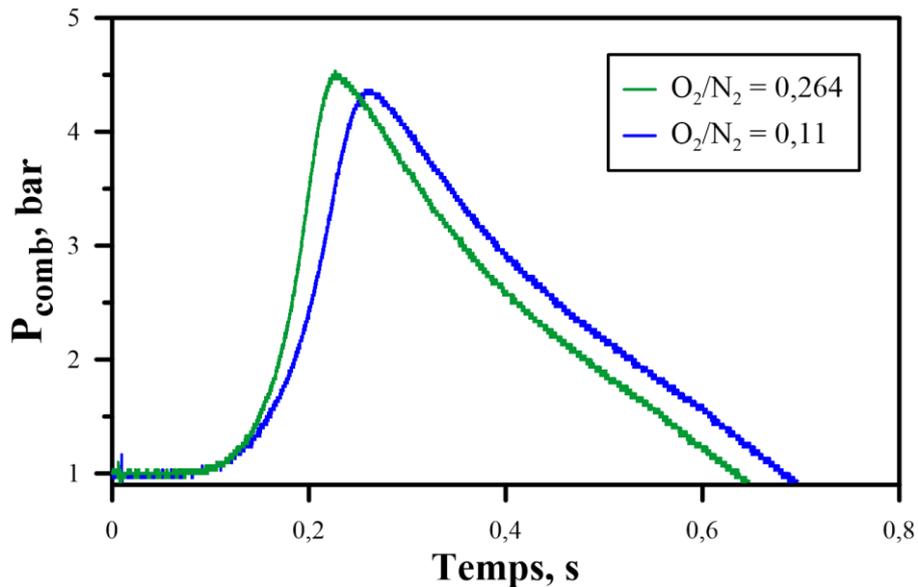


Figure 66 – Comparaison des pressions de combustion en fonction du temps pour les deux rapports d'oxygène sur azote étudiés et pour une composition initiale du mélange {50% $H_2$ +50% $CO$ }/Air proche de la limite d'inflammabilité dans les deux cas.

La valeur de la limite d'inflammabilité supérieure est divisée quasiment par deux. Cette variation significative rend difficile la comparaison des deux pressions de combustion en fonction du temps à une même composition initiale pour les deux rapports étudiés. La composition initiale a été choisie telle qu'elle se trouve proche de la limite d'inflammabilité supérieure. Contrairement à la LII (cf. Tableau 17), l'appauvrissement en oxygène semble avoir une influence sur la valeur de la pression maximale atteinte dans l'enceinte, et sur le délai pour lequel la pression maximale est atteinte. La première conclusion qu'il est possible de tirer de cette comparaison, est que la valeur de la pression maximale de combustion atteinte dans l'enceinte diminue pour une atmosphère appauvrie en oxygène. Cette diminution est assez légère, en effet, pour une atmosphère appauvrie en oxygène, la pression maximale est de 4,37 bars, alors que pour l'air « normal », la pression maximale est de 4,52 bars. Cependant, il est intéressant de noter que le temps nécessaire pour atteindre cette pression maximale reste inchangé lorsque l'atmosphère s'appauvrit en oxygène. Dans le premier cas, la pression maximale est atteinte 0,26 seconde après l'allumage, tandis que dans le deuxième cas, elle est atteinte 0,23 seconde après l'allumage. Ainsi, bien que la composition de l'atmosphère puisse varier, le temps nécessaire pour atteindre la pression maximale semble rester constant, ce qui suggère une certaine régularité dans le processus de combustion.

La Figure 67 présente le rapport entre la pression maximale de combustion et la  $P_{AICC}$  pour les deux rapports d'oxygène sur azote étudiés en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LII (cf. Figure 67 (a)) d'une part et pour la LIS (cf. Figure 67 (b)) d'une autre. Elle présente également la tendance du temps requis pour atteindre la pression maximale à l'intérieur de l'enceinte pour les deux rapports étudiés en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  dans le mélange, pour la LII (cf. Figure 67 (c)), et pour la LIS (cf. Figure 67 (d)).

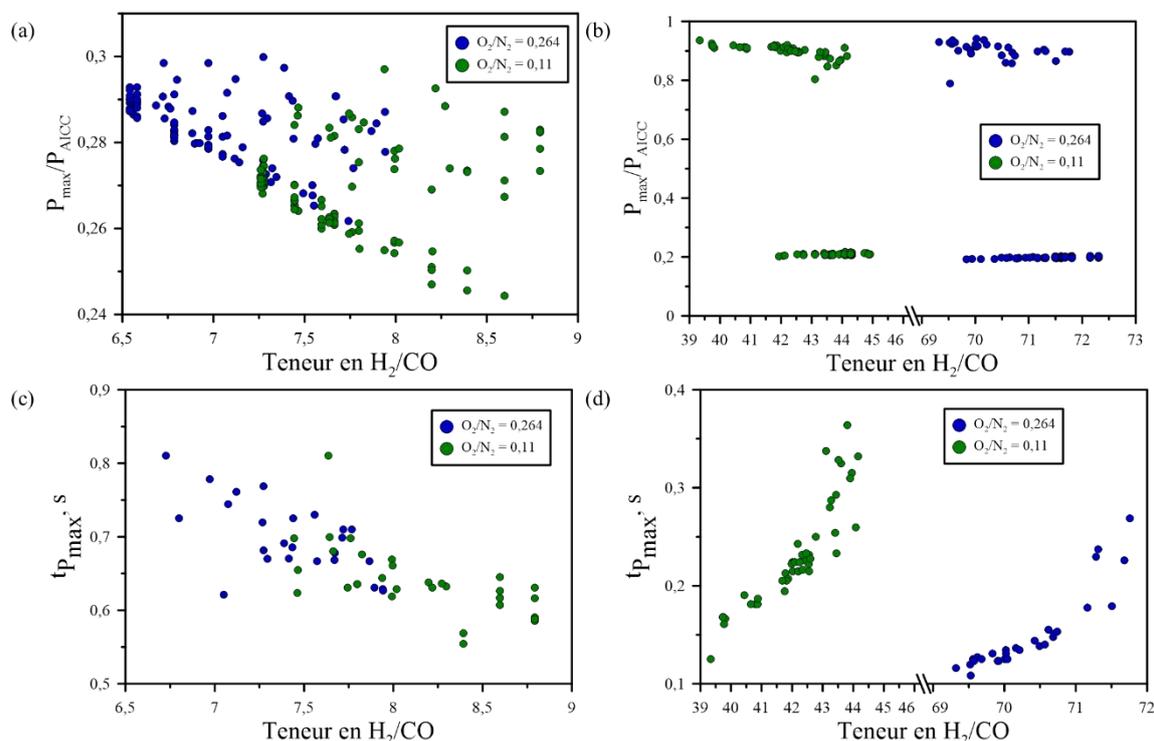


Figure 67 – Comparaison des rapports de la pression maximale sur la  $P_{AICC}$ , et du temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion, en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  dans le mélange  $\{50\% H_2+50\% CO\}/Air$  pour les deux rapports d'oxygène sur azote étudiés et pour  $P_{ini} = 1,008 \pm 0,006$  bar ;  $T_{ini} = 294,9 \pm 1,46$  K ; et  $E_{inflammation} = 265 \pm 38$  mJ. (a) :  $P_{\max}/P_{AICC}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LII. (b) :  $P_{\max}/P_{AICC}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LIS. (c) : Détermination de  $t_{p\max}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LII. (d) : Détermination de  $t_{p\max}$  en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour la LIS.

Concernant la comparaison des rapports de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  pour les deux rapports d'oxygène sur azote étudiés, deux remarques distinctes en découlent. Tout d'abord, pour la LII il est possible de remarquer une tendance commune de ce rapport en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour les deux ratios étudiés. En effet, le rapport de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  diminue, de façon linéaire, en fonction de cette teneur en  $H_2/CO$ , indépendamment de la teneur en oxygène dans le mélange. Concernant la dispersion des points, elle semble être similaire dans les deux cas. Lorsque la teneur initiale en  $H_2/CO$  se rapproche de 6%, la pression maximale de combustion vaut approximativement 30% de la valeur de la  $P_{AICC}$ , alors que cette valeur s'approche plus des 25% lorsque la teneur initiale en  $H_2/CO$  est proche des 9%. D'autre part, pour la LIS, il est possible de remarquer une tendance commune aussi de ce rapport en fonction de la teneur en  $H_2/CO$  pour les deux ratios étudiés. Cette tendance se divise en deux parties distinctes : la première correspondant aux essais où il n'y a pas eu d'allumage, et la deuxième aux essais où il y a eu allumage du mélange combustible. Dans les deux cas, le rapport de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  est constant en fonction de la teneur en  $H_2/CO$ . En effet, dans le cas où il n'y a pas d'allumage, la pression maximale de combustion vaut approximativement 20% de la valeur de la  $P_{AICC}$ , et ce pour les deux ratios étudiés. Pour les essais où il y a allumage du mélange combustible, la pression maximale de combustion vaut approximativement entre 80% et 95% de la valeur de la  $P_{AICC}$ . La dispersion n'est pas très importante dans aucun des deux cas.

Concernant le temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion au sein de l'enceinte expérimentale, deux tendances similaires sont présentes en fonction de la limite regardée. En effet, tout comme pour le rapport d'oxygène sur azote de 0,264, ce temps est réduit lorsque la teneur en  $H_2/CO$  est modifiée de sorte à se rapprocher du domaine des mélanges inflammables. Les raisons ont été présentées dans le Chapitre 3 – partie 1.2.1. Pour la LII, et pour la même composition initiale du mélange, le temps requis pour atteindre la pression maximale de combustion est similaire pour les deux

rapports étudiés. Cette observation suggère que la variation de la composition de l'atmosphère en termes de teneur en oxygène n'a pas d'impact significatif sur le temps nécessaire pour atteindre la pression maximale de combustion dans l'enceinte expérimentale pour des teneurs proches de la LII. Pour la LIS, les deux tendances pour les deux rapports étudiés sont similaires. Cependant, l'augmentation du temps en fonction de la teneur en H<sub>2</sub>/CO est plus raide pour l'atmosphère appauvrie en oxygène que pour l'air « normal ». Ceci peut être dû au fait que dans le cadre de l'étude de la LIS, le composant qui est limitant est l'oxygène. En ayant une atmosphère appauvrie en oxygène, il y a moins d'oxygène pour réagir avec le combustible. Le temps de réaction est donc allongé plus rapidement du fait que le nombre d'interactions entre l'oxygène et le combustible est réduit. Ainsi, il est possible de conclure que la vitesse de propagation de la flamme diminue avec la dilution à l'azote du mélange initial. De plus, pour la LIS l'augmentation de ce temps avec l'augmentation de la teneur en H<sub>2</sub>/CO semble être plus raide pour un mélange plus dilué. Cette observation est cohérente avec l'idée que la diminution de la teneur en oxygène dans le mélange initial réduit la disponibilité d'oxygène nécessaire pour soutenir une combustion complète.

Shebeko et al. [129] ont souligné qu'il existe deux mécanismes de réaction qui sont en concurrence dans la combustion du mélange H<sub>2</sub>/CO/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>. D'une part, si le radical libre HO<sub>2</sub> réagit et génère un radical libre OH, ou un radical libre O, alors la réaction se maintient et poursuit son cours. Cependant, si le radical libre HO<sub>2</sub> réagit et génère de l'oxygène O<sub>2</sub>, la réaction de combustion s'arrête et la propagation de flamme n'a pas lieu. Plusieurs valeurs seuils ont été déterminées dans la littérature. En effet, Wang et al. [152] et Li et al. [155] ont montré que la LII reste constante avec l'augmentation de la teneur en azote lorsque celle-ci est inférieure à 60%. Ceci est dû au fait que l'oxygène est en excès lorsque la teneur en H<sub>2</sub>/CO dans le mélange est proche de la LII. Cependant, lorsque la teneur en azote est supérieure à 60%, la valeur de la LII du mélange H<sub>2</sub>/CO augmente. En effet, comme l'azote ne participe à aucune réaction chimique, il affecte le système de réaction principalement en diluant le mélange combustible. Ces résultats sont en accord avec les résultats déterminés par N'Guessan et al. [286]. En effet, ils ont montré que lorsque la teneur en azote est comprise entre 20% et 80%, la valeur de la LII du mélange H<sub>2</sub>/Air reste inchangée. Lorsque la teneur en azote dépasse les 90%, le mélange ne peut plus s'allumer.

Une comparaison des différentes valeurs déterminées expérimentalement avec les valeurs trouvées dans la littérature est proposée. Toutefois il n'y a pas vraiment de corrélations dans la littérature qui permettent de déterminer les limites d'inflammabilité pour une atmosphère appauvrie en oxygène. Il n'y a pas beaucoup de résultats dans la littérature concernant l'influence de l'appauvrissement en oxygène sur les limites d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. En effet les corrélations existantes tiennent compte de la présence de diluants. Dans le cadre de cette étude, les corrélations en présence de diluant seront donc traitées dans la partie qui traite de l'inertage d'un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique par l'ajout de CO<sub>2</sub> (cf. Chapitre 3 – partie 2). L'ensemble des valeurs des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, pour des rapports d'oxygène sur azote inférieurs au rapport pour l'air « normal » (rapport de 0,264), trouvées dans la littérature, ainsi que les valeurs déterminées dans cette étude expérimentale, sont récapitulées dans le Tableau 18.

$\frac{O_2}{N_2}$	P <sub>ini</sub> (bar)	T <sub>ini</sub> (K)	LII (%mol)	LIS (%mol)	Référence
0,11	1	295	6,51 ± 0,60	45,66 ± 0,98	Ce travail
0,14	1	298	5,22	/	Shang et al. [279]
0,14	1	298	6,00	/	Van den Schoor et al. [133]
0,15	1	298	5,80	18,6	Van den Schoor et al. [133]
0,18	1	298	/	37,2	Van den Schoor et al. [133]
0,20	1	298	5,06	/	Shang et al. [279]

Tableau 18 – Comparaison des valeurs déterminées expérimentalement au cours de ce travail avec les valeurs trouvées dans la littérature en fonction de l'appauvrissement en oxygène de l'atmosphère.

La Figure 68 présente cette comparaison, pour les limites d'inflammabilité inférieures (cf. Figure 68 (a)) et pour les limites d'inflammabilité supérieures (cf. Figure 68 (b)). Dans le cas des limites d'inflammabilité déterminées lors de cette étude, l'intervalle de confiance à 95% a été tracé également dans le but de savoir où se placent les valeurs trouvées dans la littérature par rapport à cet intervalle.

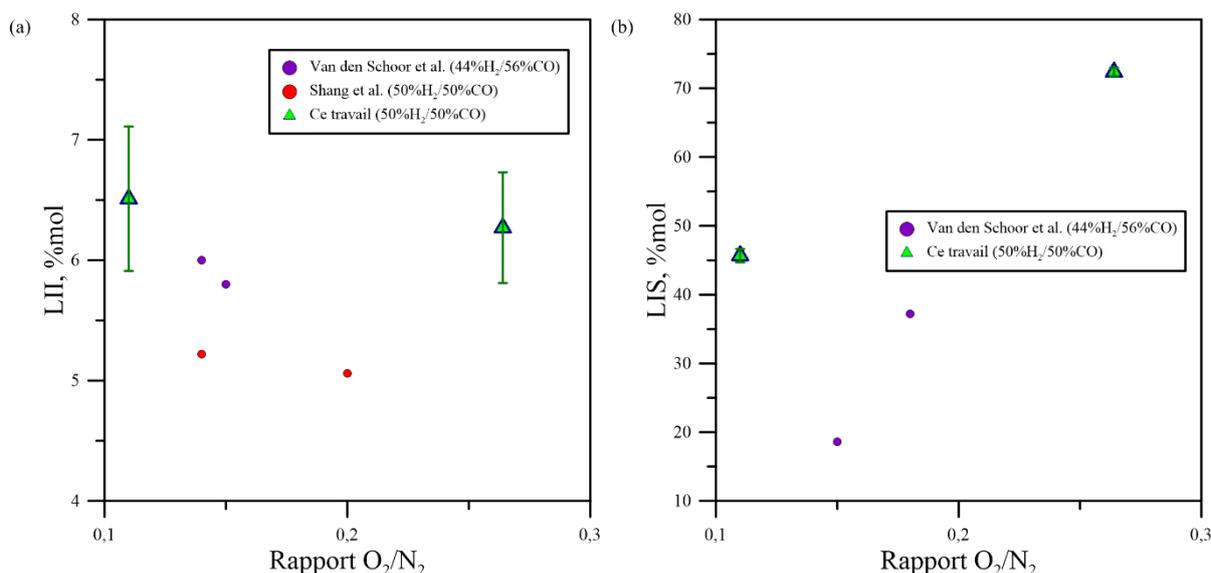


Figure 68 – Comparaison des valeurs des limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, en fonction du rapport d'oxygène sur azote, trouvées dans la littérature avec les valeurs déterminées expérimentalement au cours de cette étude. (a) : Comparaison pour les limites d'inflammabilité inférieures. (b) : Comparaison pour les limites d'inflammabilité supérieures.

La comparaison doit être faite séparément pour les LII et pour les LIS. Effectivement, le premier facteur à prendre en compte est que les résultats déterminés par Van den Schoor et al. [133] ont été obtenus pour un mélange contenant 44% de H<sub>2</sub> et 56% de CO, et non pas pour un mélange 50% H<sub>2</sub>/50% CO. Il est crucial de considérer cette différence de composition lors de la comparaison des différentes valeurs. Concernant les limites d'inflammabilité inférieures, il est possible de voir que les valeurs déterminées expérimentalement lors de cette étude suivent la même tendance que les valeurs trouvées dans la littérature. En effet, tout comme pour les résultats déterminés par Shang et al. [279], les valeurs de la LII déterminées lors de cette étude restent relativement constantes, en ayant une décroissance très légère lorsque le rapport d'oxygène sur azote augmente (donc lorsque la teneur en oxygène augmente, ou la teneur en azote diminue). D'autre part, concernant la LIS, il n'y a pas de résultats dans la littérature déterminant l'influence de l'appauvrissement en oxygène sur cette limite d'inflammabilité pour un mélange 50% H<sub>2</sub>/50% CO. Contrairement à la LII, l'appauvrissement en oxygène de l'atmosphère a une influence non négligeable sur la valeur de la LIS. Les résultats déterminés expérimentalement lors de cette étude suivent la même tendance que les résultats déterminés par Van den Schoor et al. [133]. En effet, dans les deux cas, la valeur de la LIS a une diminution très importante lorsque le rapport étudié diminue. En conclusion, l'appauvrissement en oxygène de l'atmosphère (plusieurs rapports d'oxygène sur azote étudiés : ici 0,11 et 0,264) entraîne une diminution très importante du domaine d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air.

## 2. Cas du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air/CO<sub>2</sub>

La deuxième partie de cette campagne expérimentale porte sur la détermination de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> pour un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique. Contrairement à la partie précédente où l'influence de plusieurs paramètres initiaux (appauvrissement en oxygène de l'atmosphère, pression initiale, et température initiale) sur les limites d'inflammabilité de ce même mélange a été étudiée, la composition initiale du mélange est fixée de telle sorte à avoir un mélange stœchiométrique auquel du

CO<sub>2</sub> sera ajouté. Pour ce faire, le dispositif expérimental utilisé est la bombe sphérique BSI (cf. Chapitre 2 – partie 1.2).

La composition initiale du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air est donc fixée de telle sorte à avoir un mélange stœchiométrique. L'intérêt d'étudier la limite d'inertage pour un mélange stœchiométrique est d'étudier un mélange tel que la probabilité d'inflammation est de 100%, et donc de savoir à quel moment l'ajout de diluant (ici de CO<sub>2</sub>) devient suffisamment important pour que le mélange ne soit plus inflammable. En considérant un mélange 50% H<sub>2</sub>/50% CO dans l'air, les teneurs composant le mélange stœchiométrique sont : 29,5% {50% H<sub>2</sub> + 50% CO} + 70,5% Air. Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Forme géométrique des électrodes : *Pointe – Pointe*
- Distance inter-électrodes : 3 mm
- Énergie d'inflammation : 265 ± 38 mJ
- Température initiale : 295,2 ± 0,92 K
- Pression initiale : 1,005 ± 0,74 bar
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

La limite d'inertage en CO<sub>2</sub> pour un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique, ainsi que l'imagerie rapide associée, sont présentées sur la Figure 69. Cette limite d'inertage (cf. Figure 69 (a)), ainsi que des images (cf. Figure 69 (b)) correspondant à la propagation de ces flammes pour trois teneurs en CO<sub>2</sub>, et donc trois probabilités d'inflammation, différentes, sont données.

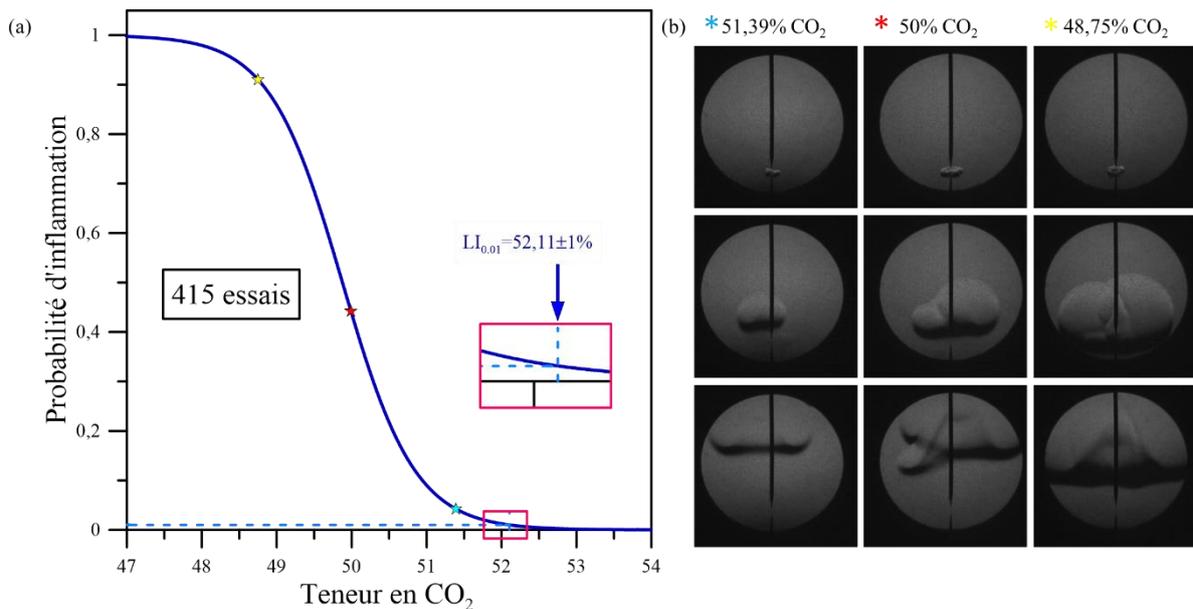


Figure 69 – Limite d'inertage en CO<sub>2</sub> pour un mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air stœchiométrique et pour P<sub>ini</sub> = 1,005±0,74 bar ; T<sub>ini</sub> = 295,2±0,92 K ; et E<sub>inflammation</sub> = 265±38 mJ, et imagerie rapide. (a) : Limite d'inertage en CO<sub>2</sub> pour un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique. (b) : Images correspondant à la propagation d'une flamme H<sub>2</sub>/CO/Air pour trois teneurs en CO<sub>2</sub> différentes, et donc à trois probabilités d'inflammation différentes.

Sur la Figure 69 (b), trois séries d'images sont présentées. Celles-ci correspondent à trois teneurs en CO<sub>2</sub> différentes dans le mélange, correspondant à leur tour à trois probabilités d'inflammation différentes. Le mélange contenant 48,75±0,15% de CO<sub>2</sub> correspond à une probabilité d'inflammation de 91%. Le mélange contenant 49,99±0,15% de CO<sub>2</sub> correspond à une probabilité d'inflammation de 44,2%. Le mélange contenant 51,39±0,15% de CO<sub>2</sub> correspond à une probabilité d'inflammation de 4,23%. Une augmentation de la teneur en CO<sub>2</sub> dans le mélange entraîne une diminution du volume du noyau de la flamme. Dans les trois cas étudiés, la flamme a une propagation ascendante, et une forme

de « champignon ». Cette propagation ascendante est due aux effets de flottabilité. La diminution du volume du noyau de la flamme est due à la diminution du taux de combustion générée par l'augmentation du taux de dilution. Plus le taux de dilution est réduit, plus la combustion tend vers une combustion complète. Donc, lorsque  $52,11 \pm 0,99\%$  de  $\text{CO}_2$  est ajouté au mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  stœchiométrique, la probabilité d'inflammation est de 1%, et le mélange peut être considéré comme inerte. Ainsi, cette méthode semble être adéquate pour limiter l'inflammation de mélanges  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  retrouvés dans une situation de phase tardive d'accident grave dans un REP. En effet, cette limite d'inertage étant valable pour un mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  stœchiométrique, cette même limite pour des teneurs en combustible et en air différentes sera moins élevée. En effet, en prenant une teneur supérieure à 53% en  $\text{CO}_2$  pour diluer le mélange combustible, il sera inerte et le suraccident peut être évité.

Finalement, il est possible de comparer les pressions maximales obtenues à l'intérieur de l'enceinte, ainsi que le délai pour lequel la pression maximale est atteinte. Cette comparaison peut être faite à partir des valeurs données dans le Tableau 19.

$\text{CO}_2$ (%mol)	$48,75 \pm 0,15\%$	$50 \pm 0,15\%$	$51,39 \pm 0,15\%$
$P_{max}$ (bar)	1,52	1,27	1,19
$t_{P_{max}}$ (s)	0,88	0,91	0,94

Tableau 19 – Comparaison des pressions maximales et des temps nécessaires pour les atteindre pour les trois teneurs en  $\text{CO}_2$  étudiées dans le mélange  $\{50\% \text{H}_2 + 50\% \text{CO}\}/\text{Air}/\text{CO}_2$ .

Tout d'abord, il est observé que plus la teneur en  $\text{CO}_2$ , et donc le taux de dilution, dans le mélange initial est élevée, plus la pression maximale de combustion atteinte dans l'enceinte est faible. Cette observation suggère que l'augmentation de la teneur en  $\text{CO}_2$  entraîne une diminution de la disponibilité en oxygène nécessaire pour soutenir une combustion efficace. Par conséquent, la réaction de combustion est moins énergétique, ce qui se traduit par une pression maximale de combustion plus faible. De plus, le temps nécessaire pour atteindre la pression initiale dans l'enceinte est augmenté lui aussi avec l'augmentation de cette teneur en  $\text{CO}_2$ . La consommation des gaz frais est donc ralentie, et par conséquent le front de flamme est moins rapide, et donc la pression maximale est atteinte moins rapidement. En conclusion, moins le taux de dilution est important, plus la combustion du mélange stœchiométrique se rapproche d'une combustion complète.

La comparaison de l'évolution temporelle de la pression de combustion pour trois teneurs initiales différentes proches de la limite d'inertage en  $\text{CO}_2$  est présentée sur la Figure 70.

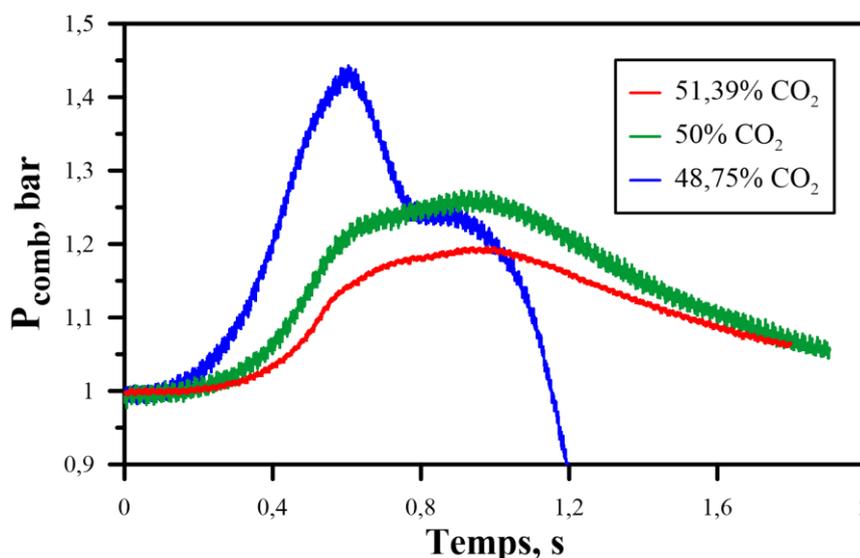


Figure 70 – Comparaison des pressions de combustion en fonction du temps pour les trois teneurs en  $\text{CO}_2$  étudiées.

En réduisant la teneur en  $\text{CO}_2$ , la pression maximale dans l'enceinte expérimentale augmente tandis que le temps nécessaire pour l'atteindre diminue. Cela est dû à une disponibilité accrue d'oxygène favorisant une combustion plus complète et plus rapide. Il est possible de voir que lorsque la teneur en  $\text{CO}_2$  diminue, l'allure de l'évolution de la pression de combustion en fonction du temps se rapproche de plus en plus de la courbe de pression d'une combustion complète (ou d'une combustion proche de la limite d'inflammabilité supérieure). En effet, l'augmentation de la pression dans l'enceinte est plus rapide (pente) lorsque la teneur en  $\text{CO}_2$  est plus basse. De plus, plus la teneur en  $\text{CO}_2$  s'approche de la limite d'inertage, moins les variations de pression maximale et de temps requis pour atteindre cette pression maximale, sont importantes. Il est également possible de voir que pour le mélange contenant 48,75% de  $\text{CO}_2$ , la courbe de la pression de combustion en fonction du temps peut être décrite en deux temps. Ceci est dû au retour de la flamme. Lorsque celle-ci atteint la partie haute de l'enceinte, le front de flamme interagit avec la paroi de la bombe sphérique et se voit réfléchi vers le bas. Ce phénomène est visible sur la Figure 71.

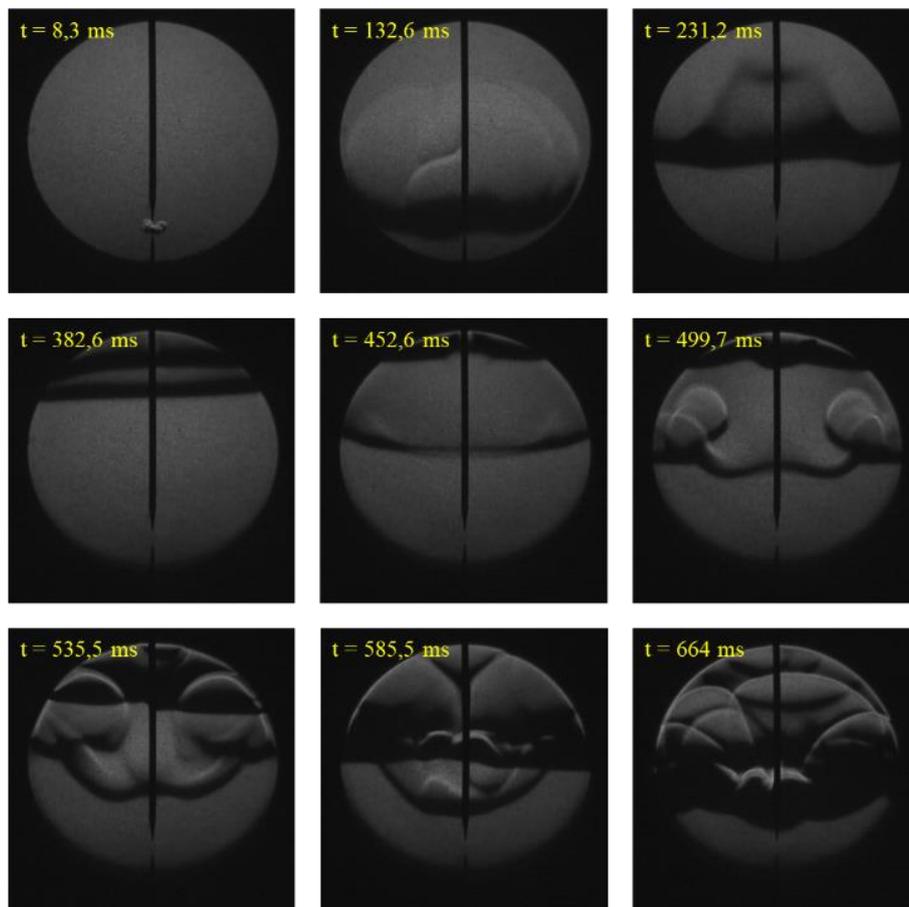


Figure 71 – Propagation d'une flamme  $\{50\%\text{H}_2+50\%\text{CO}\}$ /Air stœchiométrique diluée avec 48,75% de  $\text{CO}_2$  dans la bombe sphérique BSI.

La Figure 71 montre que la flamme se propage dans un premier temps de façon ascendante entre 0 ms et 382,6 ms, ce qui correspond aux quatre premières images sur la figure. Puis, lorsque le noyau de la flamme a atteint la paroi supérieure de la bombe sphérique, il est réfléchi entre 452,6 ms et 499,7 ms, correspondant à la cinquième et sixième image sur la figure. Finalement, le retour de la flamme se produit sur les trois dernières images entre 535,5 ms et 664 ms.

La Figure 72 présente la comparaison entre la  $P_{\text{AICC}}$  et la  $P_{\text{max}}$  en fonction de la teneur en  $\text{CO}_2$  dans le mélange pour la limite d'inertage (cf. Figure 72 (a)). Elle présente aussi la tendance du temps requis pour atteindre la pression maximale à l'intérieur de l'enceinte en fonction de la teneur en  $\text{CO}_2$ , pour cette limite d'inertage (cf. Figure 72 (b)).

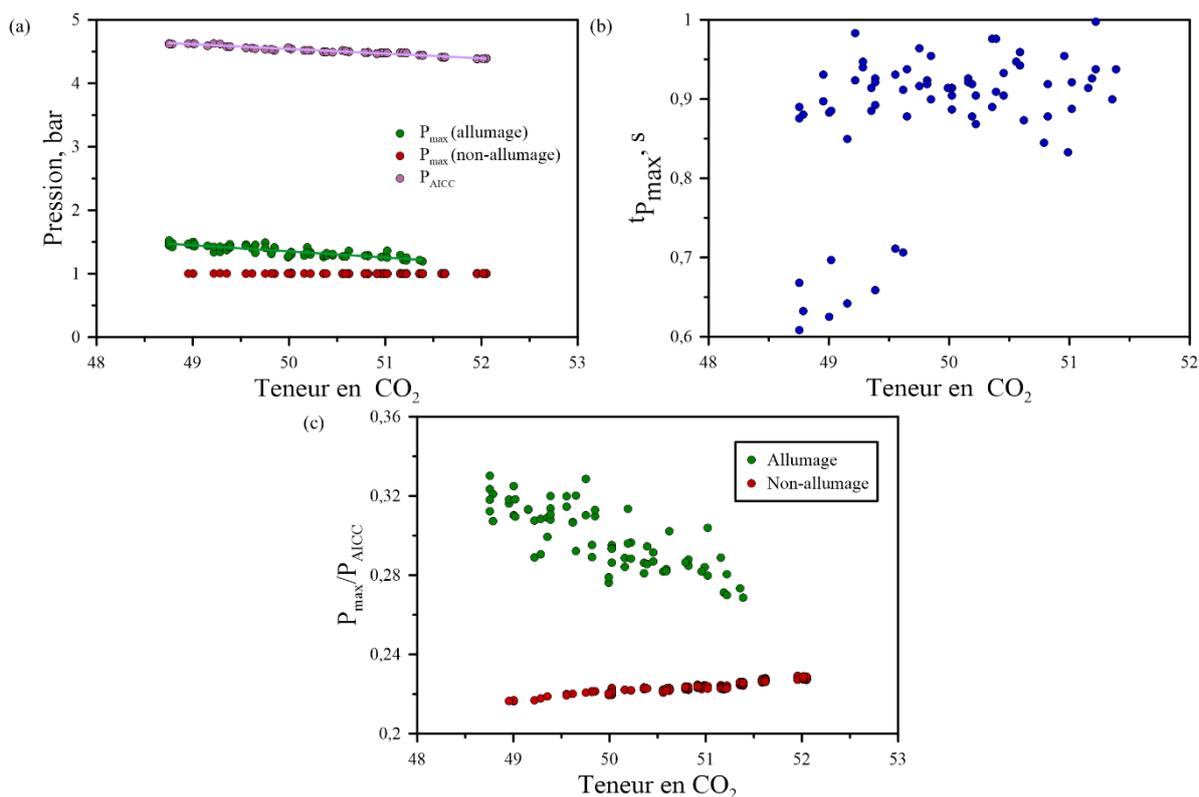


Figure 72 – Comparaison entre la  $P_{AICC}$  et la  $P_{max}$ , et détermination du temps nécessaire à l’obtention de la pression maximale à l’intérieur de l’enceinte en fonction de la teneur en  $CO_2$  dans le mélange  $\{50\%H_2+50\%CO\}/Air/CO_2$  et pour  $P_{ini} = 1,005 \pm 0,74$  bar ;  $T_{ini} = 295,2 \pm 0,92$  K ; et  $E_{inflammation} = 265 \pm 38$  mJ. (a) : Comparaison entre la  $P_{AICC}$  et la  $P_{max}$  en fonction de la teneur en  $CO_2$  pour la limite d’inertage. (b) : Détermination de  $t_{p_{max}}$  en fonction de la teneur en  $CO_2$  pour la limite d’inertage. (c) :  $P_{max}/P_{AICC}$  en fonction de la teneur en  $CO_2$  pour la limite d’inertage.

En comparant la  $P_{AICC}$  (Pression Adiabatique Isochore pour une Combustion Complète) et la pression maximale atteinte dans l’enceinte, une différence notable entre ces deux valeurs est observée. En effet, la pression maximale est presque quatre fois inférieure à la valeur de la  $P_{AICC}$ . De plus, les deux pressions ont tendance à diminuer avec l’augmentation de la teneur en  $CO_2$ . Le comportement de ces deux pressions est similaire à celui remarqué lors de l’étude de l’influence des différents paramètres thermodynamiques initiaux sur les limites d’inflammabilité supérieures. La seule différence vient de la valeur de la pression maximale atteinte. En effet, dans le premier cas, cette pression maximale est proche de la valeur de la  $P_{AICC}$ , ce qui n’est pas le cas ici. Concernant le rapport de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$ , il est possible de voir qu’il a une décroissance linéaire pour les essais où il y a eu allumage du mélange, et une très légère croissance pour les essais où il n’y a pas eu d’allumage du mélange. La dispersion des points n’est pas très importante. Lorsque la teneur en  $CO_2$  se rapproche de 49%, la pression maximale de combustion vaut approximativement 32% de la valeur de la  $P_{AICC}$ , alors que cette même valeur s’approche plus des 26% lorsque la teneur initiale en  $CO_2$  est proche des 52%. Lorsqu’il n’y a pas allumage du mélange, la pression maximale vaut approximativement 22% de la valeur de la  $P_{AICC}$ . Les ordres de grandeur de ce rapport de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  se rapprochent plus des ordres de grandeur retrouvés lors de l’étude des LII que lors de l’étude des LIS.

Concernant le temps requis pour atteindre la pression maximale au sein de l’enceinte expérimentale, il est possible de voir que celui-ci suit une tendance relativement constante sur l’intervalle de dilution en  $CO_2$  étudié. La dispersion des points est cependant très importante, notamment lorsque la teneur en  $CO_2$  est moins importante. La deuxième remarque qu’il est possible de faire à partir de ces résultats est que le front de flamme est beaucoup moins rapide que lors des parties précédentes. En effet, le temps requis pour atteindre la pression maximale au sein de l’enceinte expérimentale est de

l'ordre de 1 seconde, contre 0,4 seconde lors de l'étude des LIS et 0,8-0,9 seconde lors de l'étude des LII. En effet, la diminution de la vitesse de combustion laminaire avec l'ajout de CO<sub>2</sub> dans le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air a été étudiée par Li et al. [281]. Ils ont déterminé que la diminution de la vitesse de combustion du mélange avec l'augmentation de la teneur en CO<sub>2</sub> est due à une diminution de la température de la flamme, une diminution de la fraction molaire des radicaux actifs, et à une diminution de la diffusivité thermique. En effet, la fraction molaire maximale des radicaux OH, H et O diminue de façon monotone avec l'augmentation de la teneur en CO<sub>2</sub>. De plus, l'effet de déstabilisation de l'instabilité hydrodynamique diminue progressivement, et celui de l'instabilité thermo-diffusive augmente de façon monotone, avec l'augmentation de la teneur en CO<sub>2</sub>. Finalement, l'effet chimique du CO<sub>2</sub> sur le mélange est le plus important pour un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique, comme c'est le cas dans cette étude.

La dilution dans le mélange modifiera ses propriétés de combustion, en réduisant son intensité. Il s'agit d'une méthode efficace de contrôle de la combustion des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air qui peut se révéler très intéressante dans le cadre d'un accident dans un REP. La détermination de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> revêt un intérêt crucial dans la réduction des risques de suraccident en rendant le mélange combustible inerte. Cela permet d'éviter toute propagation de flamme, garantissant ainsi une meilleure sécurité dans les installations industrielles ou les centrales nucléaires en cas de situation critique. Le point d'inertage est défini comme étant la teneur en diluant au-dessus de laquelle le mélange n'est plus inflammable [154]. Tout comme Li et al. [281], Liu et al. [287] ont remarqué que la température de flamme est significativement plus basse lorsque la dilution du mélange se fait avec du CO<sub>2</sub> que lorsqu'elle se fait avec du N<sub>2</sub>. En effet, ceci peut être expliqué par le fait que la dilution au CO<sub>2</sub> ne favorise pas la réaction exothermique d'oxydation du CO, ce qui réduit l'intensité de la réaction, le taux de réactions chimiques, et donc la température de la flamme. Ceci a pour conséquence une diminution de la vitesse de réaction. De plus, les longueurs de Markstein sont plus importantes lorsque la dilution est faite avec du CO<sub>2</sub> que lorsqu'elle est faite avec du N<sub>2</sub>. Finalement, Li et al. [281] ont montré que le niveau de plissement de la flamme lorsque le mélange combustible est dilué avec du CO<sub>2</sub> est plus élevé que lorsqu'il est dilué avec de l'azote. En particulier, la longueur caractéristique de la structure cellulaire augmente avec l'augmentation de la teneur en CO<sub>2</sub>.

Une comparaison des différentes valeurs déterminées expérimentalement avec les valeurs trouvées, ainsi qu'avec les corrélations données, dans la littérature peut être faite. Pour rappel, deux corrélations dans la littérature permettent de déterminer les limites d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air en présence de diluant. Elles sont données par :

- Kondo et al. [151] :

Kondo et al. [151] ont développé une corrélation permettant de prendre en compte l'ajout de diluants sur les limites d'inflammabilité d'un combustible individuel (donc H<sub>2</sub>/Air ou CO/Air en l'occurrence). Pour cela, ils se sont basés sur les lois de Le Chatelier. Les corrélations sont données par les expressions ci-dessous :

$$\frac{X_1}{LII(diluant)} = \frac{X_1}{LII} + p * X_{in} \quad (18)$$

$$\frac{X_1 * n_1}{100 - \left(\frac{LIS(diluant)}{X_1}\right)} = \frac{X_1 * n_1}{100 - LIS} + q * X_{in} + r * X_{in}^2 + s * X_{in}^3 \quad (19)$$

Avec,  $X_1$  la fraction molaire du combustible individuel étudié,  $LII(diluant)$  et  $LII$  les limites d'inflammabilité inférieures du mélange avec et sans diluant respectivement,  $X_{in}$  la fraction molaire de diluant dans le mélange,  $n_1$  le nombre de moles du combustible individuel étudié dans le mélange (en mol),  $LIS(diluant)$  et  $LIS$  les limites d'inflammabilité supérieures du mélange avec et sans diluant

respectivement, et  $p$ ,  $q$ ,  $r$ , et  $s$  des paramètres expérimentaux à déterminer. Cette corrélation est valable pour une température ambiante, et pour une pression atmosphérique.

Une fois les limites d'inflammabilité des mélanges H<sub>2</sub>/Air et CO/Air, en présence d'un diluant, déterminées à l'aide de cette corrélation, il est possible d'appliquer les lois de Le Chatelier (cf. équation (62)) pour déterminer les limites d'inflammabilité H<sub>2</sub>/CO/Air en présence de ce même diluant. Li et al. [155] ont montré que les lois de Le Chatelier ne sont pas valables dans des conditions de dilution inerte élevées (valeurs supérieures à 70%).

- Wang et al. [152] :

Wang et al. [152] ont développé une corrélation permettant de prendre en compte l'ajout de diluants sur les limites d'inflammabilité inférieures d'un mélange combustible H<sub>2</sub>/CO. Les corrélations sont données par les expressions ci-dessous :

$$[LII]_{\text{diluante } 1} = 0,0013X^2 - 0,2152X + 13,002 \quad (20)$$

$$[LII]_{\text{diluante } 2} = 0,0007X^2 - 0,1488X + 11,485 \quad (21)$$

Avec  $[LII]_{\text{diluante } 1}$  et  $[LII]_{\text{diluante } 2}$  les limites d'inflammabilité inférieures du mélange combustible en fonction des deux dilutions étudiées : 1 – oxygène pur (H<sub>2</sub>/CO/O<sub>2</sub>) ; et 2 – ajout de 20% de H<sub>2</sub>O (H<sub>2</sub>/CO/O<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O), et  $X$  la fraction molaire en hydrogène dans le mélange combustible. Cette corrélation est valable pour des températures initiales comprises entre 25 et 150°C, et pour une pression atmosphérique.

La limite d'inertage en CO<sub>2</sub> sur un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique n'a pas été déterminée expérimentalement dans la littérature. Il n'est donc pas possible de comparer la valeur déterminée expérimentalement lors de cette étude avec des valeurs déterminées par d'autres études.

### 3. Mise en place de corrélations pour la détermination des limites d'inflammabilité

La troisième partie de l'étude des limites d'inflammabilité des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air consiste à établir des corrélations à partir des données expérimentales obtenues et des données de la littérature. Ces corrélations permettent de modéliser et de prédire le comportement des mélanges dans une gamme étendue de conditions. En effet, l'objectif de cette partie de l'étude est d'essayer de mettre en place des corrélations, que ce soit pour la limite d'inflammabilité inférieure, comme pour la limite d'inflammabilité supérieure, permettant de déterminer ces limites en fonction des différents paramètres initiaux. Pour ce faire, il sera établi dans un premier temps deux corrélations permettant de déterminer la limite d'inflammabilité, inférieure et supérieure, en fonction de la pression initiale. Puis, dans un deuxième temps, sera établie une corrélation permettant de déterminer la limite d'inflammabilité inférieure en fonction de la température initiale.

#### 3.1. Corrélations concernant la variation de la pression initiale

La première étape dans la mise en place des corrélations pour déterminer les limites d'inflammabilité en fonction des différents paramètres initiaux consiste à établir des corrélations décrivant la variation de la pression initiale. En effet, trois pressions initiales différentes ont été étudiées expérimentalement pour une température initiale  $T_{\text{ini}}$  de 298 K. Les conditions initiales pour lesquelles les deux corrélations seront valables sont les suivantes :

- Critère d'inflammation : Critère visuel, limites d'inflammabilité à 1%
- Température initiale : 298,15 K
- Pression initiale : 1; 2; et 3,5 bars
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Tout d'abord, comme cela a été observé lors de la partie traitant de l'influence de la variation de la pression initiale sur les limites d'inflammabilité, inférieures et supérieures, du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, il est constaté que ces dernières varient de manière logarithmique avec l'augmentation de la pression initiale. Ainsi, il est possible de caractériser l'influence de la pression initiale par la corrélation suivante :

$$\frac{LI(P_{ini})}{LI(T_0 ; P_0)} = A_1 * \left[ 1 + \ln \left( \frac{P_{ini}}{P_0} \right) \right]^{A_2} \quad (69)$$

Avec,  $LI(P_{ini})$  la limite d'inflammabilité, inférieure ou supérieure, à la pression initiale voulue,  $LI(T_0 ; P_0)$  la limite d'inflammabilité, inférieure ou supérieure, pour des conditions thermodynamiques « standards » ( $T_0 = 298$  K et  $P_0 = 1$  bar),  $A_1$  et  $A_2$  des constantes d'optimisation du calcul,  $P_{ini}$  la pression initiale voulue (en bar), et  $P_0$  la pression de référence (en bar : ici 1 bar). Les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, aux conditions thermodynamiques « standards » ont été déterminées lors de cette étude (cf. Chapitre 3 – partie 1.2.1), et sont égales à :  $LII(T_0 ; P_0) = 6,27 \pm 0,46\%$  et  $LIS(T_0 ; P_0) = 72,37 \pm 0,61\%$ .

Dans le but d'obtenir les deux constantes d'optimisation du calcul  $A_1$  et  $A_2$ , une fonction Matlab ® a été utilisée. Il s'agit d'une fonction d'optimisation non-linéaire permettant de minimiser l'écart entre des valeurs expérimentales déterminées et les valeurs données par la fonction. Ainsi, les valeurs ont été déterminées pour la limite d'inflammabilité inférieure et valent :  $A_1 = 1,0008$  et  $A_2 = 0,1656$ , et pour la limite d'inflammabilité supérieure et valent :  $A_1 = 1,0013$  et  $A_2 = -0,0524$ .

La Figure 73 présente une comparaison entre les résultats, pour la limite d'inflammabilité inférieure (cf. Figure 73 (a)) et la limite d'inflammabilité supérieure (cf. Figure 73 (b)), obtenus à partir des corrélations déterminées ci-dessus et les résultats expérimentaux déterminés au cours de cette étude.

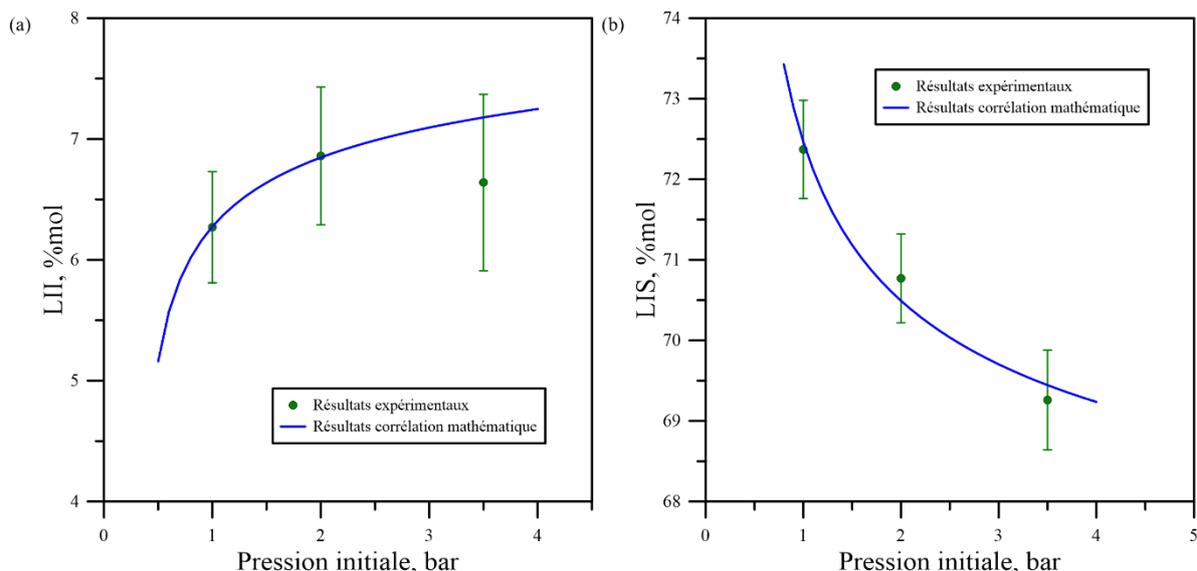


Figure 73 – Comparaison des résultats expérimentaux avec les résultats déterminés à partir des deux corrélations mises en place. (a) : Comparaison pour la limite d'inflammabilité inférieure. (b) : Comparaison pour la limite d'inflammabilité supérieure.

Les deux figures ci-dessus montrent que les deux corrélations déterminées semblent être en accord avec les résultats expérimentaux déterminés au cours de cette étude. La limite d'inflammabilité

inférieure, déterminée à une pression initiale de 3,5 bars, semble être inférieure de ce qu'elle devrait être. Il est donc possible que la vraie valeur se trouve dans la partie haute de son intervalle de confiance à 95%. Ces deux corrélations décrivent correctement le comportement des limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, en fonction de la variation de la pression initiale.

### 3.2. Corrélation concernant la variation de la température initiale

Effectivement, une fois les corrélations établies pour la variation de la pression initiale, la deuxième étape consiste à mettre en place une corrélation décrivant la variation de la température initiale. Cette corrélation permettra de comprendre comment la température initiale influence la limite d'inflammabilité inférieure des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air, offrant ainsi une perspective complète sur les facteurs affectant la combustion dans différentes conditions. Dans ce cas ne sera mise en place qu'une corrélation décrivant le comportement de la limite d'inflammabilité inférieure et non supérieure, car les essais expérimentaux ne concernent que la LII et non pas la LIS. Dans le but de déterminer ces corrélations, plus de deux valeurs expérimentales sont nécessaires. Dans ce cas, étant donné que seuls deux points expérimentaux ont été déterminés au cours de cette étude, les valeurs déterminées par Kilchyk [285], qui semblent suivre la même tendance que celles déterminées ici, seront utilisées pour établir la corrélation. Cela permettra d'élargir la plage de données et de mieux représenter la relation entre la température initiale et la limite d'inflammabilité inférieure des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air. Les conditions initiales pour lesquelles cette corrélation sera valable sont les suivantes :

- Critère d'inflammation : Critère visuel, limites d'inflammabilité à 1%
- Température initiale : 298,15 K et 363,15 K
- Pression initiale : 1 bar
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Tout d'abord, comme cela a été observé lors de la partie traitant de l'influence de la variation de la température initiale sur les limites d'inflammabilité inférieures du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, la plupart des corrélations déterminées dans la littérature proviennent de la loi de Burgess-Wheeler [288]. De plus, l'une des corrélations qui semble être le plus en accord avec les résultats déterminés lors de cette étude est la corrélation de Britton et Frurip [118]. Zlochower [134] a décrit une corrélation pour un mélange d'hydrocarbures dans l'air, qui se rapproche de cette corrélation. À partir de ces deux corrélations, il est possible de caractériser l'influence de la température initiale par la corrélation suivante :

$$\frac{LII(T_{ini})}{LII(T_0; P_0)} = B_1 * \left[ 1 - \frac{T_{ini} - T_0}{T_f - T_0} \right]^{B_2} \quad (70)$$

Avec,  $LII(T_{ini})$  la limite d'inflammabilité inférieure à la température initiale voulue,  $LII(T_0; P_0)$  la limite d'inflammabilité inférieure pour des conditions thermodynamiques « standards » ( $T_0 = 298$  K et  $P_0 = 1$  bar),  $B_1$  et  $B_2$  des constantes d'optimisation du calcul,  $T_{ini}$  la température initiale voulue (en K),  $T_0$  la température de référence (en K : ici 298 K), et  $T_f$  la température adiabatique de flamme (en K). La limite d'inflammabilité inférieure aux conditions thermodynamiques « standards » a été déterminée lors de cette étude (cf. Chapitre 3 – partie 1.2.1), et est égale à :  $LII(T_0; P_0) = 6,27 \pm 0,46\%$ . La température adiabatique de flamme a été déterminée pour un mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air, et pour une température initiale de 298,15 K et une pression initiale de 1 bar, et est égale à :  $T_f = 899,90$  K.

Comme dans le cas précédent, et dans le but d'obtenir les deux constantes d'optimisation de calcul  $B_1$  et  $B_2$ , la même fonction Matlab ® d'optimisation non-linéaire a été utilisée. Ainsi, les valeurs ont été déterminées pour la limite d'inflammabilité inférieure et valent :  $B_1 = 1,0081$  et  $B_2 = 0,9627$ .

La Figure 74 montre une comparaison entre les résultats pour la limite d'inflammabilité inférieure obtenus à partir des corrélations déterminées ci-dessus et les résultats expérimentaux déterminés au cours de cette étude, ainsi que les résultats expérimentaux déterminés par Kilchyk [285].

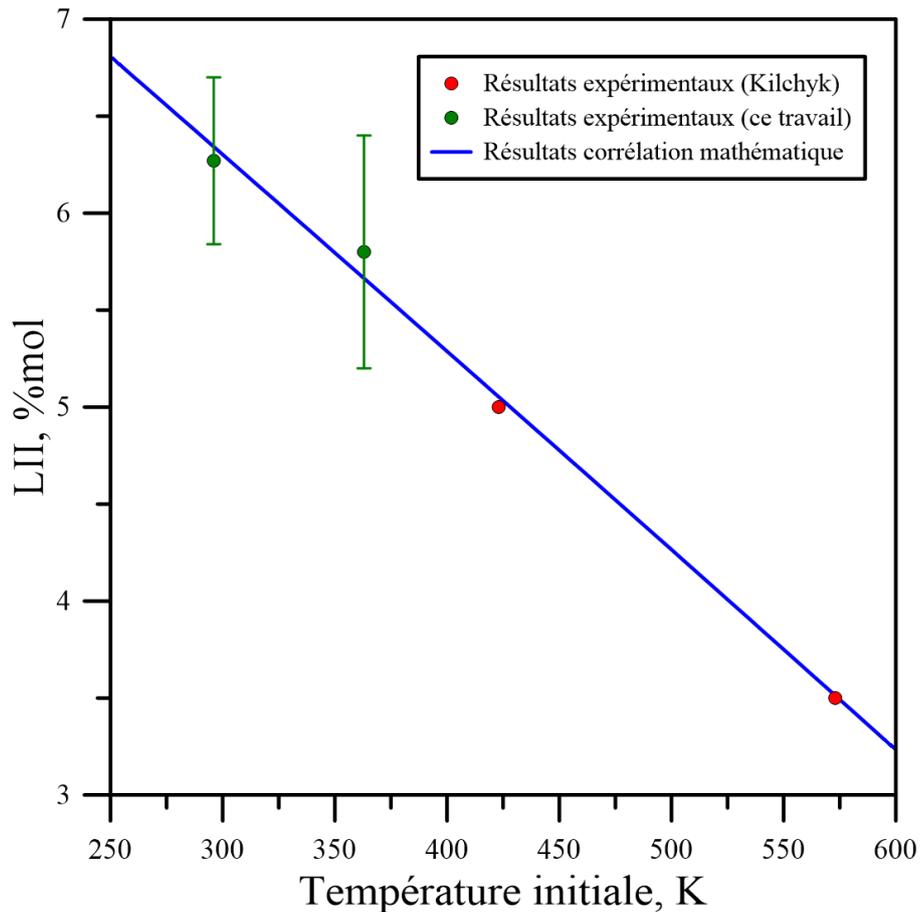


Figure 74 – Comparaison des résultats expérimentaux avec les résultats déterminés à partir des deux corrélations mises en place pour la limite d'inflammabilité inférieure.

La figure ci-dessus montre que la corrélation déterminée semble être en accord avec les résultats expérimentaux déterminés au cours de cette étude qui ont été complétés avec les résultats expérimentaux déterminés par Kilchyk [285]. Cependant, cette corrélation n'est pas en accord avec la valeur expérimentale déterminée par Kilchyk [285] pour une température initiale de 298 K. Malgré cela cette corrélation décrit correctement le comportement de la limite d'inflammabilité inférieure en fonction de la variation de la température initiale.

#### 4. Conclusions sur les résultats expérimentaux concernant les limites d'inflammabilité

Au cours de ce troisième chapitre, les limites d'inflammabilité, à la fois inférieures et supérieures, du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air ont été déterminées en fonction de différents paramètres initiaux. De plus, une deuxième campagne expérimentale a permis de déterminer la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique. Finalement, des corrélations permettant de déterminer l'influence de plusieurs paramètres initiaux, correspondant aux essais expérimentaux réalisés au cours de cette étude, ont été mises en place.

La première phase d'essais porte sur l'exploration de l'impact de la pression initiale, de la température initiale et de l'appauvrissement en oxygène dans l'atmosphère sur les domaines d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. Tout d'abord, et dans le but d'avoir une base de comparaison,

le domaine d'inflammabilité de ce mélange pour des conditions thermodynamiques « standards » a été déterminé. Ces valeurs sont en accord avec les résultats trouvés dans la littérature, et en particulier avec les valeurs déterminées à partir des lois de Le Chatelier (cf. équation (62)). L'étude sur l'influence de la pression initiale, a montré que la valeur de la LII ne se voit pas réellement impactée, alors que la valeur de la LIS diminue, lorsque la pression initiale augmente. Les valeurs déterminées expérimentalement ne sont pas en accord avec les données trouvées dans la littérature, d'où le besoin de la mise en place d'une corrélation traduisant l'influence de la pression initiale sur les valeurs de la LII et de la LIS. De plus, une étude sur l'influence de la température initiale a montré que la valeur de la LII diminue lorsque la température initiale augmente. Les résultats expérimentaux obtenus concordent en partie avec certains des résultats rapportés dans la littérature, ce qui souligne la nécessité de développer une corrélation reflétant l'impact de la température initiale sur les valeurs de la Limite d'Inflammabilité Inférieure (LII). En effet, les données existantes dans la littérature sur l'effet de la température initiale sur la LII varient considérablement. De plus, une analyse de l'effet de la réduction de la teneur en oxygène dans l'atmosphère a révélé que la LII augmente légèrement tandis que la Limite d'Inflammabilité Supérieure (LIS) diminue de manière significative lorsque l'atmosphère est appauvrie en oxygène. Il existe peu de données dans la littérature concernant l'impact spécifique de l'appauvrissement en oxygène du mélange.

La deuxième phase d'essais porte sur la détermination expérimentale de la limite d'inertage en  $\text{CO}_2$  du mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  stœchiométrique. Cette limite vaut :  $52,11 \pm 0,99\%$ . La limite d'inertage en  $\text{CO}_2$  pour un mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  stœchiométrique n'a jamais été établie dans la littérature, et il existe également peu de corrélations à ce sujet. Cette information revêt une importance particulière, étant donné que du  $\text{CO}_2$  est produit lors de la phase tardive d'un accident grave dans un Réacteur à Eau Pressurisée (REP).

Finalement, la dernière partie de ce chapitre est centrée sur la mise en place de corrélations permettant de caractériser l'influence de différents paramètres initiaux, tels que la pression et la température initiales sur les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, du mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$ . D'un côté, deux corrélations ont été établies, l'une pour la limite d'inflammabilité inférieure et l'autre pour la limite d'inflammabilité supérieure, afin de décrire l'effet de la pression initiale sur ces seuils. D'un autre côté, une corrélation a été élaborée pour la limite d'inflammabilité inférieure afin de rendre compte de l'impact de la température initiale sur ce seuil d'inflammabilité.

## Chapitre 4

Résultats expérimentaux sur la propagation de flammes dans  
un tube fermé encombré d'obstacles



Ce quatrième chapitre se concentre sur l'explication détaillée de la campagne expérimentale portant sur l'analyse du comportement des flammes H<sub>2</sub>/CO/Air et H<sub>2</sub>/CO/Air/diluant se propageant dans un tube fermé encombré d'obstacles. Cette campagne expérimentale a été menée dans l'enceinte d'accélération de flamme ENACCEF-II. Il s'articulera autour de 3 grands axes avant de conclure sur les différents résultats expérimentaux concernant cette propagation de flamme. Dans un premier temps, les flammes lentes des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air proches des limites d'inflammabilité inférieures seront étudiées. Dans un deuxième temps, ce sera le tour des flammes lentes proches de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air/CO<sub>2</sub>. Ces deux parties de l'étude traitent de l'influence de plusieurs paramètres initiaux (composition initiale du mélange, pression initiale, température initiale) sur les profils de trajectoire, de vitesse et de pression de ces mélanges. Une troisième partie s'est concentrée sur l'étude de teneurs correspondant à des scénarios extrêmes simulés dans le cadre d'un accident dans un REP, mais pour des questions de confidentialité, les résultats ne seront pas présentés. Finalement, les conclusions concernant les résultats expérimentaux sur les propagations de flammes proches des limites d'inflammabilité et de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> du mélange seront tirées.

## 1. Flammes lentes proches des limites d'inflammabilité

La première partie de cette campagne expérimentale porte sur l'étude de flammes lentes, pour un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, proches des limites d'inflammabilité inférieures. Les teneurs étudiées lors de cette partie correspondent à celles déterminées lors du Chapitre 3. La caractérisation de l'influence de plusieurs paramètres initiaux (composition initiale, pression initiale, température initiale) sur les profils de trajectoire, de vitesse et de pression de ces flammes a été étudiée, avec le dispositif expérimental d'accélération de flamme ENACCEF-II (cf. Chapitre 2 – partie 2.1). Cette section de l'étude a été divisée en plusieurs parties. L'étude sur l'influence de la composition initiale du mélange sur la propagation d'une flamme aux conditions thermodynamiques « standards » est présentée conjointement avec la caractérisation de l'influence de deux paramètres initiaux : pression initiale et température initiale, sur les profils de trajectoire, de vitesse et de pression. Les conditions initiales de pression et de température étudiées sont identiques à celles détaillées dans le Chapitre 3 – partie 1.2.2 et partie 1.2.3. Puis, une caractérisation conjointe de l'influence de la pression et de la température initiales est proposée. Finalement, la caractérisation visuelle de la propagation d'une flamme H<sub>2</sub>/CO/Air dans ENACCEF-II est détaillée. Cette approche vise à déterminer l'impact des différents paramètres initiaux sur la propagation de ces flammes proches des limites d'inflammabilité inférieures. Une analyse des résultats sera effectuée pour chaque partie.

### 1.1. Caractérisation de l'influence de la composition initiale du mélange sur la propagation d'une flamme aux conditions thermodynamiques « standards »

Dans le but d'avoir un point de comparaison, la propagation d'une flamme H<sub>2</sub>/CO/Air aux conditions thermodynamiques « standards » : T<sub>ini</sub> = 298 K et P<sub>ini</sub> = 1 bar, est tout d'abord caractérisée. Les limites d'inflammabilité, inférieure et supérieure, d'un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air pour des conditions thermodynamiques « standards » de 298 K et 1 bar, ont été déterminées dans le Chapitre 3 – partie 1.2.1. Ces limites valent respectivement : 6,27 ± 0,46% et 72,37 ± 0,61%. Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Système d'allumage : Bougie d'allumage
- Pression initiale : 1,004 ± 0,001 bar
- Température initiale : 298,15 ± 1 K
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Les valeurs caractéristiques de ces flammes lentes, proches des limites d'inflammabilité, telles que la trajectoire de la flamme, sa vitesse, et les profils de pression, ont été déterminées par la suite.

Une première série de tests a été réalisée pour un mélange 4% H<sub>2</sub> + 4% CO + 92% Air. La propagation d'une flamme correspondant à cette composition initiale a été un échec lors de trois tentatives. Pour rappel, la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air déterminée avec la bombe sphérique à P<sub>ini</sub> = 1 bar et T<sub>ini</sub> = 298 K est égale à 6,27 ± 0,46% (cf. Chapitre 3 – partie 1.2.1). Donc, le mélange ci-dessus se trouve dans le domaine d'inflammabilité, et devrait donc pouvoir générer la propagation d'une flamme autoentretenue, du moins proche du point d'allumage. Or, il a été observé l'extinction de la flamme avant d'atteindre les obstacles, à cause des turbulences et des pertes de chaleur qui sont trop importantes, laissant penser que la composition du mélange n'est pas suffisante pour s'allumer et générer la propagation d'une flamme autoentretenue. Pour les essais suivants, les teneurs en H<sub>2</sub> et en CO ont été augmentées, tout en gardant la pression totale constante, dans le but d'obtenir une propagation de flamme autoentretenue, mais pour un mélange qui reste proche de la limite d'inflammabilité inférieure. Comme cela a été explicité au Chapitre 2 – partie 2.2.1, la trajectoire de la flamme en fonction du temps est obtenue à partir des signaux des différents photomultiplicateurs placés tout au long d'ENACCEF-II. À partir de ce résultat une nouvelle composition : 4,29% H<sub>2</sub> + 4,28% CO + 91,43% Air a été choisie de telle sorte à être plus élevée que la précédente où la propagation de flamme ne s'est pas produite, mais tout en restant proche de la limite d'inflammabilité inférieure.

Les deux mélanges proches des limites d'inflammabilité qui ont été étudiés sont : 4,29% H<sub>2</sub> + 4,28% CO + 91,43% Air, et 4,73% H<sub>2</sub> + 4,71% CO + 90,56% Air. Chaque mélange correspond à un test, et pour chaque test, 3 essais ont été réalisés. Le Tableau 20 récapitule les conditions expérimentales pour ces deux tests.

Mélange	Essai	P <sub>ini</sub> (bar)	T <sub>ini</sub> (K)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol
<b>Test 1</b>	1	1	298	4,28	4,28
	2	1	298	4,30	4,26
	3	1	298	4,30	4,31
	<b>Moyenne</b>	<b>1</b>	<b>298</b>	<b>4,29</b>	<b>4,28</b>
<b>Test 2</b>	1	1	298	4,72	4,69
	2	1	298	4,75	4,75
	3	1	298	4,72	4,70
	<b>Moyenne</b>	<b>1</b>	<b>298</b>	<b>4,73</b>	<b>4,71</b>

Tableau 20 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude de l'influence de la composition initiale sur la propagation d'une flamme proche de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange {50%H<sub>2</sub>+50%CO}/Air pour des conditions thermodynamiques initiales « standards ».

### 1.1.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse

La première étape de la caractérisation de ces flammes est l'étude de la trajectoire de celles-ci, ainsi que la détermination de leur vitesse de propagation. Comme expliqué lors de la présentation du dispositif expérimental ENACCEF-II (cf. Chapitre 2 – partie 2.2.1), chaque condition initiale est répétée 3 fois pour s'assurer du bon déroulement des expériences et de la répétabilité de la méthode expérimentale. Les deux conditions initiales ont été choisies de telle sorte à être proches de la limite d'inflammabilité inférieure, tout en gardant une richesse du mélange suffisante pour que le mélange s'allume et se propage de manière autoentretenue dans le tube.

- **TEST 1 :**

La première étape dans l'étude de la propagation d'une flamme dans un tube fermé est de caractériser l'homogénéité dans le tube. Pour cela, la Figure 75 présente la répartition de la teneur en hydrogène (cf. Figure 75 (a)) et en monoxyde de carbone (cf. Figure 75 (b)) dans l'enceinte expérimentale au cours des 3 essais composant le Test 1.

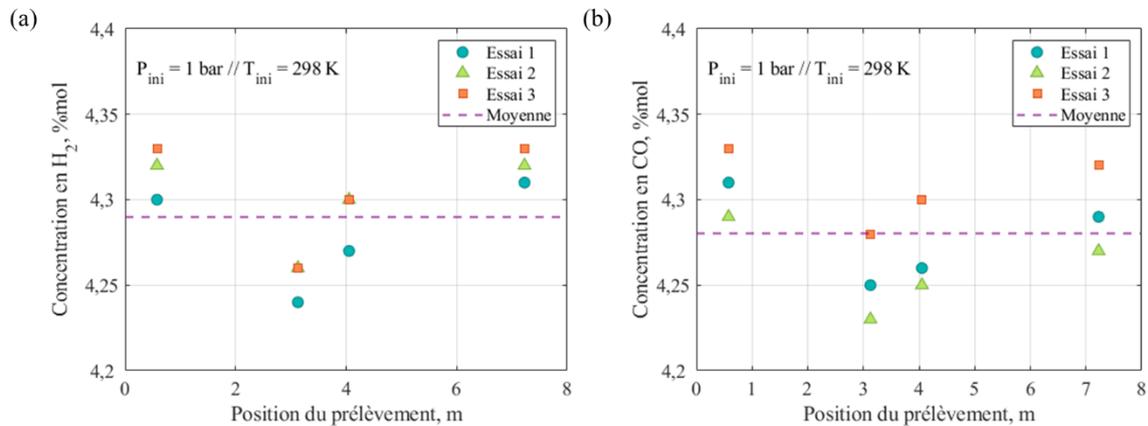


Figure 75 – Teneur en H<sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 1. (a) : Teneur en H<sub>2</sub>. (b) : Teneur en CO.

Une légère dispersion est présente pour les deux éléments composant le mélange combustible. Cependant la dispersion est acceptable vis-à-vis de la marge d'erreur inhérente à la détermination des concentrations par la méthode de chromatographie gazeuse (cf. partie 2.1.2.2). Les rapports H<sub>2</sub>/CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale et pour les 3 essais composant le Test 1, ainsi que pour le mélange moyen, sont donnés sur la Figure 76.

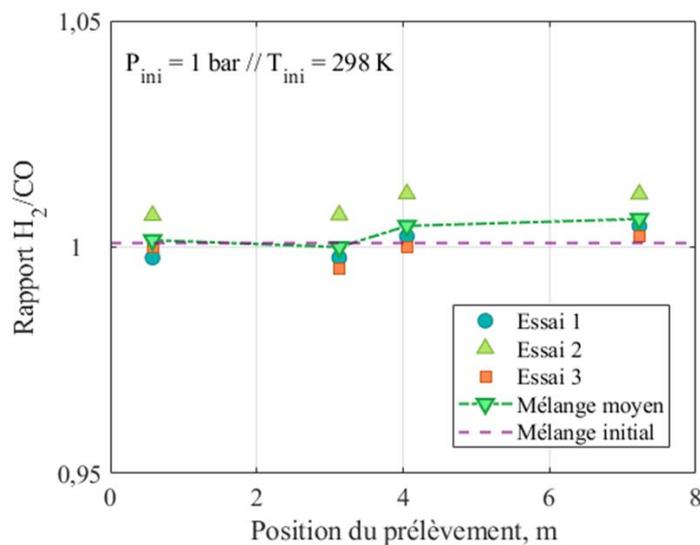


Figure 76 – Rapport H<sub>2</sub>/CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 1, ainsi que pour le mélange moyen.

Le mélange initial est déterminé à partir des concentrations de la bouteille de gaz. Le rapport H<sub>2</sub>/CO augmente dans la partie supérieure de l'enceinte expérimentale, tout en restant très proche du mélange initial. Il y a donc une bonne homogénéité du mélange combustible dans l'enceinte expérimentale pour les différents essais composant le Test 1.

La Figure 77 montre la répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps, ainsi que la trajectoire moyenne sur les 3 essais réalisés.

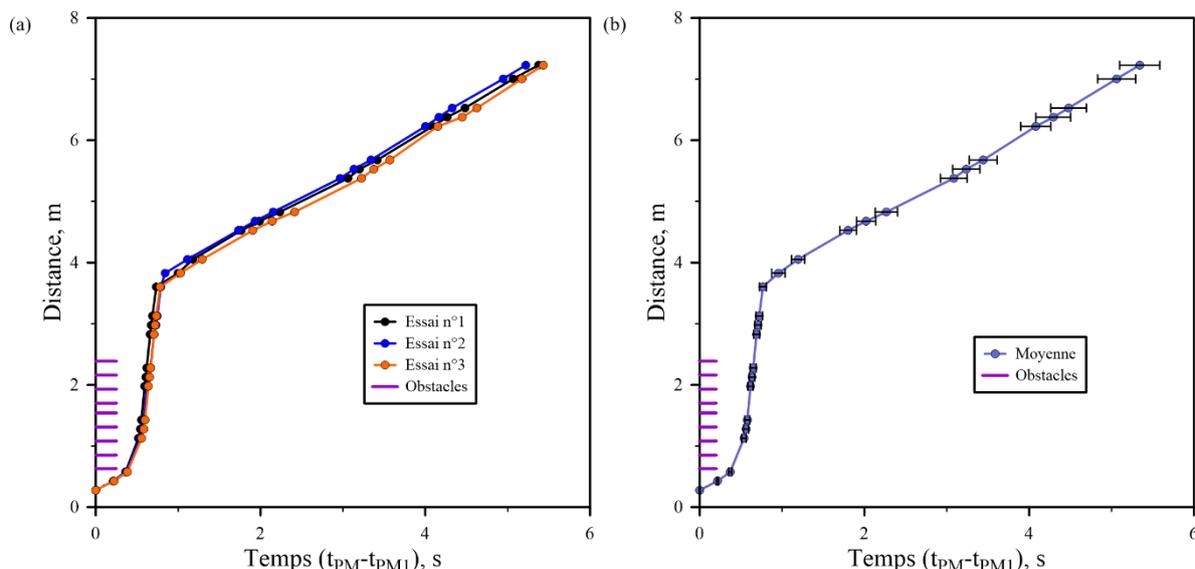


Figure 77 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,29% H<sub>2</sub> + 4,28% CO + 91,43% Air ; pour P<sub>ini</sub> = 1,004±0,001 bar ; et T<sub>ini</sub> = 298,15±1 K. (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps.

La Figure 77 (a) montre que les trajectoires du front de flamme en fonction du temps sont très proches pour les 3 essais réalisés composant la série, avec une erreur moyenne temporelle de 4,33%, et une erreur moyenne spatiale de 6%, montrant la répétabilité des essais. Lorsque le front de flamme atteint le premier obstacle, une accélération de la flamme survient. Pendant les premiers 0,4 seconde, la flamme parcourt 0,5 mètre, et s'accélère à partir du premier obstacle qui se trouve à 0,6 mètre. Elle traverse les 9 obstacles, ce qui correspond à une distance de 3 mètres, en 0,7 seconde. Finalement, un mètre après la sortie de la série d'obstacles, l'accélération de la flamme diminue pour se propager plus lentement jusqu'à atteindre la partie haute du tube fermé. Elle parcourt ainsi les 4 mètres restants à une vitesse presque constante en 5 secondes.

Ces résultats permettent d'en déduire l'évolution de la vitesse de propagation du front de flamme dans l'enceinte en fonction de la distance parcourue par la flamme, comme le montre la Figure 78. La Figure 78 (a) montre la répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction du temps, et la moyenne des 3 essais réalisés est présentée sur la Figure 78 (b). Cette figure présente également sur le bandeau supérieur, la teneur en H<sub>2</sub> et la teneur en CO par analyse des prélèvements obtenus à différentes distances du parcours de la flamme pour chacun des essais. Les prélèvements montrent un certain écart par rapport aux conditions d'homogénéité idéales correspondant au mélange initial voulu, dans l'enceinte expérimentale au cours de chaque essai, qui pourraient expliquer les écarts déterminés sur la vitesse de propagation.

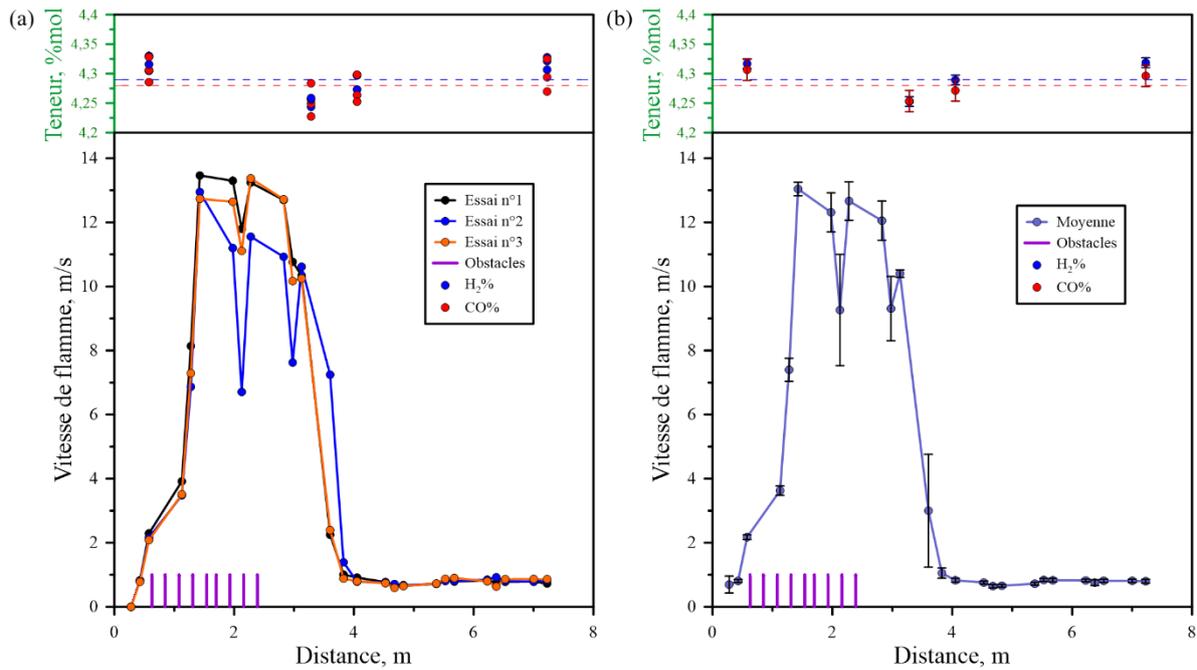


Figure 78 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,29% H<sub>2</sub> + 4,28% CO + 91,43% Air ; pour P<sub>ini</sub> = 1,004±0,001 bar ; et T<sub>ini</sub> = 298,15±1 K. (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.

Malgré quelques écarts sur les profils de vitesse, il est possible d'apprécier la répétabilité de l'évolution de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue. De plus, il est possible de constater que lorsque la flamme atteint le premier obstacle, elle est ralentie dans un premier temps pour être ensuite accélérée entre le troisième et le septième obstacle. Puis, ce front de flamme connaît un léger ralentissement entre le huitième et le neuvième obstacle. Finalement, la vitesse de propagation du front de flamme chute drastiquement peu après avoir traversé les obstacles, pour se propager très lentement ( $\sim 1$  m/s) jusqu'à l'extrémité de l'enceinte. Ceci peut s'expliquer physiquement. Tout d'abord, lorsque l'étincelle est générée, la flamme commence par se propager de façon hémisphérique. Elle va s'étirer par la suite en forme de « doigt » lorsqu'elle s'approche des parois du tube. Puis, le comportement du front de flamme se voit perturbé dès lors que celui-ci rentre en contact avec le premier obstacle. En effet, lorsque l'écoulement traverse un obstacle, le front de flamme se plisse, et par conséquent s'accroît (cf. Figure 79). Lorsque le plissement de la flamme s'accroît, les turbulences augmentent, et la vitesse de propagation de la flamme augmente. Puis, à la sortie des obstacles, la flamme est ralentie brutalement en raison de l'expansion des gaz brûlés avant de voir sa propagation se stabiliser. La vitesse maximale atteinte dans l'enceinte ne dépasse pas les 15 m.s<sup>-1</sup>. La Figure 79 illustre une propagation de flamme plissée dans ENACCEF-II.

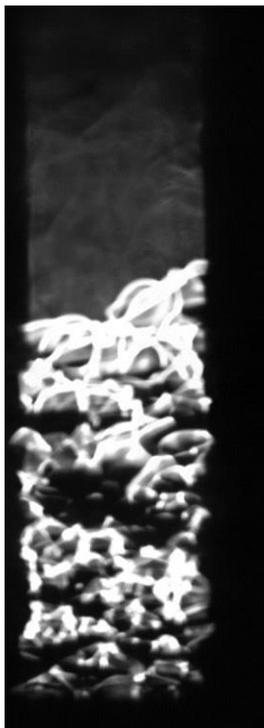


Figure 79 – Propagation d'une flamme plissée pour un mélange 4,37% H<sub>2</sub> + 4,38% CO + 91,25% Air pour une pression initiale de 2 bars et une température initiale de 298 K (essai 3 du Test 3).

- **TEST 2** :

La deuxième série de tests a été réalisée aussi pour des conditions thermodynamiques « standards », mais dont la teneur en H<sub>2</sub>/CO a été augmentée. Les rapports H<sub>2</sub>/CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale et pour les 3 essais composant le Test 2, ainsi que pour le mélange moyen, sont donnés sur la Figure 80.

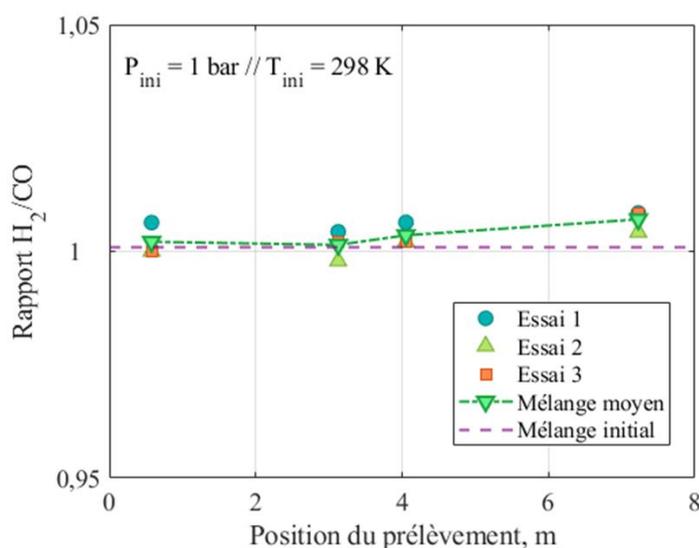


Figure 80 – Rapport H<sub>2</sub>/CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 2, ainsi que pour le mélange moyen.

Tout comme pour le Test 1, le rapport H<sub>2</sub>/CO augmente dans la partie supérieure de l'enceinte expérimentale, tout en restant très proche du mélange initial. Il y a donc une bonne homogénéité du mélange combustible dans l'enceinte expérimentale pour les différents essais composant le Test 2. La

répartition de la teneur en hydrogène et en monoxyde de carbone dans l'enceinte expérimentale au cours des 3 essais composant le Test 2 se trouvent en ANNEXE 3 : Répartition de l'hydrogène et du monoxyde de carbone en fonction du point de prélèvement dans l'enceinte expérimentale.

La Figure 81 montre la répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps, ainsi que la moyenne des 3 essais réalisés.

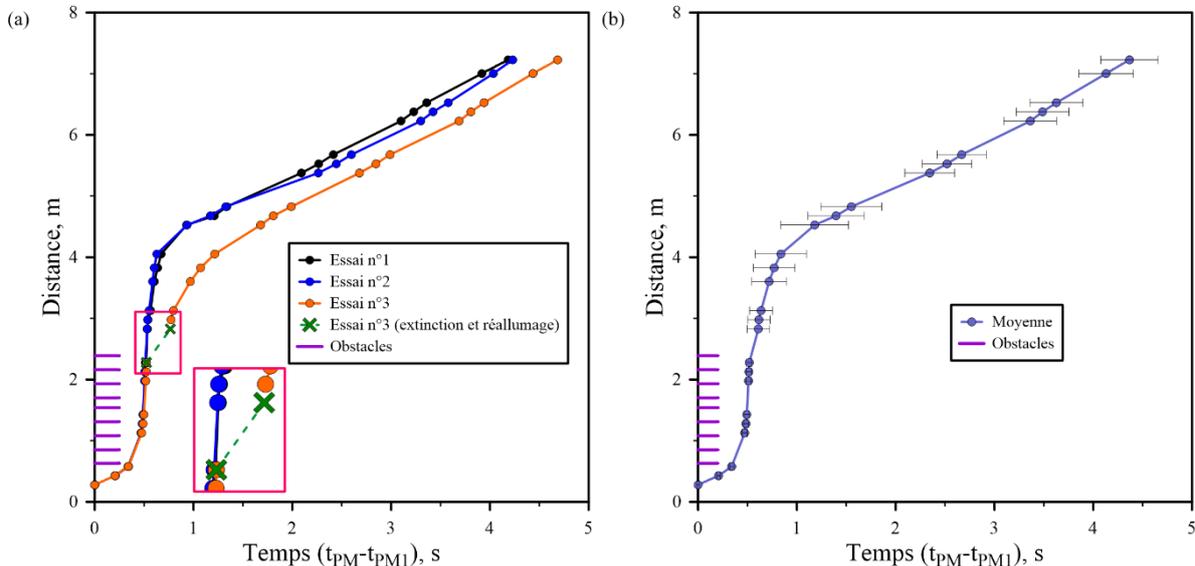


Figure 81 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,73% H<sub>2</sub> + 4,71% CO + 90,56% Air ; pour P<sub>ini</sub> = 1,004±0,001 bar ; et T<sub>ini</sub> = 298,15±1 K. (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps.

Deux types de trajectoires du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais réalisés sont présents. Les deux premiers essais se sont comportés de la même façon que les essais précédents (cf. Figure 77). En effet, pour ces deux cas, la propagation commence doucement, puis la flamme est accélérée lorsque celle-ci atteint le premier obstacle. Elle finit par décélérer un peu plus de 1 mètre après la fin des obstacles. Cependant, le dernier essai de cette série est un peu différent des autres. En effet, lors de cet essai, il y a eu une extinction de flamme suivie par une réinflammation du mélange quelques centimètres plus loin. Comme il est possible de voir sur la figure ci-dessus, le début de la propagation du front de flamme commence de la même façon que pour les deux premiers essais, jusqu'à atteindre le dernier obstacle où la flamme s'éteint. Cette extinction a lieu au niveau du neuvième photomultiplicateur (cf. Figure 82), et il y a une réinflammation des gaz frais un peu plus loin entre le dixième et le onzième photomultiplicateur (cf. Figure 82). Puis, la nouvelle flamme continue sa propagation jusqu'à l'extrémité haute du tube. Cette propagation semble suivre la même tendance que les deux autres. L'explication physique de cela, comme vu précédemment, est que lorsque la flamme traverse des obstacles, elle est accélérée du fait de l'augmentation du niveau de turbulences. Dans ce cas, les turbulences ont été suffisamment significatives pour interrompre la propagation de la flamme en raison de l'étirement local qui devient excessif. Toutefois, le déplacement des gaz frais et des gaz brûlés avant l'extinction de la flamme, ainsi que la longue durée de vie des radicaux OH dans les gaz brûlés, entraînent la convection et la diffusion de ces éléments, ce qui réallume les gaz frais en aval et permet ainsi la reprise de la propagation de la flamme.

La Figure 82 montre la propagation du front de flamme, dans ce cas particulier où il y a eu extinction puis réallumage du mélange, entre le neuvième et le douzième photomultiplicateur.

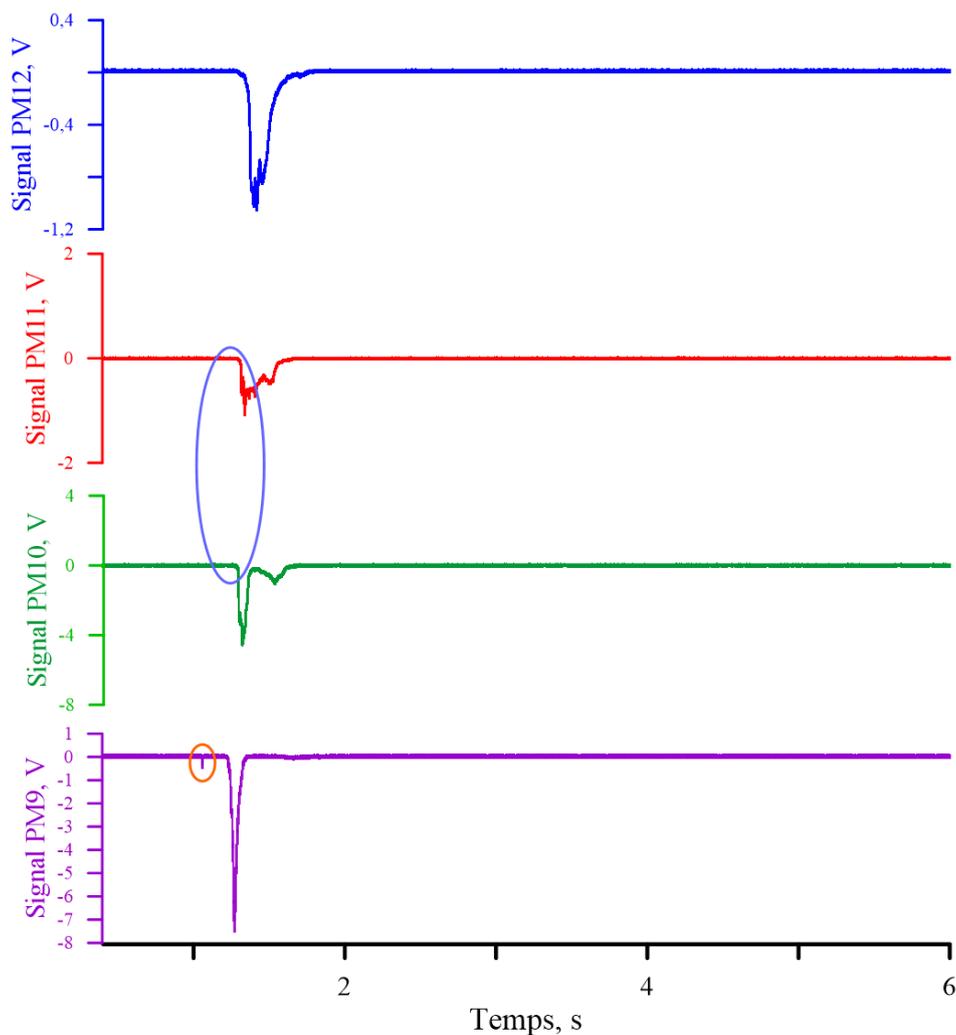


Figure 82 – Propagation du front de flamme entre le neuvième et le douzième photomultiplicateur. Le cercle orange correspond à l’extinction de la flamme (PM9). Le cercle bleu correspond au réallumage de la flamme (entre le PM10 et le PM12).

La Figure 83 présente l’évolution de la vitesse de flamme en fonction de la distance parcourue. La Figure 83 (a) montre la répétabilité de ces vitesses de propagation du front de flamme en fonction de la distance, et la Figure 83 (b) la moyenne des 3 essais réalisés. Comme précédemment, sont tracées aussi les teneurs en  $H_2$  et en CO obtenues par prélèvement des gaz frais. Il est intéressant de remarquer qu’en comparant les deux séries de tests, des écarts équivalents sont obtenus respectivement aux teneurs initiales du mélange, avec en particulier le deuxième prélèvement, dont les teneurs dans les deux cas sont inférieures à celles initialement prévues.

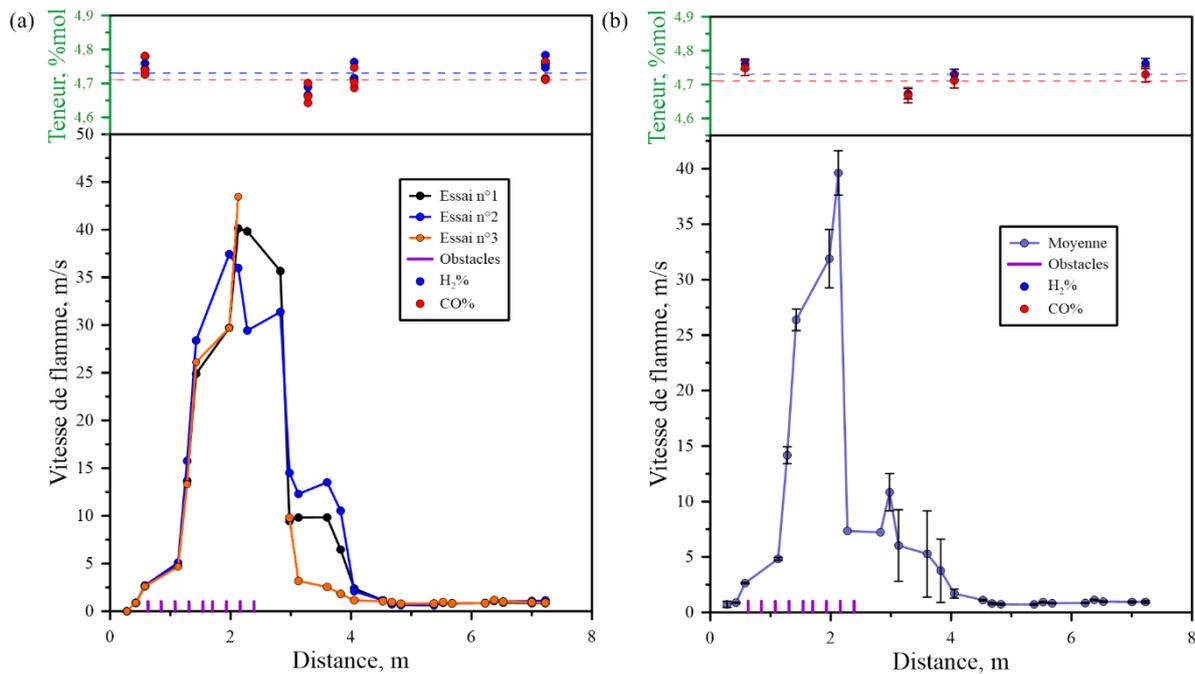


Figure 83 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,73% H<sub>2</sub> + 4,71% CO + 90,56% Air ; pour P<sub>ini</sub> = 1,004±0,001 bar ; et T<sub>ini</sub> = 298,15±1 K. (a) : Répétibilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.

Tout comme pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps, les profils de vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci suivent deux tendances différentes. En effet, les deux premiers profils de vitesse suivent la même tendance, la flamme commence une propagation lente et s'accélère au niveau du troisième obstacle jusqu'à atteindre sa valeur maximale entre le septième et le huitième obstacle. La décélération de la flamme se produit au même endroit pour ces deux essais que pour les trois essais précédents correspondant à la teneur en H<sub>2</sub>/CO plus basse (cf. Figure 78). Le troisième profil de vitesse est un peu différent et est en accord avec le profil de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps. En effet, il y a une extinction de flamme au niveau du septième obstacle, et il y a un réallumage peu après la sortie des obstacles. Entre ces deux endroits, il n'est donc pas possible de définir le profil de vitesse. Finalement, la vitesse de propagation du front de flamme chute drastiquement après avoir traversé tous les obstacles, à 4 mètres du point d'allumage, pour se propager très lentement (~ 1 m/s) jusqu'à l'extrémité de l'enceinte.

Lorsque la flamme est turbulente et subsonique, des extinctions locales peuvent se produire. Celles-ci vont être générées par une augmentation trop importante de l'intensité des turbulences dans les gaz frais. Ces extinctions vont avoir comme principal effet, la diminution de la vitesse de propagation du front de flamme. Si les turbulences deviennent trop importantes, et que par conséquent les pertes de chaleur deviennent non négligeables, une extinction totale de la flamme peut avoir lieu [245, 244]. Dans cette configuration, il est possible d'obtenir soit une déflagration lente, soit une déflagration rapide, en fonction de la vitesse de propagation du front de flamme. Pour différencier les déflagrations lentes des déflagrations rapides, il est possible de poser une condition limite sur la vitesse de propagation du front de flamme. Cette condition limite sera définie par le rapport entre la vitesse maximale de propagation de la flamme et la vitesse du son dans les gaz brûlés [289, 290, 291, 16, 17, 19]. Il est ainsi possible de définir les deux régimes de propagation de flamme suivants :

- Régime de propagation lent lorsque :  $\frac{v_{max}}{a_b} < 0,5$
- Régime de propagation rapide lorsque :  $\frac{v_{max}}{a_b} \geq 0,5$

Avec,  $v_{max}$  la vitesse maximale de propagation du front de flamme (en  $m.s^{-1}$ ), et  $a_b$  la vitesse du son dans les gaz brûlés (en  $m.s^{-1}$ ).

- **Comparaison entre le TEST 1 et le TEST 2 :**

La comparaison des résultats obtenus pour les deux compositions initiales du mélange permet d'étudier leur influence sur la propagation de ces flammes. Les propriétés physico-chimiques déterminées à partir de COSILAB (cf. Chapitre 2 – partie 3) sont résumées dans les Tableau 21, Tableau 22, et Tableau 23, où les grandeurs dans les gaz frais sont notées par l'indice f et les grandeurs dans les gaz brûlés par l'indice b. Les paramètres calculés sont les suivants (notations qui restent valables pour toute la suite de l'étude) :  $\varphi$  la richesse du mélange,  $T_f$  la température adiabatique de flamme (en K),  $P_{AICC}$  la pression adiabatique isochore pour une combustion complète (en bar),  $c_p$  la capacité thermique à pression constante (en  $J.mol^{-1}.K^{-1}$ ),  $\lambda$  la conductivité thermique (en  $W.m^{-1}.K^{-1}$ ),  $\alpha$  la diffusivité thermique (en  $m^2.s^{-1}$ ),  $a$  la vitesse du son (en  $m.s^{-1}$ ),  $\sigma$  le coefficient d'expansion des gaz brûlés,  $\beta_{extrapolé}$  le nombre de Zel'dovich,  $Le_{eff}$  le nombre de Lewis effectif, et  $S_l^0$  la vitesse fondamentale de flamme (en  $m.s^{-1}$ ).

Mélange	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	$\varphi$	$T_f$ (K)	$P_{AICC}$ (bar)
Test 1	4,29	4,28	0,224	1032,1	3,98
Test 2	4,73	4,71	0,249	1101,3	4,23

Tableau 21 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux séries d'essais, pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 1).

$\lambda_f$ (W/m/K)	$\alpha_f$ ( $m^2.s^{-1}$ )	$c_{pf}$ (J/mol/K)	$c_{pb}$ (J/mol/K)
0,030	$2,57.10^{-5}$	29,11	34,54
0,031	$2,60.10^{-5}$	29,11	35,07

Tableau 22 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux séries d'essais, pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 2).

$a_f$ (m/s)	$a_b$ (m/s)	$\sigma$	$\beta_{extrapolé}$	$Le_{eff}$	$S_l^0$ (cm/s)
353,95	624,60	3,31	21,00	0,72	0,10
354,73	643,97	3,52	17,97	0,72	0,66

Tableau 23 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux séries d'essais, pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 3).

L'impact le plus important est observé sur les vitesses fondamentales de flamme. En effet, l'augmentation de la teneur en H<sub>2</sub>/CO dans le mélange, et donc de la richesse, induit une augmentation de la vitesse fondamentale de flamme. Les résultats trouvés dans la littérature présentent tous cette même tendance. En effet, il a été vu lors du Chapitre 1 – partie 1.3.3, que la vitesse fondamentale de flamme du mélange H<sub>2</sub>/CO suit une courbe en cloche en augmentant pour des richesses inférieures à 2, et en diminuant par la suite [292]. L'augmentation de la richesse est aussi favorable à l'augmentation de la température de flamme, de la vitesse du son des gaz brûlés, et du coefficient d'expansion. Le nombre de Mach pour les deux configurations (0,04 dans le premier cas et 0,11 dans le deuxième) montre qu'il s'agit de flammes très lentes (nombre de Mach très inférieur à 0,5). Le coefficient d'expansion des gaz frais est plus important lorsque la teneur en H<sub>2</sub>/CO est plus importante. Ceci est dû à l'augmentation de la masse volumique des gaz frais. En effet, le coefficient d'expansion est égal au rapport de la masse volumique des gaz frais par la masse volumique des gaz brûlés. Le nombre de Zel'dovich extrapolé, quant à lui, est plus élevé dans le premier cas que dans le deuxième. En effet, ce nombre est proportionnel à l'énergie d'activation. L'énergie d'activation est l'énergie nécessaire pour initier une réaction

chimique permettant de mener à la combustion du mélange. Or, lorsque la teneur en combustible est plus élevée, il y a plus de molécules capables de réagir avec le comburant (dans ce cas l'air) pour initier la combustion. Dans ce cas, l'énergie nécessaire pour initier la réaction chimique est moins importante. Donc, comme l'énergie est moins importante, le nombre de Zel'dovich est moins élevé à son tour.

De plus, il est possible de comparer la trajectoire du front de flamme en fonction du temps d'une part, et la vitesse de propagation de la flamme en fonction de la distance parcourue par le front de celle-ci d'une autre. Ces deux comparaisons sont présentées sur la Figure 84.

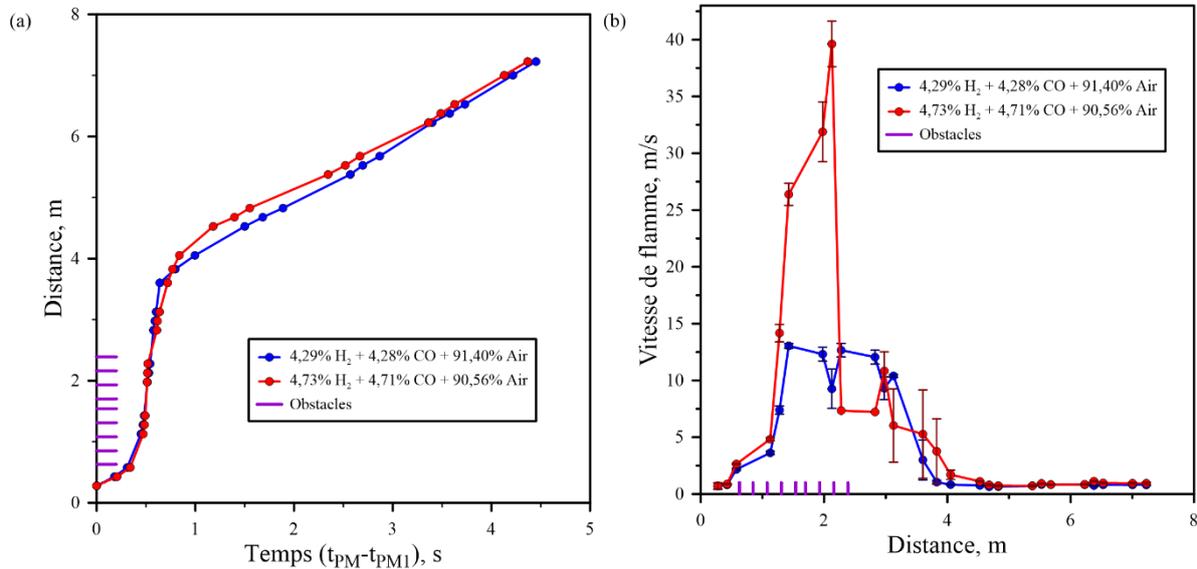


Figure 84 – Comparaison des résultats entre les deux séries de tests pour les deux compositions initiales du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air. (a) : Comparaison des trajectoires du front de flamme en fonction du temps. (b) : Comparaison des vitesses de flamme en fonction de la distance parcourue par le front de flamme.

Il est possible de voir que la trajectoire du front de flamme en fonction du temps est similaire dans les deux cas. Il y a un écart entre les deux trajectoires entre 4 et 6 mètres après le point d'allumage, où la flamme correspondant à la teneur en H<sub>2</sub>/CO la plus élevée semble être plus rapide que l'autre. Ceci se traduit aussi dans l'étude de la vitesse de flamme en fonction de la distance parcourue par le front de flamme. Comme cela a été vu précédemment (cf. Chapitre 2 – partie 2.2.1), l'incertitude dans la détermination de la vitesse de propagation du front de flamme vaut 4,34%. Il est possible de voir sur la figure ci-dessus que la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci est beaucoup plus importante lorsque la teneur initiale en combustible est plus importante. Les deux tendances globales suivies par les deux profils de vitesse sont assez similaires. En effet, le début de la propagation du front de flamme commence doucement, jusqu'à atteindre le troisième obstacle, où la flamme est accélérée. Puis, en sortie des obstacles, la vitesse de propagation du front de flamme diminue drastiquement jusqu'à atteindre  $\sim 1$  m/s, et ce jusqu'à l'extrémité du tube. Dans les deux cas, la flamme reste lente, même lorsqu'un écart de 25 m.s<sup>-1</sup> est présent.

La comparaison de deux grandeurs déterminées expérimentalement :  $v_{max}$  la vitesse maximale de propagation du front de flamme (en m.s<sup>-1</sup>), et  $P_{max}$  la pression maximale de combustion (en bar), pour les deux séries d'essais est donnée dans le Tableau 24.

Mélange	$T_{ini}$ (°C)	$P_{ini}$ (bar)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	$v_{max}$ (m/s)	$P_{max}$ (bar)
Test 1	298	1	4,29	4,28	13,04	1,34
Test 2	298	1	4,73	4,71	39,61	1,52

Tableau 24 – Comparaison des valeurs de  $P_{max}$  et  $v_{max}$  pour les deux séries d'essais correspondant aux deux compositions initiales du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air différentes.

Il est à remarquer une augmentation considérable de la vitesse de propagation maximale (67%) et de la pression maximale atteinte dans l'enceinte (12%) lorsque la richesse du mélange initial augmente. Ceci est en accord avec les résultats trouvés dans la littérature, et avec les résultats déterminés lors du Chapitre 3 – partie 1.2.1.

Une simulation en utilisant COSILAB a été faite pour les mélanges : 8,60% H<sub>2</sub> + 91,40% Air et 8,60% CO + 91,40% Air, afin de les comparer aux valeurs déterminées pour le mélange 4,29% H<sub>2</sub> + 4,28% CO + 91,43% Air. Le Tableau 30, le Tableau 31, et le Tableau 32 montrent les résultats trouvés pour le mélange H<sub>2</sub>/Air, les résultats déterminés pour le mélange CO/Air, et finalement ceux concernant le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air.

Mélange	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	T <sub>f</sub> (K)	P <sub>AICC</sub> (bar)	c <sub>pf</sub> (J/mol/K)	c <sub>pb</sub> (J/mol/K)
H <sub>2</sub> /Air	8,6	0	996,4	3,88	29,09	33,74
CO/Air	0	8,6	1083,5	4,20	29,13	35,41
H <sub>2</sub> /CO/Air	4,29	4,28	1032,1	3,98	29,11	34,54

Tableau 25 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les mélanges H<sub>2</sub>/Air, CO/Air et {50%H<sub>2</sub>+50%CO}/Air, pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 1).

λ <sub>f</sub> (W/m/K)	α <sub>f</sub> (m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )	a <sub>f</sub> (m/s)	a <sub>b</sub> (m/s)	σ
0,034	2,92.10 <sup>-5</sup>	361,78	629,73	3,20
0,026	2,22.10 <sup>-5</sup>	347,22	625,60	3,48
0,030	2,57.10 <sup>-5</sup>	353,95	624,60	3,31

Tableau 26 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les mélanges H<sub>2</sub>/Air, CO/Air et {50%H<sub>2</sub>+50%CO}/Air, pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 2).

Il est possible de voir sur les tableaux que les valeurs des propriétés physico-chimiques déterminées pour le mélange 4,29% H<sub>2</sub> + 4,28% CO + 91,43% Air, sont très similaires à la moyenne des valeurs déterminées pour le mélange équivalent 8,60% H<sub>2</sub> + 91,40% Air et 8,60% CO + 91,40% Air.

### 1.1.2. Profils de pression

La deuxième étape de la caractérisation de ces flammes est l'étude des profils de pression de celles-ci tout au long d'ENACCEF-II. Les deux conditions initiales ont été choisies de telle sorte à être proches de la limite d'inflammabilité inférieure, tout en gardant suffisamment de mélange pour que la flamme se propage dans le tube de façon autoentretenu. Comme cela a été explicité auparavant (cf. Chapitre 2 – partie 2.2.2), les profils de pression en fonction du temps sont obtenus à partir des signaux des différents capteurs de pression (PCB et Kistler) placés tout au long d'ENACCEF-II. Pour rappel, K<sub>EW</sub> correspond au Kistler « End Wall », c'est-à-dire au Kistler qui se trouve sur la bride supérieure de l'enceinte.

#### - **TEST 1** :

La Figure 85 montre les différents signaux de pression en fonction du temps, ainsi que la trajectoire du front de flamme tout au long du tube pour le deuxième essai du Test 1. L'essai choisi correspond à une composition initiale du mélange telle que : 4,30% H<sub>2</sub> + 4,26% CO + 91,44% Air (cf. Tableau 20).

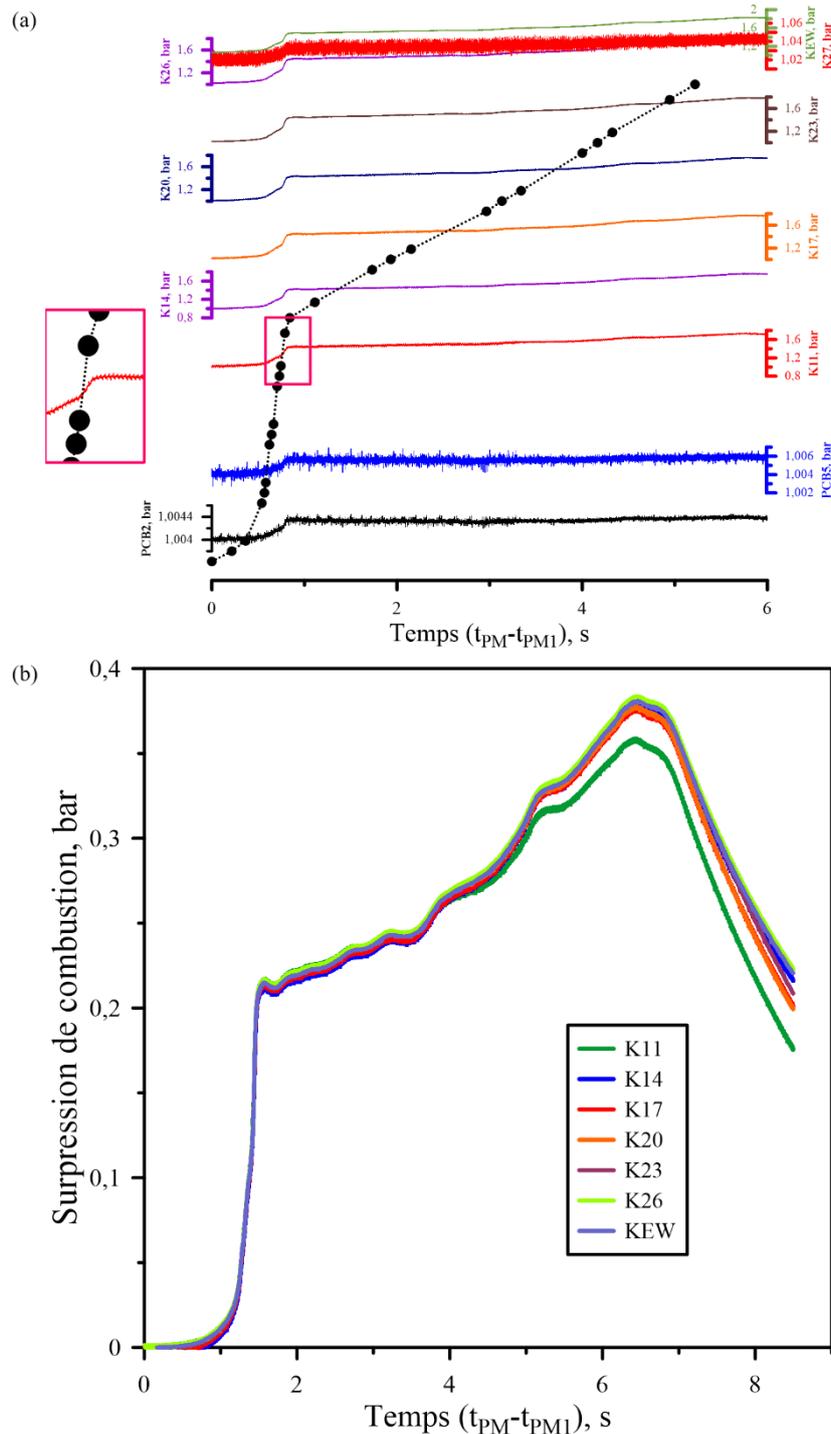


Figure 85 – Évolution de la pression dans l'enceinte expérimentale tout au cours de la propagation de la flamme. (a) :Signaux de pression en fonction du temps, pour les 2 PCB et les 8 Kistler placés tout au long de l'enceinte expérimentale, et trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour une flamme 4,30% H<sub>2</sub> + 4,26% CO + 91,44% Air (essai 2 du Test 1). (b) : Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler.

Il est possible d'observer que lors des premiers instants de la propagation du front de flamme dans le tube, la pression n'augmente pas beaucoup par rapport à la pression initiale. Ceci est visible sur les signaux des deux PCB qui se trouvent sur la partie basse d'ENACCEF-II. Puis, entre le capteur PCB5 et le Kistler placé à côté du photomultiplicateur 11, la pression à l'intérieur de l'enceinte augmente. Ceci correspond au moment où la flamme est accélérée lorsqu'elle traverse les obstacles. Ceci se traduit par une augmentation de la pression, qui atteint la pression maximale de combustion, qui augmente légèrement par la suite jusqu'à la fin de la propagation du front de flamme.

La flamme présentée sur la Figure 85 correspond à une combustion subsonique. En effet, aucune onde de choc ne se propage dans l'enceinte et les signaux de pression tout au long du tube (cf. Figure 85 (a)) correspondent à des signaux de pression d'une flamme subsonique : augmentation légère de la pression par rapport à la pression initiale et stabilisation de la pression aux alentours de la valeur de la pression maximale de combustion. Ainsi, tous les profils de pression dans l'enceinte expérimentale se superposent parfaitement (cf. Figure 85 (b)). La même analyse a été réalisée pour les essais 1 et 3 du Test 1. La Figure 86 présente leur comparaison. La valeur moyenne des différents capteurs de pression sera donc retenue pour la comparaison.

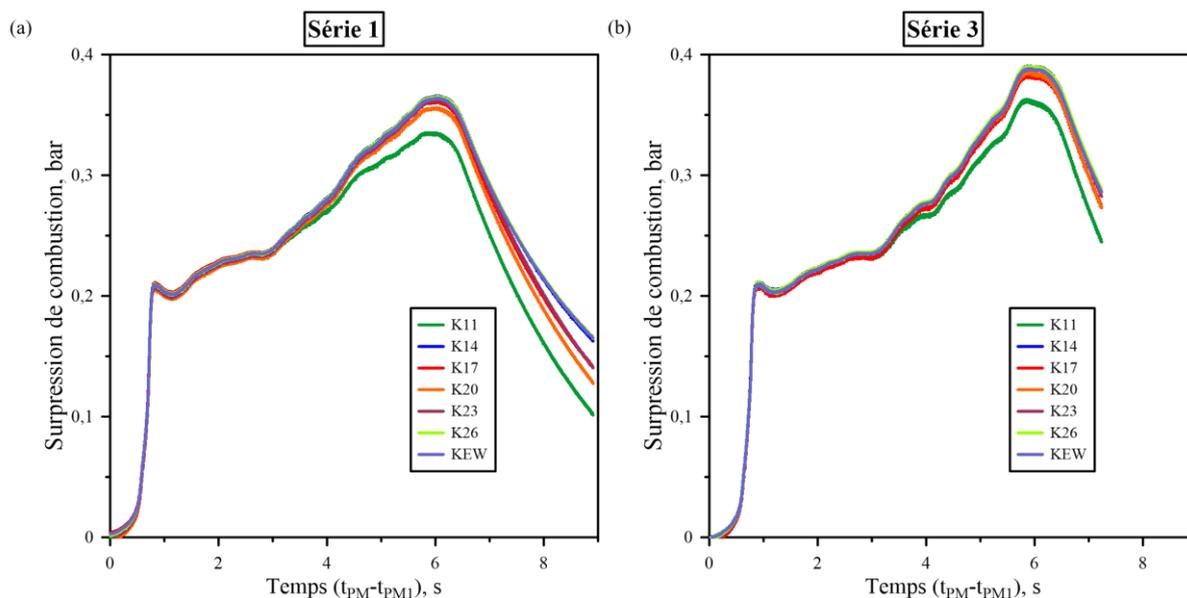


Figure 86 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les deux autres essais composant le Test 1. (a) : Essai 1. (b) : Essai 3.

Une comparaison des valeurs moyennes des capteurs de pression pour les trois essais composant le Test 1 est donnée sur la Figure 87.

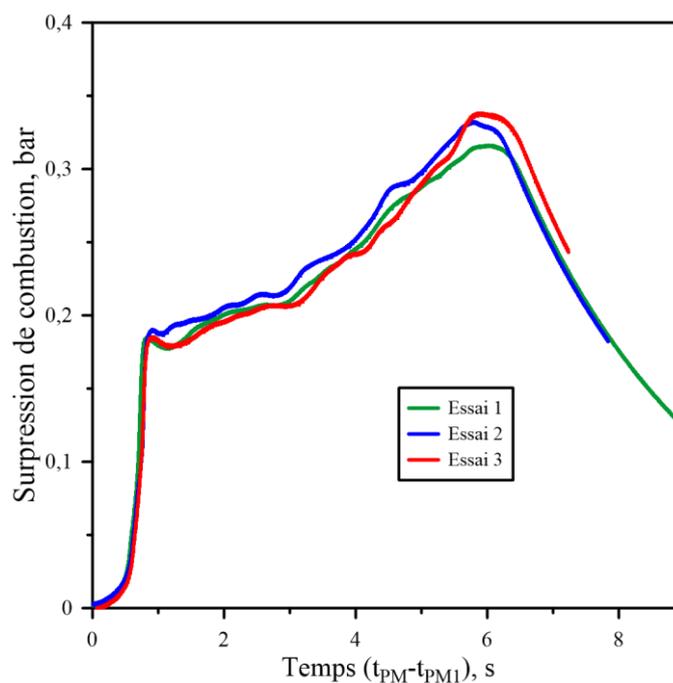


Figure 87 – Répétabilité des signaux de pression pour les trois essais composant le Test 1, pour un mélange moyen de 4,29%  $H_2$  + 4,28%  $CO$  + 91,43% Air ; pour  $P_{ini} = 1,004 \pm 0,001$  bar ; et  $T_{ini} = 298,15 \pm 1$  K.

La moyenne des signaux de pression pour tous les capteurs, pour chaque essai composant le Test 1 est répétable. Ainsi, pour les comparaisons postérieures, la moyenne de ces trois signaux sera utilisée.

- **TEST 2 :**

Pour la deuxième série de tests correspondant aux conditions thermodynamiques « standards », la teneur en H<sub>2</sub>/CO a été augmentée. La Figure 88 montre les différents signaux de pression en fonction du temps, ainsi que la trajectoire du front de flamme le long du tube. Pour ce faire, comme les deux premiers essais de cette série sont répétables (cf. Chapitre 4 – partie 1.1.1), il est possible de prendre l'un des deux premiers essais dans le but de représenter les profils de pression, ainsi que la trajectoire du front de flamme. L'essai choisi correspond au premier essai du Test 2, qui a une composition initiale du mélange telle que : 4,72% H<sub>2</sub> + 4,69% CO + 90,59% Air.

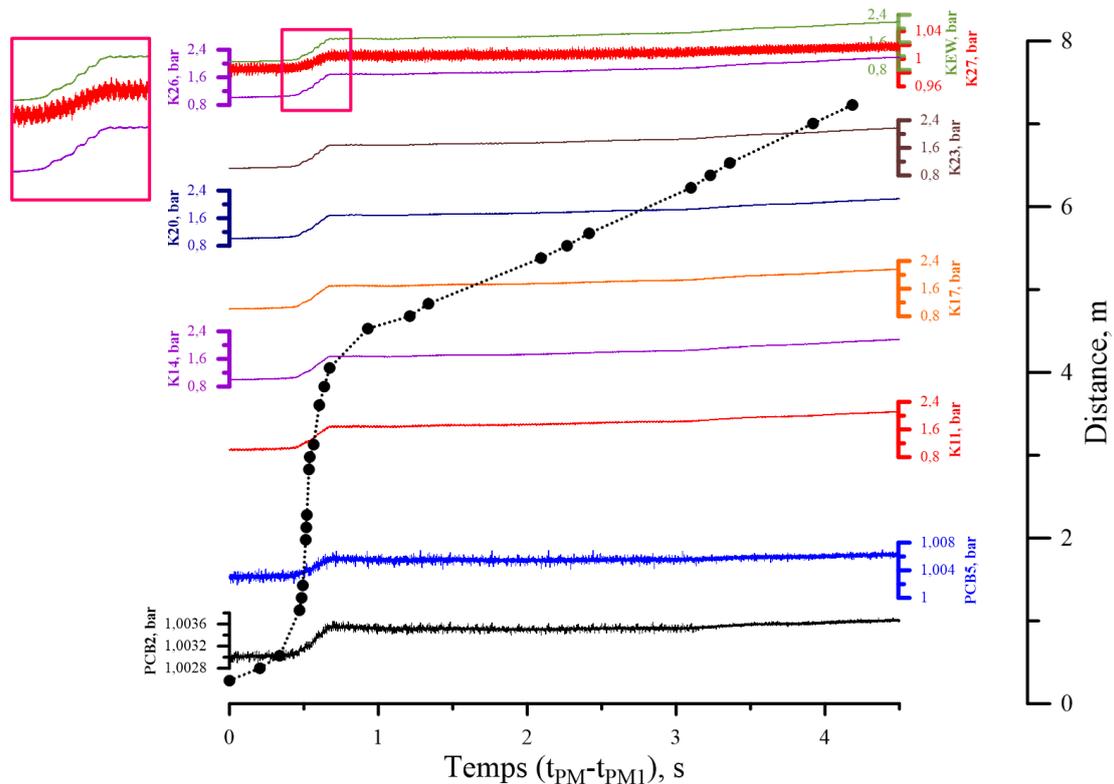


Figure 88 – Signaux de pression en fonction du temps, pour les 2 PCB et les 8 Kistler placés tout au long de l'enceinte expérimentale, et trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour une flamme 4,72% H<sub>2</sub> + 4,69% CO + 90,56% Air (essai 1 du Test 2).

Cette figure présente les signaux de pression et la trajectoire du front de flamme. La position des capteurs de pression, ainsi que la propagation de la flamme en fonction du temps sont placées, à échelle réduite, en fonction de la distance parcourue dans l'enceinte (axe des ordonnées à droite sur la figure). Ceux-ci suivent la même tendance que ceux vus précédemment pour une teneur en combustible moins importante. Cependant, la pression maximale atteinte dans l'enceinte expérimentale est plus élevée pour cette composition initiale du mélange. En effet, la pression maximale de combustion atteinte lors du passage de la flamme est plus importante pour la teneur en combustible la plus élevée. Un résultat équivalent a été constaté lors de l'étude des limites d'inflammabilité des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air pour des conditions thermodynamiques « standards » (cf. Tableau 9 – Chapitre 3 – partie 1.2.1). La zone zoomée sur la Figure 88 détaille les signaux de pression mesurés dans la partie haute d'ENACCEF-II. En effet, lors de l'augmentation de la pression, des oscillations des signaux de pression sont observées. Ces oscillations correspondent à des oscillations acoustiques, qui sont dues aux oscillations des gaz frais générées par le front de flamme lors de sa propagation dans l'enceinte expérimentale.

Tout comme pour le Test 1, les signaux de tous les capteurs pour chacun des 3 essais composant la série se superposent (cf. Figure 149 – ANNEXE 5 : Répétabilité des signaux de pression.). Ainsi, la moyenne des signaux de tous les capteurs sera prise comme référence pour la comparaison des signaux de pression.

Cependant, pour la deuxième série d'essais correspondant aux conditions thermodynamiques « standards », un cas particulier a eu lieu lors du dernier essai de la série, correspondant à l'essai où il y a eu une extinction suivie d'un réallumage de la flamme. L'essai correspond à l'essai 3 du Test 2, qui a une composition initiale du mélange telle que : 4,72% H<sub>2</sub> + 4,70% CO + 90,58% Air. La Figure 89 montre les différents signaux de pression en fonction du temps, ainsi que la trajectoire du front de flamme le long du tube.

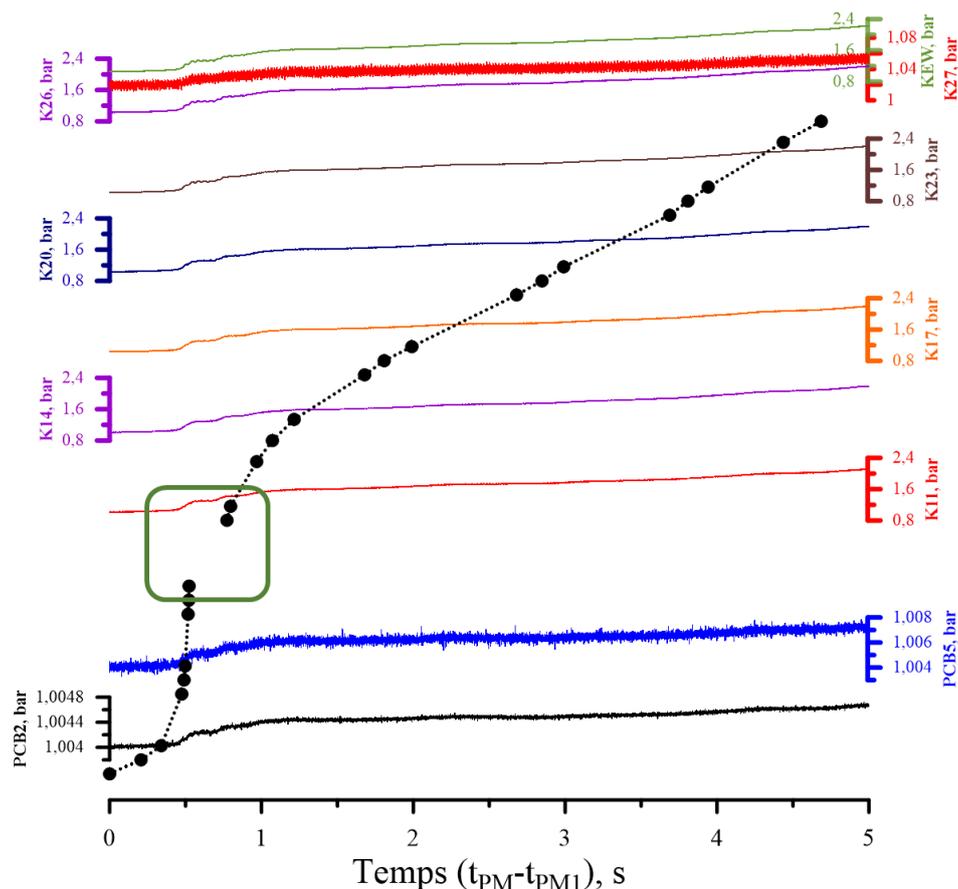


Figure 89 – Signaux de pression en fonction du temps, pour les 2 PCB et les 8 Kistler placés tout au long de l'enceinte expérimentale, et trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour une flamme 4,72% H<sub>2</sub> + 4,70% CO + 90,58% Air (essai 3 du Test 2). Le carré vert sur la figure correspond à l'extinction et au réallumage de la flamme.

Il est possible de voir sur la figure ci-dessus que les signaux de pression, ainsi que la trajectoire de la flamme sont un peu différents de ceux présentés pour l'exemple précédent. En effet, l'augmentation de la pression est nettement moins raide que lors des exemples précédents (cf. Figure 85 et Figure 88). Il y a une première augmentation de la pression dans l'enceinte lors de la première propagation de la flamme avant que l'extinction ne se produise entre le capteur PCB5 et le capteur K11. Puis un premier petit plateau se crée, avant que la pression augmente à nouveau lors de la deuxième propagation de la flamme à la suite du réallumage du mélange (carré vert). L'augmentation de la pression de combustion dans l'enceinte se faisant en deux temps, elle augmente plus progressivement au cours du temps jusqu'à atteindre la valeur maximale de la pression de combustion que pour les autres essais. Tout comme précédemment, l'augmentation de la pression initiale débute entre le capteur PCB5 et le Kistler 11 (en face du photomultiplicateur 11). Comme pour les deux essais correspondant à cette même composition initiale du mélange (cf. Figure 88), des oscillations correspondant à des oscillations

acoustiques, dues aux oscillations des gaz frais générées par le front de flamme lors de sa propagation dans l'enceinte expérimentale, sont présentes.

Une comparaison des valeurs moyennes des capteurs de pression pour les trois essais composant le Test 2 est donnée sur la Figure 90.

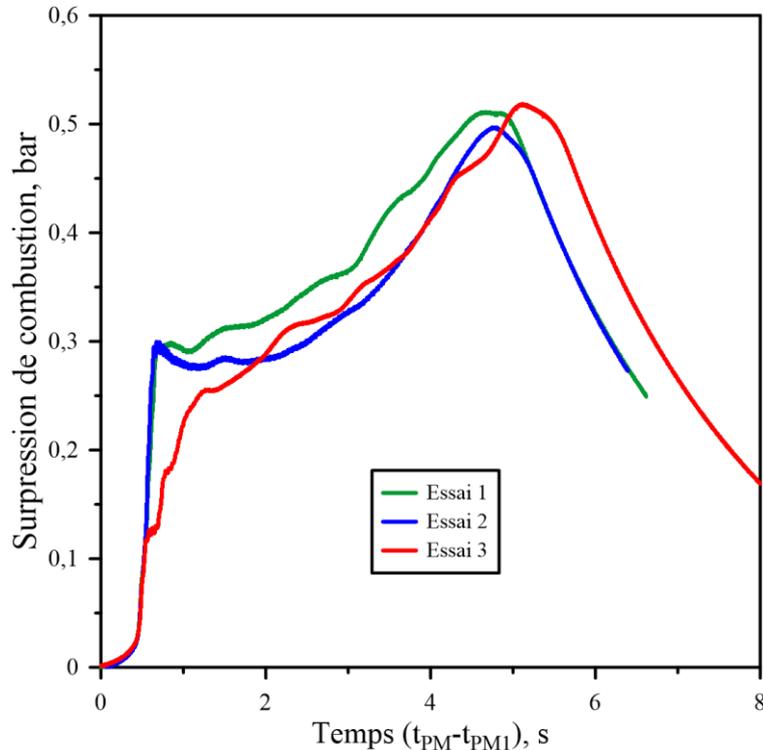


Figure 90 – Répétabilité des signaux de pression pour les trois essais composant le Test 2, pour un mélange moyen de 4,73% H<sub>2</sub> + 4,71% CO + 90,56% Air ; pour P<sub>ini</sub> = 1,004±0,001 bar ; et T<sub>ini</sub> = 298,15±1 K.

La moyenne des signaux de pression pour tous les capteurs, pour les deux premiers essais composant le Test 2 est répétable. Cependant, la moyenne des signaux de pression pour tous les capteurs pour l'essai 3 du Test 2 diverge des deux autres. Ceci est dû à l'extinction de la flamme et au réallumage du mélange combustible. Ainsi, pour les comparaisons postérieures, la moyenne de deux premiers signaux sera utilisée.

- **Comparaison entre le TEST 1 et le TEST 2 :**

La Figure 91 présente la comparaison de la moyenne des signaux de pression pour tous les capteurs et pour tous les essais, pour le Test 1 et le Test 2.

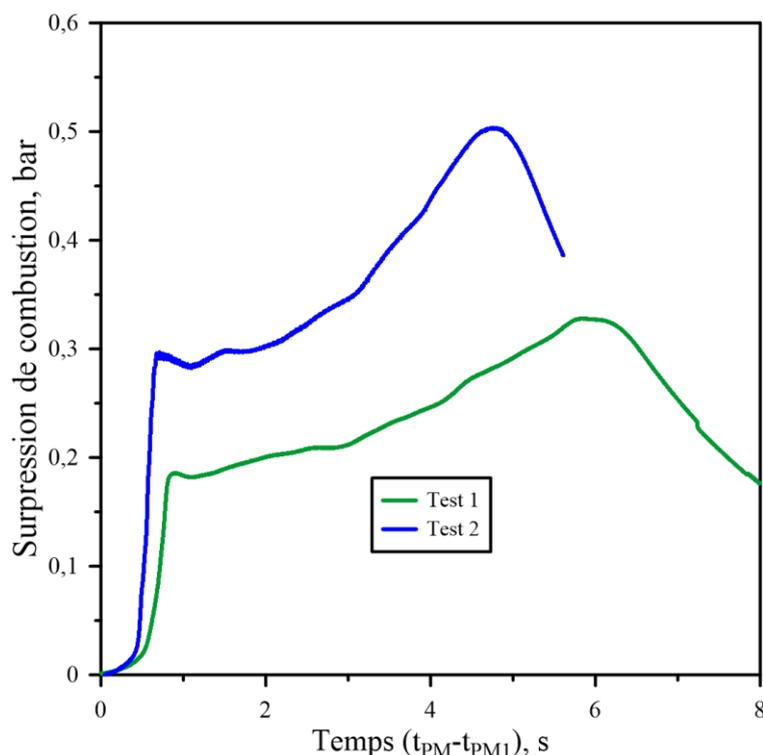


Figure 91 – Comparaison des surpressions de combustion en fonction du temps pour les deux moyennes des signaux pour les deux tests.

La surpression de combustion maximale augmente lorsque la teneur en  $H_2/CO$  augmente dans le mélange. De plus, le temps nécessaire pour atteindre cette valeur maximale diminue. En effet, l'augmentation de la pression (pente) à l'intérieur de l'enceinte expérimentale est plus rapide lorsque la teneur en  $H_2/CO$  dans le mélange augmente. Le premier pic correspond à l'augmentation de la pression de combustion suite à la traversée des obstacles par la flamme. Le deuxième pic quant à lui correspond à la fin de la propagation de la flamme jusqu'à l'extrémité supérieure de l'enceinte. La valeur de pression de combustion maximale qui sera prise en compte lors de cette étude et pour le reste de ce manuscrit est le premier pic.

Mélange	$\Delta P_{max}$ (bar)	$t_{\Delta P_{max}}$ (s)
Test 1	0,19	0,89
Test 2	0,30	0,71

Tableau 27 – Comparaison des valeurs de  $\Delta P_{max}$  et  $t_{\Delta P_{max}}$  pour le Test 1 et pour le Test 2.

Ces résultats sont en accord avec les résultats déterminés lors de l'étude du domaine d'inflammabilité du mélange  $H_2/CO/Air$  pour des conditions thermodynamiques « standards » (cf. Chapitre 3 – partie 1.2.2).

## 1.2. Caractérisation de l'influence de la pression initiale

La deuxième étape consiste à caractériser l'influence de la pression initiale sur la propagation d'une flamme  $H_2/CO/Air$  proche de la limite d'inflammabilité inférieure. Pour ce faire, trois pressions initiales ont été étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars. Les limites d'inflammabilité inférieures d'un mélange  $H_2/CO/Air$  pour une température initiale de 298 K et pour des pressions initiales de 1 bar d'une part, et de 2 et de 3,5 bars d'une autre, ont été déterminées dans le Chapitre 3 – partie 1.2.1 et 1.2.2 respectivement. Ces limites valent respectivement :  $6,27 \pm 0,46\%$  ;  $6,86 \pm 0,57\%$  ; et  $6,64 \pm 0,73\%$ . Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Système d'allumage : Bougie d'allumage
- Pression initiale :  $1,004 \pm 0,001 \text{ bar}$  ;  $2,010 \pm 0,004 \text{ bars}$  ; et  $3,506 \pm 0,002 \text{ bars}$
- Température initiale :  $298,15 \pm 1 \text{ K}$
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Les valeurs caractéristiques de ces flammes lentes, proches des limites d'inflammabilité, telles que la trajectoire de la flamme, sa vitesse, et les profils de pression, ont été déterminées par la suite. Comme précédemment, chaque mélange correspond à un test, et pour chaque test, 3 essais (4 essais pour le Test 3) ont été réalisés. Le Tableau 28 récapitule les conditions expérimentales pour ces trois tests.

Mélange	Essai	$P_{ini}$ (bar)	$T_{ini}$ (K)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol
<b>Test 1</b>	1	1	298	4,28	4,28
	2	1	298	4,30	4,26
	3	1	298	4,30	4,31
	<b>Moyenne</b>	<b>1</b>	<b>298</b>	<b>4,29</b>	<b>4,28</b>
<b>Test 3</b>	1	2	298	4,30	4,29
	2	2	298	4,35	4,35
	3	2	298	4,37	4,38
	4	2	298	4,32	4,34
	<b>Moyenne</b>	<b>2</b>	<b>298</b>	<b>4,34</b>	<b>4,34</b>
<b>Test 4</b>	1	3,5	298	4,35	4,34
	2	3,5	298	4,36	4,36
	3	3,5	298	4,36	4,38
	<b>Moyenne</b>	<b>3,5</b>	<b>298</b>	<b>4,36</b>	<b>4,36</b>

Tableau 28 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude de l'influence de la pression initiale sur la propagation d'une flamme proche de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange {50%H<sub>2</sub>+50%CO}/Air pour les trois pressions initiales étudiées, et pour une température initiale de 298 K.

### 1.2.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse

La caractérisation de l'influence de la pression initiale sur la propagation de ces flammes, composée par l'étude de la trajectoire de celles-ci, ainsi que la détermination de leur vitesse de propagation, est étudiée. Les résultats expérimentaux pour les deux pressions initiales étudiées seront présentés. Tout comme pour la partie précédente (cf. Chapitre 4 – partie 1.1.1), chaque condition initiale est répétée 3 fois dans le but de s'assurer du bon déroulement des expériences et de la répétabilité de la méthode expérimentale. Dans les trois cas, la tendance de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour tous les essais est répétable (cf. Figure 137 et Figure 139 – ANNEXE 4 : Répétabilité des signaux de trajectoire et de vitesse.). De plus, les tendances rencontrées sont similaires à celles déterminées pour les deux compositions initiales étudiées dans le cas des conditions initiales thermodynamiques « standards » (cf. Chapitre 4 – partie 1.1.1).

Tout comme pour les essais réalisés pour des conditions thermodynamiques de 1 bar et 298 K, l'homogénéité dans l'enceinte expérimentale doit être explorée pour les 3 pressions initiales étudiées dans le but de caractériser l'influence de la pression initiale sur l'homogénéité dans l'enceinte. Les

rappports  $H_2/CO$  pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale et pour les 3 essais composant le Test 1, pour les 4 essais composant le Test 3, pour les 3 essais composant le Test 4, ainsi que pour le mélange moyen, sont donnés sur la Figure 80.

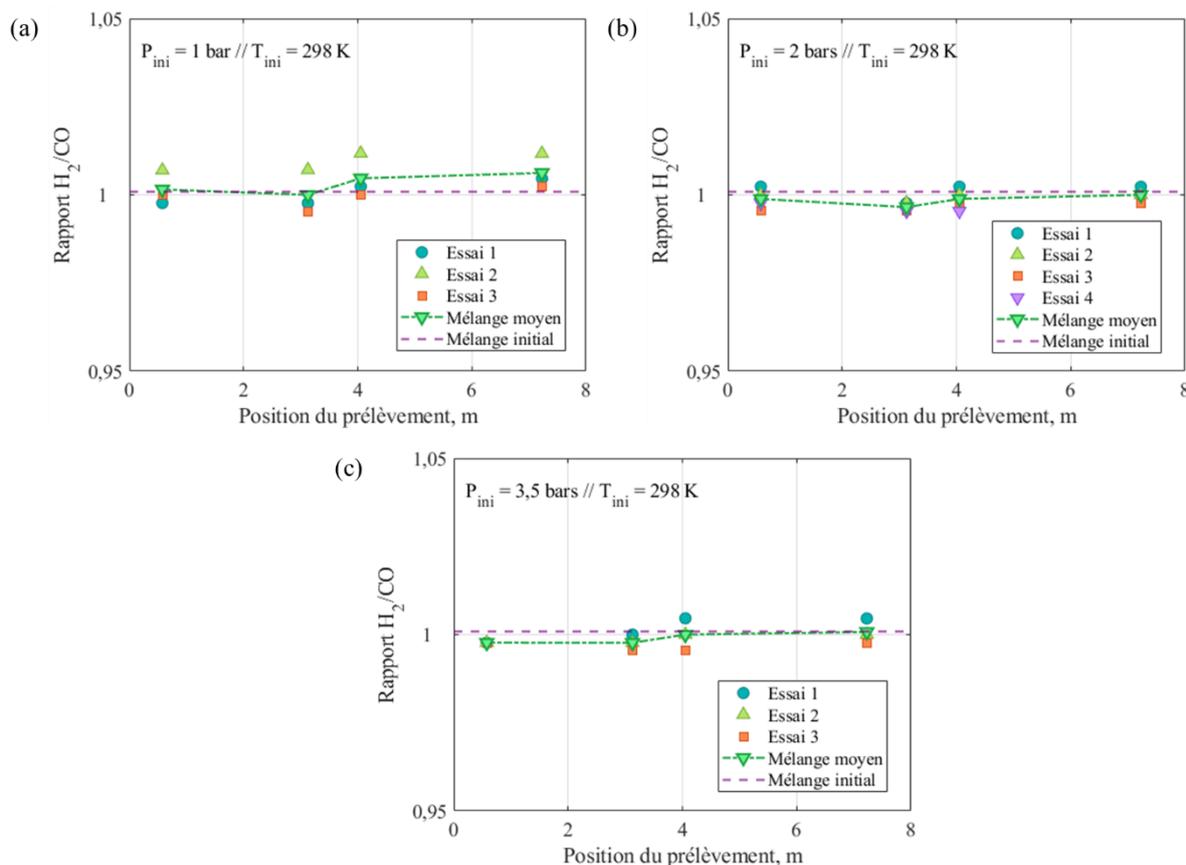


Figure 92 – Rapport  $H_2/CO$  pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 1, pour les 4 essais composant le Test 3, pour les 3 essais composant le Test 4, ainsi que pour le mélange moyen. (a) : Test 1. (b) : Test 3. (c) : Test 4.

L'homogénéité dans l'enceinte expérimentale semble être meilleure lorsque la pression initiale augmente. Il y a une bonne homogénéité du mélange combustible dans l'enceinte expérimentale pour les différents essais composant le Test 1, 3, et 4. La répartition de la teneur en hydrogène et en monoxyde de carbone dans l'enceinte expérimentale au cours des 4 essais composant le Test 3, et des 3 essais composant le Test 4 se trouvent en ANNEXE 3 : Répartition de l'hydrogène et du monoxyde de carbone en fonction du point de prélèvement dans l'enceinte expérimentale.

La Figure 93 montre la comparaison de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les trois Tests 1, 3, et 4, qui correspondent respectivement aux trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars. Chaque courbe correspond aux valeurs de la moyenne des essais pour chaque cas test.

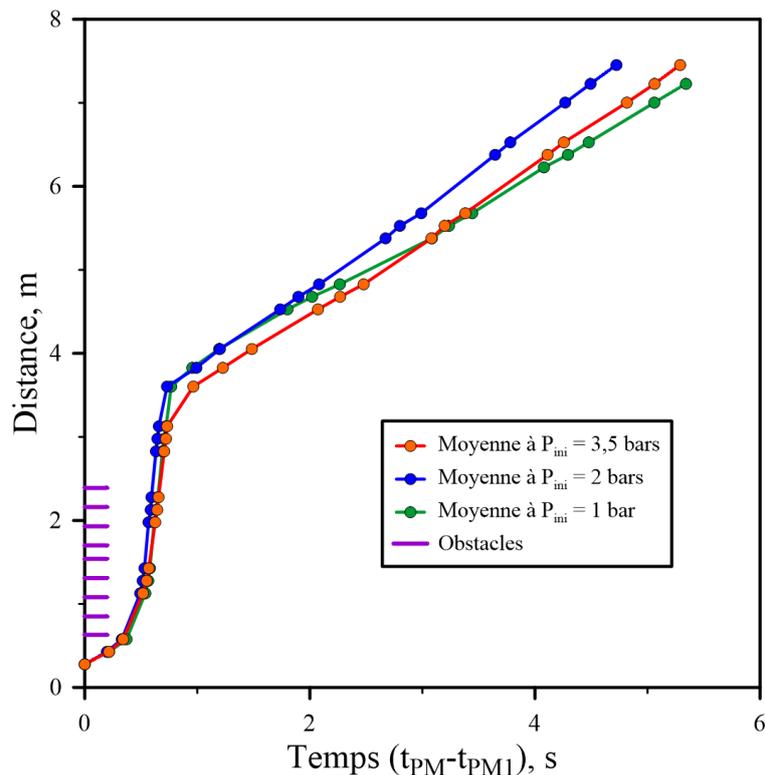


Figure 93 – Comparaison de la moyenne de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar (Test 1) ; 2 bars (Test 3) ; et 3,5 bars (Test 4).

La figure présente les trois trajectoires du front de flamme en fonction du temps étudiées. Dans la zone obstruée, l'écart de distance entre les trois pressions à un temps donné montre que la flamme à 1 bar voit une accélération plus importante que pour des pressions supérieures. Cependant, à partir d'une distance de 3,5 mètres, le comportement de la courbe du Test 1 pour 1 bar, semble s'écarter du comportement observé dans la zone obstruée. Cette courbe est le résultat de la moyenne des trois essais représentés sur la Figure 77, qui ne présente pas d'anomalie particulière. Cependant, aux alentours de 4 mètres après le point d'allumage, les trois courbes s'écartent, montrant qu'il y a une différence de vitesse de propagation du front de flamme. L'écart entre la trajectoire à 3,5 bars et les trajectoires à 1 et 2 bars, a lieu à la sortie des obstacles, où celle dont la pression initiale est de 3,5 bars semble être plus lente dès la sortie. L'écart entre la trajectoire à 1 bar et à 2 bars arrive, quant à elle, postérieurement où la flamme à 1 bar semble ralentir plus que celle à 2 bars. La variation de la pression initiale entre 1 et 3,5 bars semble donc avoir une légère influence sur le profil de la trajectoire globale du front de flamme en fonction du temps pour les flammes H<sub>2</sub>/CO/Air lentes proches des limites d'inflammabilité dans un tube fermé encombré d'obstacles.

La trajectoire du front de flamme en fonction du temps fournit un comportement global de la flamme tout au long de sa traversée de l'enceinte expérimentale. Le comportement précis de celle-ci lors de la traversée des obstacles n'est donc pas bien retranscrit par cette courbe. L'évolution de la vitesse de propagation du front de flamme dans l'enceinte en fonction de la distance parcourue par la flamme donne un meilleur aperçu de ce comportement. La Figure 94 montre la comparaison des profils de vitesse en fonction de la distance parcourue par le front de flamme pour les trois pressions initiales étudiées.

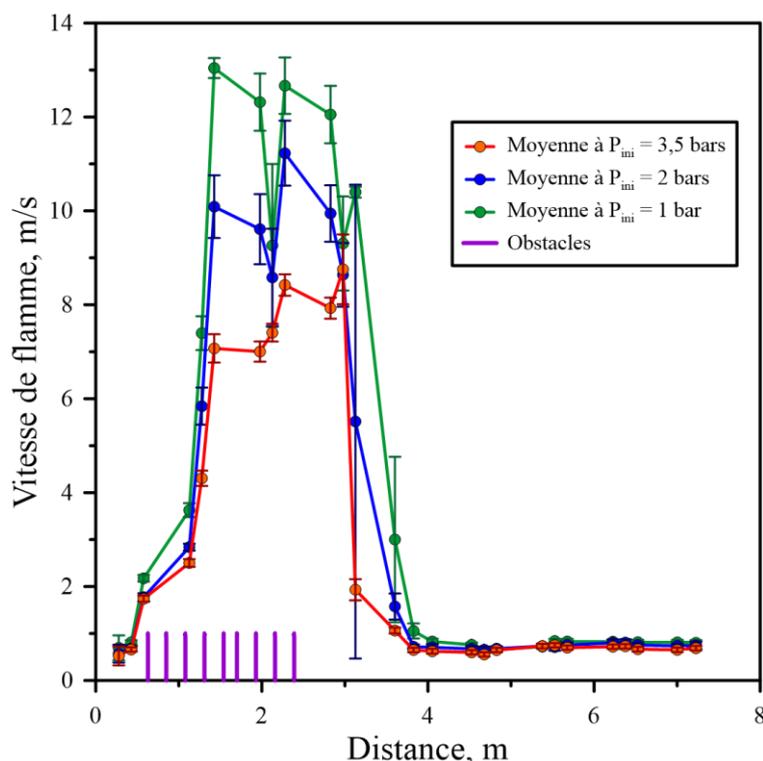


Figure 94 – Comparaison de la moyenne de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar (Test 1) ; 2 bars (Test 3) ; et 3,5 bars (Test 4).

Les trois profils de vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci suivent la même tendance. Cependant, il y a un écart clairement défini entre les différents profils de vitesse avec une diminution de la vitesse de propagation lorsque la pression initiale augmente. Ceci avait été aussi observé lors de l'étude des limites d'inflammabilité des mélanges  $H_2/CO/Air$  pour des pressions initiales supérieures à la pression atmosphérique (cf. Tableau 11 – Chapitre 3 – partie 1.2.2). De plus, la distance parcourue par la flamme avant d'atteindre sa vitesse maximale de propagation augmente lorsque la pression initiale augmente. En effet, la vitesse de propagation maximale est atteinte aux alentours de 1,4 mètre, de 2,27 mètres, et de 3 mètres du point d'allumage pour une pression initiale de 1 bar ; de 2 bars ; et de 3,5 bars respectivement. La flamme est accélérée une première fois lorsqu'elle entame sa traversée des obstacles. Puis, une nouvelle accélération de la flamme a lieu entre le troisième et le quatrième obstacle. Cette accélération se poursuit jusqu'à atteindre sa vitesse de propagation maximale. Finalement, moins d'un mètre après la sortie des obstacles, la vitesse de propagation chute pour se stabiliser autour de 1 m/s, vitesse à laquelle la flamme se propage jusqu'à l'extrémité du tube. La variation de la pression initiale entre 1 et 3,5 bars montre une diminution de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les flammes  $H_2/CO/Air$  lentes proches des limites d'inflammabilité dans un tube fermé encombré d'obstacles. Le Tableau 29 montre la comparaison de deux grandeurs déterminées expérimentalement :  $v_{max}$  la vitesse maximale de propagation du front de flamme (en  $m.s^{-1}$ ), et  $P_{max}$  la pression maximale de combustion (en bar), pour les trois pressions initiales étudiées.

Mélange	$T_{ini}$ (°C)	$P_{ini}$ (bar)	$H_2$ %mol	$CO$ %mol	$v_{max}$ (m/s)	$P_{max}$ (bar)
Test 1	298	1	4,29	4,28	13,04	1,34
Test 3	298	2	4,34	4,34	11,23	2,70
Test 4	298	3,5	4,36	4,36	8,76	4,58

Tableau 29 – Comparaison des valeurs de  $P_{max}$  et  $v_{max}$  pour les trois séries d'essais correspondant aux trois pressions initiales du mélange  $\{50\%H_2+50\%CO\}/Air$  étudiées.

Il est à remarquer une diminution de la vitesse de propagation maximale lorsque la pression initiale du mélange initial augmente. Cette diminution semble être linéaire avec l'augmentation de la pression initiale pour le domaine étudié. De même, la surpression de combustion augmente dans l'enceinte expérimentale avec l'augmentation de la pression initiale. Ceci est en accord avec les résultats trouvés dans la littérature, et avec les résultats déterminés lors du Chapitre 3 – partie 1.2.2.

Les propriétés physico-chimiques déterminées à partir de COSILAB (cf. Chapitre 2 – partie 3) pour les trois pressions initiales étudiées sont données dans les Tableau 30, Tableau 31, Tableau 32.

Mélange	$P_{ini}$ (bar)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	$T_f$ (K)	$P_{AICC}$ (bar)
Test 1	1	4,29	4,28	1032,1	3,98
Test 3	2	4,34	4,34	1040,1	8,01
Test 4	3,5	4,36	4,36	1043,4	14,06

Tableau 30 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les trois pressions initiales étudiées pour une température initiale de 298 K (Partie 1).

$\lambda_f$ (W/m/K)	$\alpha_f$ (m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )	$c_{pf}$ (J/mol/K)	$c_{pb}$ (J/mol/K)
0,03	2,57.10 <sup>-5</sup>	29,11	34,54
0,03	1,29.10 <sup>-5</sup>	29,11	34,61
0,03	7,35.10 <sup>-6</sup>	29,11	34,63

Tableau 31 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les trois pressions initiales étudiées pour une température initiale de 298 K (Partie 2).

$a_f$ (m/s)	$a_b$ (m/s)	$\sigma$	$\beta_{extrapolé}$	$Le_{eff}$	$S_l^0$ (cm/s)
353,95	624,60	3,31	21,00	0,72	0,10
354,03	627,15	3,34	20,69	0,77	0,06
354,07	628,08	3,35	20,53	0,72	0,04

Tableau 32 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les trois pressions initiales étudiées pour une température initiale de 298 K (Partie 3).

L'augmentation de la pression initiale entraîne une hausse de la  $P_{AICC}$  et de la température adiabatique de flamme, comme le montre le Tableau 30. La diffusivité thermique diminue lorsque la pression initiale augmente. Tout d'abord, la diffusivité thermique correspond à la capacité d'un corps à propager la chaleur par conduction. Celle-ci se traduit par la vitesse à laquelle la chaleur se propage dans le corps amenant celui-ci à sa température finale. Celle-ci est égale au rapport entre la conductivité thermique, et le produit entre la masse volumique et la capacité thermique massique à pression constante. Or, comme il est possible de voir dans le Tableau 31, la conductivité thermique, et la capacité thermique massique à pression constante ne varient pas en fonction de la pression initiale. De plus, avec l'augmentation de la pression initiale, la masse volumique des gaz frais augmente. Ainsi, la diffusivité thermique, dans les gaz frais, diminue lorsque la pression initiale augmente. Un deuxième paramètre varie lorsque la pression initiale augmente : la vitesse fondamentale de flamme. En effet, celle-ci diminue lorsque la pression initiale augmente. Ce résultat avait déjà été montré pour d'autres mélanges [17, 201, 293].

### 1.2.2. Profils de pression

L'évolution de la pression permet aussi de caractériser la propagation de ces flammes tout au long de l'enceinte expérimentale. Tout comme pour le Test 1 et le Test 2, les signaux de tous les capteurs

pour chacun des 3 essais composant le Test 3 (4 essais pour ce Test) et le Test 4 se superposent (cf. Figure 150 et Figure 151 – ANNEXE 5 : Répétabilité des signaux de pression.). Ainsi, la moyenne des signaux de tous les capteurs sera prise comme référence pour la comparaison des signaux de pression. Comme précédemment, la moyenne des signaux de pression des séries pour chaque test a été déterminée et est présentée sur la Figure 95.

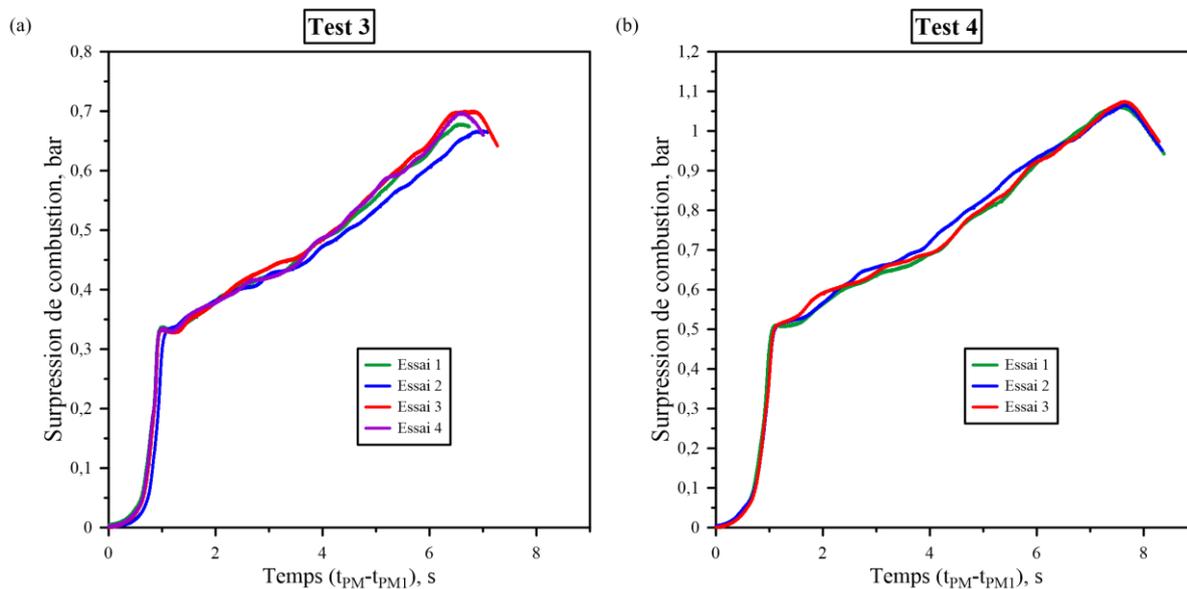


Figure 95 – Répétabilité des signaux de pression pour les trois essais composant le Test 3 et le Test 4. (a) : Test 3, pour un mélange moyen de 4,34%  $H_2$  + 4,34%  $CO$  + 91,32% Air ; pour  $P_{ini} = 2,010 \pm 0,004$  bar ; et  $T_{ini} = 298,15 \pm 1$  K. (b) : Test 4, pour un mélange moyen de 4,36%  $H_2$  + 4,36%  $CO$  + 91,28% Air ; pour  $P_{ini} = 3,506 \pm 0,002$  bar ; et  $T_{ini} = 298,15 \pm 1$  K.

Les essais composant chaque test étant répétables, la moyenne des essais sera prise comme référence pour comparaison. La Figure 96 montre les trois signaux de suppression de combustion en fonction du temps pour les trois pressions initiales étudiées.

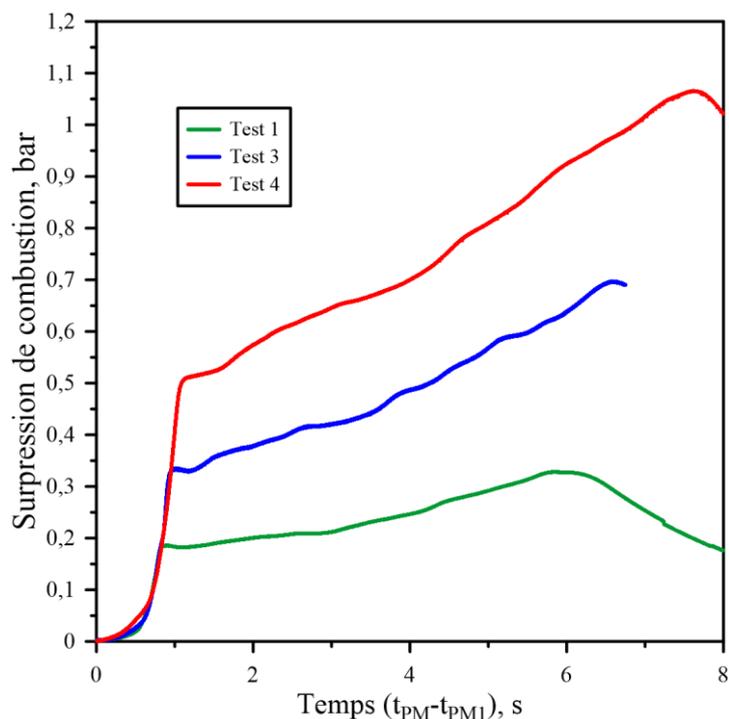


Figure 96 – Comparaison des suppressions de combustion en fonction du temps pour les trois moyennes des signaux pour les trois tests.

Il est possible de voir sur la figure que les trois signaux de la surpression de combustion étudiés ont la même allure. En réalité, la pression connaît une augmentation rapide initiale jusqu'à ce qu'elle atteigne un plateau, où elle continue d'augmenter mais à un rythme moindre, avant d'atteindre sa valeur maximale et ensuite de diminuer. L'effet de la pression initiale influence d'une part la valeur de la pression maximale, qui augmente avec la pression initiale, et d'autre part le temps  $t$  nécessaire pour atteindre cette valeur maximale (cf. Tableau 33), lequel augmente également en fonction de la pression initiale.

Mélange	$P_{max}$ (bar)	$\Delta P_{max}$ (bar)	$t_{\Delta P_{max}}$ (s)
Test 1	1,19	0,19	0,89
Test 3	2,34	0,33	1,07
Test 4	4,21	0,51	1,11

Tableau 33 – Comparaison des valeurs de  $\Delta P_{max}$  et  $t_{\Delta P_{max}}$  pour les trois pressions initiales du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air étudiées.

De même, la valeur de la  $P_{AICC}$  est beaucoup plus importante lorsque la pression initiale augmente. Cependant, l'augmentation de la  $P_{AICC}$  est plus importante que l'augmentation de la surpression de combustion (cf. Tableau 30 – Chapitre 4 – partie 1.2.1). Par conséquent, le rapport de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  est plus important lorsque la pression initiale diminue. Dans tous les cas, il est possible de voir que la valeur de la pression maximale de combustion n'est pas proche de la valeur de la  $P_{AICC}$ , elle se trouve aux alentours de 30-40% de cette valeur pour les trois pressions initiales étudiées. Par conséquent, il s'agit bien d'une flamme lente proche de la limite d'inflammabilité inférieure correspondant à une combustion partielle.

### 1.3. Caractérisation de l'influence de la température initiale

La troisième étape implique de caractériser l'influence de la température initiale sur la propagation d'une flamme H<sub>2</sub>/CO/Air proche de la limite d'inflammabilité inférieure. Pour ce faire, une deuxième température initiale, en plus de la température ambiante, a été étudiée : 363 K, et ceci pour une pression initiale de 1 bar. La limite d'inflammabilité inférieure d'un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air pour une pression initiale de 1 bar et pour une température initiale de 363 K a été déterminée dans le Chapitre 3 – partie 1.2.3. La limite d'inflammabilité inférieure déterminée expérimentalement vaut :  $5,80 \pm 0,60\%$ . La limite d'inflammabilité inférieure d'un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air pour une température initiale de 298 K et pour une pression initiale de 1 bar a été déterminée dans le Chapitre 3 – partie 1.2.1. Elle vaut :  $6,27 \pm 0,46\%$ . Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Système d'allumage : Bougie d'allumage
- Pression initiale :  $1,011 \pm 0,008$  bar
- Température initiale :  $298,15 \pm 1$  K et  $363,15 \pm 1$  K
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Les valeurs caractéristiques de ces flammes lentes proches de la limite d'inflammabilité inférieure, telles que la trajectoire de la flamme, sa vitesse, et les profils de pression, ont été déterminées pour le mélange proche de la limite d'inflammabilité inférieure, pour la deuxième température initiale étudiée (363 K), et pour une pression initiale de 1 bar.

Les deux mélanges proches des limites d'inflammabilité qui ont été étudiés sont : 4,29% H<sub>2</sub> + 4,28% CO + 91,43% Air à 298 K, et 4,21% H<sub>2</sub> + 4,24% CO + 91,55% Air à 363 K. Chaque mélange correspond à un test, et pour chaque test, 3 essais ont été réalisés. Le Tableau 34 récapitule les conditions expérimentales pour ces deux tests.

Mélange	Essai	$P_{ini}$ (bar)	$T_{ini}$ (K)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol
<b>Test 1</b>	1	1	298	4,28	4,28
	2	1	298	4,30	4,26
	3	1	298	4,30	4,31
	<b>Moyenne</b>	<b>1</b>	<b>298</b>	<b>4,29</b>	<b>4,28</b>
<b>Test 5</b>	1	1	363	4,27	4,33
	2	1	363	4,19	4,18
	3	1	363	4,18	4,20
	<b>Moyenne</b>	<b>1</b>	<b>363</b>	<b>4,21</b>	<b>4,24</b>

Tableau 34 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude de l'influence de la température initiale sur la propagation d'une flamme proche de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air pour les deux températures initiales étudiées, et pour une pression initiale de 1 bar.

### 1.3.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse

Pour commencer, la première étape de la caractérisation de l'influence de la température initiale sur la propagation de ces flammes consiste à examiner leur trajectoire et à déterminer leur vitesse de propagation. La trajectoire, ainsi que la vitesse de propagation du front de flamme sont répétables pour tous les tests étudiés (cf. Figure 141 et Figure 142 – ANNEXE 4 : Répétabilité des signaux de trajectoire et de vitesse.).

Dans un premier temps, l'influence de la température initiale sur l'homogénéité dans l'enceinte expérimentale a été caractérisée. Les rapports H<sub>2</sub>/CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale et pour les 3 essais composant le Test 1, pour les 3 essais composant le Test 5, ainsi que pour le mélange moyen, sont donnés sur la Figure 97.

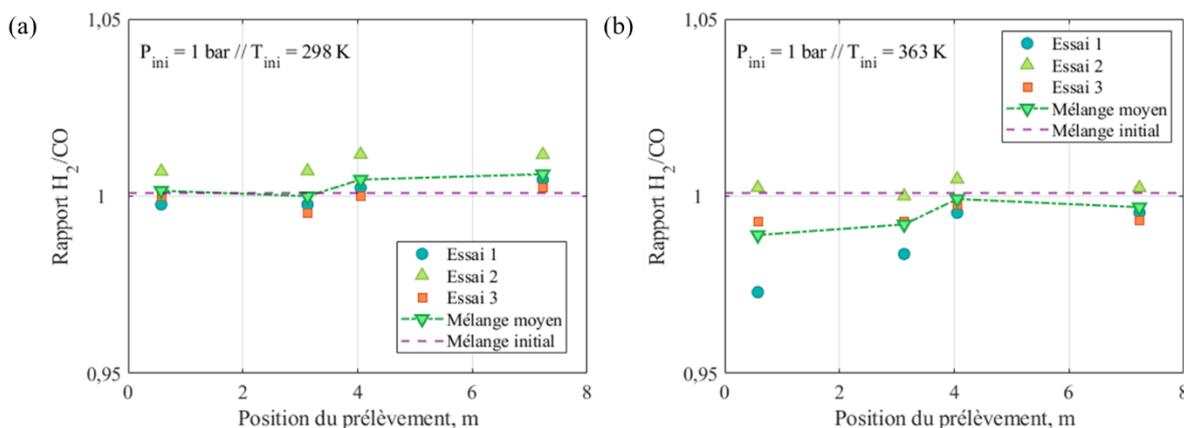


Figure 97 – Rapport H<sub>2</sub>/CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 1, pour les 3 essais composant le Test 5, ainsi que pour le mélange moyen. (a) : Test 1. (b) : Test 5.

L'inhomogénéité dans l'enceinte expérimentale semble augmenter lorsque la température initiale augmente. Il y a un phénomène de stratification dans l'enceinte expérimentale due aux boucles de convection générées par l'augmentation de la température initiale. La répartition de la teneur en hydrogène et en monoxyde de carbone dans l'enceinte expérimentale au cours des 3 essais composant le Test 5 se trouvent en ANNEXE 3 : Répartition de l'hydrogène et du monoxyde de carbone en fonction du point de prélèvement dans l'enceinte expérimentale.

La moyenne des valeurs des séries pour le Test 1 et le Test 5 ont été déterminées et sont présentées sur la Figure 98. Cette figure illustre la comparaison de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K et pour une pression initiale de 1 bar. Chaque courbe résulte de la moyenne des 3 essais comprenant chaque série de tests.

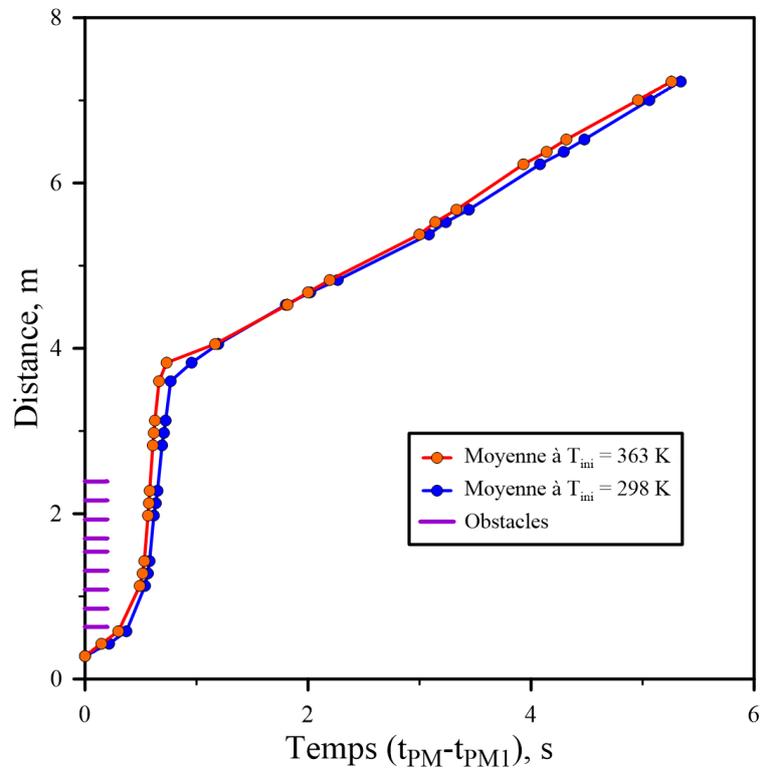


Figure 98 – Comparaison de la moyenne de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K, et pour une pression initiale de 1 bar.

Les deux trajectoires du front de flamme en fonction du temps étudiées suivent des tendances très similaires, mais présentent un écart visible dans les premiers instants de la propagation. La flamme se propageant à une température initiale de 363 K, a une vitesse de propagation plus importante, dès la rentrée dans la zone obstruée, que la flamme se propageant à 298 K. En effet, lorsque la température initiale est de 298 K la flamme parcourt les 3 premiers mètres après le point d'allumage en 0,55 seconde, alors qu'elle les parcourt en 0,45 seconde lorsque la température initiale est de 363 K. Puis, lorsque la zone des obstacles est traversée, les deux mélanges semblent se stabiliser sur un même profil de trajectoire du front de flamme en fonction du temps aux alentours de 4 mètres après le point d'allumage. La variation de la température initiale entre 298 K et 363 K semble avoir une influence sur la zone d'accélération, due à la présence des obstacles, pour les flammes H<sub>2</sub>/CO/Air lentes proches des limites d'inflammabilité dans un tube fermé encombré d'obstacles.

Néanmoins, la trajectoire du front de flamme en fonction du temps fournit un comportement global de la flamme tout au long de sa traversée de l'enceinte expérimentale, et les variations de vitesse au niveau des obstacles sont peu visibles à cause de l'échelle de la figure. Pour mieux apprécier ce comportement, il faut analyser l'évolution de la vitesse de propagation du front de flamme dans l'enceinte en fonction de la distance parcourue par la flamme, et ce pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. La Figure 99 montre la comparaison des profils de vitesse en fonction de la distance parcourue par le front de flamme pour les deux températures initiales étudiées, et pour une pression initiale de 1 bar.

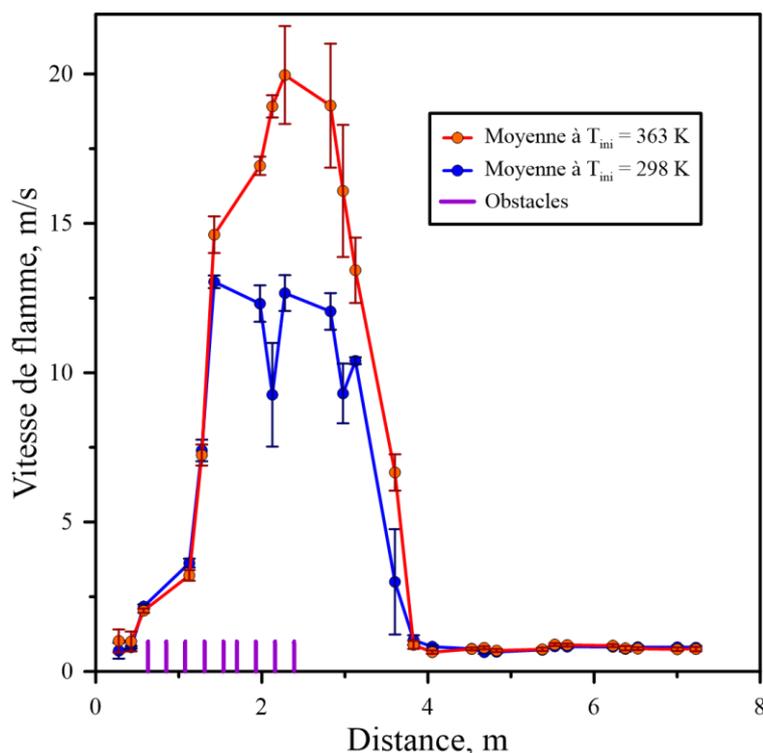


Figure 99 – Comparaison de la moyenne de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les deux températures initiales étudiées : 298 K (Test 1) et 363 K (Test 5), et pour une pression initiale de 1 bar.

La Figure 99 montre que les deux profils de vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci suivent une tendance similaire. Un écart non négligeable est observé pour la valeur de la vitesse maximale atteinte, qui augmente avec l'augmentation de la température initiale. Ce comportement est similaire à celui observé lors de l'étude des limites d'inflammabilité des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air pour des températures initiales supérieures à la température ambiante réalisée avec la bombe sphérique (cf. Tableau 15 – Chapitre 3 – partie 1.2.3). Dans le cas présent, la flamme commence par se propager lentement jusqu'à atteindre le premier obstacle où elle est accélérée. Puis, une nouvelle accélération de la flamme a lieu entre le troisième et le quatrième obstacle. La valeur de la vitesse de propagation maximale semble être atteinte plus loin pour une température initiale plus élevée. Cette vitesse maximale est atteinte peu de temps avant la sortie de la flamme de la zone obstruée pour une température initiale de 363 K, alors qu'elle semble l'être vers le milieu de la zone obstruée pour une température initiale de 298 K. Finalement, moins d'un mètre après la sortie des obstacles, la vitesse de propagation chute pour se stabiliser autour de 1 m.s<sup>-1</sup>, vitesse à laquelle la flamme se propage jusqu'à l'extrémité du tube. La variation de la température initiale entre 298 K et 363 K a comme conséquence l'augmentation de la vitesse de propagation du front de flamme dans l'enceinte en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les flammes H<sub>2</sub>/CO/Air lentes proches des limites d'inflammabilité dans un tube fermé encombré d'obstacles. En effet, avec l'augmentation de la température initiale, la température adiabatique de flamme augmente et donc les taux de réaction, et les diffusivités thermiques et massiques deviennent plus importants. L'augmentation de la température initiale accroît la teneur en radicaux libres dans la réaction. Lorsque la température initiale augmente, la production de H et de OH par la réaction  $O + H_2 = H + OH$  augmente, ce qui renforce la réaction en chaîne et augmente la vitesse de flamme laminaire [294].

Le Tableau 35 montre la comparaison de deux grandeurs déterminées expérimentalement :  $v_{max}$  la vitesse maximale de propagation du front de flamme (en m.s<sup>-1</sup>), et  $P_{max}$  la pression maximale de combustion (en bar), pour les deux températures initiales étudiées.

Mélange	$T_{ini}$ (°C)	$P_{ini}$ (bar)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	$v_{max}$ (m/s)	$P_{max}$ (bar)
Test 1	298	1	4,29	4,28	13,04	1,34
Test 5	363	1	4,21	4,24	19,96	1,37

Tableau 35 – Comparaison des valeurs de  $P_{max}$  et  $v_{max}$  pour les deux séries d'essais correspondant aux deux températures initiales du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air étudiées.

Il est à remarquer une augmentation de la vitesse de propagation maximale lorsque la température initiale du mélange augmente. De plus, la pression de combustion maximale ne se voit pas réellement affectée par l'augmentation de la température initiale. Ceci est en accord avec les résultats trouvés dans la littérature, et avec les résultats déterminés lors du Chapitre 3 – partie 1.2.3.

Il est possible dans un dernier temps de comparer les résultats obtenus pour les deux températures initiales étudiées, et pour une pression initiale de 1 bar. Les propriétés physico-chimiques déterminées à partir de COSILAB (cf. Chapitre 2 – partie 3) sont résumées dans les Tableau 36, Tableau 37, Tableau 38.

Mélange	$T_{ini}$ (K)	$P_{ini}$ (bar)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	$T_f$ (K)
Test 1	298	1	4,29	4,28	1032,1
Test 5	363	1	4,21	4,24	1079,2

Tableau 36 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour une pression initiale de 1 bar (Partie 1).

$\lambda_f$ (W/m/K)	$\alpha_f$ (m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )	$c_{pf}$ (J/mol/K)	$c_{pb}$ (J/mol/K)	$P_{AICC}$ (bar)
0,030	$2,57.10^{-5}$	29,11	34,54	3,98
0,035	$3,60.10^{-5}$	29,28	34,79	3,37

Tableau 37 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour une pression initiale de 1 bar (Partie 2).

$a_f$ (m/s)	$a_b$ (m/s)	$\sigma$	$\beta_{extrapolé}$	$Le_{eff}$	$S_l^0$ (cm/s)
353,95	624,60	3,31	21,00	0,72	0,10
390,04	638,26	2,85	21,60	0,72	0,54

Tableau 38 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour une pression initiale de 1 bar (Partie 3).

Il est donc possible de comparer les différentes valeurs déterminées pour les deux températures initiales étudiées. Tout d'abord, la température adiabatique de flamme augmente lorsque la température initiale augmente. Cependant, la  $P_{AICC}$  diminue lorsque la température initiale augmente. Concernant la vitesse du son dans les gaz frais, ainsi que dans les gaz brûlés, celle-ci augmente lorsque la température initiale est plus élevée. En effet, la vitesse du son est proportionnelle à la racine carrée de la température initiale. Engendrant donc, une augmentation lorsque la température initiale augmente. De plus, le nombre de Zel'dovich augmente très légèrement lorsque la température initiale augmente. En effet, ce nombre est proportionnel à l'énergie d'activation, et est inversement proportionnel à la température des gaz brûlés. Or, lorsque la température initiale augmente, il y a moins de molécules capables de réagir pour initier la combustion. Dans ce cas l'énergie nécessaire pour initier la réaction chimique est plus importante. Comme l'énergie est plus importante, le nombre de Zel'dovich est plus élevé à son tour. Cependant, l'influence de la température initiale sur le nombre de Zel'dovich semble être modérée sur l'intervalle de températures étudié. Le coefficient d'expansion des gaz frais diminue lorsque la température initiale augmente. Celui-ci est égal au rapport entre la masse volumique des gaz frais et la

masse volumique des gaz brûlés. Or, la masse volumique des gaz frais diminue lorsque la température initiale augmente. La masse volumique des gaz brûlés diminue à son tour lorsque la température initiale augmente, mais cette variation est très faible. La variation dans les gaz frais l'emporte. Donc, le coefficient d'expansion des gaz frais diminue lorsque la température initiale augmente. Finalement, la vitesse fondamentale de flamme augmente lorsque la température initiale augmente.

### 1.3.2. Profils de pression

La deuxième étape de la caractérisation de ces flammes est l'étude des profils de pression de celles-ci tout au long d'ENACCEF-II, à partir de deux courbes de surpression de combustion en fonction du temps, et ce pour une pression initiale de 1 bar. Les deux températures initiales étudiées sont : 298 K et 363 K. Tout comme pour les Tests 1, 2, 3, et 4, les signaux de tous les capteurs pour chacun des 3 essais composant le Test 5 se superposent (cf. Figure 152 – ANNEXE 5 : Répétabilité des signaux de pression.). Ainsi, la moyenne des signaux de tous les capteurs sera prise comme référence pour la comparaison des signaux de pression. Comme précédemment, la moyenne des signaux de pression des séries pour chaque test a été déterminée et son présentées sur la Figure 100.

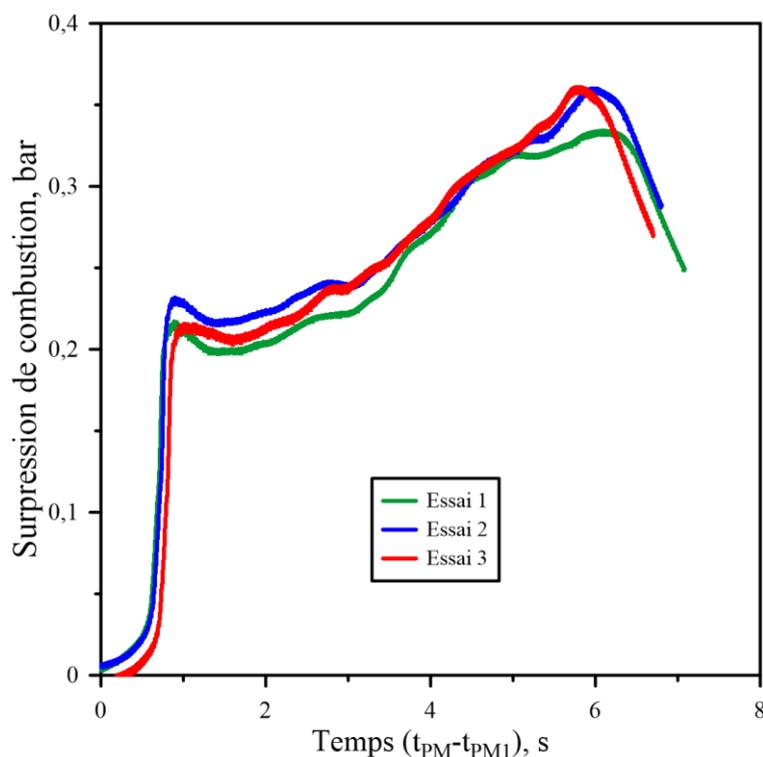


Figure 100 – Répétabilité des signaux de pression pour le Test 5, pour un mélange moyen de 4,21% H<sub>2</sub> + 4,24% CO + 91,55% Air ; pour P<sub>ini</sub> = 1,011±0,008 bar ; et T<sub>ini</sub> = 363,15±1 K.

Les essais composant le test 5 sont répétables, la moyenne des essais sera prise comme référence pour comparaison. La Figure 101 montre les deux signaux de surpression de combustion en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées et pour une pression initiale de 1 bar.

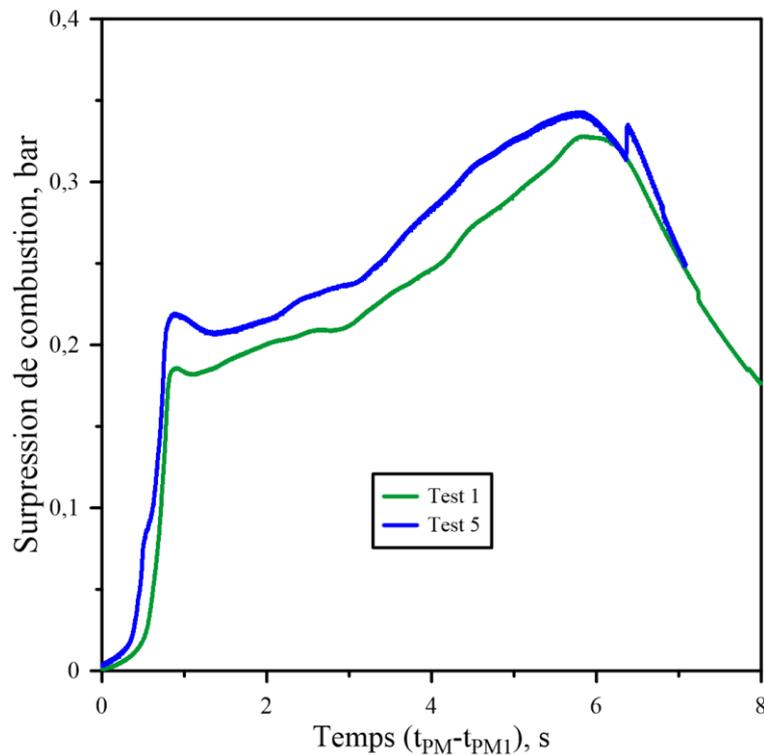


Figure 101 – Comparaison des surpressions de combustion en fonction du temps pour les deux moyennes des signaux pour les deux tests.

L'analyse montre que les deux signaux de surpression de combustion étudiés ont la même allure. Tout comme pour l'étude de l'influence de la pression initiale (cf. Chapitre 4 – partie 1.2), la pression commence par augmenter rapidement jusqu'à atteindre un premier ralentissement dans son augmentation, où la pression continue d'augmenter, mais beaucoup moins rapidement. Puis, elle atteint sa valeur maximale avant de diminuer. Il est possible de voir qu'il n'y a pas vraiment d'écart entre les deux courbes, et que les valeurs de pression maximales obtenues sont très proches dans les deux cas. Or, la valeur de la  $P_{AICC}$  diminue lorsque la température initiale augmente (cf. Tableau 36 – Chapitre 4 – partie 1.3.1). Par conséquent, le rapport de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  est plus important lorsque la température initiale augmente. Dans tous les cas il est possible de voir que la valeur de la pression maximale de combustion n'est pas proche de la valeur de la  $P_{AICC}$ , elle se trouve aux alentours de 30-40% de cette valeur pour les deux températures initiales étudiées. De plus, la flamme étant très lente, les pertes de chaleur au niveau des parois de l'enceinte sont importantes, ce qui a pour conséquence l'abaissement de la température des gaz brûlés, et donc de la pression. Il s'agit d'une flamme lente proche de la limite d'inflammabilité inférieure correspondant à une combustion partielle.

L'effet de la température initiale semble avoir une influence très légère sur la valeur de la pression de combustion maximale. De plus, le temps  $t$  nécessaire pour atteindre cette valeur maximale diminue lorsque la température initiale augmente (cf. Tableau 39). Ceci est en accord avec les résultats déterminés dans le Chapitre 3 – partie 1.2.3, traitant de l'influence de la température initiale sur les limites d'inflammabilité du mélange  $H_2/CO/Air$ .

Mélange	$T_{ini}$ (K)	$\Delta P_{max}$ (bar)	$t_{\Delta P_{max}}$ (s)
Test 1	298	0,19	0,89
Test 5	363	0,22	0,86

Tableau 39 – Comparaison des valeurs de  $\Delta P_{max}$  et  $t_{\Delta P_{max}}$  pour les deux températures initiales du mélange étudiées.

## 1.4. Caractérisation de l'influence conjointe de la pression et de la température initiales

La quatrième étape implique de caractériser l'influence conjointe de la pression et de la température initiales sur la propagation d'une flamme H<sub>2</sub>/CO/Air proche de la limite d'inflammabilité inférieure. Pour ce faire, les deux températures initiales de la partie précédente (298 K et 363 K) ont été étudiées, et ceci pour les trois pressions initiales vues précédemment (1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars). Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Système d'allumage : *Bougie d'allumage*
- Pression initiale :  $1,011 \pm 0,008 \text{ bar}$  ;  $2,010 \pm 0,003 \text{ bar}$  ; et  $3,510 \pm 0,003 \text{ bar}$
- Température initiale :  $298,15 \pm 1 \text{ K}$  et  $363,15 \pm 1 \text{ K}$
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Les valeurs caractéristiques de ces flammes lentes proches de la limite d'inflammabilité inférieure, telles que la trajectoire de la flamme, sa vitesse, et les profils de pression, ont été déterminées pour trois mélanges initiaux proches des limites d'inflammabilité, pour la deuxième température initiale étudiée (363 K), et pour les trois pressions initiales étudiées.

Deux tests supplémentaires ont été réalisés à 363 K pour compléter l'étude : le Test 6 à 2 bars, et le Test 7 à 3,5 bars. Ceux-ci sont présentés dans le Tableau 28, le Tableau 34, et le Tableau 40 qui résument les conditions initiales des différents tests. Cette partie de l'étude compare les résultats obtenus pour les Tests 1, 3, 4, 5, 6, et 7.

Mélange	Essai	$P_{ini}$ (bar)	$T_{ini}$ (K)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol
<b>Test 6</b>	1	2	363	4,19	4,22
	2	2	363	4,22	4,23
	<b>Moyenne</b>	<b>2</b>	<b>363</b>	<b>4,21</b>	<b>4,23</b>
<b>Test 7</b>	1	3,5	363	4,27	4,29
	2	3,5	363	4,27	4,29
	3	3,5	363	4,27	4,30
	<b>Moyenne</b>	<b>3,5</b>	<b>363</b>	<b>4,27</b>	<b>4,29</b>

Tableau 40 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude de l'influence de la température initiale sur la propagation d'une flamme proche de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air pour les deux températures initiales étudiées, et pour les 3 pressions initiales fixées.

### 1.4.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse

Pour commencer, la première étape de la caractérisation de l'influence de la température initiale sur la propagation de ces flammes consiste à examiner leur trajectoire et à déterminer leur vitesse de propagation. Les résultats expérimentaux pour les deux températures initiales examinées, ainsi que pour les trois pressions initiales fixées 1 bar, 2 bars et 3,5 bars, seront exposés. Une analyse globale sera faite dans le but de mieux comprendre l'influence conjointe de la pression initiale et de la température initiale sur la propagation de la flamme. Dans l'ensemble des cas, la tendance de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour tous les tests, est répétable (cf. Figure 143 et Figure 145 – ANNEXE 4 : Répétabilité des signaux de trajectoire et de vitesse.).

L'étude de l'influence conjointe de la température et de la pression initiales sur l'homogénéité dans l'enceinte expérimentale, montre que l'augmentation de la pression initiale diminue la dispersion générée par l'augmentation de la température initiale. Les rapports  $H_2/CO$  pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale et pour les 3 essais composant le Test 5, pour les 2 essais composant le Test 6, pour les 3 essais composant le Test 7, ainsi que pour le mélange moyen, sont donnés sur la Figure 102.

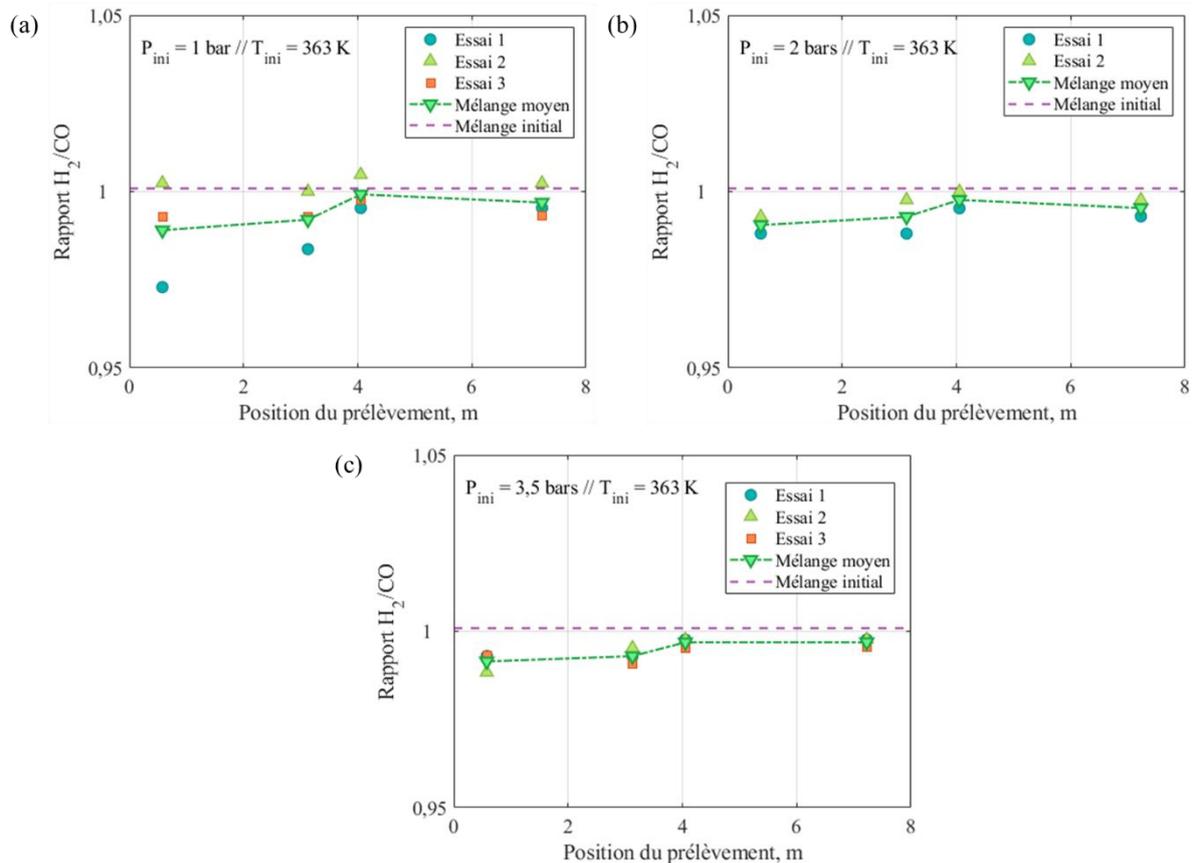


Figure 102 – Rapport  $H_2/CO$  pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 5, pour les 2 essais composant le Test 6, pour les 3 essais composant le Test 7, ainsi que pour le mélange moyen. (a) : Test 5. (b) : Test 6. (c) : Test 7.

La répartition de la teneur en hydrogène et en monoxyde de carbone dans l'enceinte expérimentale au cours des 2 essais composant le Test 6, et des 3 essais composant le Test 7, se trouvent en ANNEXE 3 : Répartition de l'hydrogène et du monoxyde de carbone en fonction du point de prélèvement dans l'enceinte expérimentale.

La Figure 103 montre la comparaison de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K, pour une pression initiale de 1 bar (Test 1 et Test 5 – cf. Figure 103 (a)), pour une pression initiale de 2 bars (Test 3 et Test 6 – cf. Figure 103 (b)), et pour une pression initiale de 3,5 bars (Test 4 et Test 7 – cf. Figure 103 (c)). Pour rappel, chaque courbe résulte de la valeur moyenne des différents essais réalisés pour chaque cas test.

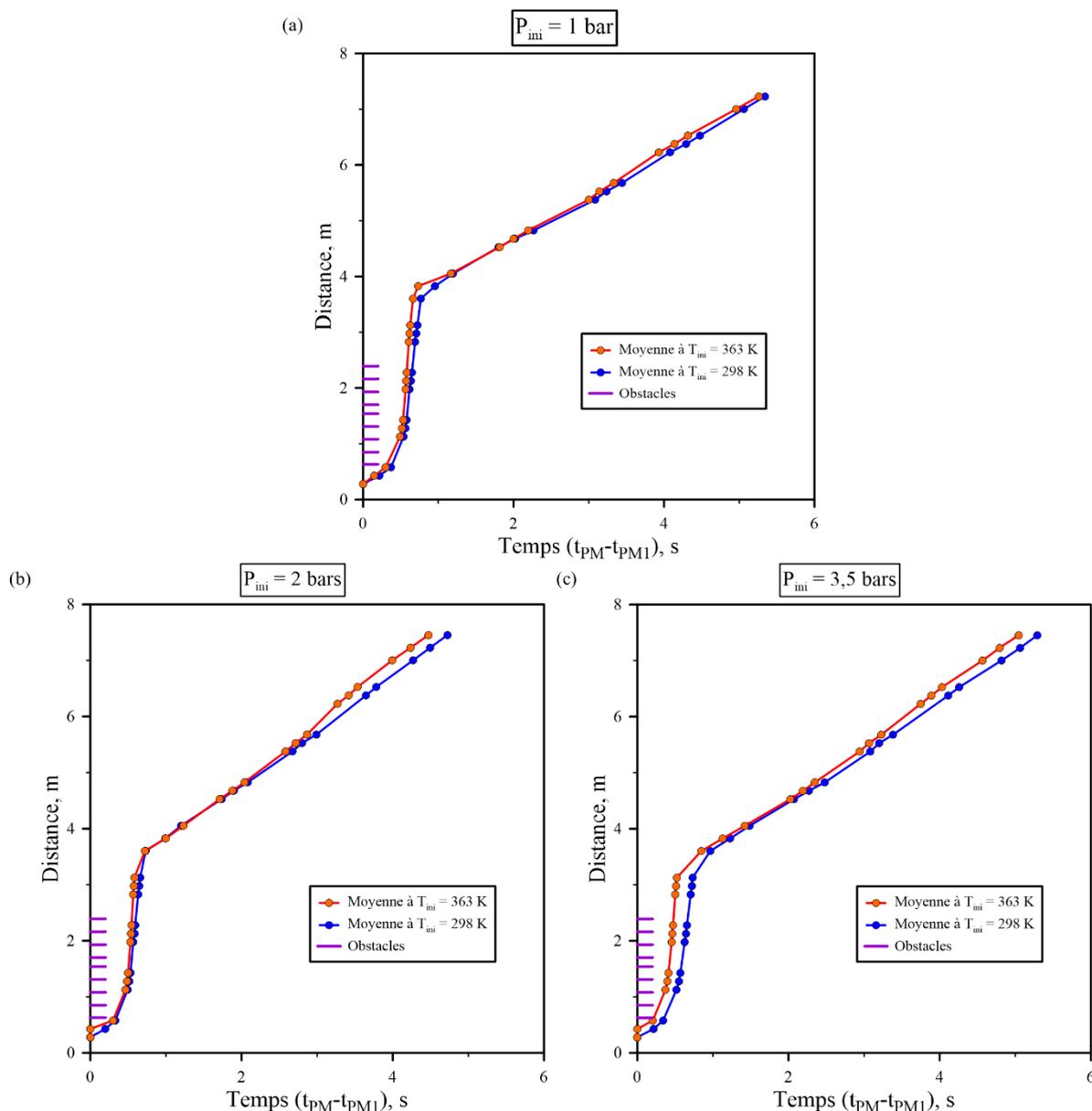


Figure 103 – Comparaison de la moyenne de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. (a) : Comparaison faite pour une pression initiale de 1 bar (Test 1 et Test 5). (b) : Comparaison faite pour une pression initiale de 2 bars (Test 3 et Test 6). (c) : Comparaison faite pour une pression initiale de 3,5 bars (Test 4 et Test 7).

Une première observation montre que l'allure générale de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps ne varie pas beaucoup avec l'augmentation de la température initiale. Il est possible de décomposer cette allure en plusieurs parties en fonction de la distance parcourue par le front de flamme.

- Dans la zone obstruée :

- Pour une pression initiale donnée lorsque la température initiale augmente, la distance parcourue pour un temps donné augmente. Cet écart de distance est d'autant plus accru que la pression initiale augmente.
- Le point d'inflexion des courbes, propre au ralentissement de la flamme, ne semble pas être influencé par la température initiale. En revanche la distance parcourue avant d'atteindre le point d'inflexion diminue lorsque la pression initiale augmente.

En fixant la dimension temporelle, dans la zone obstruée, il est possible de comparer la distance parcourue par le front de flamme en fonction des deux paramètres étudiés : la pression et la température initiales. Un récapitulatif de cette comparaison est donné dans le Tableau 41.

	1 bar		2 bars		3,5 bars	
	298 K	363 K	298 K	363 K	298 K	363 K
Temps (s)	0,56	0,56	0,66	0,66	0,67	0,67
Distance (m)	1,29	1,96	1,29	1,98	1,12	2,79
<b>Ecart (m)</b>	<b>0,67</b>		<b>0,69</b>		<b>1,67</b>	

Tableau 41 – Comparatif de la distance parcourue par le front de flamme pour un mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air pour un temps fixé en fonction de la pression et de la température initiales.

La distance parcourue par le front de flamme augmente lorsque la température initiale augmente, et l'écart entre ces deux valeurs pour les deux températures initiales augmente lorsque la pression initiale augmente. Ceci traduit le fait que l'accélération de la flamme générée par l'augmentation de la température initiale est d'autant plus importante lorsque la pression initiale augmente.

- Après la zone obstruée :

- Après le point d'inflexion : le comportement de la propagation de la flamme semble être linéaire. L'analyse des pentes montre que la température initiale de la flamme n'a pas d'influence, mais une augmentation de la pression initiale entraîne un ralentissement plus important de la flamme.

Pour mieux apprécier l'influence conjointe de la pression et de la température initiales sur la propagation de ces flammes, il est intéressant d'analyser l'évolution de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue. La Figure 104 montre la comparaison des profils de vitesse en fonction de la distance parcourue par le front de flamme pour les deux températures initiales étudiées, pour une pression initiale de 1 bar (Test 1 et Test 5 – cf. Figure 104 (a)), pour une pression initiale de 2 bars (Test 3 et Test 6 – cf. Figure 104 (b)) et pour une pression initiale de 3,5 bars (Test 4 et Test 7 – cf. Figure 104 (c)).

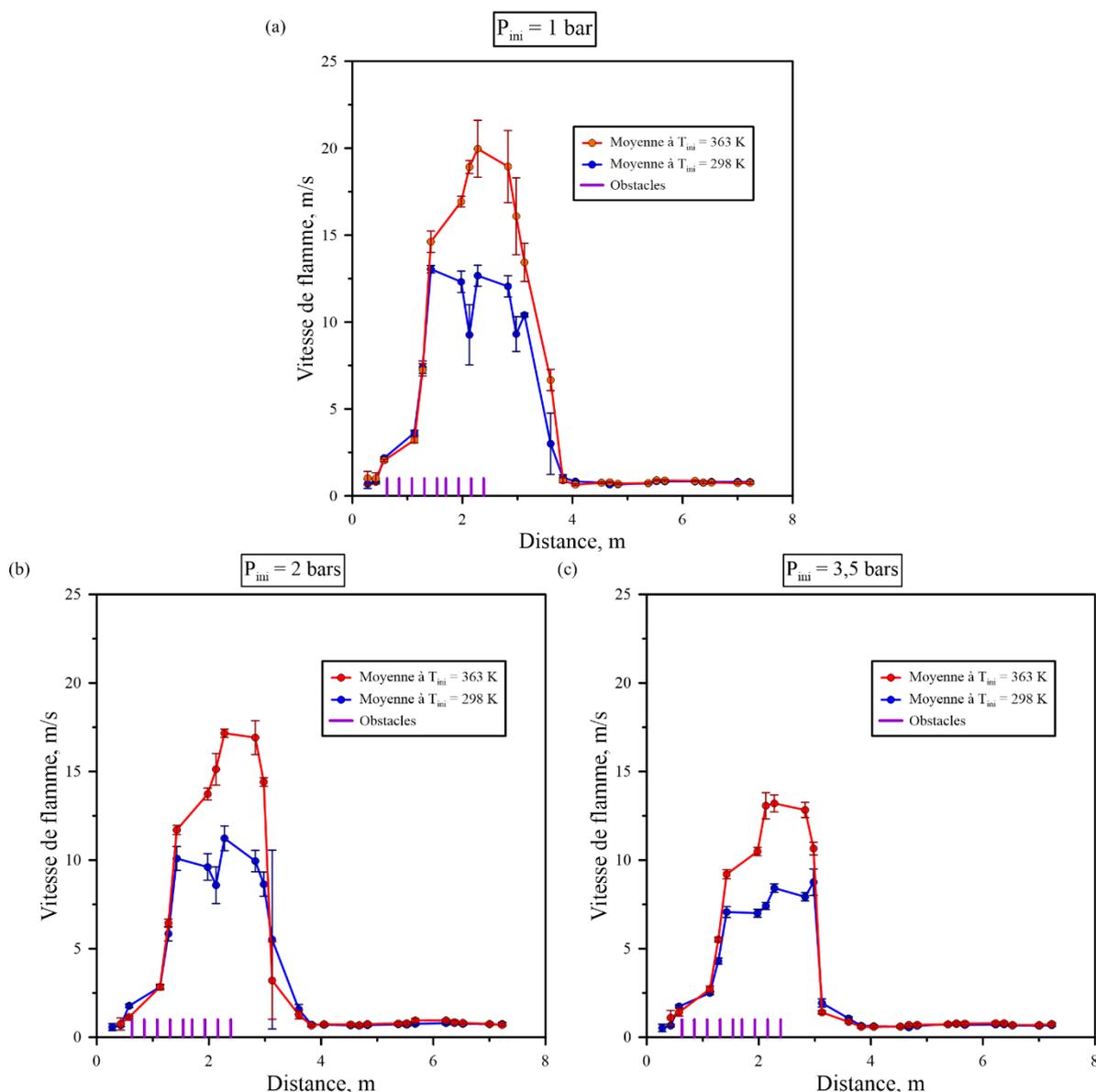


Figure 104 – Comparaison de la moyenne de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. (a) : Comparaison faite pour une pression initiale de 1 bar (Test 1 et Test 5). (b) : Comparaison faite pour une pression initiale de 2 bars (Test 3 et Test 6). (c) : Comparaison faite pour une pression initiale de 3,5 bars (Test 4 et Test 7).

La vitesse de propagation de la flamme dans l'enceinte en fonction du temps augmente avec l'augmentation de la température initiale pour une même pression initiale, comme observé antérieurement (cf. Chapitre 4 – partie 1.3). Ceci avait été aussi vu, pour une pression atmosphérique, lors de l'étude des limites d'inflammabilité des mélanges  $H_2/CO/Air$  pour des températures initiales supérieures à la température ambiante (cf. Tableau 15 – Chapitre 3 – partie 1.2.3). De plus, l'écart entre les deux vitesses de propagation maximales, déterminées pour les deux températures initiales étudiées, diminue lorsque la pression initiale augmente. La conclusion générale, concernant ces remarques, reste donc identique à celle vue précédemment : la variation de la température initiale entre 298 K et 363 K a comme conséquence d'augmenter la vitesse de propagation du front de flamme dans l'enceinte en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les flammes  $H_2/CO/Air$  lentes proches des limites d'inflammabilité dans un tube fermé encombré d'obstacles, et ce quelle que soit la pression initiale.

L'analyse de l'allure générale de la figure montre que le profil de vitesse semble être plus étroit lorsque la pression initiale augmente. De plus, la distribution de la vitesse de propagation du front de

flamme en fonction de la distance change considérablement avec l'augmentation de la température initiale :

- Pour une température initiale de 363 K, l'allure générale de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celle-ci présente une dissymétrie, avec un point culminant vers la sortie des obstacles. Cette dissymétrie est présente, quelle que soit la pression initiale.
- Pour une température initiale de 298 K, cette dissymétrie est plus variable, en présentant des valeurs plus importantes en début de la zone obstruée pour une pression initiale de 1 bar, puis en se déplaçant vers la fin des obstacles pour une pression initiale de 3,5 bars.

Dans le but de confirmer cette hypothèse de dissymétrie du profil de vitesse de propagation du front de flamme, une étude sur ces différents profils de vitesse pour les deux températures initiales étudiées, pour chaque pression initiale fixée a été faite. Pour cela, une distribution Gaussienne a été appliquée. La distribution Gaussienne a été choisie de telle sorte à distribuer les valeurs de vitesse de propagation du front de flamme autour de la valeur maximale. La méthode d'optimisation non-linéaire réalisée avec Matlab® a été utilisée pour faire un fit des valeurs expérimentales. La Figure 105 présente le fit de la vitesse de propagation du front de flamme pour les deux températures étudiées : 298 K et 363 K en fonction de la distance, pour une pression initiale de 1 bar (cf. Figure 105 (a)), de 2 bars (cf. Figure 105 (b)), et de 3,5 bars (cf. Figure 105 (c)).

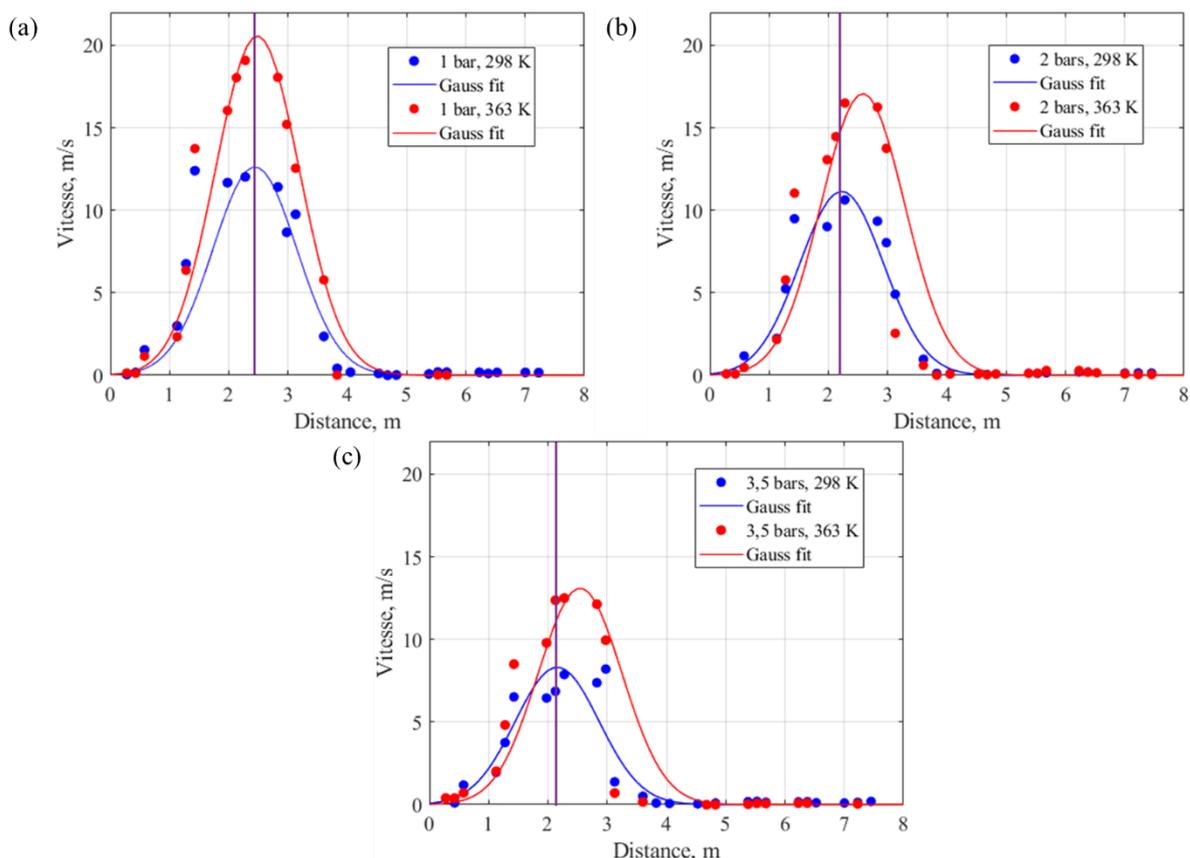


Figure 105 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. (a) : Fit pour une pression initiale de 1 bar. (b) : Fit pour une pression initiale de 2 bars. (c) : Fit pour une pression initiale de 3,5 bars.

Il est possible de voir que l'écart entre le maximum des deux distributions gaussiennes pour les deux températures initiales augmente lorsque la pression initiale augmente. Cependant, un palier semble être atteint lorsque la pression initiale atteint 3,5 bars. En effet, l'écart entre ces deux maxima ne semble

pas augmenter lorsque la pression initiale augmente de 2 à 3,5 bars. De plus, l'écart entre les deux valeurs maximales de vitesse diminue lorsque la pression initiale augmente.

Cependant, pour une température initiale donnée, la vitesse de propagation maximale diminue avec l'augmentation de la pression initiale. Comme illustration, la Figure 106 montre la comparaison des profils de vitesse en fonction de la distance parcourue par le front de flamme pour les trois pressions initiales étudiées et une température initiale de 363 K.

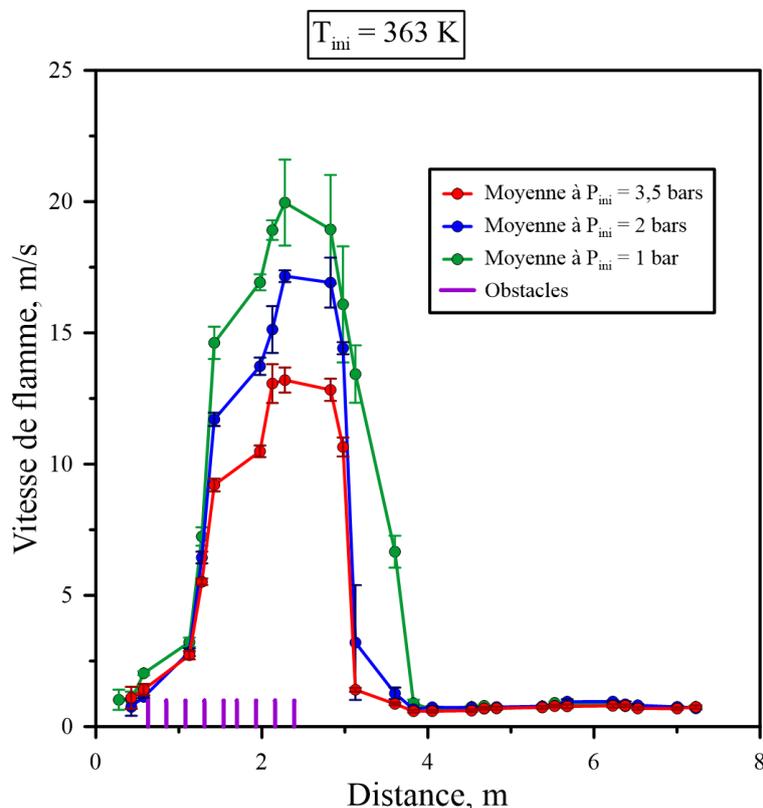


Figure 106 – Comparaison de la moyenne de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars ; et pour une température initiale de 363 K.

Les trois profils de vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci présentent un comportement équivalent avec des écarts des valeurs qui dépendent de la pression initiale. Il y a un écart entre les différents profils de vitesse qui semble diminuer avec l'augmentation de la pression initiale, et la vitesse maximale de combustion semble être atteinte au même endroit géométrique : vers la fin de la zone obstruée.

Le Tableau 42 montre la comparaison de deux grandeurs déterminées expérimentalement :  $v_{max}$  la vitesse maximale de propagation du front de flamme (en  $m.s^{-1}$ ), et  $P_{max}$  la pression maximale de combustion (en bar), pour les trois pressions initiales étudiées, et pour les deux températures initiales fixées.

Mélange	$T_{ini}$ (K)	$P_{ini}$ (bar)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	$v_{max}$ (m/s)	$P_{max}$ (bar)
Test 1	298	1	4,29	4,28	13,04	1,34
Test 3	298	2	4,34	4,34	11,23	2,70
Test 4	298	3,5	4,36	4,36	8,76	4,58

Test 5	363	1	4,29	4,28	19,96	1,37
Test 6	363	2	4,34	4,34	17,16	2,83
Test 7	363	3,5	4,36	4,36	13,2	4,64

Tableau 42 – Comparaison des valeurs de  $P_{max}$  et  $v_{max}$  pour les six séries d'essais correspondant aux deux températures initiales, et ce pour les trois pressions initiales du mélange {50% $H_2$ +50% $CO$ }/Air étudiées.

Il est à remarquer une augmentation de la vitesse de propagation maximale lorsque la température initiale du mélange initial augmente. Cependant l'écart entre les deux valeurs de vitesse de propagation maximale est réduit lorsque la pression initiale augmente. En effet, l'augmentation de la température initiale a comme effet une augmentation de la vitesse de propagation maximale, alors que l'augmentation de la pression initiale a un effet inverse. De plus, la surpression de combustion maximale augmente avec l'augmentation de la pression initiale, et la température initiale a une influence très légère sur cette pression de combustion. Cette surpression de combustion maximale semble augmenter avec l'augmentation de la température initiale. Ceci est en accord avec les résultats trouvés dans la littérature, et avec les résultats déterminés lors du Chapitre 4 – partie 1.2.1 et 1.3.1.

Le Tableau 43 présente l'influence conjointe de la pression et la température initiales sur les valeurs de la vitesse de propagation maximale.

	1 bar	2 bars	3,5 bars
298 K	13,04	11,23	8,76
363 K	19,96	17,16	13,2

Tableau 43 – Comparaison conjointe des valeurs de  $v_{max}$  en fonction de la pression initiale et de la température initiale.

La Figure 107 présente l'évolution de la vitesse de propagation maximale en fonction de la pression initiale pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K.

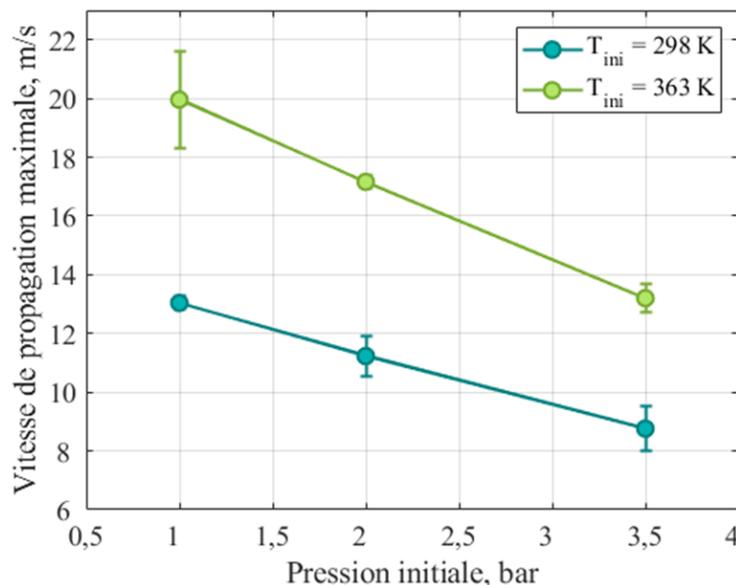


Figure 107 – Vitesse de propagation maximale du front de flamme en fonction de la pression initiale pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K.

La vitesse de propagation maximale du front de flamme décroît linéairement en fonction de la pression initiale sur le domaine de pressions étudiées, et ce pour les deux températures initiales étudiées. De plus, l'écart entre les deux valeurs de vitesse de propagation maximale pour les deux températures initiales étudiées et pour une même pression initiale diminue lorsque cette dernière augmente.

De même, la Figure 108 présente l'évolution de la vitesse de pression maximale en fonction de la température initiale pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars.

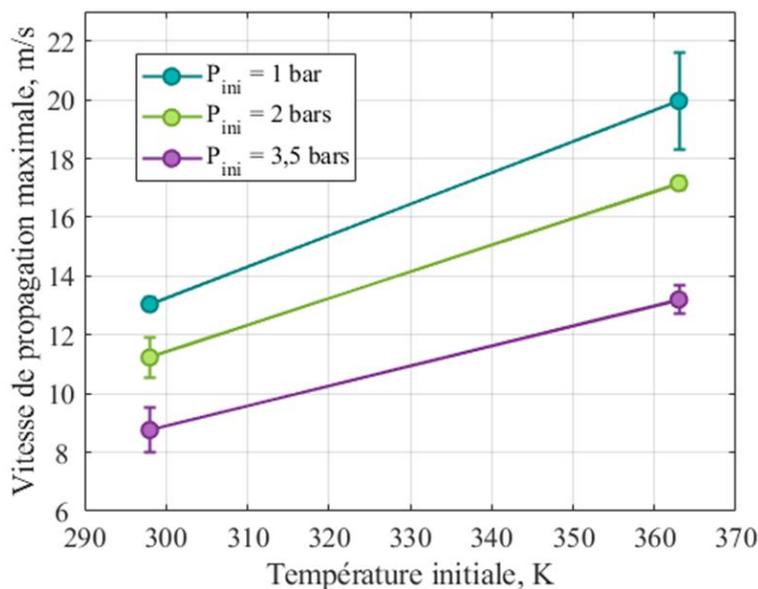


Figure 108 – Vitesse de propagation maximale du front de flamme en fonction de la Température initiale pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars.

La vitesse de propagation maximale du front de flamme augmente en fonction de la température initiale sur le domaine de températures et de pressions initiales étudiées. De plus, l'écart entre les trois valeurs de vitesse de propagation maximale pour les trois pressions initiales étudiées et pour une même température initiale augmente lorsque cette dernière augmente.

Il est possible dans un dernier temps de comparer les résultats obtenus pour les deux températures initiales étudiées, et ce pour les trois pressions initiales fixées. Les propriétés physico-chimiques déterminées à partir de COSILAB (cf. Chapitre 2 – partie 3) sont résumées dans les Tableau 44, Tableau 45, Tableau 46.

Mélange	T <sub>ini</sub> (K)	P <sub>ini</sub> (bar)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	T <sub>f</sub> (K)
Test 1	298	1	4,29	4,28	1032,1
Test 5	363	1	4,21	4,24	1079,2
Test 3	298	2	4,34	4,34	1040,1
Test 6	363	2	4,20	4,22	1077,7
Test 4	298	3,5	4,36	4,36	1043,4
Test 7	363	3,5	4,27	4,29	1088,3

Tableau 44 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour les trois pressions initiales fixées (Partie 1).

$\lambda_f$ (W/m/K)	$\alpha_f$ (m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )	$c_{p_f}$ (J/mol/K)	$c_{p_b}$ (J/mol/K)	P <sub>AICC</sub> (bar)
0,030	2,57.10 <sup>-5</sup>	29,11	34,54	3,98
0,035	3,60.10 <sup>-5</sup>	29,28	34,79	3,37

0,030	$1,29 \cdot 10^{-5}$	29,11	34,61	8,01
0,035	$1,80 \cdot 10^{-5}$	29,28	34,78	6,72
0,030	$7,35 \cdot 10^{-5}$	29,11	34,63	14,06
0,035	$1,03 \cdot 10^{-5}$	29,28	34,86	11,88

Tableau 45 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour les trois pressions initiales fixées (Partie 2).

$a_f$ (m/s)	$a_b$ (m/s)	$\sigma$	$\beta_{extrapolé}$	$Le_{eff}$	$S_l^0$ (cm/s)
353,95	624,60	3,31	21,00	0,72	0,10
390,04	638,26	2,85	21,60	0,72	0,54
354,03	627,15	3,34	20,69	0,72	0,06
390,03	639,85	2,84	21,66	0,74	0,13
354,07	628,08	3,35	20,53	0,72	0,04
390,16	640,74	2,87	21,17	0,72	0,09

Tableau 46 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées et pour les trois pressions initiales fixées (Partie 3).

L'analyse de l'ensemble des valeurs montre que la valeur de la  $P_{AICC}$  diminue lorsque la température initiale augmente. L'écart entre deux valeurs de la  $P_{AICC}$  pour une augmentation de la température initiale augmente lorsque la pression initiale augmente. L'augmentation de la vitesse du son en fonction de la température initiale est indépendante de l'augmentation de la pression initiale. Cette même conclusion est valable pour la diminution du coefficient d'expansion, et l'augmentation du nombre de Zel'dovich avec l'augmentation de la température initiale, et ce peu importe la pression initiale qui n'a pas d'influence sur cette grandeur. Finalement, la vitesse fondamentale de flamme augmente lorsque la température initiale augmente, et ce quelle que soit la pression initiale.

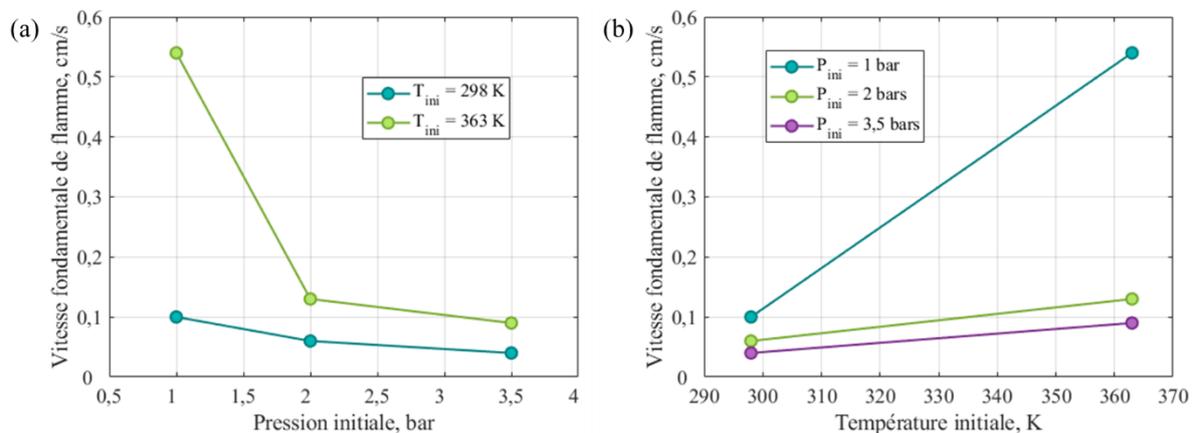


Figure 109 – Vitesse fondamentale de flamme en fonction des deux grandeurs étudiées : la pression et la température initiales. (a) : Vitesse fondamentale de flamme pour les deux températures initiales étudiées en fonction de la pression initiale. (b) : Vitesse fondamentale de flamme pour les trois pressions initiales étudiées en fonction de la température initiale.

Cependant, comme la vitesse fondamentale de flamme diminue lorsque la pression initiale augmente [17, 201, 293], l'écart entre les deux vitesses fondamentales de flamme pour les deux

températures initiales fixées diminue avec l'augmentation de la pression initiale pour le domaine de température et de pression étudié (cf. Figure 110).

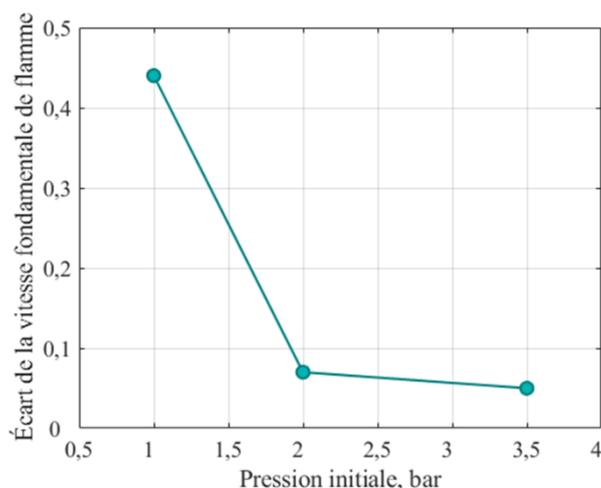


Figure 110 – Écart de la vitesse fondamentale de flamme pour les deux températures étudiées, et pour les trois pressions initiales fixées.

#### 1.4.2. Profils de pression

La deuxième étape de la caractérisation de ces flammes est l'étude des profils de pression de celles-ci tout au long d'ENACCEF-II, à partir des moyennes des deux courbes de surpression de combustion en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées, et ce pour les trois pressions initiales fixées. Les deux températures initiales étudiées sont : 298 K et 363 K (pour trois pressions initiales : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars). Tout comme pour les Tests 1, 2, 3, 4, et 5, les signaux de tous les capteurs pour chacun des 3 essais composant le Test 6 et le Test 7 se superposent (cf. Figure 153 et Figure 154 – ANNEXE 5 : Répétabilité des signaux de pression.). Ainsi, la moyenne des signaux de tous les capteurs sera prise comme référence pour la comparaison des signaux de pression. Comme précédemment, la moyenne des signaux de pression des séries pour chaque test a été déterminée et est présentée sur la Figure 111.

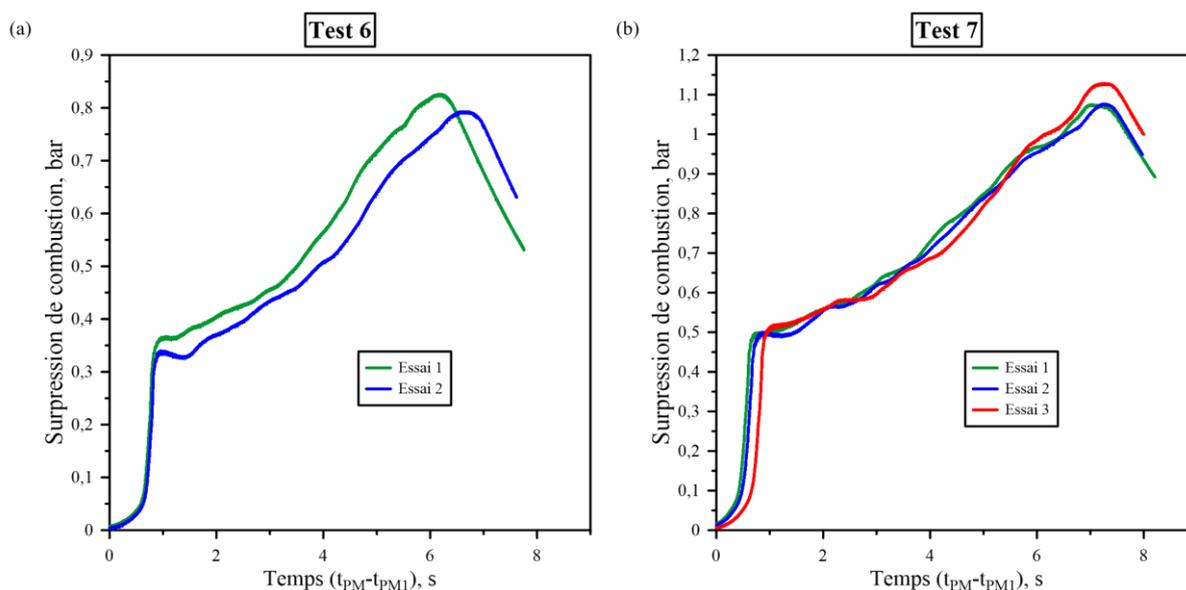


Figure 111 – Répétabilité des signaux de pression pour le Test 6 et le Test 7. (a) : Test 6, pour un mélange moyen de 4,21%  $H_2$  + 4,23%  $CO$  + 91,56%  $Air$  ; pour  $P_{ini} = 2,010 \pm 0,003$  bar ; et  $T_{ini} = 363,15 \pm 1$  K. (b) : Test 7, pour un mélange moyen de 4,27%  $H_2$  + 4,29%  $CO$  + 91,44%  $Air$  ; pour  $P_{ini} = 3,510 \pm 0,003$  bar ; et  $T_{ini} = 363,15 \pm 1$  K.

La Figure 112 montre les deux signaux de surpression de combustion en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées, pour une pression initiale de 1 bar (Test 1 et Test 5 – cf. Figure 112 (a)), pour une pression initiale de 2 bars (Test 3 et Test 6 – cf. Figure 112 (b)) et pour une pression initiale de 3,5 bars (Test 4 et Test 7 – cf. Figure 112 (c)).

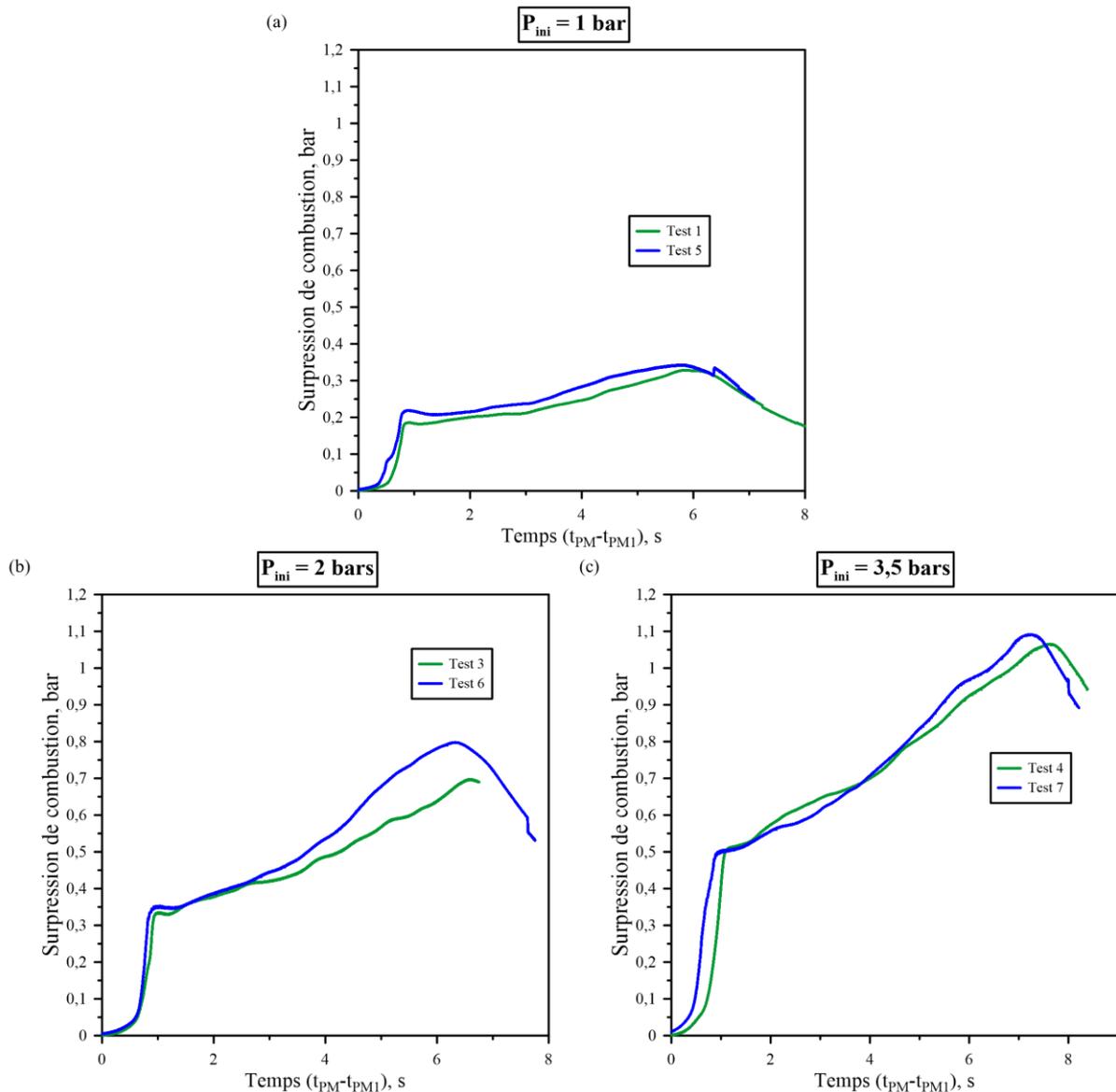


Figure 112 – Comparaison des surpressions de combustion en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées et pour les trois pressions initiales fixées. (a) : Comparaison faite pour une pression initiale de 1 bar (Test 1 et Test 5). (b) : Comparaison faite pour une pression initiale de 2 bars (Test 3 et Test 6). (c) : Comparaison faite pour une pression initiale de 3,5 bars (Test 4 et Test 7).

La figure montre que le comportement déterminé lors de l'étude de l'influence conjointe de la pression initiale et de la température initiale sur la trajectoire et la vitesse de propagation du front de flamme dans l'enceinte expérimentale est le même. Tout d'abord, la surpression de combustion maximale augmente lorsque la pression initiale augmente. De plus, indépendamment de la pression initiale, la surpression de combustion ne semble pas être influencée par l'augmentation de la température initiale. En effet, l'augmentation de la température initiale semble augmenter légèrement la valeur de la surpression de combustion maximale. Cependant, cet écart semble réduire lorsque la pression initiale augmente jusqu'à ce qu'il disparaisse à 3,5 bars. Or, la valeur de la  $P_{AICC}$  diminue lorsque la température initiale augmente (cf. Tableau 36 – Chapitre 4 – partie 1.3.1), et ce pour les trois pressions initiales étudiées ci-dessus. Par conséquent, le rapport de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  est

plus important lorsque la température initiale augmente. Ce rapport de la pression de combustion maximale par la  $P_{AICC}$  diminue avec l'augmentation de la pression initiale. Cependant, l'augmentation de ce rapport avec l'augmentation de la température initiale l'emporte sur la diminution due à l'augmentation de la pression initiale. Dans tous les cas il est possible d'observer que la valeur de la pression maximale de combustion n'est pas proche de la valeur de la  $P_{AICC}$ , elle se trouve aux alentours de 30-40% de cette valeur pour les deux températures initiales étudiées. Par conséquent, il s'agit bien d'une flamme lente proche de la limite d'inflammabilité inférieure correspondant à une combustion partielle.

Le Tableau 47 présente l'influence conjointe de la pression et la température initiales sur les valeurs de la surpression de combustion maximale.

	1 bar	2 bars	3,5 bars
298 K	0,19	0,33	0,51
363 K	0,22	0,35	0,51

Tableau 47 – Comparaison conjointe des valeurs de  $\Delta P_{max}$  en fonction de la pression initiale et de la température initiale.

La Figure 113 présente l'évolution de la surpression de combustion maximale en fonction de la pression initiale (cf. Figure 113 (a)) pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K, et de la température initiale (cf. Figure 113 (b)) pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars.

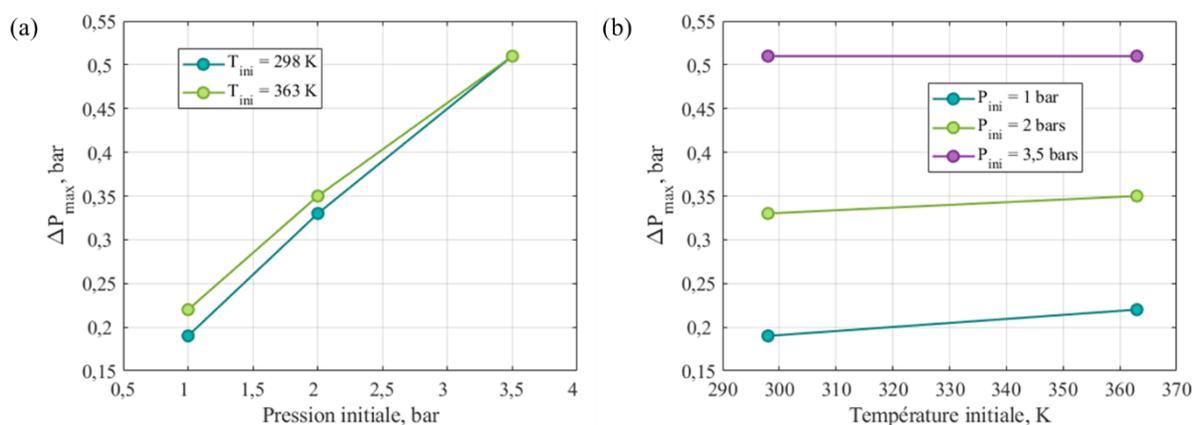


Figure 113 – Surpression de combustion maximale en fonction des deux grandeurs étudiées. (a) : Surpression de combustion maximale en fonction de la pression initiale pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. (b) : Surpression de combustion maximale en fonction de la température initiale pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars.

La surpression de combustion maximale augmente lorsque la pression initiale augmente, et ce quelle que soit la température initiale. L'écart entre les deux valeurs de surpression pour les deux températures initiales diminue lorsque la pression initiale augmente. De même, cette surpression maximale augmente, très légèrement lorsque la température initiale augmente. L'écart entre les trois valeurs de surpression pour les trois pressions initiales diminue lorsque la température initiale augmente. Lorsque la pression initiale atteint 3,5 bars, la valeur de la surpression de combustion maximale n'est plus affectée par l'augmentation de la température initiale.

Le Tableau 48 présente l'influence conjointe de la pression et la température initiales sur les valeurs du temps nécessaire pour atteindre cette valeur de surpression de combustion maximale dans l'enceinte.

	1 bar	2 bars	3,5 bars
298 K	0,89	1,07	1,11
363 K	0,86	0,97	0,97

Tableau 48 – Comparaison conjointe des valeurs de  $t_{\Delta P_{\max}}$  en fonction de la pression initiale et de la température initiale.

La Figure 114 présente l'évolution du temps nécessaire pour atteindre la surpression de combustion maximale en fonction de la pression initiale (cf. Figure 114 (a)) pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K, et de la température initiale (cf. Figure 114 (b)) pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars.

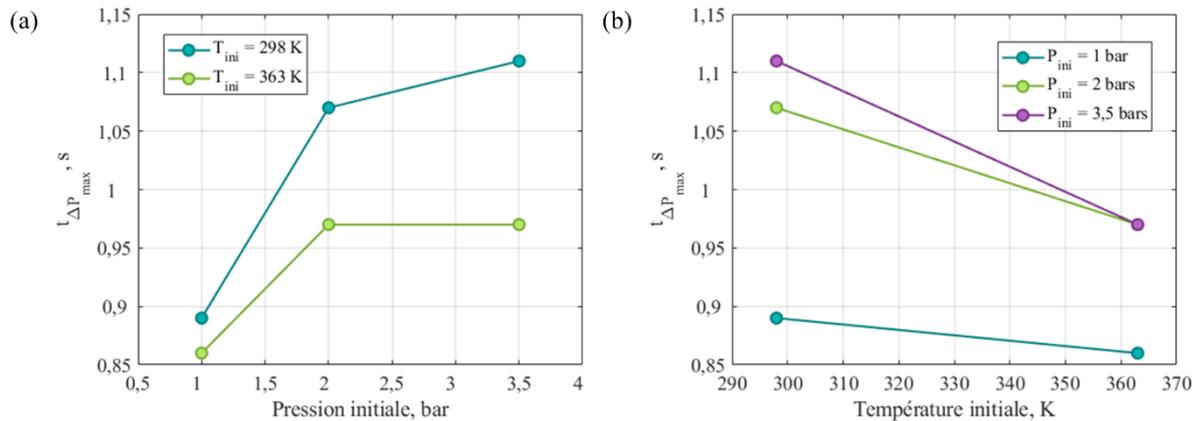


Figure 114 – Temps nécessaire pour atteindre la surpression de combustion maximale en fonction des deux grandeurs étudiées. (a) : Temps nécessaire pour atteindre la surpression de combustion maximale en fonction de la pression initiale pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. (b) : Temps nécessaire pour atteindre la surpression de combustion maximale en fonction de la température initiale pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars.

Tout d'abord, le temps nécessaire pour atteindre la surpression de combustion maximale augmente lorsque la pression initiale augmente, et ce pour les deux températures initiales étudiées. De plus, l'écart entre ces deux valeurs pour les deux températures initiales étudiées augmente lorsque la pression initiale augmente. De plus, ce temps caractéristique diminue lorsque la température initiale augmente. Cette diminution est plus raide lorsque la pression initiale augmente.

Les résultats obtenus semblent montrer que lorsque la pression initiale augmente, un seuil est atteint, où les effets générés par l'augmentation de la température initiale semblent l'emporter sur les effets générés par l'augmentation de la pression initiale. En effet, il a été montré que lorsque la pression initiale atteint 3,5 bars, le décalage en distance de la vitesse de propagation maximale ne se voit plus affecté par l'augmentation de la pression initiale, mais par l'augmentation de la température initiale (augmentation de l'écart de la valeur maximale) (cf. Figure 105). De même, la surpression de combustion maximale augmente lorsque la température initiale augmente, mais lorsque la pression initiale devient plus importante, la température initiale n'a plus d'influence sur cette valeur. De plus, concernant le temps nécessaire pour atteindre cette valeur de surpression maximale, il semble être influencé par l'augmentation de la température initiale, mais lorsque la pression initiale augmente de 2 à 3,5 bars, ce décalage temporel devient négligeable (cf. Figure 114). Ainsi, l'ensemble de ces observations semblent converger vers l'hypothèse de l'existence d'une valeur seuil de la pression initiale à partir de laquelle, elle n'a plus d'influence sur la propagation de la flamme dans les conditions de concentration proches de la limite d'inflammabilité inférieure. En revanche la température initiale joue un rôle non négligeable avec une augmentation de la vitesse de propagation lorsqu'elle devient plus importante. Les effets de l'augmentation de la température initiale semblent l'emporter sur les effets de l'augmentation de la pression initiale à partir d'une certaine pression initiale.

## 1.5. Caractérisation visuelle de la propagation de la flamme

La dernière étape de cette étude consiste en la caractérisation visuelle de la propagation du front de flamme dans l'enceinte. En effet, la visualisation du front de flamme permet de compléter les résultats déterminés à partir des signaux obtenus lors des essais. La méthode de visualisation de la propagation spatiale du front de flamme a été détaillée dans le Chapitre 2 – partie 2.1.3.6. En effet, cette méthode consiste en la visualisation à l'aide d'une caméra rapide, en mettant en place un Schlieren en Z (cf. Figure 39 – Chapitre 2 – partie 2.1.3.6). Le Schlieren est mis en place au niveau du photomultiplicateur 14 (et donc à 3,827 mètres du point d'inflammation). De plus, cette visualisation se fait après que le front de flamme ait traversé l'ensemble des obstacles. Des images correspondant aux essais réalisés à la température initiale de 298 K (pour deux des trois pressions initiales étudiées : 2 bars ; et 3,5 bars), et à la température initiale de 363 K (pour les trois pressions initiales étudiées : 1 bar ; 2 bars ; et 3,5 bars), sont présentées.

La Figure 115 montre deux propagations de flamme dans ENACCEF-II pour une température initiale de 298 K et pour deux des pressions initiales étudiées, à savoir : 2 bars (cf. Figure 115 (a), (b), (c), et (d)), et 3,5 bars (cf. Figure 115 (e), (f), (g), et (h)).

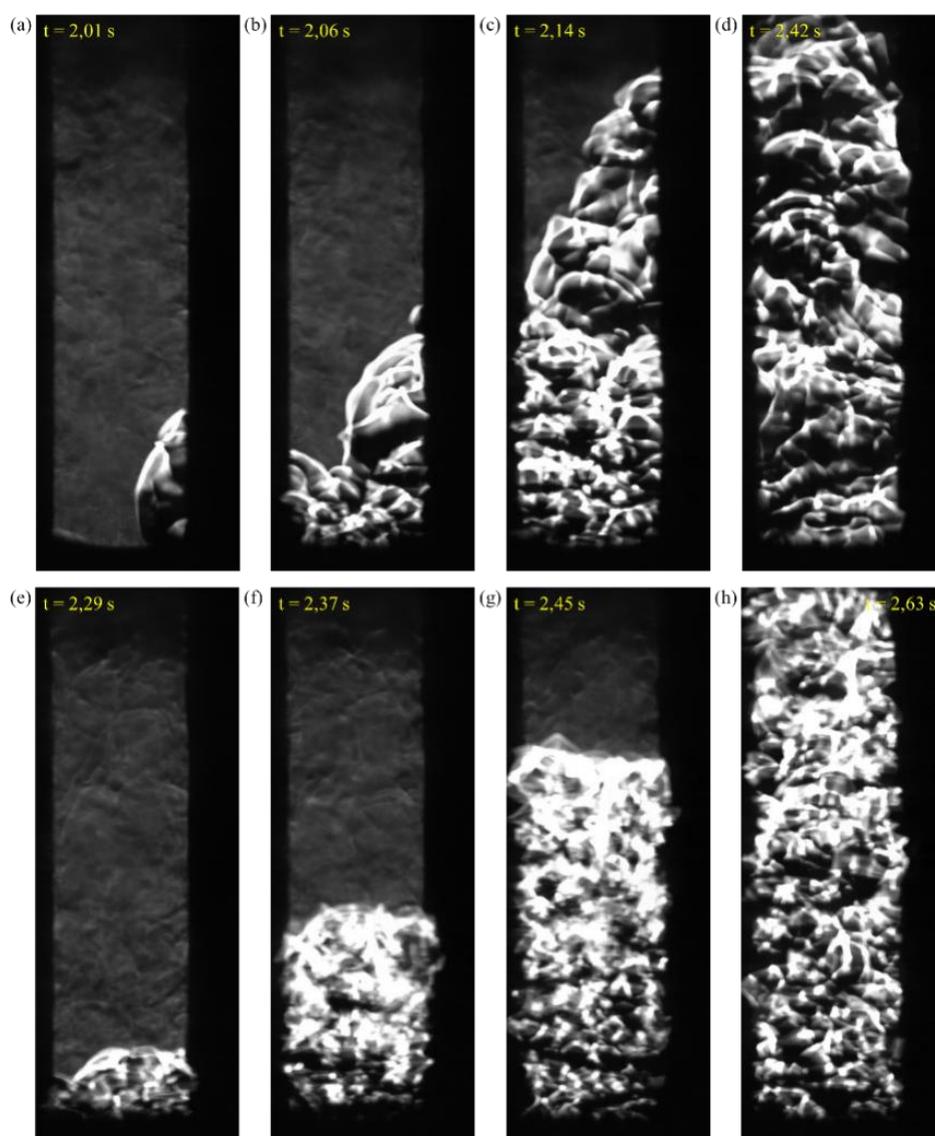


Figure 115 – Comparaison de la propagation visuelle d'une flamme {50% $H_2$ +50% $CO$ }/Air proche de la limite d'inflammabilité inférieure pour une température initiale de 298 K et pour deux pressions initiales différentes : une pression initiale de 2 bars ((a), (b), (c), et (d)), et une pression initiale de 3,5 bars ((e), (f), (g), et (h)).

La figure montre que la propagation spatiale de la flamme pour une température de 298 K est modifiée par l'augmentation de la pression initiale. En effet, il est possible de voir que lorsque la pression initiale est fixée à 2 bars, la flamme qui se propage à l'intérieur du tube en sortie des obstacles semble être une flamme tulipe. Qualitativement une flamme tulipe est une flamme qui oscille. En effet, elle commence par se propager dans le sens de l'écoulement initial, puis elle recule (sens de propagation de la flamme inversé par rapport au sens de propagation initial), avant d'avancer à nouveau et ainsi de suite. Il s'agit d'un phénomène qui a été visualisé par la première fois par Mallard et Le Chatelier en 1883. Son nom est dû à la forme particulière de cette flamme qui ressemble à une tulipe. La formation d'une flamme tulipe est faite en plusieurs étapes : une expansion hémisphérique (la flamme s'étend librement vers l'extérieur avec une vitesse presque constante), une flamme en forme de doigt (le front de flamme se développe en forme de doigt lorsque la surface de la flamme augmente rapidement), la jupe de la flamme qui touche les parois du tube (la jupe de flamme se forme lorsque la surface de la flamme atteint les parois latérales), l'inversion de la flamme en tulipe (la flamme plane se forme et s'inverse en flamme tulipe), et finalement, dans certains cas, la distorsion de la flamme en flamme tulipe déformée (ou tulipe triple) [226]. Le mécanisme de développement d'une flamme tulipe dans un tube encombré d'obstacles est très différent de celui dans un tube lisse. En effet, dans un tube lisse, la flamme tulipe est un phénomène purement hydrodynamique [235], et la lèvre et la cuspide de la flamme tulipe se propagent vers l'extrémité aval. Dans un tube fermé encombré d'obstacles, cependant, la cuspide de la tulipe se déplacera d'abord en arrière vers les gaz brûlés. La présence des obstacles favorise le développement d'un vortex dans les gaz brûlés, et n'a aucun effet sur la partie de la flamme touchant les parois du conduit, mais accélère l'inversion et la propagation de la flamme [259]. Finalement, alors que la flamme continue à se propager, la déformation de la flamme tulipe s'accompagne d'une décélération soudaine de la flamme. La pression chute également lorsque la flamme décélère, et le changement de pression est étroitement lié au changement de surface du front de flamme. Ainsi, la formation de la tulipe est accompagnée d'une décélération soudaine de la propagation de la flamme [249]. Entre les mécanismes cités le plus souvent permettant d'expliquer l'origine physique de ces flammes tulipe se trouvent la vorticit   g  n  r  e dans les gaz frais (Rotman et Oppenheim [231]), les ondes de Tollmein-Schlichting (Oppenheim et Ghonheim [232]), les instabilit  s de Darrieus-Landau, et les instabilit  s de Taylor (Strehlow [233], Starke et Roth [230]). Suite aux travaux de Markstein [236], Starke et Roth [230] sugg  rent que les effets d'extinction    la paroi provoquent un changement de vitesse significatif des gaz frais en raison de la r  duction soudaine de la surface de la flamme. Kerampran et al. [237] sugg  rent que l'oscillation acoustique provoque l'inversion de la flamme. Cependant, les ondes de pression ne peuvent pas provoquer directement l'inversion du front de flamme en forme de doigt, mais agissent sur les l  vres de la tulipe et provoquent leur d  formation.

Parall  lement    cette flamme tulipe, retrouv  e pour une pression initiale de 2 bars, une flamme plate est observ  e lorsque la pression initiale est augment  e    3,5 bars. Dans ce cas il est possible de voir dans les premiers instants (cf. Figure 115 (e)) une flamme h  misph  rique qui s'aplatit pour laisser place    une flamme plate qui se propage. Effectivement, l'analyse r  v  le une augmentation des turbulences avec l'augmentation de la pression initiale, et il a   t   montr   que les turbulences peuvent interrompre le ph  nom  ne de formation de flamme tulipe en perturbant sa propagation. La flamme commence donc sa propagation de la m  me fa  on que pr  c  demment,    savoir : une expansion h  misph  rique, une flamme en forme de doigt, la jupe de la flamme qui touche les parois du tube et le front de flamme s'aplatit. Cependant, la phase d'apr  s n'a jamais lieu, car la flamme ne s'inverse pas pour former le ph  nom  ne de flamme tulipe. Finalement, il est possible de voir que la propagation de la flamme pour une pression initiale de 2 bars est l  g  rement plus rapide que pour une pression initiale de 3,5 bars. Ceci a   t   montr   dans la partie concernant l'  tude du profil de vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la pression initiale (cf. Figure 94 – Chapitre 4 – partie 1.2.1).

Sur la Figure 116 sont pr  sent  es trois propagations de flamme dans ENACCEF-II pour une temp  rature initiale de 363 K et pour les trois pressions initiales   tudi  es,    savoir : 1 bar (cf. Figure 116

(a), (b), (c), et (d)) ; 2 bars (cf. Figure 116 (e), (f), (g), et (h)) ; et 3,5 bars (cf. Figure 116 (i), (j), (k), et (l)).

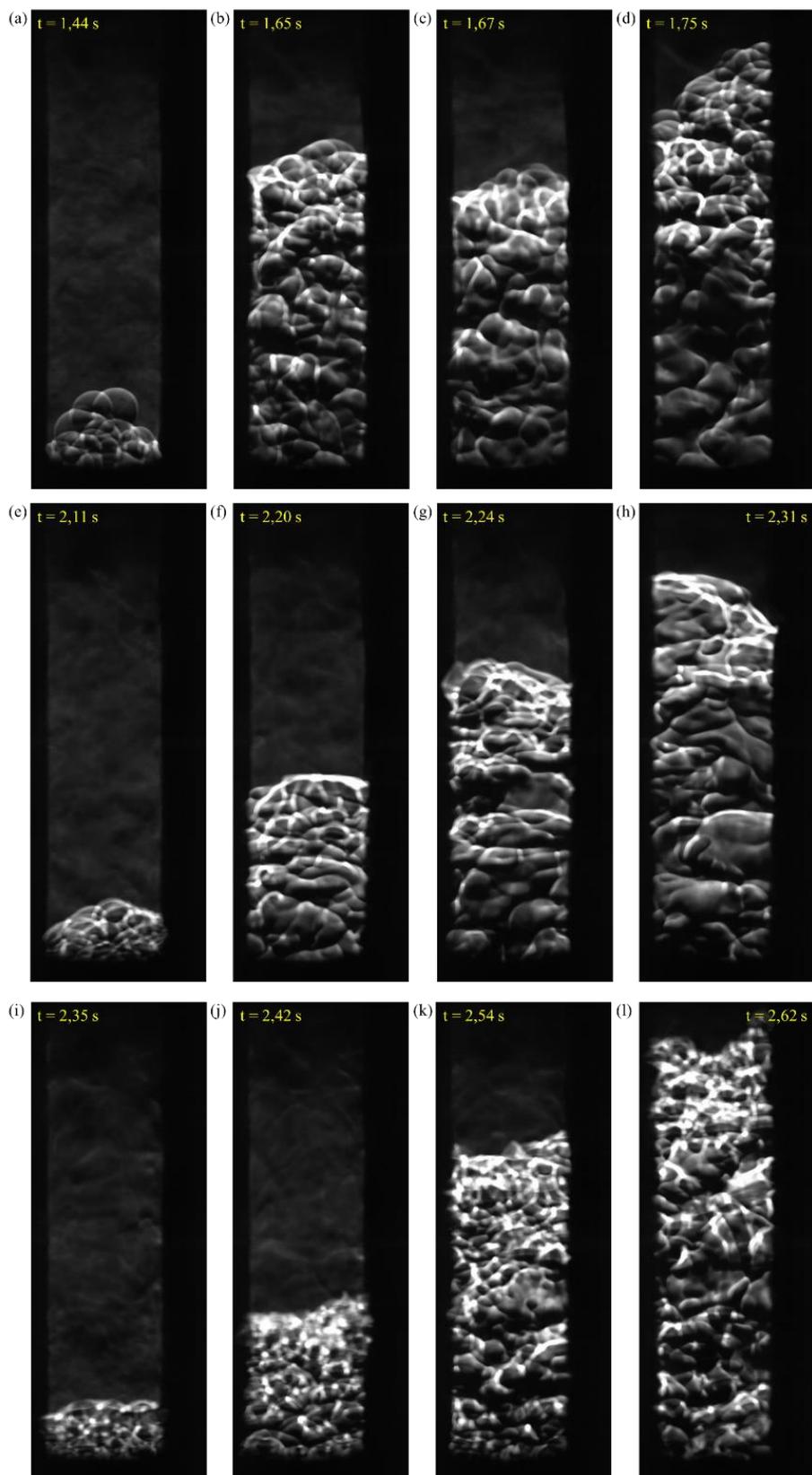


Figure 116 – Comparaison de la propagation visuelle d’une flamme  $\{50\%H_2+50\%CO\}$ /Air proche de la limite d’inflammabilité inférieure pour une température initiale de 363 K et pour trois pressions initiales différentes :  $P_{ini} = 1$  bar ((a), (b), (c), et (d)) ;  $P_{ini} = 2$  bars ((e), (f), (g), et (h)) ; et  $P_{ini} = 3,5$  bars ((i), (j), (k), et (l)).

De la même façon que cela a été conclu pour une température initiale de 298 K, il est possible de voir sur la figure que la propagation spatiale de la flamme pour une température initiale de 363 K est modifiée par l'augmentation de la pression initiale. La première analyse de l'imagerie rapide montre qu'il y a une oscillation du front de flamme qui se retrouve dans tous les cas (oscillation présente aussi dans le cas de la température initiale de 298 K). Cependant, cette oscillation semble être beaucoup plus marquée pour une pression initiale de 1 bar que dans les deux autres cas. En effet, pour les pressions initiales de 2 et de 3,5 bars, la flamme semble osciller, mais l'amplitude des oscillations est moins importante (cf. Figure 116 (b), (c), et (d)). Des oscillations des gaz frais en amont du passage du front de flamme sont aussi présentes. Plusieurs explications peuvent être avancées pour comprendre le phénomène oscillatoire de la flamme. D'une part, les ondes de pressions jouent un rôle important dans la déformation et l'oscillation de la flamme. En effet, l'interaction entre les ondes de pression, dont leur force augmente progressivement, et le front de flamme génère des oscillations [268]. D'autre part, l'instabilité thermo-acoustique est causée par le couplage de la chaleur produite par les réactions chimiques de la combustion avec les ondes acoustiques produites dans un conduit fermé ou semi-fermé. Cette instabilité au niveau du front de flamme provoque une forte oscillation de la flamme et affecte sérieusement la stabilité de la combustion [248]. De plus, l'oscillation de la flamme est étroitement liée à la turbulence. Cependant, alors que la fréquence d'oscillation diminue, l'amplitude d'oscillation quant à elle augmente avec l'augmentation du rapport de blocage. Lorsque la flamme se propage à travers l'ouverture de l'obstacle, une partie de la jupe de la flamme se déplace vers l'arrière des obstacles, et le reste de la flamme forme un jet vers l'avant, d'où le phénomène d'oscillation [259]. De plus, dans les deux premiers cas (pressions initiales de 1 et 2 bars), la flamme se propage en forme de doigt, et le niveau de plissement de la flamme semble équivalent. Cependant, le cas de la pression initiale de 3,5 bars est un peu particulier. En effet, dans ce cas, le niveau de plissement de la flamme semble être beaucoup plus important. Ce niveau de plissement est causé par les turbulences générées par le passage de la flamme à travers les obstacles. La plus grande différence provient de la forme du front de flamme. En effet, dans ce cas, la forme convexe de la flamme en forme de doigt semble s'inverser sur les derniers instants (cf. Figure 116 (k) et (l)) résultant en une flamme concave. Cette forme concave fait penser aux lèvres d'une flamme tulipe. Pour pouvoir confirmer l'inversion du front de flamme et la propagation d'une flamme tulipe, il faudrait avoir plus de visualisation sur le reste du tube, afin de voir les instants suivant la dernière image capturée. Finalement, il est possible de voir, tout comme pour la température initiale de 298 K, que la propagation de la flamme lorsqu'elle a fini de traverser les obstacles, est plus rapide lorsque la pression initiale est moins importante. Ceci a été montré lors de l'étude du profil de vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la pression initiale. Ceci est visible sur la partie droite de la Figure 106 – Chapitre 4 – partie 1.4.1, où le phénomène se produit bien en sortie des obstacles (endroit où se trouve la caméra rapide). Cependant, ceci n'est pas forcément le cas lorsque la flamme traverse les obstacles.

Pour finir, il est possible de comparer à partir des Figure 115 et Figure 116 les résultats obtenus pour une même pression initiale, mais pour des températures initiales différentes. Tout d'abord, lorsque la pression initiale est fixée à 2 bars, et que la température initiale est augmentée de 298 K à 363 K, il est possible de voir qu'il y a une grande différence entre les deux propagations de flamme. En effet, dans le premier cas, une flamme tulipe se propage dans le tube, alors que dans le deuxième cas il s'agit d'une flamme en forme de doigt. Ainsi, lorsque la température initiale augmente, l'inversion du front de flamme n'a pas lieu, ce qui peut être expliqué par la diminution du coefficient d'expansion des gaz frais brûlés avec l'augmentation de la température initiale (cf. Tableau 36 – Chapitre 4 – partie 1.3.1). De plus, pour cette pression initiale, la vitesse de propagation du front de flamme semble diminuer avec l'augmentation de la température initiale. Ceci est visible sur la partie droite de la Figure 104 (a) – Chapitre 4 – partie 1.4.1, où l'inversion de la vitesse de propagation du front de flamme semble bien se situer à l'endroit où se trouve la caméra rapide. Cependant, ceci n'est pas vrai pour tout le reste de la propagation du front de flamme, où la vitesse de propagation de celui-ci augmente avec l'augmentation de la température initiale. De plus, lorsque la pression initiale est fixée à 3,5 bars, et que la température

initiale est augmentée de 298 K à 363 K, la propagation des deux flammes semble être plus proche l'une de l'autre que pour une pression initiale de 2 bars. Le niveau de plissement, et donc de turbulences, du front de flamme semble diminuer avec l'augmentation de la température initiale. De plus, les premiers instants de la propagation de la flamme semblent être très proches (cf. Figure 115 (e), (f), et (g), et Figure 116 (i), (j), et (k)). Dans ces premiers instants, une flamme plate se propage dans l'enceinte expérimentale. Une divergence peut être retrouvée lors des derniers instants capturés par l'imagerie rapide (cf. Figure 115 (h), et Figure 116 (l)). En effet, dans le cas où la température initiale est augmentée à 363 K, le front de flamme semble s'inverser alors que ce n'est pas le cas pour une température initiale de 298 K. Dans le but de confirmer cette observation, il faudrait pouvoir accéder aux instants suivants par le moyen d'un deuxième hublot, où il serait possible de voir si la flamme s'est réellement inversée dans le premier cas. Pour cette pression initiale, la vitesse de propagation du front de flamme semble être équivalente pour les deux températures initiales étudiées. Ceci est visible sur partie droite de la Figure 104 (b) – Chapitre 4 – partie 1.4.1, où la vitesse de propagation du front de flamme est la même à partir de 3 mètres après l'allumage de la flamme, endroit où se trouve la caméra rapide. Cependant, ceci n'est pas vrai pour les premiers instants de propagation de la flamme, lorsque celle-ci traverse les obstacles notamment, où la vitesse de propagation augmente avec l'augmentation de la température initiale. Concernant la vitesse de propagation du front de flamme, il ne semble pas y avoir un impact important de la température initiale pour aucune des deux pressions initiales étudiées.

La dernière analyse pouvant être faite à partir de l'imagerie rapide consiste à suivre la propagation spatiale du front de flamme en fonction du temps afin d'obtenir la trajectoire de la flamme sur le tronçon correspondant à la position de la caméra rapide. L'objectif est de comparer ces résultats avec la trajectoire du front de flamme déterminée à partir de l'analyse des signaux des photomultiplicateurs (cf. Chapitre 2 – partie 2.2.1). La Figure 117 présente cette comparaison pour une flamme 4,27% H<sub>2</sub> + 4,33% CO + 91,40% Air pour une pression initiale de 1 bar et une température initiale de 363 K (essai 1 du Test 5).

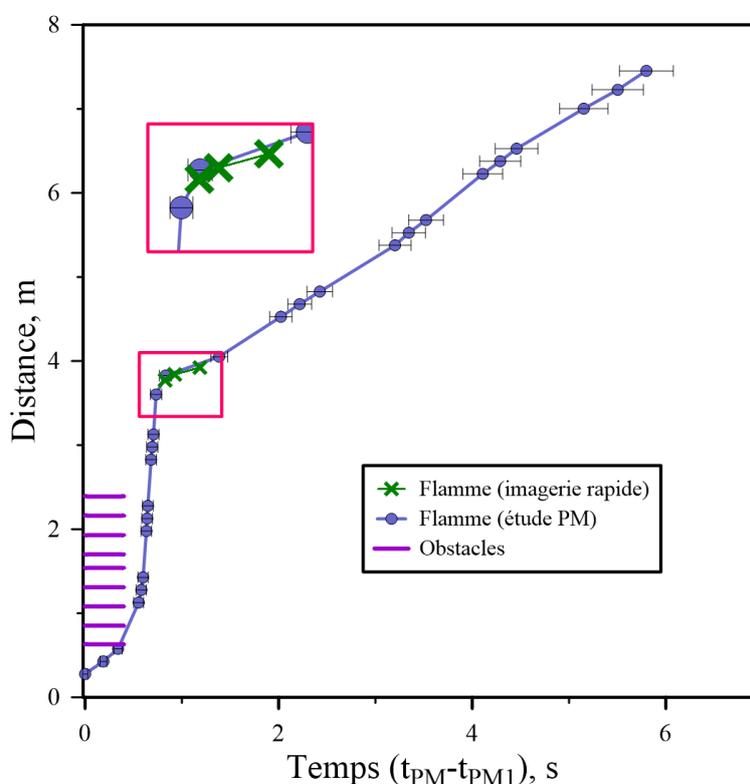


Figure 117 – Comparaison des deux méthodes d'obtention de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps : méthode visuelle d'une part et méthode d'analyse des signaux des photomultiplicateurs d'une autre.

À partir de la figure ci-dessus, il est observable que les résultats obtenus par les deux méthodes étudiées sont très similaires. Cela montre que la visualisation de la propagation du front de flamme est une méthode fiable pour obtenir la trajectoire de la flamme en fonction du temps, à condition qu'il y ait des points d'accès optiques répartis régulièrement sur l'enceinte expérimentale. Cette conclusion est la même pour toutes les autres trajectoires du front de flamme étudiées lors de cette partie concernant la propagation de flammes lentes proches de la limite d'inflammabilité inférieure. Une conclusion plus générale sur la caractérisation visuelle de la propagation de la flamme peut en être déduite. En effet, il a été observé que la visualisation du front de flamme à un seul endroit du tube n'est pas suffisante pour analyser la propagation complète et le comportement général du front de flamme dans le tube encombré d'obstacles. En effet, la caméra rapide se trouve à 80 cm du dernier obstacle, ce qui ne permet plus d'analyser complètement l'interaction entre les obstacles et le front de flamme. De même, la propagation sur la partie haute de l'enceinte expérimentale ne peut pas être suivie, car la caméra rapide est centrée sur la longueur de l'enceinte.

## 2. Flammes lentes proches de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air

Le deuxième mélange étudié pour caractériser l'influence des différents paramètres initiaux sur la propagation de flammes lentes proches des limites d'inflammabilité est le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air/CO<sub>2</sub>. Il s'agit ici d'un cas particulier, puisque les teneurs choisies pour cette partie de l'étude ne correspondent pas aux limites d'inflammabilité, mais à la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air étudiée lors du Chapitre 3. Pour rappel, la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> vaut :  $52,11 \pm 0,99\%$  pour un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique. Pour ce faire, une étude sur la propagation d'une flamme aux conditions thermodynamiques « standards » sera menée, suivie d'une autre caractérisant l'influence de la température initiale sur les profils de trajectoire, de vitesse et de pression. Finalement, une caractérisation visuelle de la propagation d'une flamme H<sub>2</sub>/CO/Air/CO<sub>2</sub> dans ENACCEF-II sera effectuée. L'étude de l'influence de la température initiale sur la propagation de ces flammes dans ENACCEF-II sera effectuée pour les mêmes températures que celles de la partie précédente (cf. Chapitre 4 – partie 1.3), à savoir : 298 K et 363 K.

### 2.1. Propagation d'une flamme aux conditions thermodynamiques « standards »

Dans le but d'avoir un point de comparaison, il faut caractériser la propagation d'une flamme H<sub>2</sub>/CO/Air/CO<sub>2</sub> aux conditions thermodynamiques « standards » :  $T_{ini} = 298$  K et  $P_{ini} = 1$  bar. La limite d'inertage en CO<sub>2</sub> d'un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique pour des conditions thermodynamiques « standards » de 298 K et 1 bar a été déterminée dans le Chapitre 3 – partie 2. Cette limite vaut :  $52,11 \pm 0,99\%$ . Ainsi, les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Système d'allumage : Bougie d'allumage
- Pression initiale :  $1,006 \pm 0,004$  bar
- Température initiale :  $298,15 \pm 1$  K
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Les valeurs caractéristiques de ces flammes lentes proches de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub>, telles que la trajectoire de la flamme, sa vitesse, et les profils de pression, ont été déterminées par la suite. Ces valeurs caractéristiques ont été étudiées pour une composition initiale du mélange telle qu'on se trouve à la stœchiométrie et que la teneur en CO<sub>2</sub> est proche de la limite d'inertage.

Le mélange proche de la limite d'inertage qui a été étudié est : 7,76% H<sub>2</sub> + 7,93% CO + 38,36% Air + 45,95% CO<sub>2</sub>, à 298 K et 1 bar. Ce mélange correspond au Test 8, pour lequel 3 essais ont été réalisés. Le Tableau 49 récapitule les conditions expérimentales pour ce test.

Mélange	Essai	$P_{ini}$ (bar)	$T_{ini}$ (K)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	CO <sub>2</sub> %mol
<i>Test 8</i>	1	1	298	7,87	8,06	46,45
	2	1	298	7,71	7,87	45,68
	3	1	298	7,71	7,87	45,71
	<b>Moyenne</b>	<b>1</b>	<b>298</b>	<b>7,76</b>	<b>7,93</b>	<b>45,95</b>

Tableau 49 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air/CO<sub>2</sub> stœchiométrique proche de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub>, pour des conditions thermodynamiques « standards ».

### 2.1.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse

Comme expliqué lors de la présentation du dispositif expérimental ENACCEF-II (cf. Chapitre 2 – partie 2.2.1), chaque condition initiale est répétée 3 fois. Il a été choisi de fixer la teneur en CO<sub>2</sub> à 46% et non pas 52% pour être sûr de ne pas inerte le mélange, mais d'être bien inflammable et d'avoir une flamme qui se propage. La Figure 118 montre l'étude sur la répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps, ainsi que la moyenne sur 2 des essais réalisés d'une part, et sur les 3 essais d'une autre.

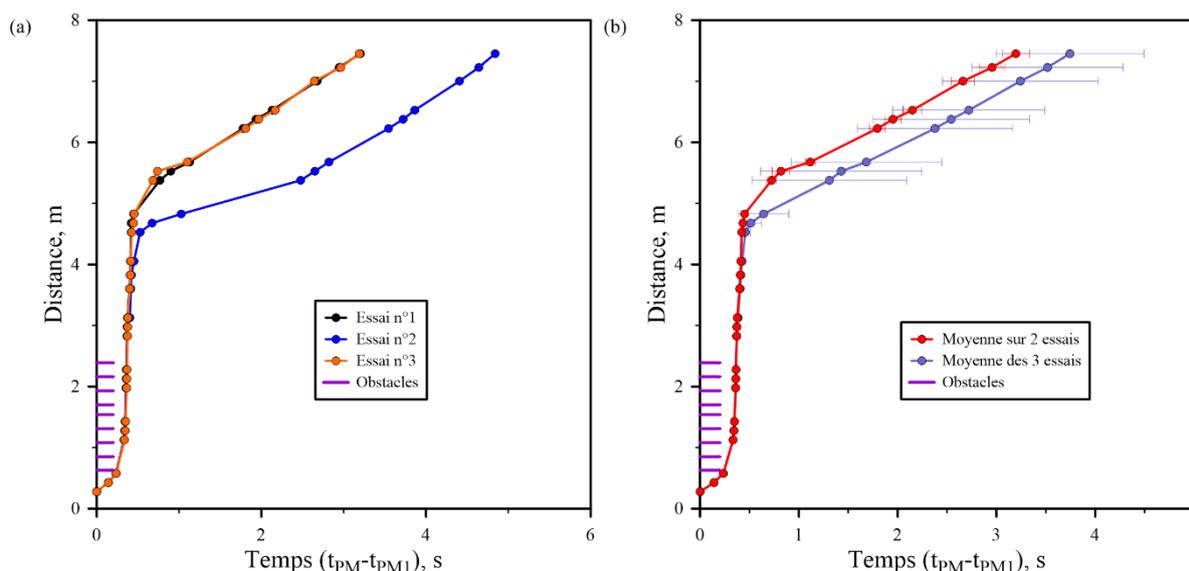


Figure 118 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 7,76% H<sub>2</sub> + 7,93% CO + 38,36% Air + 45,95% CO<sub>2</sub> ; pour  $P_{ini} = 1,006 \pm 0,004$  bar ; et  $T_{ini} = 298,15 \pm 1$  K (Test 8). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps.

Les trajectoires de l'essai n°1, ainsi que de l'essai n°3 sont identiques, alors que la trajectoire de l'essai n°2 est très éloignée des deux autres sur la fin de la propagation (2 mètres après la sortie des obstacles). Ceci se traduit par un ralentissement de la propagation du front de flamme après la traversée des obstacles. Cependant, sur les 5 premiers mètres de la propagation (et donc dans la zone obstruée), les trajectoires des trois fronts de flamme sont identiques. En effet, lors des premiers instants, la flamme parcourt une distance importante en peu de temps. Elle commence lentement, puis lorsque le front de flamme atteint le premier obstacle, il y a une accélération de la flamme. Celle-ci s'accélère lorsqu'elle traverse les 9 obstacles, parcourant environ 5 mètres en 0,5 seconde. Puis, deux mètres après la sortie des obstacles, une légère décélération du front de flamme est observée dans les trois cas (plus importante dans le cas divergeant). Elle parcourt ainsi les 4 mètres restants à une vitesse quasiment constante en 2,5 secondes pour les essais répétables et en 4,5 secondes pour l'essai divergeant. Finalement, une dernière

accélération du front de flamme se produit. Cette accélération a lieu plus tardivement dans le cas divergeant. Pour ces deux raisons, le deuxième essai semble suivre la même tendance que les deux autres, mais se trouve être translaté vers la droite. Deux moyennes ont donc été tracées dans le but de comparer les résultats trouvés, et de savoir si l'essai divergeant sera pris en compte ou pas. La Figure 118 (b) montre un écart important entre les deux courbes. Donc, la moyenne sur 3 essais n'a pas été prise en compte, mais seulement la moyenne sur les deux essais qui semblent représenter une répétabilité.

De même, il est possible de tracer l'évolution de la vitesse de propagation du front de flamme dans l'enceinte en fonction de la distance parcourue par la flamme. La Figure 119 montre la répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction du temps, ainsi que la moyenne des 3 essais réalisés.

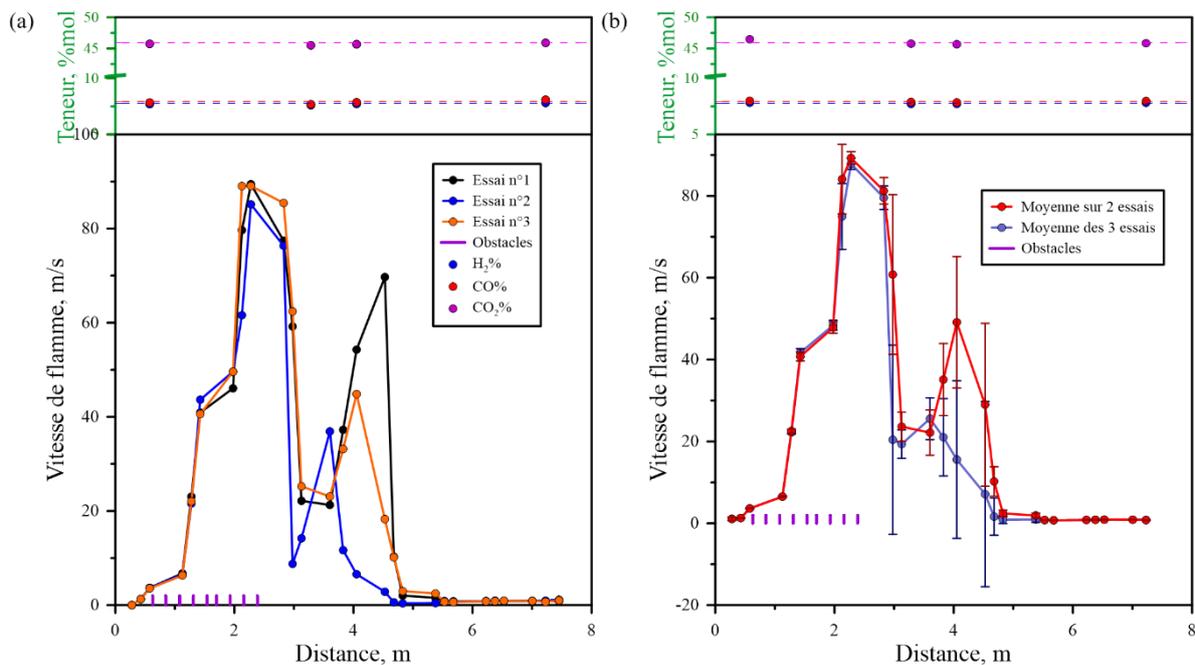


Figure 119 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 7,76% H<sub>2</sub> + 7,93% CO + 38,36% Air + 45,95% CO<sub>2</sub> ; pour P<sub>ini</sub> = 1,006±0,004 bar ; et T<sub>ini</sub> = 298,15±1 K (Test 8).  
 (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.

Tout comme pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps, le profil de vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci semble être répétable pour les 5 premiers mètres de sa propagation. En effet, lorsque la flamme atteint le premier obstacle, elle est ralentie dans un premier temps pour être ensuite accélérée entre le troisième et le quatrième obstacle. Puis, ce front de flamme connaît un léger ralentissement entre le quatrième et le septième obstacle. Finalement, il y a une dernière accélération dans la zone des obstacles au niveau du septième obstacle pour atteindre la vitesse de propagation maximale au niveau du huitième obstacle. Puis, la vitesse de propagation du front de flamme chute drastiquement entre le huitième obstacle et 500 mm après la sortie des obstacles. Elle atteint un minimum local, puis la vitesse de propagation du front de flamme semble augmenter une dernière fois. Ce deuxième pic est sûrement dû à des émissions radiatives infrarouges à haute température de vapeur d'eau qui sont vues par le photomultiplicateur. En effet, de la vapeur d'eau est produite lors de la combustion, et la bande passante du photomultiplicateur laisse passer des longueurs d'onde dans l'infrarouge (cf. Figure 37). En conclusion, la vitesse de propagation du front de flamme diminue de manière significative à cinq mètres du point d'allumage, pour se propager très lentement (~1 m/s) jusqu'à l'extrémité de l'enceinte. La divergence entre les différents résultats se situe au niveau de la deuxième accélération de la flamme après la sortie des obstacles. La comparaison

des deux moyennes (en prenant compte de l'essai le plus divergent ou pas) est présentée sur la Figure 119 (b). Pour les mêmes raisons que celles fournies pour les trajectoires du front de flamme en fonction du temps, les comparaisons seront effectuées pour la moyenne des deux essais répétables.

Le Tableau 50 montre les valeurs de deux grandeurs déterminées expérimentalement :  $v_{max}$  la vitesse maximale de propagation du front de flamme (en  $m.s^{-1}$ ), et  $P_{max}$  la pression maximale de combustion (en bar), pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar.

$T_{ini}$ (°C)	$P_{ini}$ (bar)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	CO <sub>2</sub> %mol	$v_{max}$ (m/s)	$P_{max}$ (bar)
298	1	7,76	7,93	45,95	87,88	1,66

Tableau 50 – Valeurs de  $P_{max}$  et  $v_{max}$  pour le mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air/CO<sub>2</sub> étudié à des conditions thermodynamiques « standards ».

À partir des résultats présentés sur la Figure 118 et la Figure 119, on observe que les tendances suivies par la trajectoire du front de flamme ou par sa vitesse de propagation sont similaires à celles des conditions thermodynamiques « standards » déterminées pour les flammes proches des limites d'inflammabilité (cf. Figure 77 et Figure 78 – Chapitre 4 – partie 1.1.1), à l'exception de la deuxième accélération du front de flamme qui se produit à la sortie des obstacles. Cependant, les valeurs, notamment les valeurs de vitesse maximale de propagation du front de flamme, ne sont pas les mêmes. Ceci est dû dans un premier temps à l'ajout de CO<sub>2</sub> dans le mélange par rapport aux valeurs déterminées pour des teneurs proches de la limite d'inflammabilité inférieure (cf. Chapitre 4 – partie 1.1.1). Cela peut aussi être expliqué par l'augmentation de la teneur en H<sub>2</sub>/CO pour ce volet de la campagne expérimentale.

Une simulation a été effectuée pour déterminer les propriétés physico-chimiques dans des conditions thermodynamiques « standards » dans le but d'obtenir ces mêmes valeurs pour un mélange aux mêmes teneurs sans ajout de CO<sub>2</sub> (en remplaçant le CO<sub>2</sub> qui avait été ajouté par de l'air) : 7,76% H<sub>2</sub> + 7,93% CO + 84,31% Air. Ceci a été fait dans le but de comparer les différentes valeurs et donc de conclure sur l'influence de l'ajout de CO<sub>2</sub> dans le mélange. Les propriétés physico-chimiques déterminées à partir de COSILAB (cf. Chapitre 2 – partie 3) sont données dans les Tableau 51, Tableau 52, Tableau 53.

H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	CO <sub>2</sub> %mol	$T_f$ (K)	$P_{AICC}$ (bar)
7,76	7,93	45,95	1335,4	4,70
7,76	7,93	0	1583	5,89

Tableau 51 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour le mélange correspondant aux mélanges avec et sans diluant pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 1).

$\lambda_f$ (W/m/K)	$\alpha_f$ (m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )	$c_{pf}$ (J/mol/K)	$c_{pb}$ (J/mol/K)
0,028	2,15.10 <sup>-5</sup>	32,75	48,60
0,033	2,84.10 <sup>-5</sup>	29,09	38,35

Tableau 52 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour le mélange correspondant aux mélanges avec et sans diluant pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 2).

$a_f$ (m/s)	$a_b$ (m/s)	$\sigma$	$\beta_{extrapolé}$	$Le_{eff}$
314,07	605,36	4,13	8,71	0,50
360,57	761,63	4,89	8,70	0,73

Tableau 53 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour le mélange correspondant aux mélanges avec et sans diluant pour une température initiale de 298 K et une pression initiale de 1 bar (Partie 3).

Ces résultats permettent de comparer les différentes valeurs déterminées pour les deux mélanges étudiés : le mélange en présence de CO<sub>2</sub>, et le mélange simulé en remplaçant le CO<sub>2</sub> par de l'air. La plupart des grandeurs se voient drastiquement modifiées en présence de CO<sub>2</sub> dans le mélange initial. La température adiabatique de flamme, la P<sub>AICC</sub>, la vitesse du son, le coefficient d'expansion, ainsi que le nombre de Lewis effectif diminuent lorsque le mélange est dilué par du CO<sub>2</sub>. De plus, la vitesse du son, que ce soit dans les gaz frais comme dans les gaz brûlés, augmente car le coefficient adiabatique du mélange augmente lorsque le mélange ne contient pas de CO<sub>2</sub> que lorsqu'il en contient. En effet, la vitesse du son est proportionnelle à la racine carrée du coefficient adiabatique. Le nombre de Zel'dovich quant à lui ne se voit pas modifié par la dilution au CO<sub>2</sub> du mélange. La diminution du nombre de Lewis, quant à lui, avec l'augmentation du taux de dilution a déjà été montrée par plusieurs études dans la littérature [19, 211, 295]. Ceci peut être expliqué par la diminution de la diffusivité thermique lorsque le taux de dilution au CO<sub>2</sub> dans le mélange augmente. Ceci a pour conséquence d'abaisser le nombre de Markstein, et donc d'augmenter l'instabilité de la flamme. La dilution du mélange initial a comme conséquence d'abaisser la température adiabatique de flamme et la valeur de la P<sub>AICC</sub>. En effet, en diluant le mélange, la réaction de combustion est moins forte que lorsque le mélange n'est pas dilué, car il y a moins de réactions chimiques qui ont lieu. Notamment pour une teneur de 46% en CO<sub>2</sub> (valeur qui est proche de la limite d'inertage). Finalement, la valeur des capacités calorifiques à pression constante, que ce soit des gaz frais comme des gaz brûlés, augmente avec la présence de CO<sub>2</sub> dans le mélange initial, car cette même valeur est plus importante pour le CO<sub>2</sub> que pour l'air.

### 2.1.2. Profils de pression

Les profils de pression tout au long d'ENACCEF-II permettent de caractériser ces flammes. La composition initiale du mélange a été choisie de telle sorte à être proche de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub>, mais en même temps à ne pas avoir trop de CO<sub>2</sub> dans le mélange pour que la flamme puisse se propager dans le tube. Tout comme pour les Tests 1, 2, 3, 4, 5, 6, et 7, les signaux de tous les capteurs pour chacun des 3 essais composant le Test 8 se superposent (cf. Figure 155 – ANNEXE 5 : Répétabilité des signaux de pression.). Ainsi, la moyenne des signaux de tous les capteurs sera prise comme référence pour la comparaison des signaux de pression. Comme précédemment, la moyenne des signaux de pression des séries pour le Test 8 a été déterminée et est présentée sur la Figure 120.

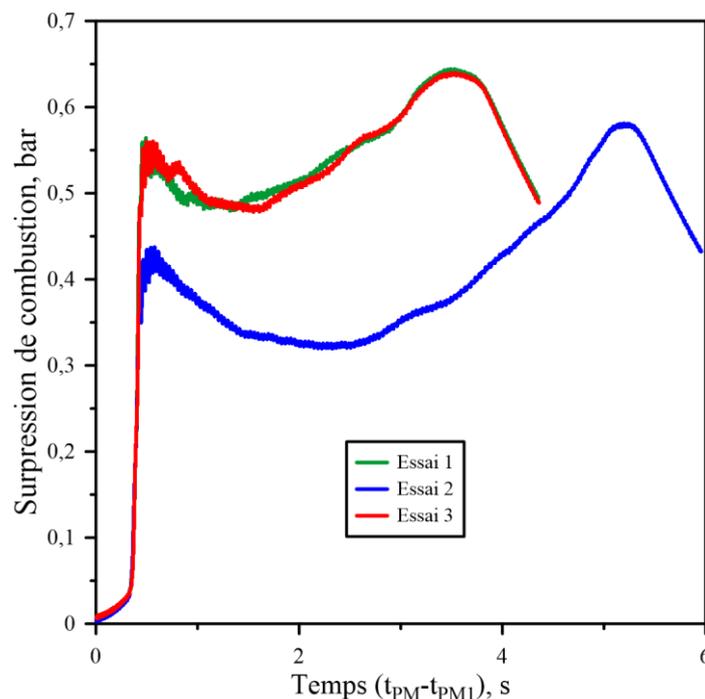


Figure 120 – Répétabilité des signaux de pression pour le Test 8, pour un mélange moyen de 7,76% H<sub>2</sub> + 7,93% CO + 45,95% CO<sub>2</sub> + 38,36% Air ; pour P<sub>ini</sub> = 1,006±0,004 bar ; et T<sub>ini</sub> = 298,15±1 K.

Une divergence sur les moyennes des signaux de pression est remarquée sur l'essai n°2 du Test 8. En effet, il s'agit du même essai pour lequel une divergence au niveau de la trajectoire de flamme avait été remarquée précédemment. Lors de cet essai, la flamme subit un ralentissement plus important que les deux autres essais composant la série. La moyenne sera donc faite sur les essais 1 et 3 du Test 8.

Ainsi, l'essai n°1 du Test 8 a été choisi pour étudier les signaux de pression dans l'enceinte au cours de la propagation de la flamme en fonction du temps. La composition du mélange est telle que : 7,87% H<sub>2</sub> + 8,06% CO + 37,62% Air + 46,45% CO<sub>2</sub>. La Figure 121 montre les différents signaux de pression en fonction du temps, ainsi que la trajectoire du front de flamme tout au long du tube.

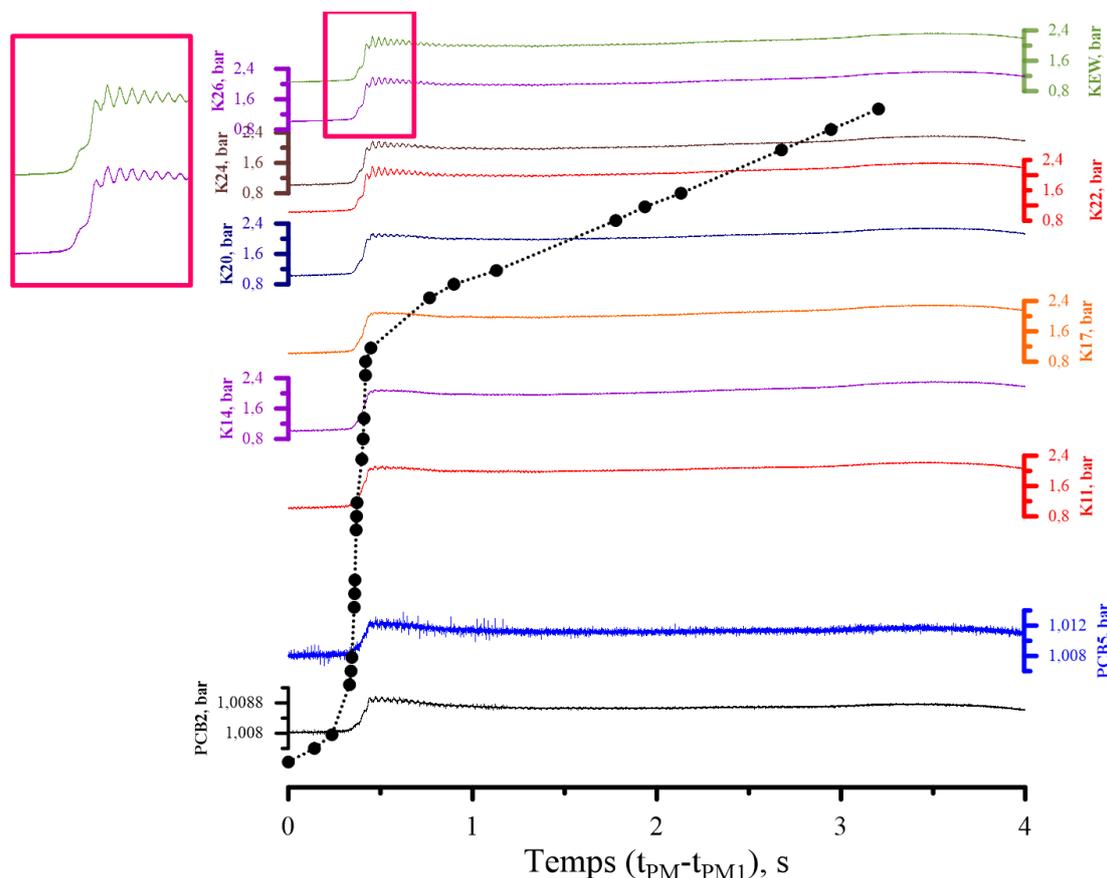


Figure 121 – Signaux de pression en fonction du temps, pour les 2 PCB et les 8 Kistler placés tout au long de l'enceinte expérimentale, et trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour une flamme 7,87% H<sub>2</sub> + 8,06% CO + 37,62% Air + 46,45% CO<sub>2</sub> (essai 1 du Test 8).

La figure montre que lors des premiers instants de la propagation du front de flamme dans le tube, tout comme pour les conditions thermodynamiques « standards » pour les flammes lentes proches des limites d'inflammabilité (cf. Figure 85 – Chapitre 4 – partie 1.1.2), la pression n'augmente pas beaucoup par rapport à la pression initiale. Entre le capteur PCB5 et le Kistler 11, la pression à l'intérieur de l'enceinte augmente. Ceci correspond au moment où la flamme est accélérée lorsqu'elle traverse les obstacles. Ceci se traduit par une augmentation de la pression, qui atteint la pression maximale de combustion, qui reste constante jusqu'à la fin de la propagation du front de flamme. Deux phénomènes sont visibles sur la zone zoomée sur la figure ci-dessus. Ces phénomènes sont visibles à partir du capteur Kistler placé à côté du photomultiplicateur 20 (donc sur la partie haute de l'enceinte). Tout d'abord, il est possible de voir que la partie du signal où il y a une augmentation de la pression dans l'enceinte est « cassé » en deux phases. Une première augmentation rapide, suivie par un très léger ralentissement sous forme de « plateau » avant de réaugmenter à nouveau. Ceci est la traduction dans les signaux de pression de la deuxième accélération du front de flamme (cf. Figure 119). D'une autre part, tout comme pour les signaux déterminés pour des conditions thermodynamiques « standards » pour des flammes

lentes proches de la limite d'inflammabilité inférieure (cf. Figure 88 – Chapitre 4 – partie 1.1.2), lors de l'augmentation de la pression, il est possible de voir des oscillations des signaux de pression (entre K20 et KEW). Ces oscillations sont plus importantes dans ce cas, et correspondent à des oscillations acoustiques, qui sont dues aux oscillations des gaz frais générées par le front de flamme lors de sa propagation dans l'enceinte expérimentale. En effet, la flamme est plus instable lors de l'ajout de CO<sub>2</sub> dans le mélange initial (diminution du nombre de Markstein). Cependant, l'amplitude de ces oscillations est beaucoup plus importante dans ce cas que dans le cas précédent (cf. Figure 88 – Chapitre 4 – partie 1.1.2). La valeur de la pression maximale est environ égale à 35% de la valeur de la P<sub>AICC</sub>.

## 2.2. Caractérisation de l'influence de la température initiale

La deuxième analyse concerne l'influence de la température initiale sur la propagation d'une flamme H<sub>2</sub>/CO/Air/CO<sub>2</sub> proche de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub>. Une deuxième température initiale, en plus de la température ambiante, a été étudiée : 363 K, et ceci pour la composition initiale du mélange dilué en CO<sub>2</sub> vue précédemment (7,47% H<sub>2</sub> + 7,56% CO + 40,09% Air + 44,88% CO<sub>2</sub>). La limite d'inertage en CO<sub>2</sub> d'un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, pour une pression initiale de 1 bar et pour une température initiale de 298 K, a été aussi choisie pour les essais réalisés à une température initiale de 363 K. En effet, les essais sont réalisés proches de la limite d'inertage, mais suffisamment éloignés pour être sûrs que le mélange s'allume (45% de CO<sub>2</sub>). Les conditions initiales expérimentales ont été fixées telles que :

- Système d'allumage : Bougie d'allumage
- Pression initiale : 1,010 ± 0,001 bar
- Température initiale : 298,15 ± 1 K et 363,15 ± 1 K
- Air normal ( $\frac{O_2}{N_2} = 0,264$ )

Les valeurs caractéristiques de ces flammes lentes proches de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub>, telles que la trajectoire de la flamme, sa vitesse, et les profils de pression, ont été déterminées, pour la deuxième température initiale étudiée (363 K), et pour une pression initiale de 1 bar.

Ces valeurs caractéristiques ont été étudiées pour la même composition initiale du mélange que celle vue précédemment : 7,47% H<sub>2</sub> + 7,56% CO + 40,09% Air + 44,88% CO<sub>2</sub> à 1 bar et à 363 K, et, pour rappel, 7,76% H<sub>2</sub> + 7,93% CO + 38,36% Air + 45,95% CO<sub>2</sub> à 1 bar et à 298 K. Chaque mélange correspond à un test, et pour chaque test, 3 essais ont été réalisés. Le Tableau 54 récapitule les conditions expérimentales pour ces deux tests.

Mélange	Essai	P <sub>ini</sub> (bar)	T <sub>ini</sub> (K)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	CO <sub>2</sub> %mol
<b>Test 8</b>	1	1	298	7,87	8,06	46,45
	2	1	298	7,71	7,87	45,68
	3	1	298	7,71	7,87	45,71
	<b>Moyenne</b>	<b>1</b>	<b>298</b>	<b>7,76</b>	<b>7,93</b>	<b>45,95</b>
<b>Test 9</b>	1	1	363	7,46	7,55	44,89
	2	1	363	7,46	7,43	44,89
	3	1	363	7,48	7,69	44,85
	<b>Moyenne</b>	<b>1</b>	<b>363</b>	<b>7,47</b>	<b>7,56</b>	<b>44,88</b>

Tableau 54 – Récapitulatif des conditions initiales pour l'étude de l'influence de la température initiale sur la propagation d'une flamme proche de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> du mélange {50% H<sub>2</sub>+50% CO}/Air/CO<sub>2</sub> pour les deux températures initiales étudiées, et pour une pression initiale de 1 bar.

### 2.2.1. Profils de trajectoire & Profils de vitesse

Les résultats expérimentaux pour les deux températures initiales étudiées sont présentés. Tout comme pour la partie précédente (cf. Chapitre 4 – partie 1.1.1), chaque condition initiale est répétée 3 fois. Il a été observé, en analysant les résultats pour cette série d'essais, que les essais sont répétables, et qu'il est donc possible de prendre la moyenne sur les 3 essais réalisés (cf. Figure 147 et Figure 148 – ANNEXE 4 : Répétabilité des signaux de trajectoire et de vitesse.). Les résultats des deux tests : Test 8 (7,47% H<sub>2</sub> + 7,56% CO + 40,09% Air + 44,88% CO<sub>2</sub> à T<sub>ini</sub> = 363 K et P<sub>ini</sub> = 1 bar) et Test 9 (7,76% H<sub>2</sub> + 7,93% CO + 38,36% Air + 45,95% CO<sub>2</sub> à T<sub>ini</sub> = 298 K et P<sub>ini</sub> = 1 bar) sont comparés.

Tout comme pour le mélange non dilué, l'inhomogénéité dans l'enceinte expérimentale semble augmenter lorsque la température initiale augmente. La répartition de la teneur en hydrogène et en monoxyde de carbone dans l'enceinte expérimentale au cours des 3 essais composant le Test 8, et des 3 essais composant le Test 9, ainsi que les rapports H<sub>2</sub>/CO pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale et pour les 3 essais composant le Test 8, pour les 3 essais composant le Test 9, ainsi que pour le mélange moyen, se trouvent en ANNEXE 3 : Répartition de l'hydrogène et du monoxyde de carbone en fonction du point de prélèvement dans l'enceinte expérimentale.

La Figure 122 montre une comparaison de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. Chaque courbe est obtenue par la moyenne des valeurs des essais de chaque Test. Le Test 8 et le Test 9 correspondent respectivement à 298 K (2 essais), et 363 K (3 essais), pour une pression initiale de 1 bar.

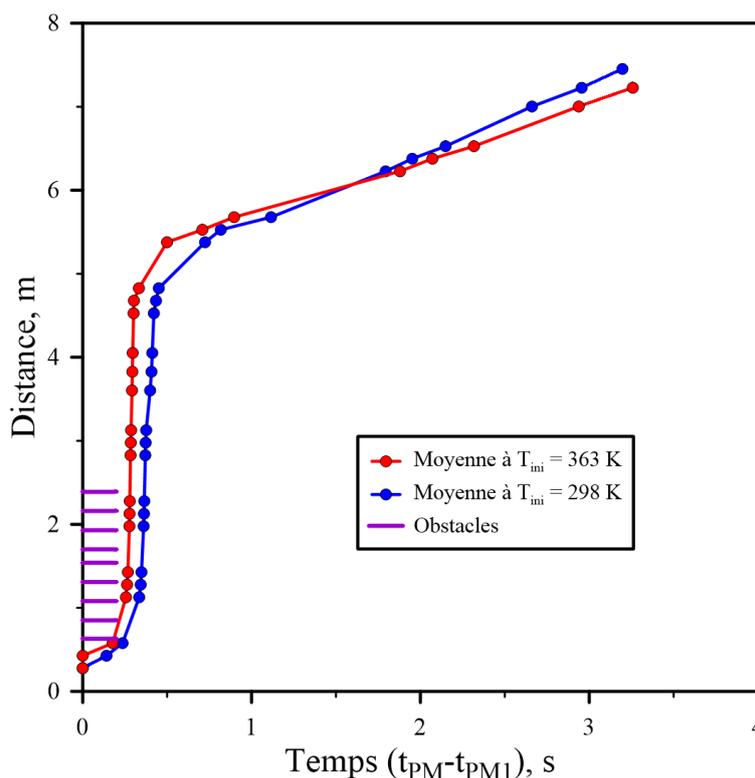


Figure 122 – Comparaison de la moyenne de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées : 298 K (Test 8) et 363 K (Test 9), et pour une pression initiale de 1 bar.

Le comportement de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps dépend de la température initiale. Tout comme pour les flammes se propageant proches de la limite d'inflammabilité inférieure, la flamme se propageant à une température initiale de 363 K est beaucoup plus rapide que celle se propageant à une température initiale de 298 K, et ce dès l'entrée dans la zone obstruée. Cependant, aux alentours de 5 mètres après le point d'allumage, après la traversée des obstacles, deux

phénomènes distincts sont présents. D'une part, il y a une deuxième accélération du front de flamme qui est présent pour la flamme se propageant à une température initiale de 298 K, alors que cette deuxième accélération est beaucoup plus discrète, voir quasiment inexistante à premier abord, pour une température initiale de 363 K. La variation de la température initiale entre 298 K et 363 K semble avoir une influence non négligeable sur la propagation de flammes  $H_2/CO/Air/CO_2$  lentes proches de la limite d'inertage en  $CO_2$  dans un tube fermé encombré d'obstacles.

Néanmoins, pour obtenir un comportement plus détaillé de la vitesse de propagation du front de flamme dans l'enceinte, il ne faut pas se limiter au profil de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps. Pour cela, il est nécessaire de tracer l'évolution de la vitesse de propagation du front de flamme dans l'enceinte en fonction de la distance parcourue par la flamme, et ce pour les deux températures initiales étudiées : 298 K et 363 K. La Figure 123 illustre la comparaison des profils de vitesse en fonction de la distance parcourue par le front de flamme pour les deux températures initiales étudiées, et pour une pression initiale de 1 bar.

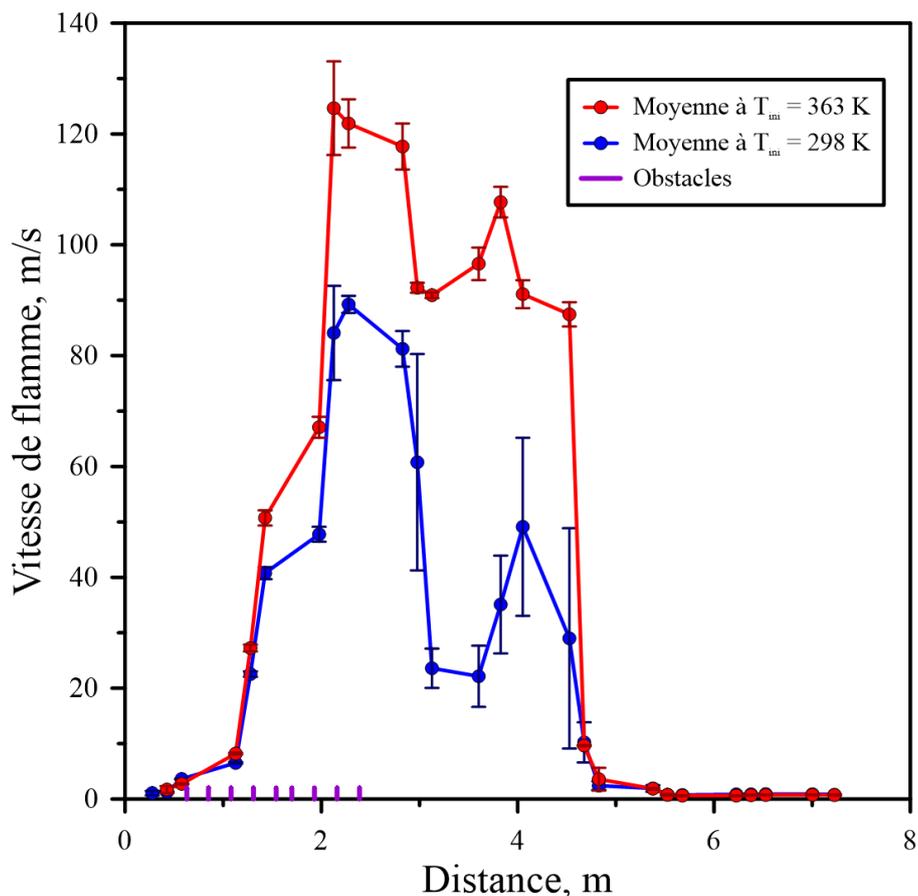


Figure 123 – Comparaison de la moyenne de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les deux températures initiales étudiées : 298 K (Test 8) et 363 K (Test 9), et pour une pression initiale de 1 bar.

Les deux profils de vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par celui-ci suivent une tendance similaire, mais à des échelles de valeurs différentes. Il y a un écart entre les différents profils de vitesse, et la vitesse maximale de combustion semble être atteinte au même endroit géométrique : vers la sortie de la zone obstruée. Les deux profils de vitesse sont identiques dans les premiers instants de la propagation, jusqu'au quatrième obstacle. La première différence se produit lors de la première décélération du front de flamme au niveau de cet obstacle. Il est possible de voir que l'augmentation de la température initiale entraîne une augmentation de la vitesse de propagation maximale (il y a une différence de ~40 m/s). Cette même conclusion avait été émise lors

de l'étude des flammes lentes proches de la limite d'inflammabilité inférieure (cf. Chapitre 4 – partie 1.3). Ensuite, il y a un deuxième pic de la vitesse de propagation du front de flamme à moins de 2 mètres de la sortie des obstacles. Ce deuxième pic est visible sur les deux profils de vitesse (cf. Chapitre 4 – partie 2.1.1). Cependant, il est plus important pour une température initiale de 363 K que pour une température initiale de 298 K. Finalement, moins de 3 mètres après la sortie des obstacles, la vitesse de propagation chute pour se stabiliser autour de 1 m/s, vitesse à laquelle la flamme se propage jusqu'à l'extrémité du tube. La variation de la température initiale entre 298 K et 363 K a comme conséquence d'augmenter la vitesse de propagation du front de flamme dans l'enceinte en fonction de la distance parcourue par celui-ci pour les flammes H<sub>2</sub>/CO/Air/CO<sub>2</sub> lentes proches de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> dans un tube fermé encombré d'obstacles.

Le Tableau 55 montre la comparaison de deux grandeurs déterminées expérimentalement :  $v_{max}$  la vitesse maximale de propagation du front de flamme (en m.s<sup>-1</sup>), et  $P_{max}$  la pression maximale de combustion (en bar), pour les deux températures initiales étudiées.

Mélange	$T_{ini}$ (K)	$P_{ini}$ (bar)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	CO <sub>2</sub> %mol	$v_{max}$ (m/s)	$P_{max}$ (bar)
Test 8	298	1	7,77	7,93	45,95	87,88	1,66
Test 9	363	1	7,47	7,56	44,88	127,81	1,51

Tableau 55 – Comparaison des valeurs de  $P_{max}$  et  $v_{max}$  pour les deux séries d'essais correspondant aux deux températures initiales du mélange étudiées.

Tout comme pour l'étude de la limite d'inflammabilité inférieure du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, il est à remarquer une augmentation de la vitesse de propagation maximale lorsque la température initiale du mélange initial augmente. De même, la pression de combustion maximale diminue dans l'enceinte expérimentale avec l'augmentation de la température initiale. La température initiale semble donc avoir une influence modérée sur la pression de combustion maximale, et ce quelle que soit la composition du mélange, pour les conditions initiales étudiées lors de cette étude. Ceci est en accord avec les résultats trouvés dans la littérature, et avec les résultats déterminés lors du Chapitre 3 – partie 1.2.3 et du Chapitre 4 – partie 1.3.1.

Il est possible de comparer les résultats obtenus pour les deux températures initiales étudiées, et pour une pression initiale de 1 bar. Tout d'abord, les propriétés physico-chimiques déterminées à partir de COSILAB (cf. Chapitre 2 – partie 3) sont données dans le Tableau 56, le Tableau 57, et le Tableau 58.

Mélange	$T_{ini}$ (K)	H <sub>2</sub> %mol	CO %mol	CO <sub>2</sub> %mol	$T_f$ (K)
Test 8	298	7,77	7,93	45,95	1335,4
Test 9	363	7,47	7,56	44,88	1348,0

Tableau 56 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées 298 K et 363 K (Partie 1).

$\lambda_f$ (W/m/K)	$\alpha_f$ (m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )	$c_{pf}$ (J/mol/K)	$c_{pb}$ (J/mol/K)	$P_{AICC}$ (bar)
0,028	2,15.10 <sup>-5</sup>	32,75	48,60	4,70
0,034	3,03.10 <sup>-5</sup>	34,00	48,24	3,88

Tableau 57 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées 298 K et 363 K (Partie 2).

$a_f$ (m/s)	$a_b$ (m/s)	$\sigma$	$\beta_{extrapolé}$	$Le_{eff}$	$S_l^0$ (cm/s)
314,07	605,36	4,13	8,71	0,50	3,83
344,87	610,50	3,43	8,70	0,50	5,67

Tableau 58 – Propriétés physico-chimiques déterminées à l'aide de COSILAB pour les deux températures initiales étudiées 298 K et 363 K (Partie 3).

Il est donc possible de comparer les différentes valeurs déterminées pour les deux températures initiales étudiées, et ce pour une pression initiale de 1 bar. Les mêmes conclusions concernant la température adiabatique de flamme, la  $P_{AICC}$ , la vitesse du son, dans les gaz frais ainsi que dans les gaz brûlés, le coefficient d'expansion des gaz brûlés, et la vitesse fondamentale de flamme, que celles tirées lors de l'étude de l'influence de la température initiale sur les flammes proches de la limite d'inflammabilité inférieure. La seule différence avec les résultats précédents, concerne le nombre de Zel'dovich, qui ne semble pas varier dans ce cas.

### 2.2.2. Profils de pression

La deuxième analyse concerne l'étude des profils de pression de celles-ci tout au long d'ENACCEF-II, à partir de deux courbes de surpression de combustion en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées, et ce pour une pression initiale de 1 bar. Les deux températures initiales étudiées sont : 298 K et 363 K. Tout comme pour tous les tests précédents, les signaux de tous les capteurs pour chacun des 3 essais composant le Test 9 se superposent (cf. Figure 156 – ANNEXE 5 : Répétabilité des signaux de pression.). Ainsi, la moyenne des signaux de tous les capteurs sera prise comme référence pour la comparaison des signaux de pression. Comme précédemment, la moyenne des signaux de pression des séries pour chaque test a été déterminée et sont présentées sur la Figure 124.

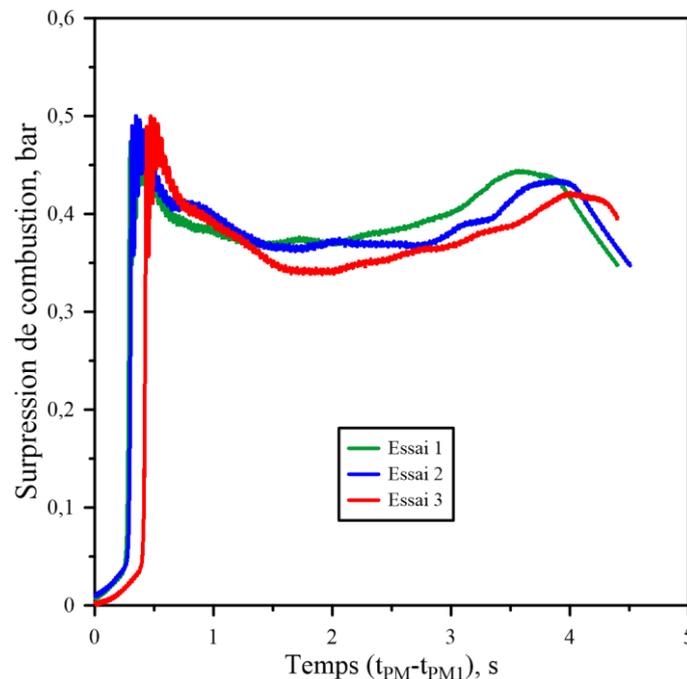


Figure 124 – Répétabilité des signaux de pression pour le Test 9, pour un mélange moyen de 7,47% H<sub>2</sub> + 7,56% CO + 44,88% CO<sub>2</sub> + 40,09% Air ; pour  $P_{ini} = 1,010 \pm 0,001$  bar ; et  $T_{ini} = 363,15 \pm 1$  K.

Les essais composant le Test 9 sont répétables, la moyenne des essais sera prise comme référence pour comparaison. La Figure 125 montre les deux signaux de surpression de combustion en fonction du temps pour les deux températures initiales étudiées et pour une pression initiale de 1 bar.

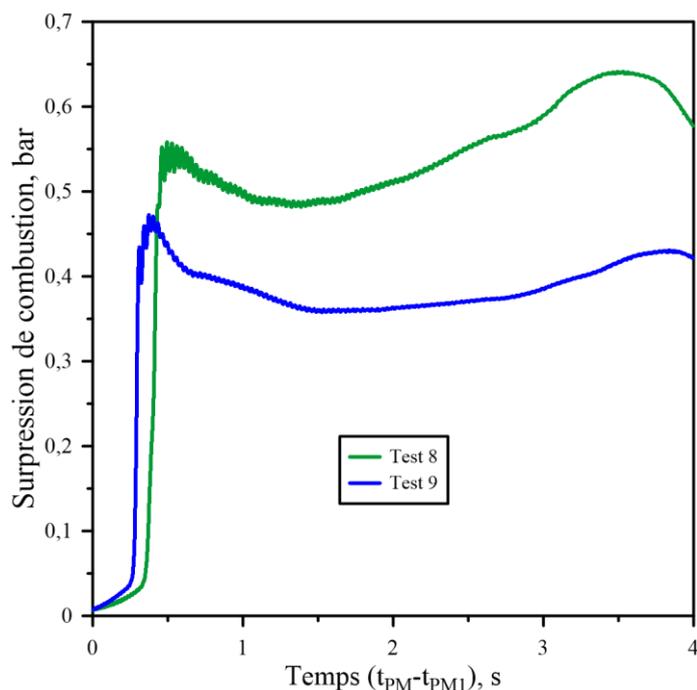


Figure 125 – Comparaison des surpressions de combustion en fonction du temps pour les deux moyennes des signaux pour les deux tests.

La figure présente les deux signaux de la surpression de combustion étudiés, qui ont la même allure. Tout comme pour l'étude de l'influence de la température initiale (cf. Chapitre 4 – partie 1.3), la pression commence par augmenter rapidement jusqu'à atteindre un premier ralentissement dans son augmentation, où la pression continue d'augmenter, mais beaucoup moins rapidement. Puis, elle atteint sa valeur maximale avant de diminuer. Cependant, contrairement à ce qui avait été vu lors de cette étude, la valeur de la surpression de combustion diminue lorsque la température initiale augmente. De plus, le moment où la pression initiale commence à augmenter débute plus rapidement pour une température initiale de 363 K que pour une température initiale de 298 K. En effet, comme il a été vu précédemment lors de l'étude des profils de vitesse, la vitesse de propagation du front de flamme augmente lorsque la température initiale augmente. Or, la valeur de la  $P_{AICC}$  diminue lorsque la température initiale augmente (cf. Tableau 56 – Chapitre 4 – partie 2.2.1). Par conséquent, le rapport de la pression maximale de combustion sur la  $P_{AICC}$  est plus important lorsque la température initiale augmente. Dans tous les cas il est possible de voir que la valeur de la pression maximale de combustion n'est pas proche de la valeur de la  $P_{AICC}$ , elle se trouve aux alentours de 30-40% de cette valeur pour les deux températures initiales étudiées. De plus, les pertes de chaleur au niveau des parois de l'enceinte sont importantes du fait de la vitesse de flamme qui est réduite, ce qui a pour conséquence l'abaissement de la température des gaz brûlés, et donc de la pression. Il s'agit d'une flamme lente proche de la limite d'inertage en  $CO_2$  du mélange  $H_2/CO/Air$  correspondant à une combustion partielle.

L'augmentation de la température initiale a comme effet la diminution de la surpression de combustion, et du temps  $t$  nécessaire pour l'atteindre (cf. Tableau 59). Ceci est en accord avec les résultats déterminés dans le Chapitre 3 – partie 1.2.3, traitant de l'influence de la température initiale sur les limites d'inflammabilité du mélange  $H_2/CO/Air$ .

Mélange	$T_{ini}$ (K)	$\Delta P_{max}$ (bar)	$t_{\Delta P_{max}}$ (s)
Test 8	298	0,56	0,51
Test 9	363	0,47	0,38

Tableau 59 – Comparaison des valeurs de  $\Delta P_{max}$  et  $t_{\Delta P_{max}}$  pour les deux températures initiales du mélange  $\{50\%H_2+50\%CO\}/Air/CO_2$  étudiées.

### 2.3. Caractérisation visuelle de la propagation de la flamme

Finalement, la dernière étape de cette étude consiste à caractériser visuellement la propagation du front de flamme dans l'enceinte. La méthode de visualisation (Schlieren en Z) de la propagation spatiale du front de flamme a été détaillée dans le Chapitre 2 – partie 2.1.3.6. De plus, cette visualisation se fait après que le front de flamme ait traversé les obstacles. Des images correspondant aux essais réalisés à la température initiale de 298 K, et à la température initiale de 363 K, pour une pression initiale de 1 bar seront présentées.

La Figure 126 présente deux propagations de flamme dans ENACCEF-II pour une pression initiale de 1 bar et pour les deux températures initiales étudiées, à savoir : 298 K (cf. Figure 126 (a), (b), (c), et (d)), et 363 K (cf. Figure 126 (e), (f), (g), et (h)).

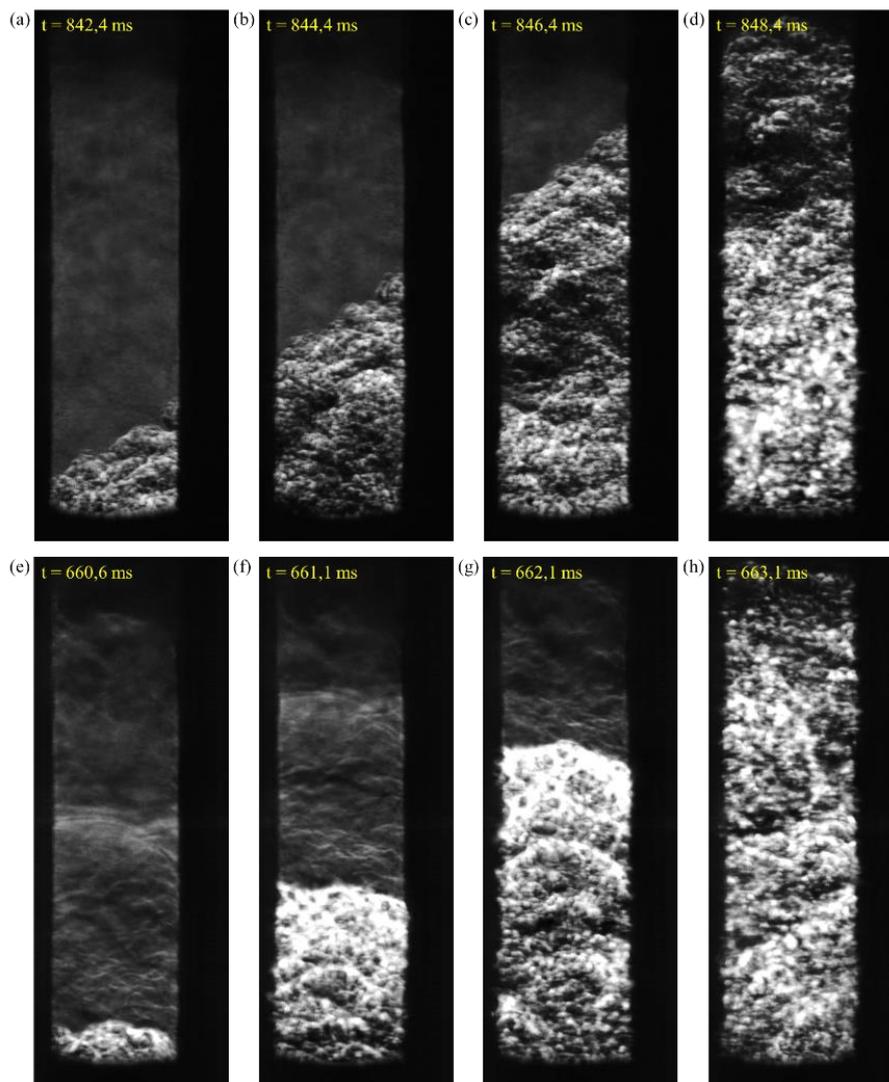


Figure 126 – Comparaison de la propagation visuelle d'une flamme  $\{50\%H_2+50\%CO\}/Air/CO_2$  proche de la limite d'inertage en  $CO_2$  pour une pression initiale de 1 bar et pour deux températures initiales différentes : une température initiale de 298 K ((a), (b), (c), et (d)), et une température initiale de 363 K ((e), (f), (g), et (h)).

La figure montre que la propagation spatiale de la flamme pour une pression initiale de 1 bar est modifiée par l'augmentation de la température initiale. En effet, lorsque la température initiale est fixée à 298 K, la flamme se propageant à l'intérieur du tube en sortie des obstacles semble être une flamme tulipe. En effet, sur les figures (a), (b), et (c) de la figure, l'une des deux lèvres de la flamme tulipe se distingue. Les explications concernant les flammes tulipes ont été présentées lors de la caractérisation

visuelle des flammes lentes proches des limites d'inflammabilité (cf. Chapitre 4 – partie 1.5). Parallèlement à cette flamme tulipe qui est retrouvée pour une température initiale de 298 K, une flamme en forme de doigt / flamme plate est retrouvée lorsque la température initiale est augmentée à 363 K. Dans ce cas il est possible de voir dans les premiers instants (cf. Figure 126 (e) et (f)) une flamme plutôt plate qui laisse place à une flamme en forme de doigt (cf. Figure 126 (g)) qui se propage. Une onde de pression qui se propage dans les gaz frais en amont du passage du front de flamme est également retrouvée. Cette onde de pression est visible sur les figures (e) et (f). Ces ondes de pression jouent un rôle important dans la déformation et l'oscillation de la flamme. En effet, l'interaction entre les ondes de pression, dont leur force augmente progressivement, et le front de flamme génère des oscillations de la flamme [268]. Ces mêmes conclusions ont été dressées lors de l'étude des flammes lentes proches de la limite d'inflammabilité inférieure (cf. Figure 115 et Figure 116 – Chapitre 4 – partie 1.5). En effet, pour une température initiale de 298 K, une flamme semble tulipe se propager dans le tube, alors que pour une température initiale de 363 K il s'agit d'une flamme en forme de doigt. Ainsi, lorsque la température initiale augmente, l'inversion du front de flamme n'a pas lieu, ce qui peut être expliqué par la diminution du coefficient d'expansion des gaz frais avec l'augmentation de la température initiale (cf. Tableau 58 – Chapitre 4 – partie 2.2.1). De plus, la vitesse de propagation du front de flamme est plus importante lorsque la température initiale augmente. Ceci est visible sur la Figure 123 – Chapitre 4 – partie 2.2.1, où la vitesse de propagation de la flamme à 363 K est toujours plus importante que celle à 298 K. La vitesse de propagation de ces flammes, indépendamment de la température initiale, est beaucoup plus importante que celle observée pour les flammes lentes proches de la limite d'inflammabilité inférieure.

Finalement, la figure montre que le niveau de plissement de la flamme est beaucoup plus important, et ce quelle que soit la température initiale, que pour les flammes lentes proches de la limite d'inflammabilité inférieure. Ceci est la conséquence de plusieurs phénomènes distincts. D'une part, l'augmentation de la teneur en  $H_2/CO$  peut générer cette augmentation du plissement. D'autre part, l'ajout de  $CO_2$  en tant que diluant, ainsi que l'augmentation de la vitesse de propagation de la flamme, peuvent aussi être responsables de ce phénomène en augmentant les instabilités de flamme. Concernant la comparaison qui peut être faite à partir de l'imagerie rapide et de l'analyse des signaux des photomultiplicateurs (cf. Chapitre 2 – partie 2.2.1), la même conclusion que celle faite pour la caractérisation visuelle des flammes lentes proches de la limite d'inflammabilité inférieure peut être tirée (cf. Figure 117 – Chapitre 4 – partie 1.5).

### 3. Flammes non-accélérées et flammes accélérées

La deuxième partie de cette campagne expérimentale porte sur l'étude des flammes non-accélérées et des flammes accélérées, pour un mélange  $H_2/CO/Air/Diluant$ . La condition choisie lors de cette étude pour différencier les flammes non-accélérées des flammes accélérées est faite sur la vitesse du son des gaz brûlés. En effet, une flamme est considérée comme étant accélérée si sa vitesse maximale de propagation remplit la condition suivante : être supérieure à la moitié de la valeur de la vitesse du son dans les gaz brûlés. La caractérisation de l'influence de la dilution du mélange initial (vapeur d'eau et  $CO_2$ ) sur les profils de trajectoire, de vitesse et de pression de ces flammes a été étudiée, avec l'enceinte d'accélération de flamme ENACCEF-II (cf. Chapitre 2 – partie 2.1).

Les teneurs étudiées lors de cette partie correspondent à des teneurs obtenues à partir de simulations numériques faites, dans le cadre du projet européen AMHYCO, dans le cadre de scénarios extrêmes pouvant se produire lors d'un accident grave dans un REP. Comprendre ce mode de défaillance est indispensable dans l'étude des accidents graves dans les REP, et surtout dans leur prévention pour mieux les appréhender et réduire au maximum les dégâts et les conséquences irréversibles.

Les résultats obtenus lors de cette partie de l'étude ne peuvent pas être présentés pour des raisons de confidentialité.

## 4. Caractérisation du critère d'accélération de flamme

Lors de l'étude d'un scénario d'accident grave dans un REP, l'analyse se fait en deux temps : une simulation numérique, et une partie expérimentale. Or, la simulation numérique et la modélisation nécessitent de données expérimentales permettant d'imposer des conditions aux limites et des prévisions. Les premières étapes consistent à déterminer le caractère inflammable d'un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air, avec ou sans vapeur d'eau et CO<sub>2</sub>. En effet, ces composés sont produits lors de la fusion du cœur du réacteur et de l'interaction corium-béton. Puis, une fois que le mélange est prouvé comme étant inflammable, il faut déterminer, a priori, si la propagation de cette flamme pourrait s'accélérer, et éventuellement mener à une quasi-détonation ou même à une détonation dans le cas le plus défavorable. Ceci se traduit par le critère d'accélération de flamme. Ainsi, dans le cadre d'un accident grave dans un REP, notamment lors de la phase tardive de celui-ci, il est indispensable d'évaluer si la propagation d'une flamme, pour un mélange donné, a le potentiel de s'accélérer. Le critère d'accélération de flamme, noté  $\sigma^*$ , d'un mélange H<sub>2</sub>/Air a été largement étudié dans la littérature [289, 290, 291, 16, 17]. Il s'agit d'un critère permettant de différencier les mélanges capables de mener à des flammes accélérées des mélanges menant à des flammes non-accelérées.

La première problématique à laquelle il faut faire face est l'échelle de la propagation de la flamme. En effet, l'enceinte expérimentale ENACCEF-II représente à échelle réduite, une partie de l'enceinte de confinement dans un REP. Le volume d'une enceinte de confinement d'un REP à taille réelle est beaucoup plus important que celui de l'enceinte expérimentale utilisée dans le cadre de cette étude (de l'ordre de 8.10<sup>4</sup> m<sup>3</sup>). Kuznetsov et al. [296] ont prouvé que les caractéristiques de la combustion, notamment son régime de propagation, sont indépendantes de l'échelle expérimentale lorsque le rapport de l'échelle intégrale sur l'épaisseur de flamme est supérieur à 100. Tout d'abord, il est important de définir l'échelle intégrale. Celle-ci, notée  $L_T$ , correspond à la taille des tourbillons de grande taille qui se trouvent dans les grandes échelles de la turbulence dans un écoulement turbulent. Il s'agit d'une grandeur caractéristique de l'enceinte expérimentale. Elle est donnée par la relation ci-dessous :

$$L_T = \frac{E_c^{3/2}}{\varepsilon} \quad (71)$$

Avec,  $L_T$  l'échelle intégrale,  $E_c$  l'énergie cinétique de l'écoulement turbulent (en J), et  $\varepsilon$  la puissance de dissipation par unité de masse (en m<sup>2</sup>.s<sup>-3</sup>). Dans le cas des installations cylindriques encombrées d'obstacles, comme c'est le cas d'ENACCEF-II, l'échelle intégrale est définie comme étant égale au diamètre interne du tube [19, 297]. Le diamètre interne d'ENACCEF-II est de 230 mm (cf. Chapitre 2 – partie 2.1.1). Donc,  $L_T = 230$  mm.

De plus, dans le chapitre 1 concernant l'état de l'art, il a été vu que l'épaisseur de flamme laminaire était égale à la somme de l'épaisseur de la zone de préchauffage et l'épaisseur de la zone de réaction. Or, l'épaisseur de la zone de réaction est négligeable par rapport à l'épaisseur de la zone de préchauffage (cf. Chapitre 1 – partie 1.3.2). Ainsi, l'épaisseur de flamme laminaire sera prise ici dans ce cas comme étant seulement l'épaisseur de la zone de préchauffage :  $\delta_l = \delta_p$ . L'épaisseur de la zone de préchauffage peut être déterminée à partir de la relation donnée dans l'équation (34). Il s'agit d'un calcul basé sur la diffusivité thermique du mélange. Ce calcul nécessite les grandeurs suivantes :  $\lambda_f$ ,  $\rho_f$ ,  $c_{p_f}$ , et la vitesse fondamentale de flamme. Ainsi, à partir des résultats obtenus par la modélisation de la combustion à l'aide de COSILAB (cf. Chapitre 1 – partie 3), il est possible d'obtenir l'épaisseur de flamme laminaire. Avec ces considérations, il est possible de placer les différents essais en fonction du rapport de l'échelle intégrale sur l'épaisseur de flamme laminaire. Ces résultats sont donnés sur la Figure 127.

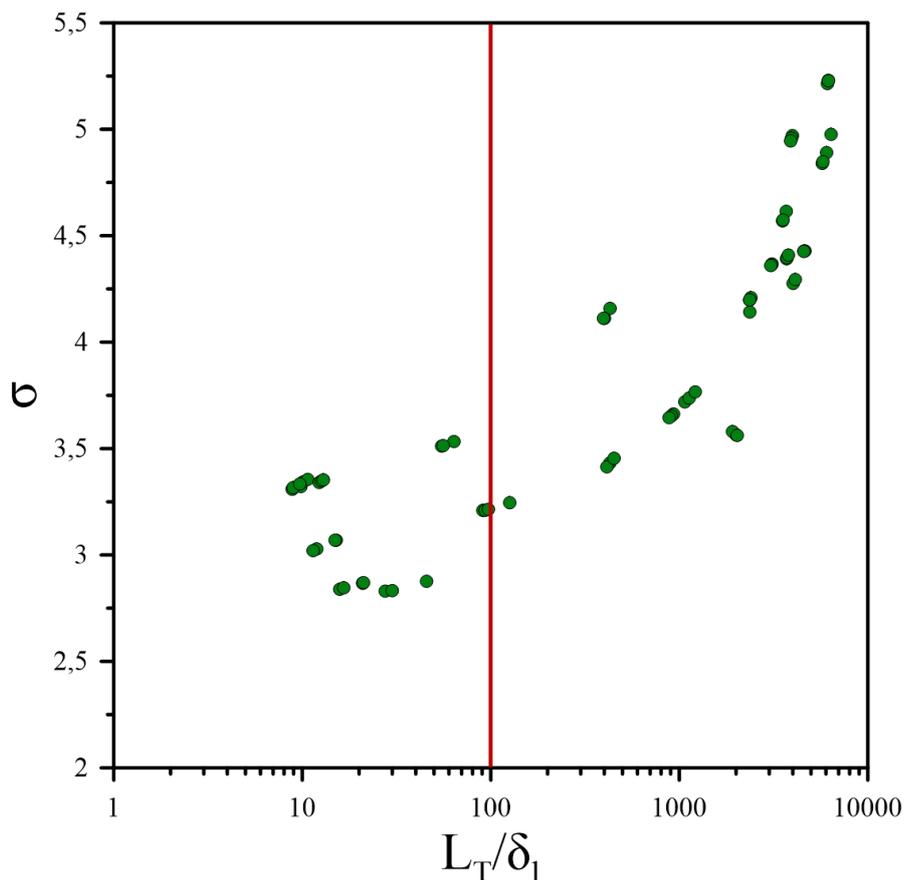


Figure 127 – Critère d’expansion des gaz brûlés en fonction du rapport entre l’échelle intégrale et l’épaisseur de flamme laminaire.

Il est visible sur la figure ci-dessus qu’il y a deux catégories d’essais. La première correspond aux essais pour lesquels le rapport entre l’échelle intégrale et l’épaisseur de flamme laminaire est inférieur à 100. Ces essais correspondent aux essais réalisés pour des mélanges proches des limites d’inflammabilité du mélange  $H_2/CO/Air$ . En effet, l’épaisseur de flamme laminaire est inversement proportionnelle à la vitesse fondamentale de flamme (cf. Équation (34) – Chapitre 1 – partie 1.3.2). Pour ces flammes, la vitesse fondamentale de flamme est très basse ( $\sim 0,6 \text{ cm.s}^{-1}$ ). Ainsi, il est possible de dire que les caractéristiques de ces flammes sont dépendantes de l’échelle de l’étude. Cependant, tous les autres essais (flammes accélérées comme flammes non-accelérées), qui ne correspondent pas à des mélanges proches des limites d’inflammabilité, correspondent à des rapports supérieurs à 100 et sont donc indépendants de l’échelle d’étude et par conséquent applicables dans le cas d’un accident grave dans un REP à taille réelle. Dans tous les cas, les essais correspondant à des mélanges proches des limites d’inflammabilité ne s’accélèrent pas suffisamment pour représenter un danger pour le réacteur, et transiter vers la quasi-détonation ou la détonation.

Tout d’abord, il faut séparer les flammes en deux cas différents : d’une part, les mélanges se trouvant proches des limites d’inflammabilité, et d’autre part les flammes accélérées et non-accelérées. Concernant les mélanges proches des limites d’inflammabilité, le processus d’accélération de flamme est généré par les effets de flottabilité. En effet, les effets de flottabilité font que le front de flamme se propage verticalement vers le haut, et se développe pour augmenter en volume. De plus, les effets de la turbulence rendent la combustion plus complète, mais l’accélération de la flamme n’est pas réellement efficace pour mener à une TDD [298]. Pour cela, le nombre de Froude peut être défini. Le nombre de Froude, noté  $F_r$ , est une grandeur sans dimension qui caractérise l’influence de la convection naturelle sur la forme et sur les propriétés de la flamme. Il est donné par :

$$F_r = \frac{V_s^2}{2 * g * r_f} \quad (72)$$

Avec,  $F_r$  le nombre de Froude,  $V_s$  la vitesse spatiale du front de flamme (en  $\text{m.s}^{-1}$ ),  $g$  l'accélération gravitationnelle (en  $\text{m.s}^{-2}$ ), et  $r_f$  le rayon de la flamme (en m).

La valeur critique du nombre de Froude a été déterminée comme étant égale à  $F_r^* = 0,11$  [299]. Lorsque le nombre de Froude du mélange, et pour les conditions thermodynamiques données, est inférieur au nombre de Froude critique, les effets de flottabilité dominent le processus de développement des produits de combustion. Dans ces conditions, le mécanisme le plus efficace d'accélération de la flamme (rétroaction entre le flux des produits de la flamme et la flamme en elle-même) ne peut pas l'expliquer, car il n'est pas mis en œuvre. Ainsi, pour des mélanges proches des limites d'inflammabilité, la valeur critique du nombre de Froude peut être utilisée comme critère d'accélération de flamme.

## 5. Conclusions sur les résultats expérimentaux concernant la propagation de flammes dans un tube fermé encombré d'obstacles

Ce dernier chapitre présente l'étude de la propagation de flammes  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$ , en présence ou non de diluants, dans un tube fermé encombré d'obstacles. Dans un premier temps, des flammes lentes  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  proches de la limite d'inflammabilité inférieure, pour plusieurs paramètres initiaux différents, ont été étudiées. Puis, l'influence de l'ajout de  $\text{CO}_2$  a été étudiée pour des flammes proches de la limite d'inertage en  $\text{CO}_2$  pour un mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  stœchiométrique. Dans le cadre du projet européen AMHYCO, pour des scénarios extrêmes pouvant se produire lors d'un accident grave dans les REP, une étude correspondant à des teneurs simulées pour des mélanges  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}/\text{Diluant}$ , a été menée (flammes non-accélérées, et flammes accélérées). Finalement, une caractérisation du critère d'accélération de flamme est proposée.

La première campagne expérimentale concerne l'étude de l'influence de plusieurs paramètres initiaux (composition du mélange, pression et température) sur la propagation d'une flamme  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  lente proche de la limite d'inflammabilité inférieure. Dans le but d'avoir une base de comparaison, la propagation de ces flammes pour des conditions thermodynamiques « standards » a été caractérisée. Une étude sur l'influence de la composition initiale a d'abord été menée. L'augmentation de la teneur en  $\text{H}_2/\text{CO}$  entraîne une augmentation de la vitesse de propagation maximale. Puis, une étude sur l'influence de la pression initiale a montré que l'augmentation de la pression initiale a comme conséquence la diminution de la vitesse de propagation maximale, et une augmentation de la surpression de combustion. Ces résultats sont en accord avec les résultats déterminés lors du Chapitre 3 – partie 1.2.2. L'influence de la température initiale a montré qu'une augmentation de la température initiale induit une augmentation de la vitesse de propagation maximale et de la surpression de combustion pour une pression initiale de 1 bar. Ces résultats sont aussi en accord avec les résultats déterminés lors du Chapitre 3 – partie 1.2.2. L'influence conjointe de l'augmentation de la température initiale et de la pression initiale a été caractérisée. Une hypothèse a été émise : les effets de l'augmentation de la température initiale semblent l'emporter lorsque la pression initiale est augmentée à un certain seuil, en termes de surpression de combustion maximale, du temps nécessaire pour l'atteindre dans l'enceinte, et de déplacement de la vitesse de propagation maximale. La deuxième partie de cette campagne expérimentale concerne la limite d'inertage en  $\text{CO}_2$  du mélange  $\text{H}_2/\text{CO}/\text{Air}$  stœchiométrique. La partie concernant les essais réalisés pour des conditions thermodynamiques « standards » a montré qu'il y a une deuxième accélération du front de flamme sur les derniers instants de sa propagation. Cette re-accélération se fait remarquer sur les signaux de pression par le moyen d'une « cassure » de l'augmentation de celle-ci dans l'enceinte. Les essais réalisés pour une température initiale plus élevée ont montré qu'une augmentation de la température initiale induit une augmentation de la vitesse de propagation maximale et une diminution de la surpression de combustion. La deuxième accélération du front de flamme est aussi présente.

La troisième partie a été réalisée dans l'objectif de déterminer des données expérimentales correspondant à des teneurs simulées dans le cadre du projet européen AMHYCO (flammes accélérées et non-accelérées) dans lequel s'inscrivent ces travaux de thèse. Pour des questions de confidentialité, les résultats n'ont pas pu être présentés dans ce manuscrit. Il a été conclu que le critère d'accélération de flamme établi par Malet [290] pour un mélange H<sub>2</sub>/Air est en accord avec les résultats expérimentaux déterminés lors de cette étude. Il est donc possible d'étendre cette corrélation au mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. Cependant, le nombre d'essais n'est pas suffisant pour être concluant. Il faut donc étendre le nombre d'essais, et surtout diversifier les conditions initiales (composition du mélange, taux de dilution, pression initiale et température initiale) dans le but de cadrer les domaines, et avoir une corrélation plus restreinte.

## Conclusions et perspectives



Ces travaux s'inscrivent dans le cadre du projet européen AMHYCO visant à améliorer la gestion des risques liés à la combustion de l'hydrogène, et du mélange H<sub>2</sub>/CO, dans les centrales nucléaires, et des études menées par l'IRSN. Le projet AMHYCO a pour objectif d'améliorer les connaissances expérimentales, et numériques, dans un domaine qui reste encore insuffisamment exploré : la gestion des risques de combustion des mélanges d'hydrogène et de monoxyde de carbone (H<sub>2</sub>/CO) en cas d'accidents graves dans les centrales nucléaires [13]. Ils portent, plus spécifiquement, sur l'étude de la propagation de flamme dans une atmosphère gazeuse représentative de la phase tardive d'un accident grave dans un REP.

La première partie de ce manuscrit constitue une revue de la littérature sur les divers concepts théoriques ainsi que sur le mélange étudié dans ces travaux de recherche, à savoir H<sub>2</sub>/CO/Air. Cette étude a commencé par examiner les propriétés fondamentales des flammes de prémélange, subdivisée en trois parties principales. Tout d'abord, les flammes de prémélange ont été définies et décrites. Ensuite, une analyse détaillée des limites d'inflammabilité a été entreprise, d'abord de manière générale puis spécifiquement pour le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. L'impact de divers paramètres initiaux tels que la température initiale, la pression initiale et l'ajout de diluants, entre autres, sur les limites d'inflammabilité de ce mélange a été étudié et caractérisé. Il a été conclu que le mélange H<sub>2</sub>/Air a été largement étudié dans la littérature, tandis que des lacunes existent encore concernant le mélange H<sub>2</sub>/CO/Air. En effet, les données concernant l'influence de la pression initiale, ainsi que la température initiale, et l'appauvrissement en oxygène sont rares. En particulier, les données concernant la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> du mélange stœchiométrique sont inexistantes. Une revue de l'état de l'art des vitesses de flamme laminaires a été également examinée. En effet, il s'agit d'un paramètre indispensable pour caractériser le critère d'accélération de flamme. Les valeurs de ces vitesses de flamme laminaires des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air en fonction des différents paramètres initiaux sont nombreuses dans la littérature. La deuxième partie de la revue de la littérature a porté sur les régimes de propagation des flammes. Cette section s'est concentrée sur la définition et la caractérisation du cadre théorique des déflagrations, des mécanismes d'accélération de flamme, ainsi que des instabilités de flamme, à la fois hydrodynamiques et thermo-diffusives. Enfin, une revue de la propagation des déflagrations en milieux confinés a été réalisée. Pour ce faire, le cadre théorique, incluant la propagation dans des tubes lisses et dans des tubes obstrués par des obstacles, a été exposé en premier lieu. Ensuite, le cas spécifique du mélange étudié, à savoir H<sub>2</sub>/CO/Air, a été examiné. La conclusion principale qui a pu être tirée de cette partie de l'étude est que les résultats expérimentaux concernant la propagation d'une flamme H<sub>2</sub>/CO/Air dans un tube encombré d'obstacles sont très rares dans la littérature.

Le deuxième chapitre de ce manuscrit est dédié à la description des dispositifs expérimentaux (bombe sphérique BSI, et enceinte d'accélération de flamme ENACCEF-II), ainsi qu'aux procédures expérimentales et d'analyse qui ont permis d'établir l'ensemble des résultats constituant le contenu des chapitres 3 et 4.

Le chapitre 3 présente une étude réalisée avec la bombe sphérique BSI. La première partie de cette étude expérimentale visait à définir le domaine d'inflammabilité d'un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air en fonction de la variation de plusieurs paramètres initiaux, ainsi qu'à déterminer la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> de ce même mélange stœchiométrique. Dans un premier temps, pour la partie concernant le domaine d'inflammabilité, celui-ci a été établi pour des conditions thermodynamiques « standards » afin d'établir une référence de comparaison. Ces valeurs sont en accord avec les résultats trouvés dans la littérature, et avec les valeurs déterminées à partir des lois de Le Chatelier (cf. équation (62)). Une étude sur l'influence de la pression initiale, a montré que la valeur de la LII ne se voit pas réellement impactée, alors que la valeur de la LIS diminue, lorsque la pression initiale augmente. Les valeurs déterminées expérimentalement ne sont pas en accord avec les données trouvées dans la littérature, d'où la mise en place lors de cette étude de deux corrélations (une pour la LII et une pour la LIS) décrivant ce comportement. Une étude sur l'influence de la température initiale a montré que la valeur de la LII diminue lorsque la température initiale augmente. Les valeurs déterminées expérimentalement sont en

accord avec certaines données de la littérature. Les résultats expérimentaux, complétés par les données de la littérature, ont permis d'établir une corrélation décrivant ce comportement. L'étude sur l'influence de l'appauvrissement de l'atmosphère en oxygène, a montré que la valeur de la LII augmente, et la valeur de la LIS diminue considérablement, lorsque l'atmosphère est appauvrie en oxygène. Les données dans la littérature concernant l'étude de l'appauvrissement en oxygène du mélange sont très rares, l'atmosphère de l'enceinte de confinement du REP devient appauvrie en oxygène dans le cadre d'un accident grave à cause de la mise en fonctionnement des recombineurs autocatalytiques. La limite d'inertage en CO<sub>2</sub> du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique a été déterminée, et elle vaut :  $52,11 \pm 0,99\%$ . La détermination de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> pour un mélange H<sub>2</sub>/CO/Air stœchiométrique n'a jamais été réalisée dans la littérature, et il existe peu de corrélations permettant de la calculer. Cette partie revêt d'une importance particulière car du CO<sub>2</sub> est produit lors de la phase tardive d'un accident grave dans un réacteur à eau pressurisée (REP).

Le chapitre 4 présente l'étude réalisée pour caractériser la propagation d'une flamme H<sub>2</sub>/CO/Air dans un tube fermé encombré d'obstacles, avec le dispositif expérimental ENACCEF-II. Ce dispositif a été conçu dans le but de reproduire, à échelle réduite, une partie de l'enceinte de confinement d'un REP. Cette enceinte se différencie de son prédécesseur par sa capacité à étudier l'influence de la vapeur d'eau et de la température initiale sur la propagation de ces flammes. Ce chapitre est divisé en trois parties. La première est consacrée à la caractérisation de flammes lentes H<sub>2</sub>/CO/Air proches de la limite d'inflammabilité inférieure. L'influence de plusieurs paramètres initiaux (composition du mélange, pression et température) sur la propagation de ces flammes a été caractérisée. Pour avoir une base de comparaison, la propagation de ces flammes pour des conditions thermodynamiques « standards » a été étudiée dans un premier temps. L'augmentation de la teneur en H<sub>2</sub>/CO entraîne une augmentation de la vitesse de propagation maximale. La deuxième partie analyse s'est concentrée sur l'influence de deux paramètres initiaux : la pression et la température. Celle-ci a montré que l'augmentation de la pression initiale a comme conséquence la diminution de la vitesse de propagation maximale, et une augmentation de la surpression de combustion. De plus, il a été montré qu'une augmentation de la température initiale induit une augmentation de la vitesse de propagation maximale et de la surpression de combustion. L'influence conjointe de l'augmentation de la température initiale et de la pression initiale est a été caractérisée. Une hypothèse a été émise : les effets de l'augmentation de la température initiale semblent l'emporter lorsque la pression initiale est augmentée à un certain seuil, en termes de surpression de combustion maximale, du temps nécessaire pour l'atteindre dans l'enceinte, et de déplacement de la vitesse de propagation maximale. La deuxième partie a traité de la propagation de flammes stœchiométriques proches de la limite d'inertage en CO<sub>2</sub> du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air/CO<sub>2</sub>. Les résultats ont montré qu'il y a un deuxième pic de la vitesse de propagation du front de flamme correspondant au fond continu créé par la vapeur d'eau lors de la combustion du mélange. Une augmentation de la température initiale induit une augmentation de la vitesse de propagation maximale et une diminution de la surpression de combustion. La troisième partie s'est orientée sur une étude correspondant à des teneurs simulées dans le cadre du projet européen AMHYCO, pour des scénarios extrêmes pouvant se produire lors d'un accident grave dans un REP, pour des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air/Diluant, a été menée. Cette étude se divise en deux : les flammes non-accélérées, et les flammes accélérées. Les résultats concernant cette partie de l'étude n'ont pas pu être présentés pour des questions de confidentialité. La caractérisation du critère d'accélération de flamme a été faite, pour des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air (en présence ou pas de diluants). Il a été conclu que le critère d'accélération de flamme établi par Malet [290] pour un mélange H<sub>2</sub>/Air est en accord avec les résultats expérimentaux déterminés lors de cette étude. Il est donc possible d'étendre cette corrélation au mélange H<sub>2</sub>/CO/Air.

Cependant, cette étude est loin d'être finie, et il est possible de définir quelques perspectives permettant de la compléter dans le but de comprendre au mieux la propagation d'une flamme dans une atmosphère gazeuse représentative de la phase tardive d'un accident grave dans un REP, et donc de réduire les dommages liés à ces accidents.

- Perspectives :

Au cours de cette étude, il a été conclu que certaines données relatives aux limites d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air font défaut dans la littérature. Notamment, il est important dans un premier temps de compléter l'étude de l'influence de la température initiale (LII et LIS), dans le but de confirmer la corrélation mise en place pour la LII, et en déterminer une concernant la LIS. De plus, il a été prouvé que les données concernant le domaine d'inflammabilité du mélange H<sub>2</sub>/CO/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> dans des atmosphères appauvries en oxygène sont très rares dans la littérature. Il s'agit d'un axe d'étude très intéressant dans le sens où il a été prouvé qu'un appauvrissement en oxygène de l'atmosphère entraîne une réduction importante du domaine d'inflammabilité. Ceci pourrait être une solution pour réduire les risques de suraccident (par réinflammation du mélange dégagé lors de la fusion du cœur) dans les REP. En outre, lors de la fusion du cœur du réacteur, et donc dans le cadre d'un accident grave, plusieurs composés sont libérés, dans lesquels se trouvent la vapeur d'eau et le CO<sub>2</sub>. Ainsi, il serait intéressant de déterminer les domaines d'inflammabilité, en fonction de plusieurs paramètres initiaux (de température et de pression) des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air/H<sub>2</sub>O<sub>vap</sub> et H<sub>2</sub>/CO/Air/H<sub>2</sub>O<sub>vap</sub>/CO<sub>2</sub>.

Pour une suite possible, il serait intéressant de déterminer les vitesses de flamme turbulentes correspondant à ces mélanges. En effet, les valeurs des vitesses de flamme laminaire des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air sont nombreuses dans la littérature, mais les valeurs des vitesses de flamme turbulentes de ces mélanges sont plus rares. Cette partie serait réalisée dans une bombe sphérique. La turbulence est un paramètre important à prendre en compte lors de l'étude de ces flammes.

Concernant l'étude de la propagation d'une flamme H<sub>2</sub>/CO/Air dans un tube encombré d'obstacles, il serait intéressant dans un premier temps de mettre en place un système de mesure PIV (Vélocimétrie par Images de Particules). Cette technique permet d'accéder à des grandeurs concernant les gaz frais tels que la vitesse des gaz frais avant le passage du front de flamme. Cette grandeur permet d'accéder à d'autres grandeurs telles que le calcul de la vitesse de flamme turbulente.

L'étude de l'accélération de ces flammes peut être complétée par d'autres conditions de pression et de température initiales. En effet, lors d'un accident grave dans un REP, la pression et la température initiales augmentent, et il est donc intéressant de se placer dans d'autres conditions initiales représentant des scénarios d'accidents graves dans un réacteur à eau pressurisée. Lors de ce même type d'accidents, le risque « hydrogène » est créé par le relâchement d'hydrogène dans l'enceinte de confinement. Ce relâchement et surtout sa distribution ne sont jamais homogènes. Il serait donc intéressant d'étudier la propagation des flammes H<sub>2</sub>/CO/Air en créant un gradient de concentration et de température dans le tube encombré d'obstacles. Lors de l'interaction entre le corium et le béton du radier, du CO<sub>2</sub> est relâché. Il est donc important d'étudier plus de teneurs en CO<sub>2</sub> et en vapeur d'eau également dans le but d'étoffer au maximum les scénarios d'accident. En outre, tout comme pour les limites d'inflammabilité, il serait intéressant d'étudier l'appauvrissement en oxygène de l'atmosphère lors de la propagation de ces flammes dans ENACCEF-II.

Il est important de noter que le nombre d'essais permettant de caractériser le critère d'accélération de flamme n'est pas suffisant pour être concluant. Il faut donc étendre le nombre d'essais, et surtout diversifier les conditions initiales (composition du mélange, taux de dilution, pression initiale et température initiale) dans le but de cadrer les domaines, et avoir une corrélation plus restreinte.



## Annexes

ANNEXE 1 : Matrice d'essais ENACCEF-II (propagation d'une flamme dans un tube encombré d'obstacles).

Mélange	H <sub>2</sub> (%mol)	CO (%mol)	CO <sub>2</sub> (%mol)	T <sub>ini</sub> (K)	P <sub>ini</sub> (bar)	N° d'essais	N° de succès	N° d'échecs
/	4	4	0	298,15 ± 1	1,003 ± 0,002	3	0	3
<i>Test 1</i>	4,29 ± 0,02	4,28 ± 0,03	0	298,15 ± 1	1,003 ± 0,004	5	3	2
<i>Test 2</i>	4,73 ± 0,02	4,71 ± 0,04	0	298,15 ± 1	1,003 ± 0,001	3	3	0
<i>Test 3</i>	4,34 ± 0,04	4,34 ± 0,05	0	298,15 ± 1	2,010 ± 0,004	4	4	0
<i>Test 4</i>	4,36 ± 0,007	4,36 ± 0,02	0	298,15 ± 1	3,506 ± 0,003	3	3	0
<i>Test 5</i>	4,21 ± 0,06	4,24 ± 0,09	0	363,15 ± 1	1,019 ± 0,015	3	3	0
<i>Test 6</i>	4,21 ± 0,02	4,23 ± 0,01	0	363,15 ± 1	2,010 ± 0,002	2	2	0
<i>Test 7</i>	4,27 ± 0,01	4,29 ± 0,07	0	363,15 ± 1	3,513 ± 0,004	3	3	0
<i>Test 8</i>	7,76 ± 0,11	7,93 ± 0,13	45,95 ± 0,02	298,15 ± 1	1,006 ± 0,006	3	3	0
<i>Test 9</i>	7,47 ± 0,01	7,56 ± 0,13	44,88 ± 0,03	363,15 ± 1	1,010 ± 0,002	3	3	0
/	7,65	7,65	46,7	298,15 ± 1	0,516	1	0	1
ESSAIS AMHYCO						87	/	
<b>Total</b>						<b>120</b>	<b>27</b>	<b>6</b>

## ANNEXE 2 : Valeurs expérimentales déterminées par Van den Schoor et al. [133].

$f_{H_2}$	T (°C)	Teneurs en N <sub>2</sub> (en mol%)											
		0	60	70	71	71,5	72	74	75	75,5	76	79	79,5
0,44	25	6,0	5,8	/	6,0	NaN	/	/	/	/	/	/	/
/	100	5,4	5,0	5,0	/	/	/	/	5,2	NaN	/	/	/
	200	4,4	4,2	4,4	/	/	/	/	/	/	/	5,0	NaN
0,62	25	4,8	4,8	5,0	/	5,0	5,2	/	/	/	/	/	/
	100	4,4	4,2	4,0	/	/	/	/	/	4,2	4,4	/	/
	200	4,2	3,6	3,6	/	/	/	/	/	/	/	3,6	3,8
0,71	25	4,4	4,6	4,6	4,6	4,8	/	/	/	/	/	/	/
	100	4,0	4,0	4,0	/	/	/	4,0	4,2	/	/	/	/
	200	3,8	3,4	/	/	/	/	/	/	/	/	3,4	>3,8

Tableau 60 – LII du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air avec une dilution à l'azote pour plusieurs teneurs en H<sub>2</sub> et à différentes températures [133]. Ces valeurs sont valables pour une pression atmosphérique. NaN : la LII n'a pas été trouvée pour ces conditions données.

$f_{H_2}$	T (°C)	Teneurs en N <sub>2</sub> (en mol%)		
		0	40	60
0,44	25	74,8	37,2	18,6
	100	77,2	39,2	20,8
	200	80,4	42,2	23,8
0,62	25	75,0	36,6	18,4
	100	76,8	38,6	20,6
	200	80,0	42,4	23,4
0,71	25	74,4	36,4	17,8
	100	76,0	38,8	20,0
	200	80,4	42,4	24,4

Tableau 61 – LIS du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air avec une dilution à l'azote pour plusieurs teneurs en H<sub>2</sub> et à différentes températures [133]. Ces valeurs sont valables pour une pression atmosphérique.

$f_{H_2}$	T (°C)	LAC (%)	LOC <sub>exp</sub> (%)	LOC <sub>calc</sub> (%)
0,44	25	20,4 ± 0,4	4,18 ± 0,08	3,0
	100	18,2 ± 0,4	3,80 ± 0,08	2,7
	200	14,8 ± 0,4	3,09 ± 0,08	2,2
0,62	25	20,4 ± 0,4	4,18 ± 0,08	2,4
	100	18,2 ± 0,4	3,80 ± 0,08	2,2
	200	14,8 ± 0,4	3,09 ± 0,08	2,1
0,71	25	20,8 ± 0,4	4,35 ± 0,08	2,2
	100	18,7 ± 0,4	3,91 ± 0,08	2,0
	200	14,0 ± 0,4	2,93 ± 0,08	1,9
1	25	20,6	4,3	2,1
	100	18,7	3,9	1,7
	200	13,9	2,9	1,5
0	25	22,5	4,7	5,9
	100	19,1	4,0	5,2
	200	15,8	3,3	4,5

Tableau 62 – Limite en oxygène (LOC) calculée numériquement et déterminée expérimentalement, et limite en air (LAC) du mélange H<sub>2</sub>/CO/Air avec une dilution à l'azote pour plusieurs teneurs en H<sub>2</sub> et à différentes températures [133]. Ces valeurs sont valables pour une pression atmosphérique.

### ANNEXE 3 : Répartition de l'hydrogène et du monoxyde de carbone en fonction du point de prélèvement dans l'enceinte expérimentale.

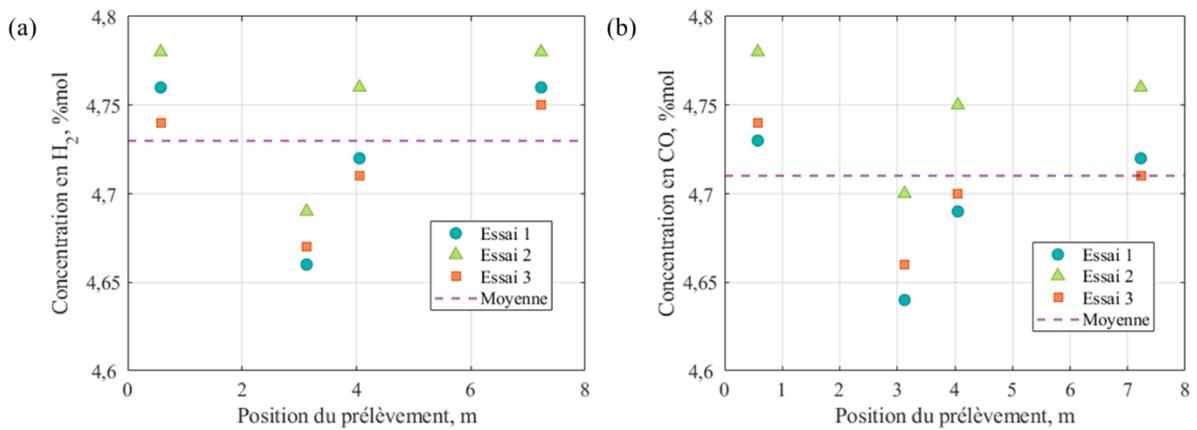


Figure 128 – Teneur en H<sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 2. (a) : Teneur en H<sub>2</sub>. (b) : Teneur en CO.

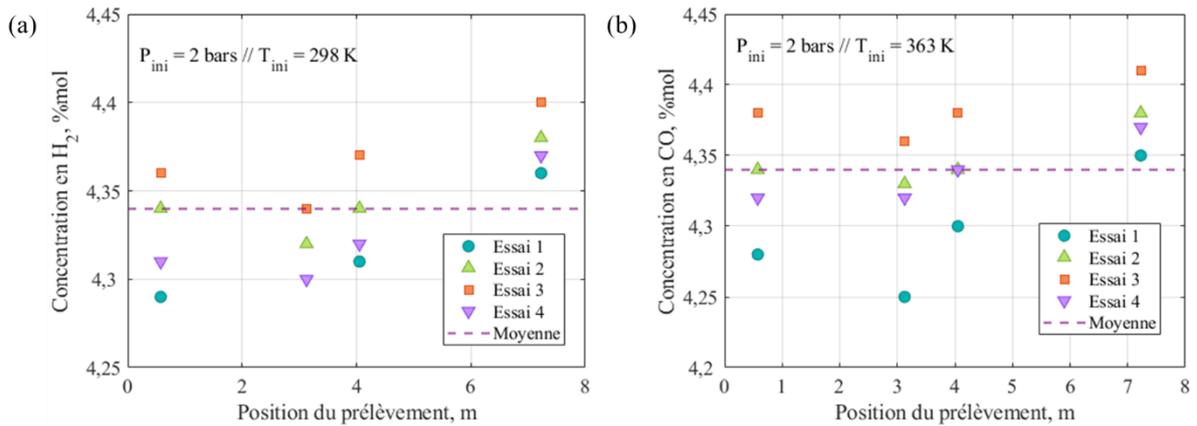


Figure 129 – Teneur en H<sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 4 essais composant le Test 3. (a) : Teneur en H<sub>2</sub>. (b) : Teneur en CO.

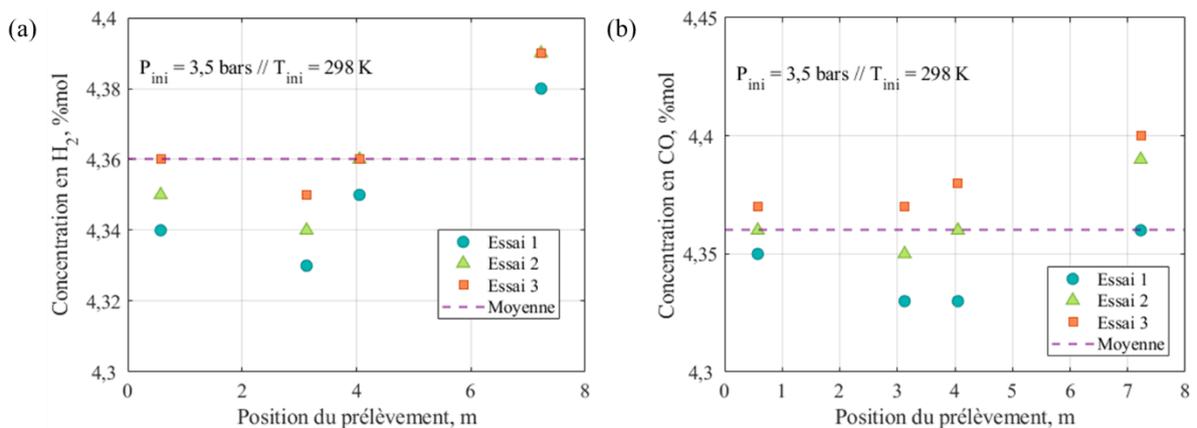


Figure 130 – Teneur en H<sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 4. (a) : Teneur en H<sub>2</sub>. (b) : Teneur en CO.

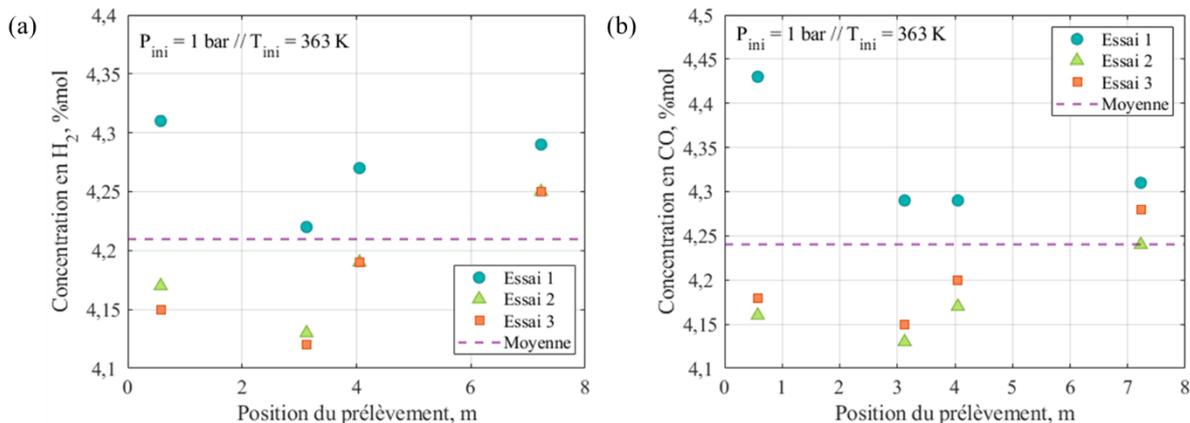


Figure 131 – Teneur en H<sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 5. (a) : Teneur en H<sub>2</sub>. (b) : Teneur en CO.

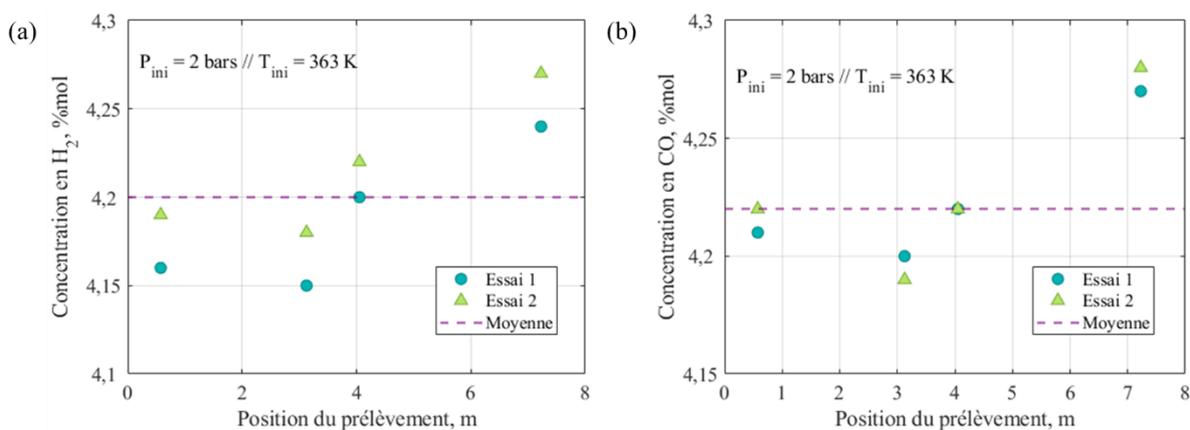


Figure 132 – Teneur en H<sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 2 essais composant le Test 6. (a) : Teneur en H<sub>2</sub>. (b) : Teneur en CO.

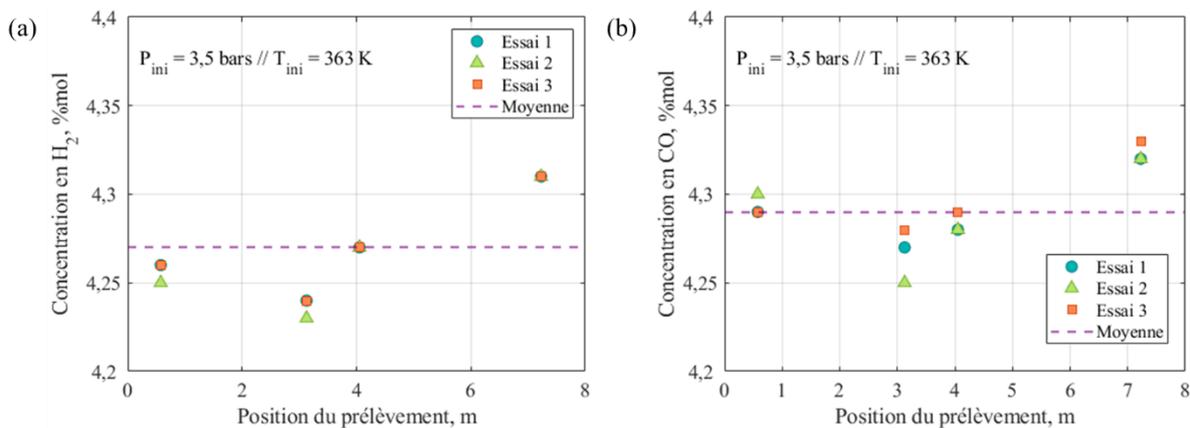


Figure 133 – Teneur en H<sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 7. (a) : Teneur en H<sub>2</sub>. (b) : Teneur en CO.

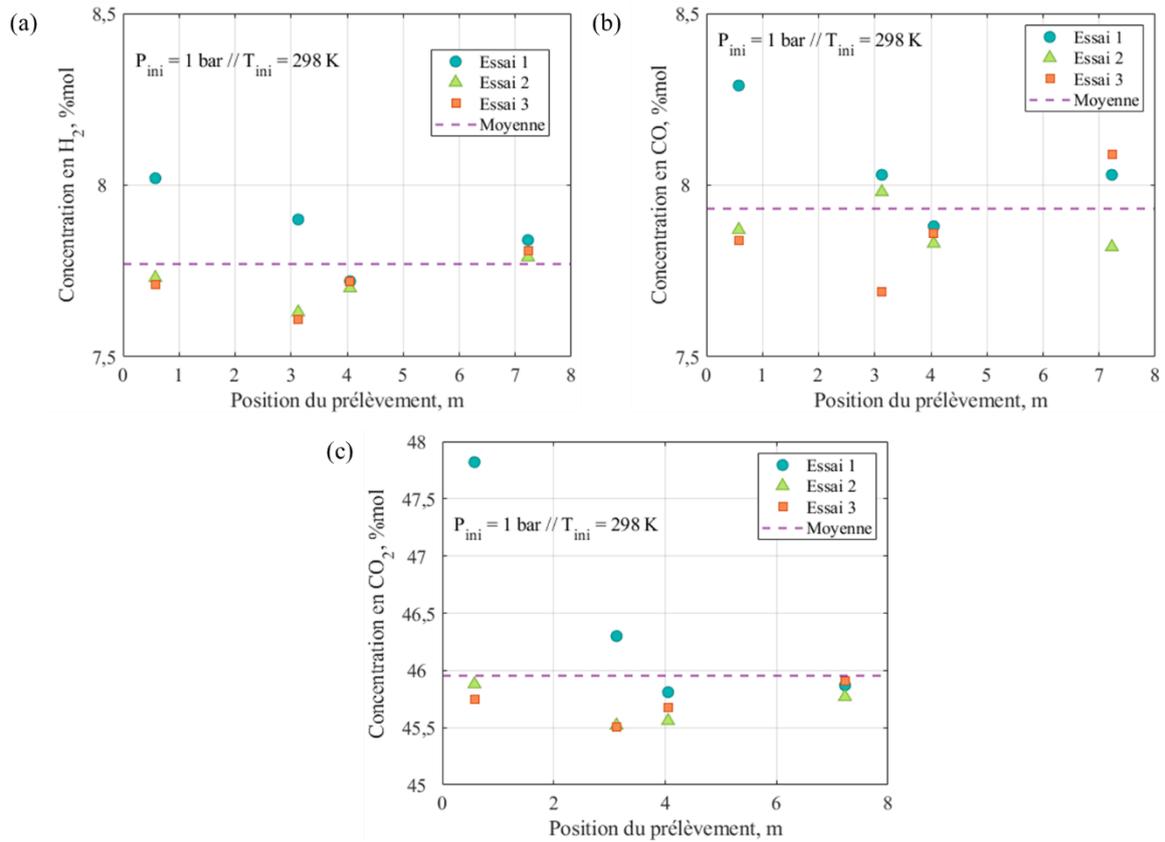


Figure 134 – Teneur en H<sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 8. (a) : Teneur en H<sub>2</sub>. (b) : Teneur en CO. (c) : Teneur en CO<sub>2</sub>.

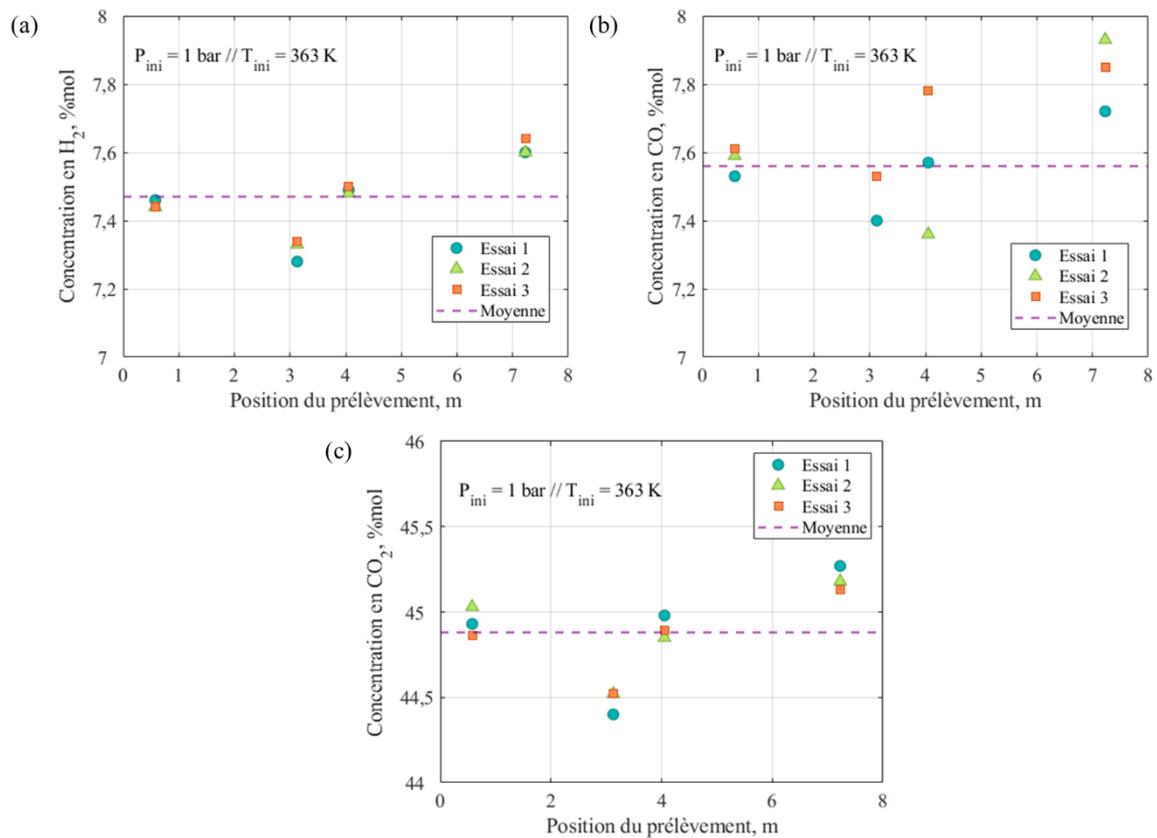


Figure 135 – Teneur en H<sub>2</sub> et en CO dans le mélange initial pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 9. (a) : Teneur en H<sub>2</sub>. (b) : Teneur en CO. (c) : Teneur en CO<sub>2</sub>.

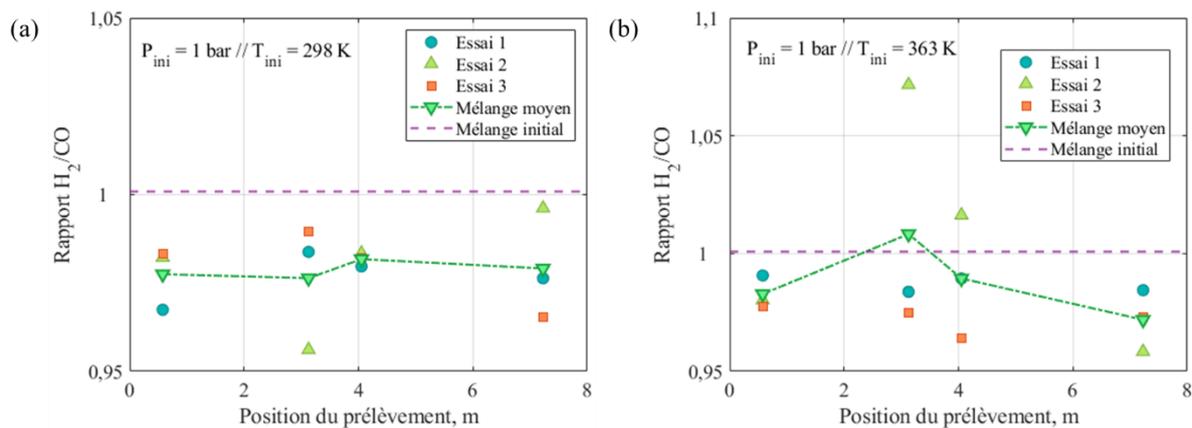


Figure 136 – Rapport  $H_2/CO$  pour les 4 points de prélèvement dans l'enceinte expérimentale pour les 3 essais composant le Test 8, pour les 3 essais composant le Test 9, ainsi que pour le mélange moyen. (a) : Test 8. (b) : Test 9.

ANNEXE 4 : Répétabilité des signaux de trajectoire et de vitesse.

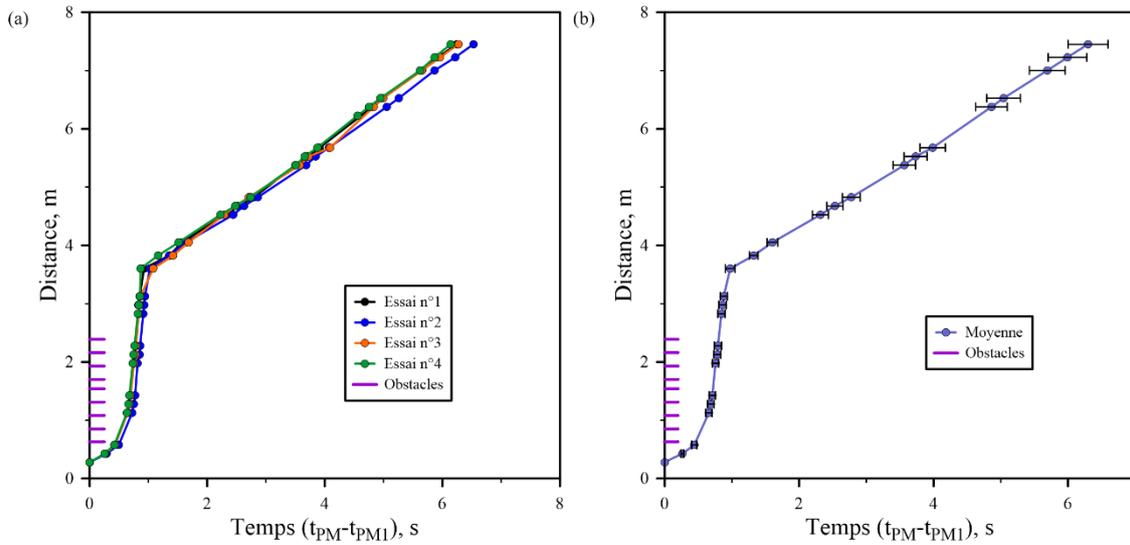


Figure 137 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,34% H<sub>2</sub> + 4,34% CO + 91,32% Air ; pour P<sub>ini</sub> = 2,010±0,004 bar ; et T<sub>ini</sub> = 298,15±1 K (Test 3). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 4 essais. (b) : Moyenne des 4 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps.

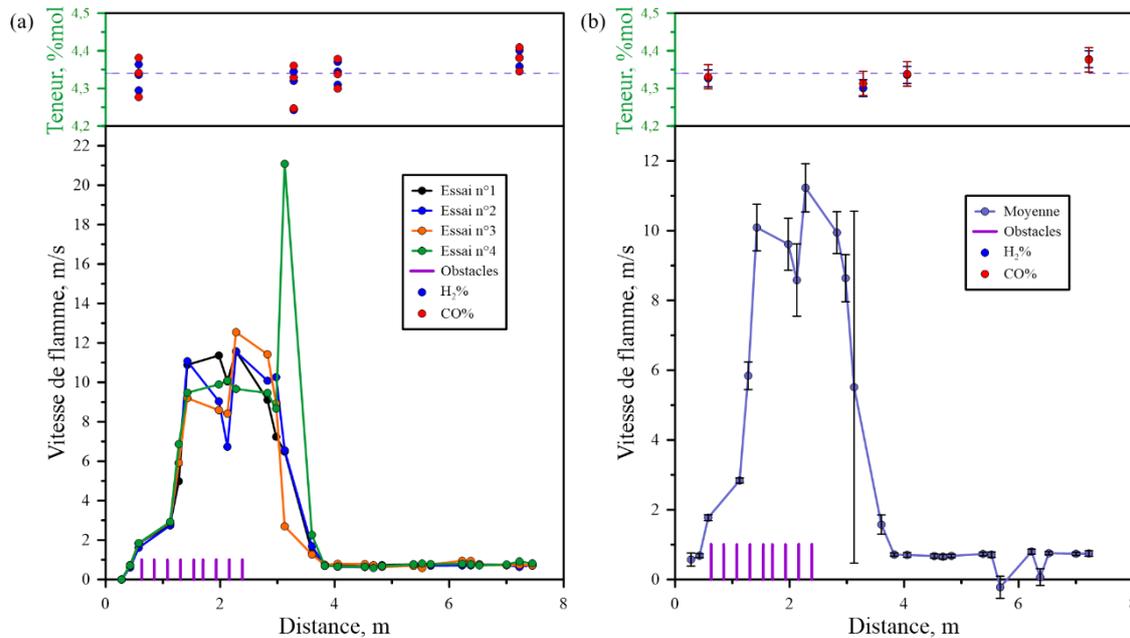


Figure 138 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,34% H<sub>2</sub> + 4,34% CO + 91,32% Air ; pour P<sub>ini</sub> = 2,010±0,004 bar ; et T<sub>ini</sub> = 298,15±1 K (Test 3). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 4 essais. (b) : Moyenne des 4 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.

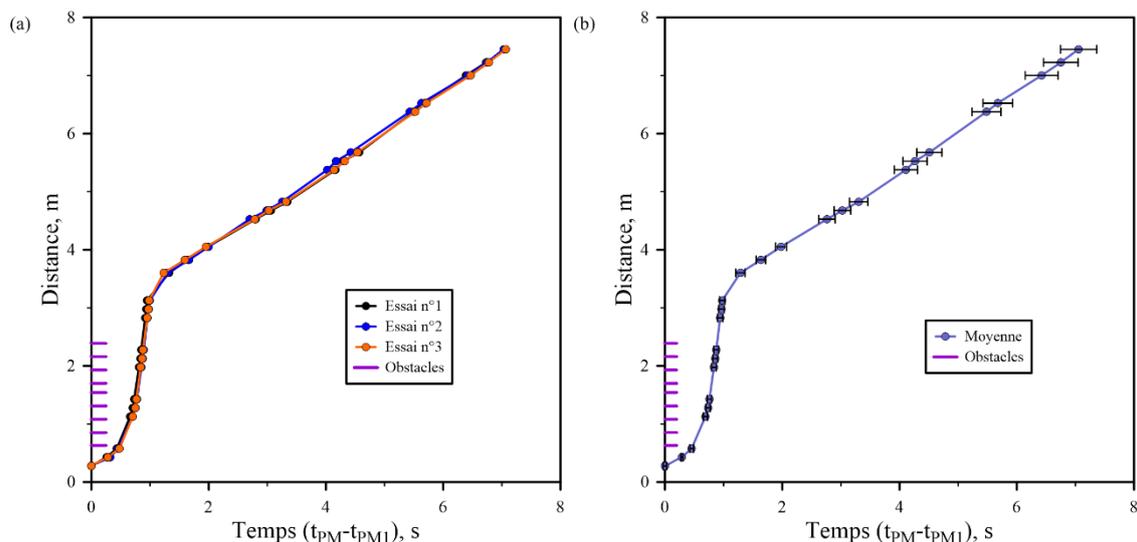


Figure 139 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,36%  $H_2$  + 4,36%  $CO$  + 91,28% Air ; pour  $P_{ini} = 3,506 \pm 0,002$  bar ; et  $T_{ini} = 298,15 \pm 1$  K (Test 4). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps.

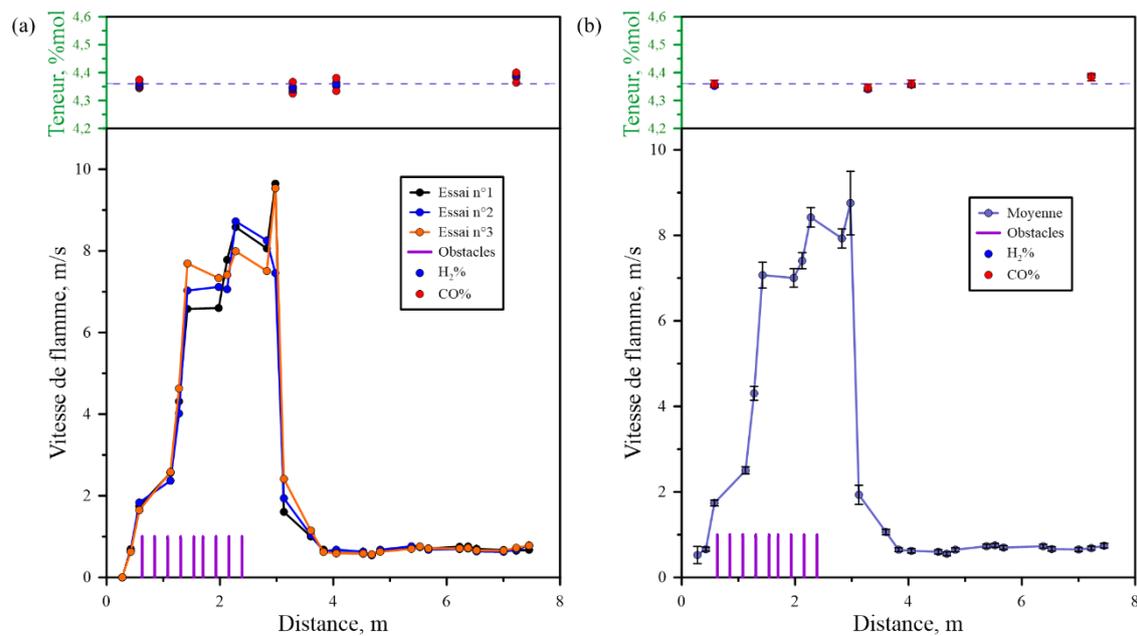


Figure 140 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,36%  $H_2$  + 4,36%  $CO$  + 91,28% Air ; pour  $P_{ini} = 3,506 \pm 0,002$  bar ; et  $T_{ini} = 298,15 \pm 1$  K (Test 4). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.

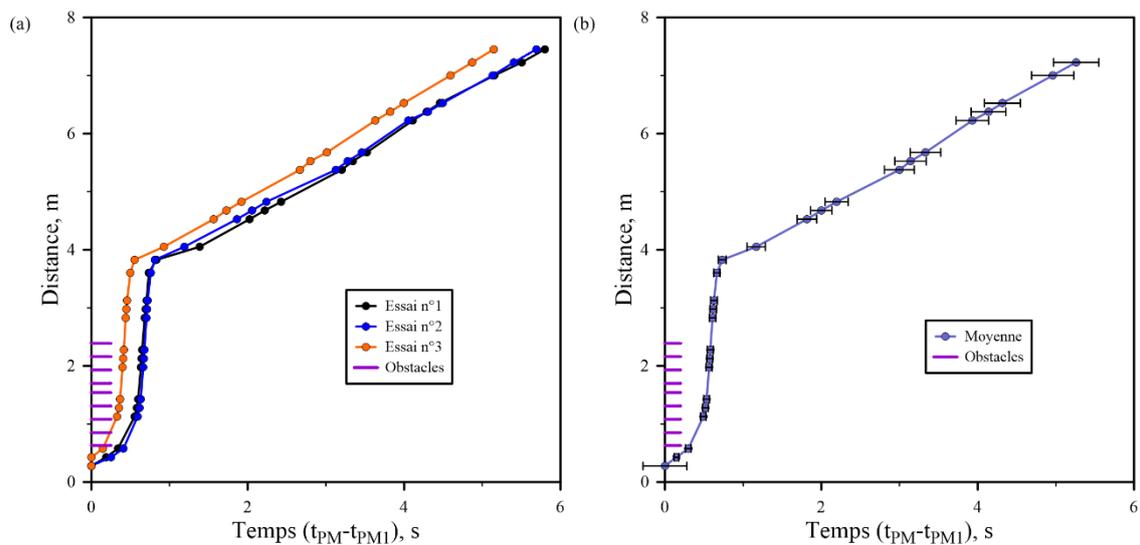


Figure 141 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,21%  $H_2$  + 4,24%  $CO$  + 91,55% Air ; pour  $P_{ini} = 1,011 \pm 0,002$  bar ; et  $T_{ini} = 363,15 \pm 1$  K (Test 5). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps.

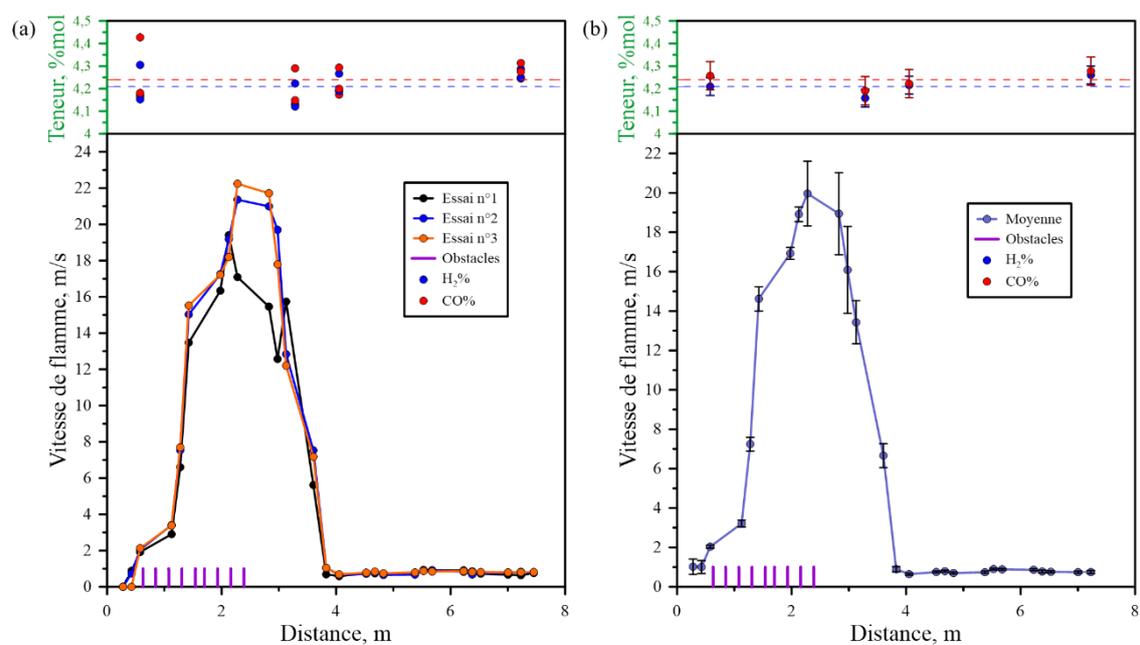


Figure 142 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,21%  $H_2$  + 4,24%  $CO$  + 91,55% Air ; pour  $P_{ini} = 1,011 \pm 0,002$  bar ; et  $T_{ini} = 363,15 \pm 1$  K (Test 5). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.

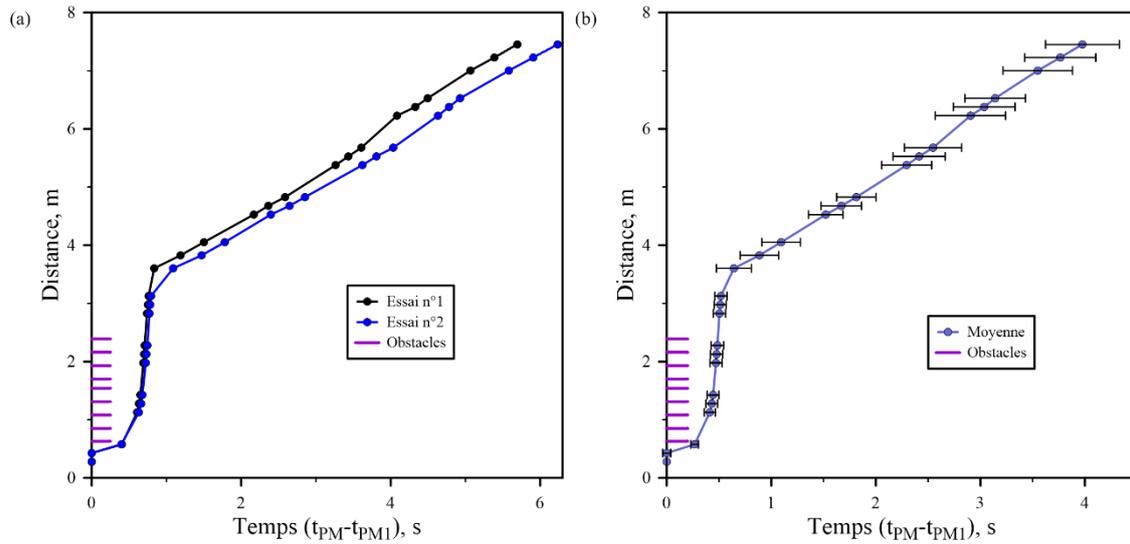


Figure 143 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,21% H<sub>2</sub> + 4,23% CO + 91,56% Air ; pour P<sub>ini</sub> = 2,010±0,003 bar ; et T<sub>ini</sub> = 363,15±1 K (Test 6). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 2 essais. (b) : Moyenne des 2 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps.

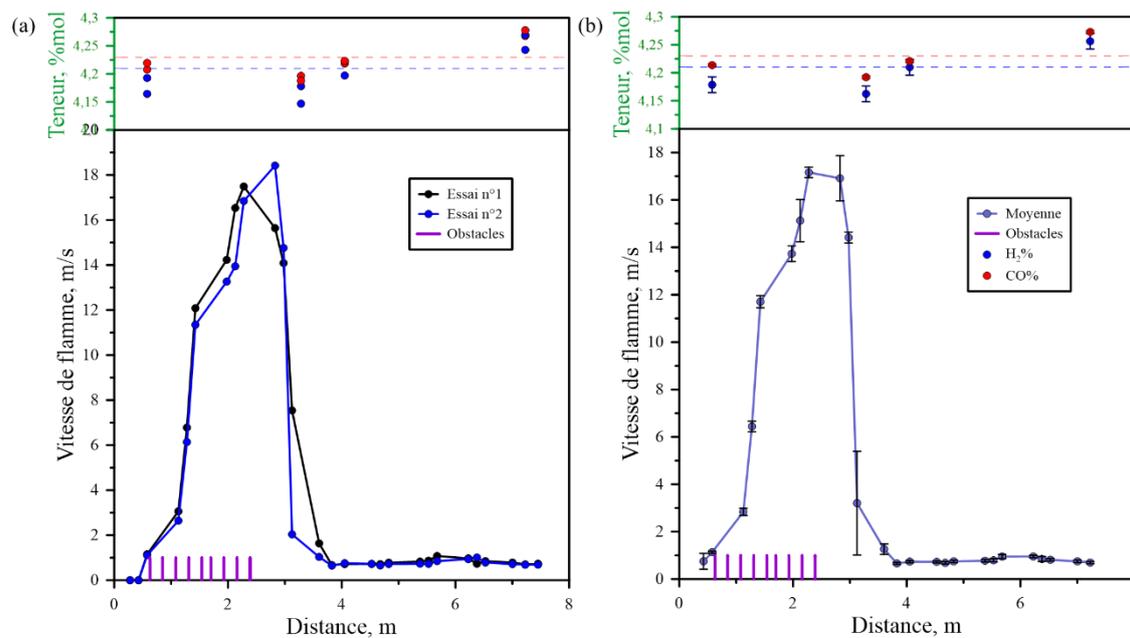


Figure 144 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,21% H<sub>2</sub> + 4,23% CO + 91,56% Air ; pour P<sub>ini</sub> = 2,010±0,003 bar ; et T<sub>ini</sub> = 363,15±1 K (Test 6). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 2 essais. (b) : Moyenne des 2 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.

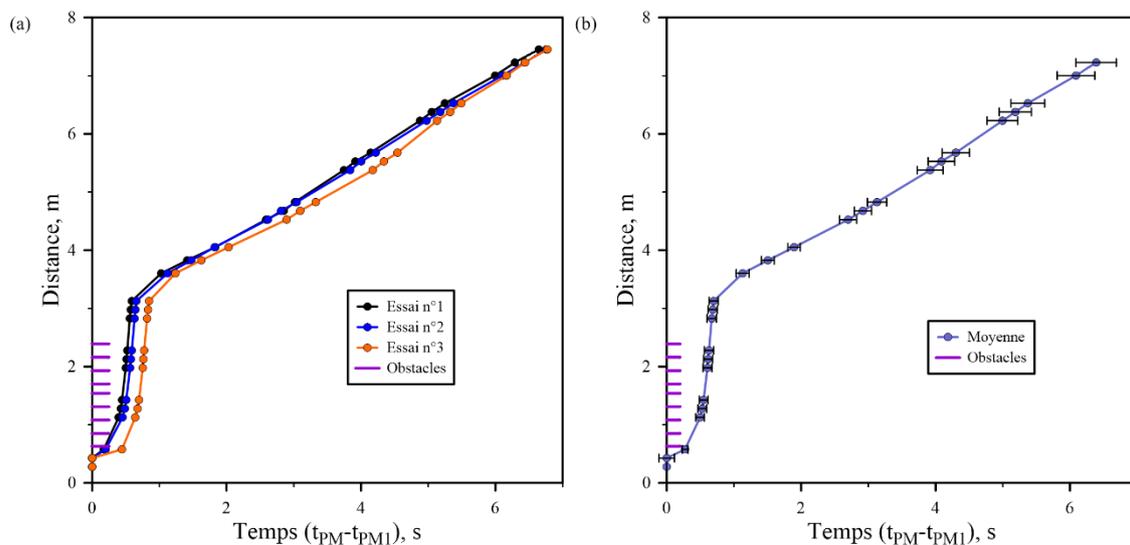


Figure 145 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 4,27%  $H_2$  + 4,29%  $CO$  + 91,44% Air ; pour  $P_{ini} = 3,510 \pm 0,003$  bar ; et  $T_{ini} = 363,15 \pm 1$  K (Test 7). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps.

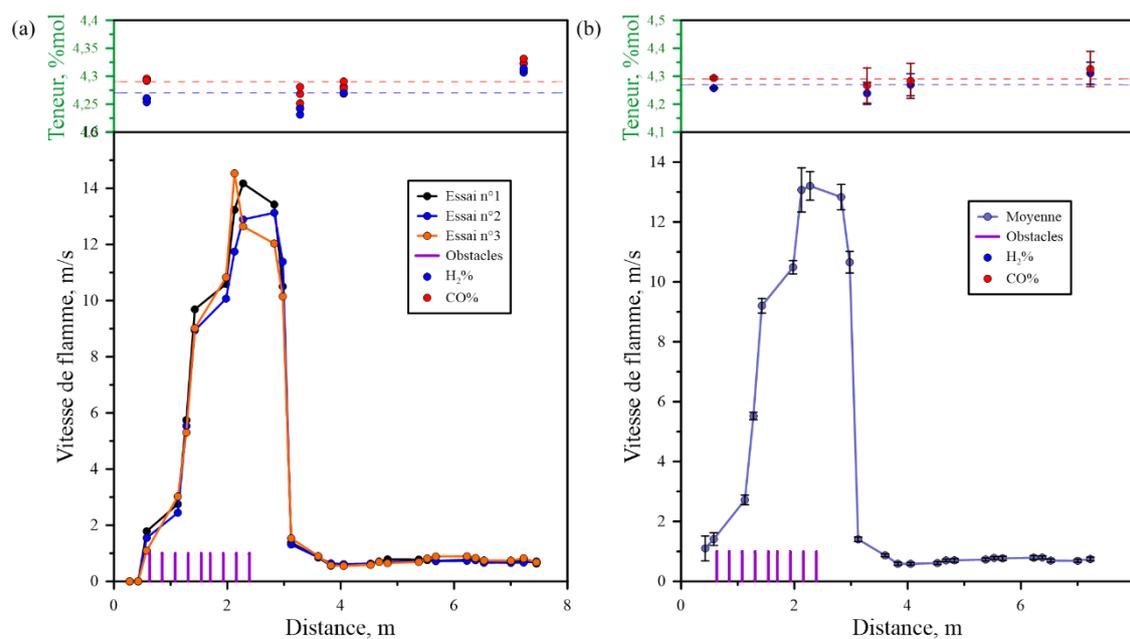


Figure 146 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 4,27%  $H_2$  + 4,29%  $CO$  + 91,44% Air ; pour  $P_{ini} = 3,510 \pm 0,003$  bar ; et  $T_{ini} = 363,15 \pm 1$  K (Test 7). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 2 essais. (b) : Moyenne des 2 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.

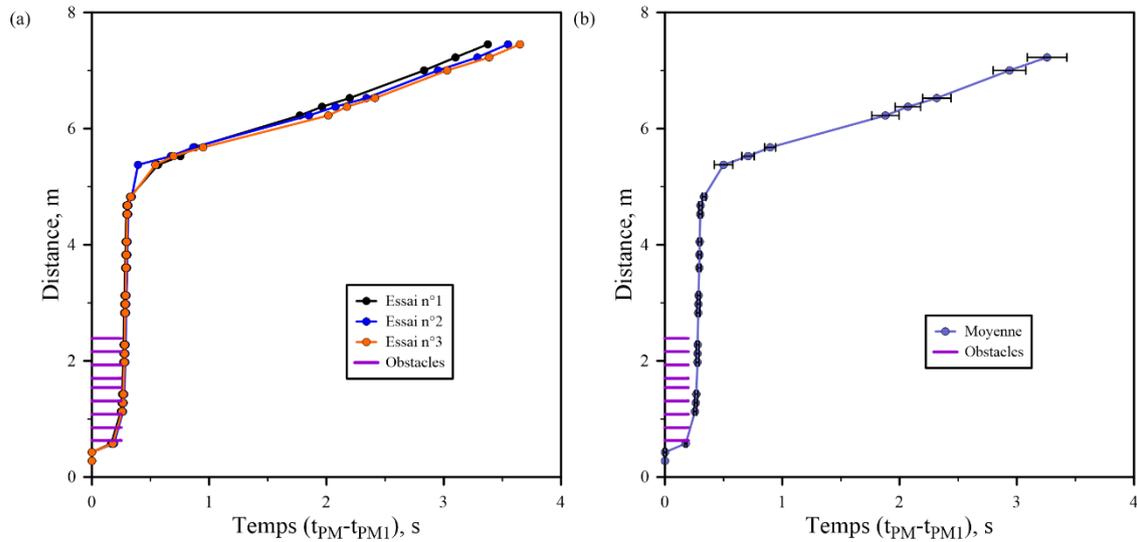


Figure 147 – Trajectoire du front de flamme en fonction du temps, pour un mélange moyen de 7,47% H<sub>2</sub> + 7,56% CO + 40,09% Air + 44,88% CO<sub>2</sub> ; pour  $P_{ini} = 1,010 \pm 0,001$  bar ; et  $T_{ini} = 363,15 \pm 1$  K (Test 9). (a) : Répétabilité de la trajectoire du front de flamme en fonction du temps pour les 3 essais. (b) : Moyenne des 3 essais pour la trajectoire du front de flamme en fonction du temps.

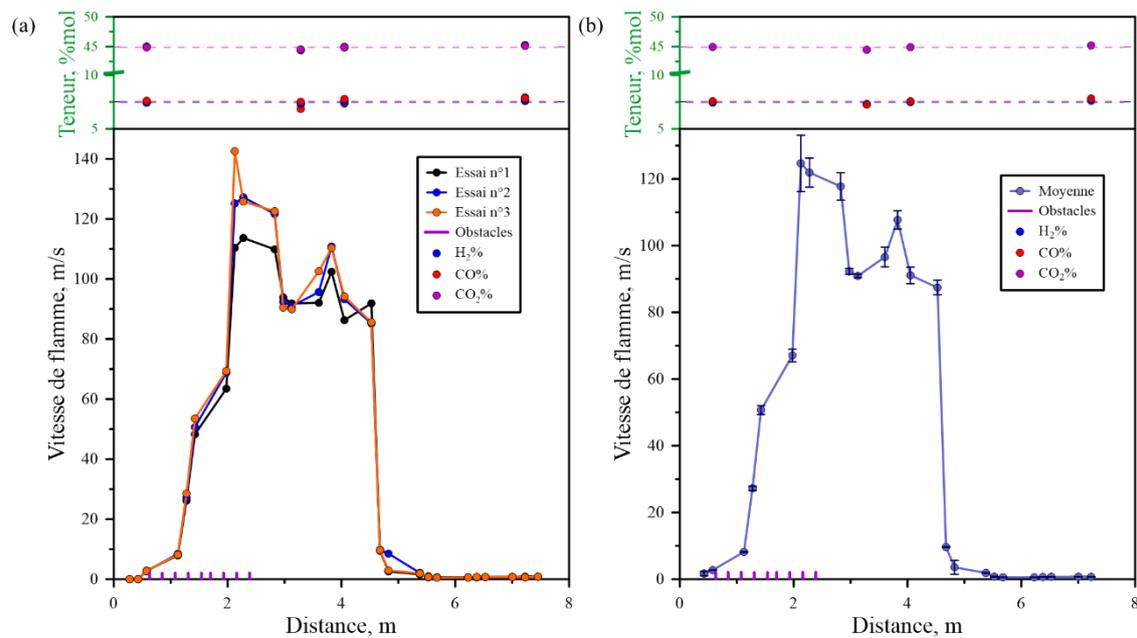


Figure 148 – Vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance parcourue par la flamme, pour un mélange moyen de 7,47% H<sub>2</sub> + 7,56% CO + 40,09% Air + 44,88% CO<sub>2</sub> ; pour  $P_{ini} = 1,010 \pm 0,001$  bar ; et  $T_{ini} = 363,15 \pm 1$  K (Test 9). (a) : Répétabilité de la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance pour les 2 essais. (b) : Moyenne des 2 essais pour la vitesse de propagation du front de flamme en fonction de la distance.

ANNEXE 5 : Répétabilité des signaux de pression.

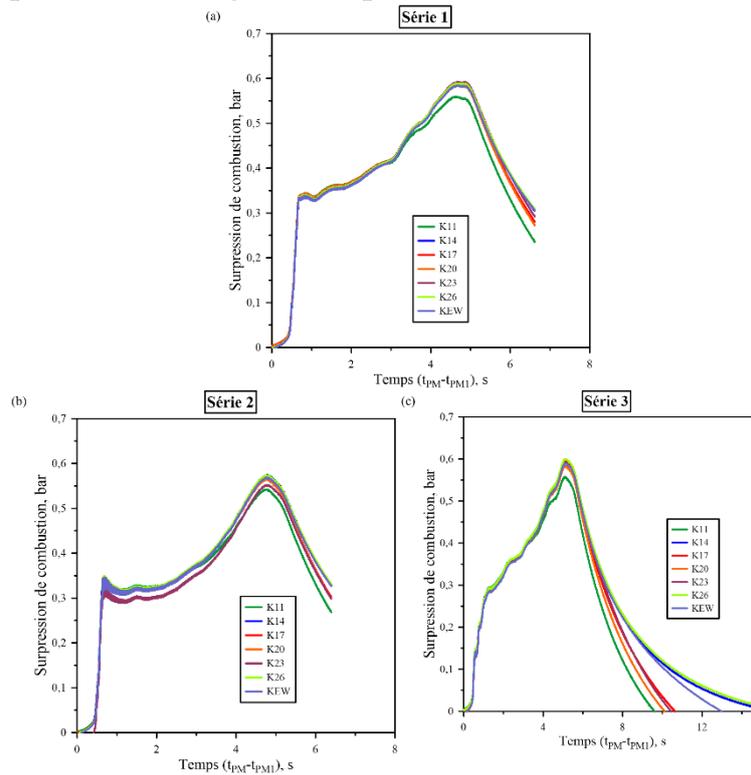


Figure 149 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 2.  
(a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3.

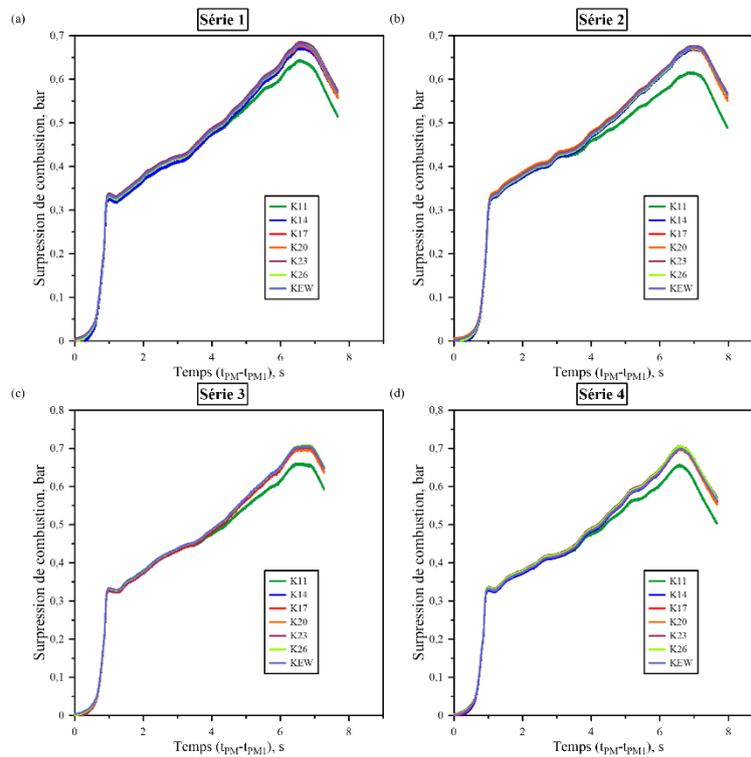


Figure 150 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les quatre essais composant le Test 3.  
(a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3. (d) : Essai 4.

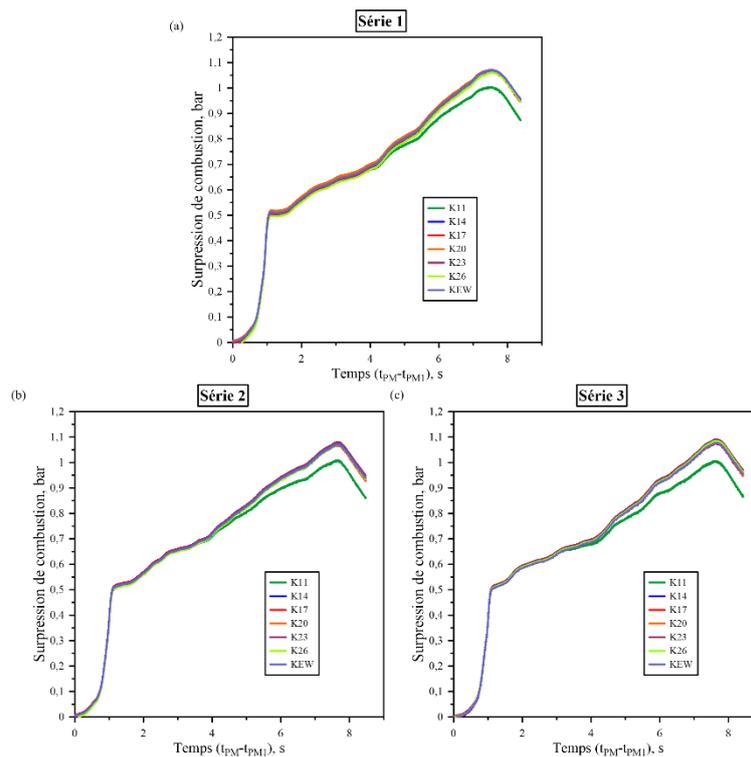


Figure 151 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 4.  
 (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3.

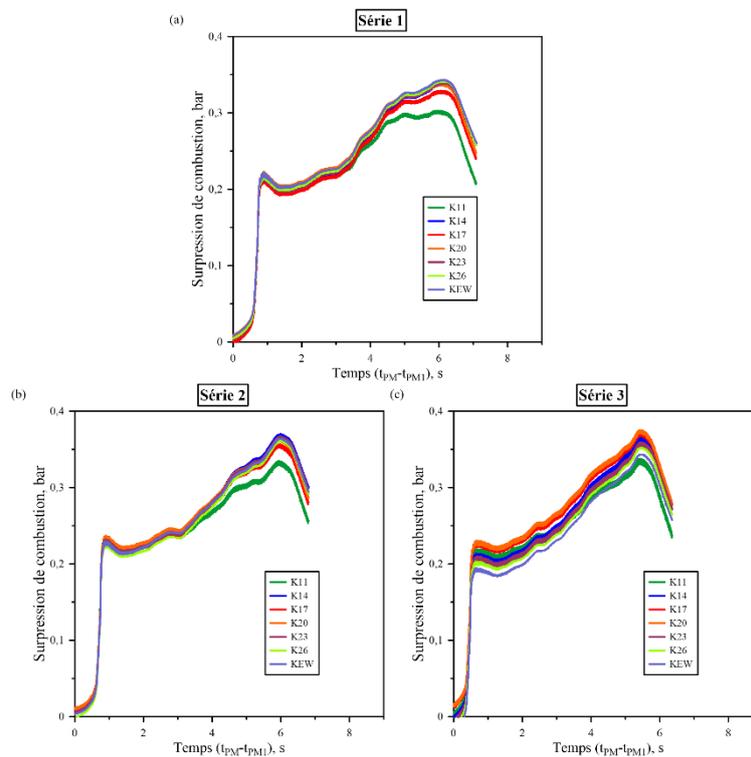


Figure 152 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 5.  
 (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3.

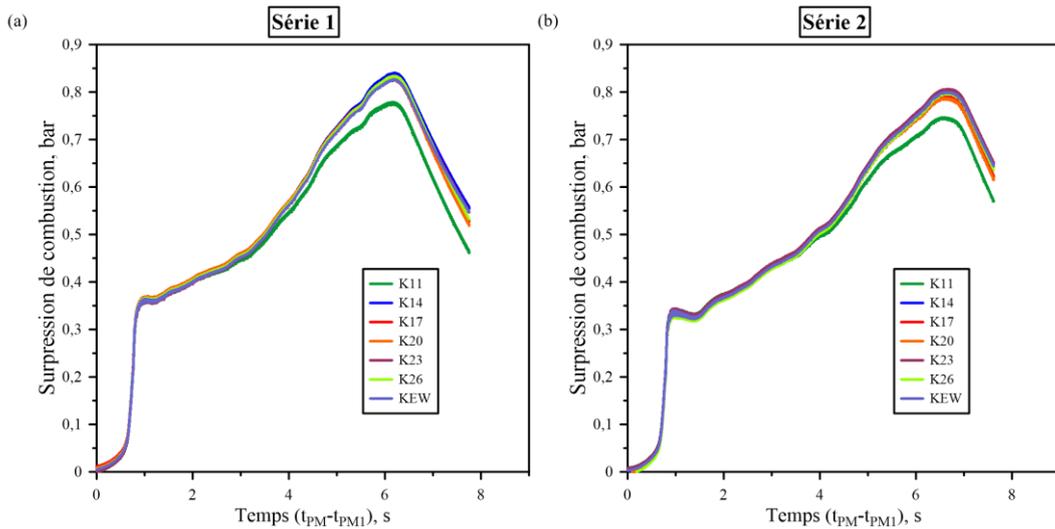


Figure 153 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les deux essais composant le Test 6. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2.

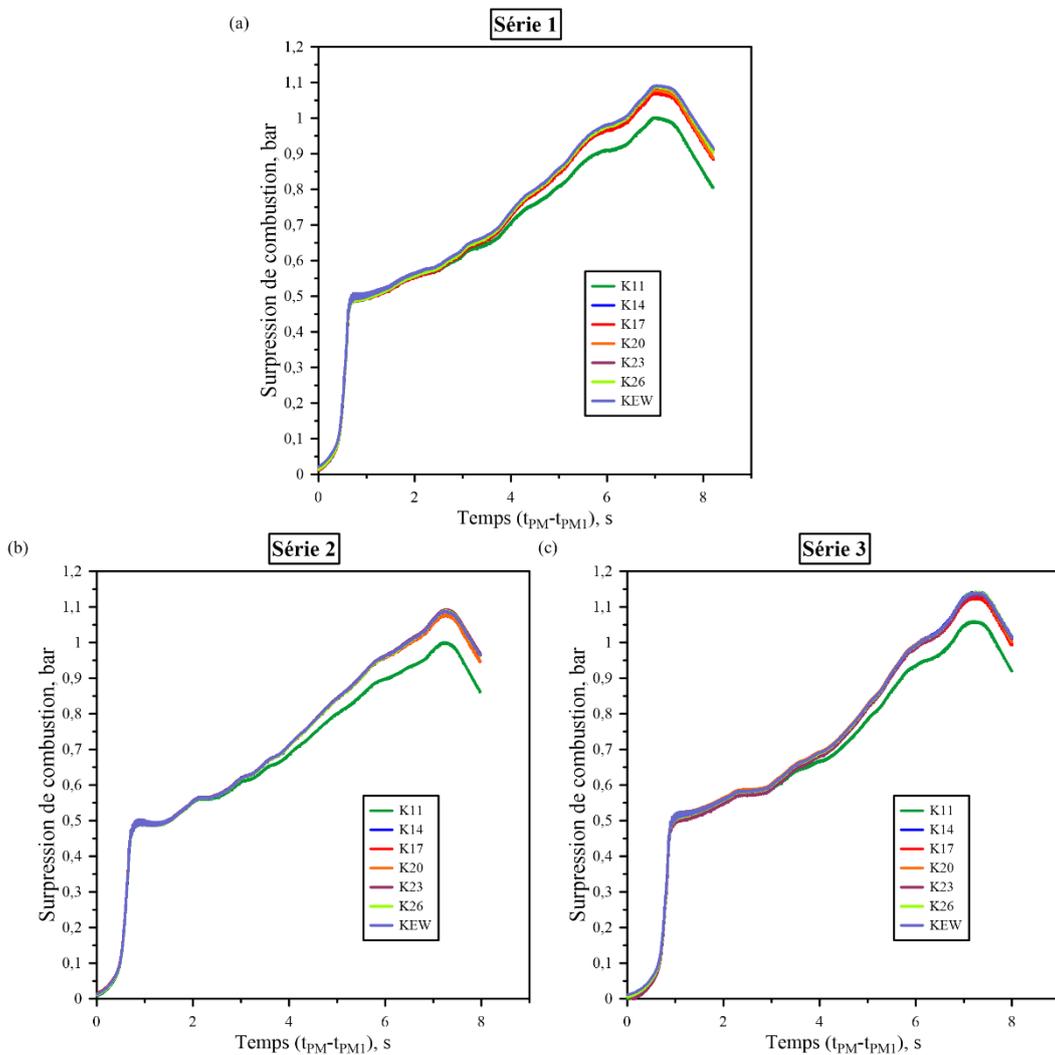


Figure 154 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 7. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3.

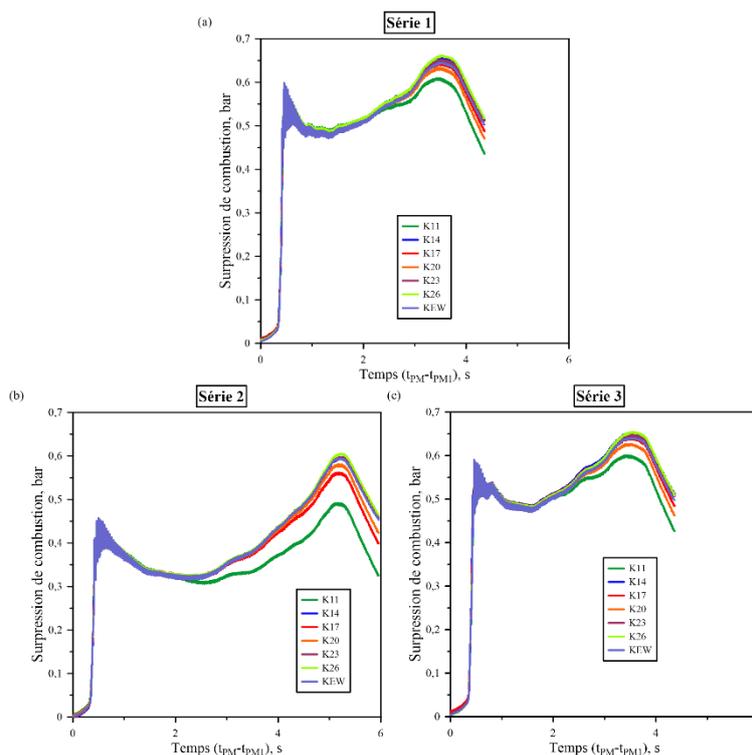


Figure 155 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 8. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3.

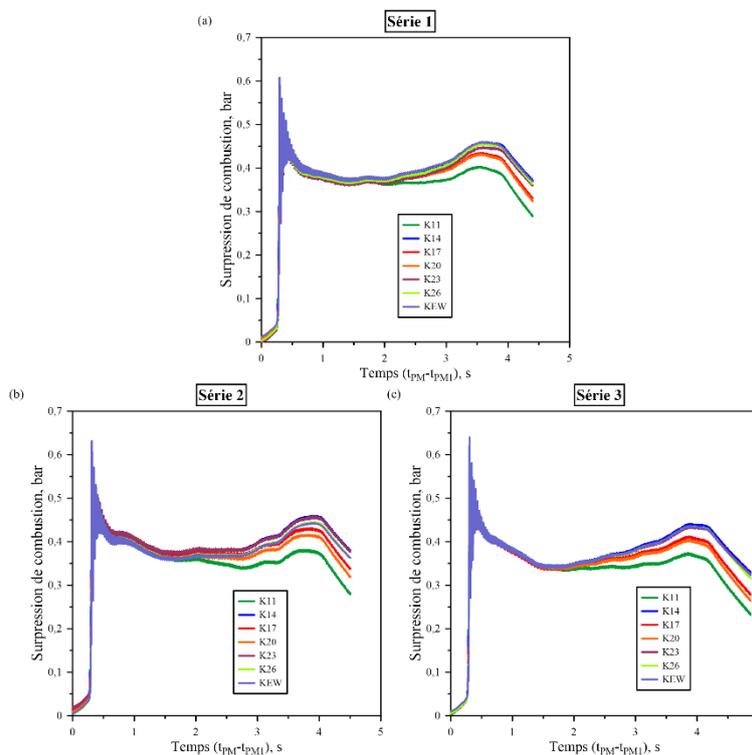


Figure 156 – Superposition des signaux de pression obtenus pour tous les Kistler, pour les trois essais composant le Test 9. (a) : Essai 1. (b) : Essai 2. (c) : Essai 3.

## Bibliographie

- [1] EDF, «La construction du premier réacteur EPR (European Pressurized water Reactor) en France à Flamanville», EDF SA, Paris, novembre 2009.
- [2] ASN, «Les échelles de classement des incidents et accidents nucléaires et des événements en radioprotection», juin 2013. [En ligne]. Available: [https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations\\_nucleaires/La\\_surete\\_Nucleaire/echelle-ines/Pages/2-Incidents-accidents.aspx](https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations_nucleaires/La_surete_Nucleaire/echelle-ines/Pages/2-Incidents-accidents.aspx). [Accès le 08 Septembre 2022].
- [3] C. De la Vaissière, J. Laberrigüe-Frolow, Y. Sacquin, G. Audi, J. Dran, F. Perrot, S. Roudeau, F. Lefèvre, J. Angélique, A. Mahboub, J. Husson, F. De Oliveira et N. Arbor, «Une échelle de la gravité des accidents nucléaires», IN2P3, [En ligne]. Available: [https://laradioactivite.com/articles/energie\\_nucleaire/lechelleines](https://laradioactivite.com/articles/energie_nucleaire/lechelleines). [Accès le 03 Juin 2023].
- [4] G. Cénérino, «Accidents graves des réacteurs à eau de production d'électricité», IRSN, Fontenay-aux-Roses, 15 décembre 2008.
- [5] IRSN, «Le parc des réacteurs nucléaires français en exploitation - Introduction», février 2022. [En ligne]. Available: [https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations\\_nucleaires/Les-centrales-nucleaires/reacteurs-nucleaires-France/Pages/0-sommaire-parc-reacteurs-nucleaires-France.aspx](https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations_nucleaires/Les-centrales-nucleaires/reacteurs-nucleaires-France/Pages/0-sommaire-parc-reacteurs-nucleaires-France.aspx). [Accès le 08 Septembre 2022].
- [6] G. Goué, «Le parc des réacteurs nucléaires français en exploitation - Les composants d'un réacteur en détail», Médiathèque IRSN, [En ligne]. Available: [https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations\\_nucleaires/Les-centrales-nucleaires/reacteurs-nucleaires-France/Pages/3-reacteurs-nucleaires-France-Description-detaillee.aspx](https://www.irsn.fr/FR/connaissances/Installations_nucleaires/Les-centrales-nucleaires/reacteurs-nucleaires-France/Pages/3-reacteurs-nucleaires-France-Description-detaillee.aspx). [Accès le 08 septembre 2022].
- [7] D. Jacquemain, A. Bentaib, H. Bonneville, G. Cénérino, B. Clément, F. Corenwinder, M. Cranga, G. Ducros, F. Fichot, C. Journeau, V. Koundy, D. Leteinturier, D. Magallon, R. Meignen, F. Monroig, G. Nahas, F. Pichereau, E. Raimond, J. Seiler, B. Tourniaire et J. Van-Dorselaere, «Les accidents de fusion de coeur des réacteurs nucléaires de puissance - Etat des connaissances», France: IRSN, 2013.
- [8] A. Bentaib, N. Meynet et A. Bleyer, «Overview on hydrogen risk research and development activities : Methodology and open issues», *Nuclear Engineering and Technology*, vol. 47, pp. 26 - 32, 2015.
- [9] S. Sahin et M. Sarwar, «Hydrogen hazard and mitigation analysis in PWR containment», *Annals of Nuclear Energy*, vol. 58, pp. 132 - 140, 2013.
- [10] F. Robledo, M. Farmer, M. Cranga, C. Spengler, D. Vola, S. Basu, K. Atkhen, A. Fargette, M. Fisher, J. Foit, A. Hotta, C. Journeau, C. Marchetto, A. Morita, E. Moiseenko, F. Polidoro et Q. Zhou, «State-of-the-Art report on molten corium concrete interaction and ex-vessel molten core coolability», General Studies of Nuclear Reactors, Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 2017.

- [11] A. Bentaib, H. Bonneville, C. Caroli, B. Chaumont, B. Clément, M. Cranga, F. Fichot, J. Fleurot, R. Gonzalez, V. Koundy, B. Laurent, J. Micaelli, R. Meignen, F. Pichereau, D. Plassart, E. Raimond, A. Tenaud, J. Van-Dorsselaere, G. Ducros, M. Durin, C. Journeau, D. Magallon, J. Seiler, E. Studer, B. Tourniaire et W. Ranval, «R&D relative aux accidents graves dans les réacteurs à eau pressurisée : Bilan et perspectives», Rapport IRSN & CEA & EDF, France, 2006.
- [12] R. Kumar, G. Koroll, M. Heitsch et E. Studer, «Carbon monoxide - Hydrogen combustion characteristics in severe accident containment conditions», NEA/CSNI/R(2000)10, Paris, 09 mars 2000.
- [13] LGI, «AMHYCO», 2023. [En ligne]. Available: <https://amhyco.eu/>.
- [14] N. - N. E. Agency, «Nuclear fuel behaviour in Loss-of-coolant accident (LOCA) conditions», OECD Publishing, Paris, 2009.
- [15] IRSN / CEA-DEN, CEA-DRT, Icare, Institut Jülich, Arcys, «Le projet Mithygène», 2013 - 2021. [En ligne]. Available: <https://www.irsn.fr/recherche/projet-mithygene>. [Accès le 2023].
- [16] H. Cheikhravat, *Etude expérimentale de la combustion de l'hydrogène dans une atmosphère inflammable en présence de gouttes d'eau*, Université d'Orléans: École doctorale sciences et technologies, 25 septembre 2009.
- [17] K. Coudoro, «Etude expérimentale et modélisation de la propagation de flamme en milieu confiné ou semi-confiné», Université d'Orléans, Orléans, 27 janvier 2012.
- [18] J. Goulier, *Comportements aux limites de flammes de prémélange hydrogène/air. Etude de la transition flamme laminaire-flamme turbulente*, Université d'Orléans: École doctorale énergie, matériaux, sciences de la terre et de l'univers, 2 novembre 2015.
- [19] R. Grosseuvres, «Analyse de propagation de flammes Hydrogène-Air-Vapeur d'eau en milieu confiné», Université d'Orléans, Orléans, 08 octobre 2018.
- [20] R. Caruso, «Propagation of hydrogen air vapor flame in presence of water droplets», Université d'Orléans, Orléans, 2 avril 2019.
- [21] D. Veynante, «Flamme de diffusion laminaire», *Techniques de l'ingénieur*, 10 avril 1999.
- [22] V. Robin, «Contribution à la modélisation des écoulements turbulent réactifs partiellement prémélangés», École Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique - Université de Poitiers, Poitiers, 2006.
- [23] L. Bouheraoua, «Simulation aux grandes échelles et modélisation de la combustion supersonique», Mécanique des fluides, INSA de Rouen, 11 septembre 2015.
- [24] R. Prud'Homme, «Notions de base sur la combustion», Thermodynamique des interfaces et mécanique des fluides, ISTE OpenScience, 10 mai 2019.
- [25] H. Coward et G. Jones, «Limits of flammability of gases and vapors», Bulletin 503, Bureau of Mines, Alaska, 1952.
- [26] Z. Shapiro et T. Moffette, «Hydrogen flammability data and application to PWR loss-of-coolant accident», Operated for the U. S. Atomic Energy Commission by Westinghouse Electric Corporation, Pittsburgh, Septembre 1957.

- [27] K. Galliez, «Etude et compréhension du piégeage irréversible de l'hydrogène à l'aide d'un mélange MnO<sub>2</sub> / Ag<sub>2</sub>O», Université de Nantes, Nantes, 2012.
- [28] K. N'Guessan, *Limites inférieures d'inflammabilité de mélanges à base d'hydrogène dans des conditions de transports de déchets et matières radioactifs*, Université d'Orléans: École doctorale Énergie, Matériaux, Sciences de la Terre et de l'Univers, 18 décembre 2018.
- [29] M. Molnarne et V. Schroeder, «Flammability of gases in focus of European and US standards», *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, n°48, pp. 297 - 304, 13 mai 2017.
- [30] BS EN 1839:2017, Determination of the explosion limits and the limiting oxygen concentration (LOC) for flammable gases and vapours, 978 0 580 85555 9, 31 janvier 2017.
- [31] ASTM E681, Standard test method for concentration limits of flammability of chemicals (vapors and gases), ASTM International (ASTM), 01 octobre 2009.
- [32] F. Van den Schoor, R. Hermanns, J. Van Oijen, F. Verplaetsen et L. De Goey, «Comparison and evaluation of methods for the determination of flammability limits, applied to methane/hydrogen/air mixtures», *Journal of Hazardous Materials*, vol. 150, pp. 573 - 581, 2007.
- [33] D. Crowl et Y. Jo, «A method for determining the flammable limits of gases in a spherical vessel», *Process Safety Progress*, vol. 28, n°3, pp. 227 - 236, 28 avril 2009.
- [34] N. Laurendeau, «Thermal ignition of Methane-Air mixtures by hot surfaces : A critical examination», *Combustion and Flame*, vol. 46, pp. 29 - 49, 1982.
- [35] J. Buckel et S. Chandra, «Hot wire ignition of Hydrogen-Oxygen mixtures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 21, n°1, pp. 39 - 44, 1996.
- [36] L. Boeck, J. Melguizo-Gavilanes et J. Shepherd, «Hot surface ignition dynamics in premixed hydrogen-air near the lean flammability limit», *Combustion and Flame*, vol. 210, pp. 467 - 478, 01 septembre 2019.
- [37] J. Melguizo-Gavilanes, L. Boeck, R. Mével et J. Shepherd, «Hot surface ignition of stoichiometric hydrogen-air mixtures», *Elsevier*, 2016.
- [38] R. K. Kumar, «Ignition of Hydrogen-Oxygen-Diluent mixtures adjacent to a hot, nonreactive surface», *Combustion and Flame*, vol. 75, pp. 197 - 215, 1989.
- [39] J. Kutcha, «Investigation of fire and explosion accidents in the chemical, mining, and fuel-related industries», Bulletin 680, Bureau of Mines, 1985.
- [40] J. Van't Hoff, *Etudes de la dynamique chimique*, 1884.
- [41] A. Maître, «Chapitre II - Faisceaux gaussiens», chez *Principes des Lasers*, 2022, pp. 14 - 29.
- [42] C. Cardin, *Etude expérimentale des phénomènes physico-chimiques de l'allumage dans des écoulements laminaires et turbulents*, Rouen: Institut national des sciences appliquées de Rouen, 05 février 2014.
- [43] G. Mainfay et C. Manus, «Les transitions multiphotoniques», *Journal de Physique - Colloque C1*, vol. 39, n°5, pp. C1-1, mai 1978.

- [44] F. Castet, G. Bignonneau, P. Caubet, G. Vignoles, G. Meunier, A. Fritsch, D. Deffieux, B. Ruffin, L. Pouysegu, M. Tranquille et M. Ribaucour, «Unisciel : Les sciences, l'essentiel : Introduction à la mécanique quantique», Equipe Gr.A.M.M.E.S., Université Bordeaux 1, 2005. [En ligne]. Available: [https://uel.unisciel.fr/chimie/strucmic/strucmic\\_ch01/co/apprendre\\_ch1\\_22.html](https://uel.unisciel.fr/chimie/strucmic/strucmic_ch01/co/apprendre_ch1_22.html). [Accès le 18 Janvier 2024].
- [45] J. Martineau et G. Tonon, «Absorption du rayonnement LASER par un plasma», Commissariat à l'Énergie Atomique, 23 décembre 1968.
- [46] J. Beduneau et Y. Ikeda, «Spatial characterization of laser-induced sparks in air», *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, vol. 84, pp. 123 - 139, 2004.
- [47] T. Phuoc et F. White, «Laser-induced spark ignition of CH<sub>4</sub>/Air mixtures», *Combustion and Flame*, vol. 119, pp. 203 - 216, 1999.
- [48] V. Chalmeton, «Etude de la phase initiale du claquage d'un gaz par un LASER», *Le Journal de Physique*, vol. 30, p. 687, 1969.
- [49] R. George, «Développement de nouvelles stratégies d'allumage laser : application à la propulsion aéronautique et/ou spatiale», Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay, Paris, 02 mai 2017.
- [50] R. Maly, Fuel economy in road vehicles powered by spark ignition engines, John C. Hilliard and George S. Springer, 1984.
- [51] G. DeSoete, A. Queraud et C. Giorgetti, «Vitesse initiale de la propagation des flammes de prémélange créées par étincelle», Rapport IFP n°29476.
- [52] N. Pashley, R. Store et G. Roberts, «Ignition system measurement techniques and correlations for breakdown and arc voltages and currents», *SAE Technical paper*, n°01-0245, 2000.
- [53] P. Ronney, «Laser versus conventional ignition flames», *Optical Engineering*, vol. 33, n°2, pp. 510 - 521, 1994.
- [54] J. Syage, E. Fournier, R. Rianda et R. Cohen, «Dynamics of flame propagation using laser-induced spark ignition : Ignition energy measurements», *Journal of Applied Physics*, vol. 64, n°3, pp. 1499 - 1507, 1988.
- [55] D. Bradley, C. Sheppart, I. Suardjaja et R. Woolley, «Fundamentals of high-energy spark ignition with lasers», *Combustion and Flame*, vol. 138, n°1 - 2, pp. 55 - 77, 2004.
- [56] D. McNeill, «Minimum ignition energy for laser spark ignition», *Proceeding of the Combustion Institute*, vol. 30, pp. 2913 - 2920, 2005.
- [57] K. Cashdollar, I. Zlochower, G. Green, R. Thomas et M. Hertzberg, «Flammability of methane, propane, and hydrogen gases», *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 13, pp. 327 - 340, 2000.
- [58] Y. Shoshin et L. de Goey, «Experimental study of lean flammability limits of methane/hydrogen/air mixtures in tubes of different diameters», *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 34, n°3, pp. 373 - 380, Avril 2010.
- [59] I. Wierzba et B. Ale, «Rich flammability limits of fuel mixtures involving hydrogen at elevated temperatures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 25, pp. 75 - 80, 2000.

- [60] A. Gasse, «Experimentelle Bestimmung und Simulation von Explosionsgrenzen, untersucht an wasserstoffhaltigen Brenngasgemischen», Uni-GH-Paderborn, Germany, 1992.
- [61] R. Pahl, «Bestimmung der Explosionsgrenzen von Wasserstoff/Methan-Gemischen bei höheren Anfangsdrücken», Diplomarbeit Technische Fachhochschule Berlin, Berlin, Allemagne, 1994.
- [62] H. Coward et F. Brinsley, «The dilution limits of inflammability of gaseous mixtures», *Journal of the Chemical Society*, Vols. 105 - 106, pp. 1859 - 1885, 1914.
- [63] A. Takahashi, Y. Urano, K. Tokuhashi et S. Kondo, «Effect of vessel size and shape on experimental flammability limits of gases», *Journal of Hazardous Materials*, vol. A 105, pp. 27 - 37, 2003.
- [64] M. G. Zabetakis, «Flammability characteristics of combustible gases and vapors», U.S. Bureau of Mines, Bulletin 627, 1965.
- [65] R. Ono, M. Nifuku, S. Fujiwara, S. Horiguchi et T. Oda, «Minimum ignition energy of hydrogen-air mixture : Effects of humidity and spark duration», *Journal of Electrostatics*, vol. 65, pp. 87 - 93, 2006.
- [66] J. Han, H. Yamashita et N. Hayashi, «Numerical study on the spark ignition characteristics of hydrogen-air mixture using detailed chemical kinetics», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, pp. 9286 - 9297, 2011.
- [67] V. Kurdyumov, J. Blasco, A. Sanchez et A. Linan, «On the calculation of the minimum ignition energy», *Combustion and Flame*, vol. 136, pp. 394 - 397, 2003.
- [68] R. Ono et T. Oda, «Spark ignition of hydrogen-air mixture», *Journal of Physics : Conference Series*, vol. 142, 2008.
- [69] A. Ghosh, N. Munoz-Munoz et D. Lacoste, «Minimum ignition energy of hydrogen-air and methane-air mixtures at temperatures as low as 200 K», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 47, pp. 30653 - 30659, 2022.
- [70] A. Kumamoto, H. Iseki, R. Ono et T. Oda, «Measurement of minimum ignition energy in hydrogen-oxygen-nitrogen premixed gas by spark discharge», chez *13th International Conference on Electrostatics*, 2011.
- [71] M. Zagher, C. Jiang, M. Chacha, Y. Yan, M. Khawaja et S. Pan, Chapitre 9 - Thermodiffusion in porous media, Canada, 2 septembre 2007, pp. 227 - 260.
- [72] W. Liang, C. Law et Z. Chen, «Ignition of Hydrogen/Air mixtures by a heated kernel : Role of Soret diffusion», *Elsevier*, 2018.
- [73] W. Liang, Z. Chen, F. Yang et H. Zhang, «Effects of Soret diffusion on the laminar flame speed and Markstein length of syngas/air mixtures», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 34, pp. 695 - 702, 2013.
- [74] P. Tromans et R. Furzeland, «An analysis of Lewis number and flow effects on the ignition of premixed gases», chez *Twenty-first Symposium (Interntion) on Combustion / The Combustion Institute*, 1986.

- [75] C. Proust, «A new technique to produce well controlled electrical sparks. Application to MIE measurements», 13th International symposium on hazards, prevention, and mitigation of industrial explosions (ISHPMIE), Jul 2020, Braunschweig, Germany. ineris-03319936.
- [76] Thorne & Derrick International, «MIE Minimum Ignition Energy», 2022. [En ligne]. Available: <https://www.heatingandprocess.com/product/hazardous-area-zones/mie-minimum-ignition-energy/>. [Accès le 19 09 2022].
- [77] R. Wires, L. Watermeier et R. Strehlow, «The dry carbon monoxide-oxygen flame», Maryland, Etats-Unis, 12 août 1958.
- [78] U. Maas et J. Warnatz, «Ignition process in carbon-monoxide-hydrogen-oxygen mixtures», *Twenty-Second Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute*, pp. 1695 - 1704, 1988.
- [79] W. Wang et S. Sun, «Experimental studies on explosive limits and minimum ignition energy of syngas : a comparative review», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 44, n°11, pp. 5640 - 5649, 2019.
- [80] A. Pierorazio et Q. Baker, «Hazard for syngas fires and explosions», *Process Safety Progress*, vol. 29, n°4, pp. 288 - 292, 2010.
- [81] F. Williams, *Combustion theory*, Menlo Park, CA: The Benjamin/Cummings Publishing Company, Inc., 1985.
- [82] C. Tang, Y. Zhang et Z. Huang, «Progress in combustion investigations of hydrogen enriched hydrocarbons», *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 30, pp. 195 - 216, 2013.
- [83] H. Calcote, C. Gregory, C. Barnett et R. Gilmer, «Spark ignition : Effect of molecular structure», *Industrial and Engineering Chemistry*, vol. 44, n°11, pp. 2656 - 2662, 1952.
- [84] J. Ning, C. Wang et J. Lu, «Explosion characteristics of coal gas under various initial temperatures and pressures», *Shock Waves*, pp. 461 - 472, 2006.
- [85] M. Bellenoue, T. Kageyama, S. Labuda et J. Sotton, «Direct measurement of laminar flame quenching distance in a closed vessel», *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 27, pp. 323 - 331, 2002.
- [86] H. Davy, *On the fire-damp of coal mines - From the philosophical transactions of the royal society*, vol. 48, Londres, 1816, pp. 1 - 22, 23 - 24, 115 - 119.
- [87] W. Payman et R. Wheeler, «The propagation of flame through tubes of small diameter. Part II», *Journal of the Chemical Society, Transactions*, vol. 115, pp. 36 - 45, 1919.
- [88] A. E. J. Potter, «Flame Quenching», chez *Materials Science*, 1960, pp. 145 - 181.
- [89] B. Boust, J. Sotton, S. Labuda et M. Bellenoue, «A thermal formulation for single-wall quenching of transient laminar flames», *Combustion and Flame*, vol. 149, pp. 286 - 294, 2007.
- [90] K. Kim, D. Lee et S. Kwon, «Effects of thermal and chemical surface-flame interaction on flame quenching», *Combustion and Flame*, vol. 146, pp. 19 - 28, 30 mai 2006.

- [91] C. Hackert, J. Ellzey et O. Ezekoye, «Effects of thermal boundary conditions on flame shape and quenching in ducts», *Combustion and Flame*, vol. 112, pp. 73 - 84, 1998.
- [92] J. Miller, H. Inami, W. Rosser et H. Wise, «Mechanism of Flame Inhibition», Stanford Research Institute, 25 février 1958.
- [93] R. Friedman, «Third symposium on combustion and flame and explosion phenomena», The Massachusetts Institute of Technology Cambridge, Massachusetts, 15 - 20 août 1976.
- [94] D. Simon, F. Belles et A. Spakowski, «Fourth Symposium (International) on Combustion», Massachusetts Institute of Technology Cambridge, Massachusetts, 1 - 5 septembre 1952.
- [95] A. Potter et A. Berlad, «N.A.C.A. Tech. Rep.», Supersedes N.A.C.A. TN3398, 1956.
- [96] A. Nolte, I. Klioutchnikov et K. Heufer, «A thermal characterization of the flame quenching behavior of different fuels», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 39, pp. 1915 - 1925, 2022.
- [97] B. Dam, N. Love et A. Choudhuri, «Flashback propensity of syngas fuels», *Fuel*, vol. 90, pp. 618 - 625, 2010.
- [98] C. Westbrook, A. Adamczyk et G. Lavoie, «A numerical study of laminar flame wall quenching», *Combustion and Flame*, vol. 40, pp. 81 - 99, 1981.
- [99] S. Aly et C. Hermance, «A two-dimensional theory of laminar flame quenching», *Combustion and Flame*, vol. 40, pp. 173 - 185, 1981.
- [100] D. Spalding, «A theory of inflammability limits and flame-quenching», *The Royal Society Publishing*, vol. 240, pp. 83 - 100, 24 avril 1957.
- [101] S. Lee et J. T'ien, «A numerical analysis of flame flashback in a premixed laminar system», *Combustion and Flame*, vol. 48, pp. 273 - 285, 1982.
- [102] M. Jafarholi, G. Giannakopoulos, C. Frouzakis et K. Boulouchos, «Laminar syngas-air premixed flames in a closed rectangular domain : DNS of flame propagation and flame/wall interactions», *Combustion and Flame*, vol. 188, pp. 453 - 468, 2017.
- [103] R. Mari, B. Cuenot, J. Rocchi, L. Selle et F. Duchaine, «Effect of pressure on Hydrogen/Oxygen coupled flame-wall interaction», *Combustion and Flame*, vol. 168, pp. 409 - 419, 2016.
- [104] H. Kim, S. Hong, H. Kim, S. Yang et S. Chung, «Quenching distance measurement for the control of hydrogen explosion», Nuclear R&D Program by MOST.
- [105] M. Mann, C. Jainski, M. Euler, B. Böhm et A. Dreizler, «Transient flame-wall interactions : Experimental analysis using spectroscopic temperature and CO concentration measurements», *Combustion and Flame*, 2014.
- [106] Y. Jung, M. Lee et N. Kim, «Direct prediction of laminar burning velocity and quenching distance of hydrogen-air flames using an annular stepwise diverging tube (ASDT)», *Combustion and Flame*, vol. 164, pp. 397 - 399, 2016.
- [107] M. Fukuda, K. Korematsu et M. Sakamoto, «On quenching distance of mixtures of methane and hydrogen with air», *Bulletin of the JSME*, vol. 24, n°193 - 13, pp. 1192 - 1197, 1981.

- [108] M. Nair et M. Gupta, «Measurement of flame quenching distances in constant volume combustion vessels», *Combustion and Flame*, vol. 21, pp. 321 - 324, 1973.
- [109] S. Daniele, P. Jansohn et K. Boulouchos, «Flashback propensity of syngas flames at high pressure : Diagnostic and control», chez *Proceedings of ASME Turbo Expo 2010 : Power of Land, Sea and Air*, Glasgow, UK, 14 - 18 juin 2010.
- [110] Y. Zel'dovich, *Theory of the propagation limit of quiet flames*, 1941.
- [111] E. Cercle, C. Depcik, J. Guo et E. Peltier, «Analysis of the effects of reformat (hydrogen/carbon monoxide) as an assistive fuel on the performance and emissions of used canola-oil biodiesel», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 37, pp. 3510 - 3527, 2011.
- [112] S. Kudriakov, E. Studer et C. Bin, «Numerical simulation of the laminar hydrogen flame in the presence of a quenching mesh», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, pp. 2555 - 2559, 2010.
- [113] A. Benim et B. Pfeiffelmann, «Prediction of burning velocity and quenching distance of hydrogen flames», chez *ICCHMT 2019*, 2019.
- [114] B. Lewis et G. Von Elbe, *Combustion, flames and explosions of gases - Third edition*, Londres: Academic press inc. (London) LTD, 1987.
- [115] S. Yang, S. Chung et H. Kim, «Effect of pressure on effectiveness of quenching meshes in transmitting hydrogen combustion», *Nuclear Engineering and Design*, vol. 224, pp. 199 - 206, 2003.
- [116] P. Norden, «Determination of quenching distance for carbon monoxide-air flames», *Inzhenerno-Fizicheskii Zhurnal*, vol. 9, n°1, pp. 102 - 104, 1965.
- [117] E. Monteiro, A. Rouboa, M. Bellenoue, B. Boust et J. Sotton, «Multi-zone modeling and simulation of syngas combustion under laminar conditions», *Applied energy*, vol. 114, pp. 724 - 734, 2012.
- [118] L. G. Britton et D. J. Frurip, «Further uses of the heat of oxidation in chemical hazard assessment», *Process Safety Progress*, vol. 22, n°1, pp. 1 - 19, 2003.
- [119] S. Kondo, K. Takizawa, A. Takahashi et K. Tokuhashi, «On the temperature dependence of flammability limits of gases», *Journal of Hazardous Materials*, vol. 187, pp. 585 - 590, 2011.
- [120] D. Jaimes, V. McDonnell et G. Samuelsen, «Lean flammability limits of syngas/air mixtures at elevated temperatures and pressures», *Energy & Fuels*, pp. 1 - 33, 2018.
- [121] J. Hustad et O. Sønju, «Experimental studies of lower flammability limits of gases and mixtures of gases at elevated temperatures», *Combustion and Flame*, vol. 71, n°3, pp. 283-294, 1988.
- [122] I. Wierzba et Q. Wang, «The flammability limits of H<sub>2</sub>-CO-CH<sub>4</sub> mixtures in air at elevated temperatures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 31, pp. 485 - 489, 2005.
- [123] I. Wierzba et V. Kilchyk, «Flammability limits of hydrogen-carbon monoxide mixtures at moderately elevated temperatures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 26, pp. 639 - 643, 2001.

- [124] G. Joulin et P. Clavin, «Analyse asymptotique des conditions d'extinction des flammes laminaires», *Acta Astronautica*, vol. 3, n°3 - 4, pp. 223 - 240, 1976.
- [125] Y. Kim, J. Jeon, C. Song et S. Kim, «Improved prediction model for H<sub>2</sub>/CO combustion risk using a calculated non-adiabatic flame temperature model», *Nuclear Engineering and Technology*, vol. 52, pp. 2836 - 2846, 2020.
- [126] H. Coward et G. Jones, «Limits of flammability of gases and vapors», Bulletin 503 - Bureau of Mines, Washington, Etats-Unis, 1952.
- [127] H. Liaw et K. Chen, «A model for predicting temperature effect on flammability limits», *Fuel*, vol. 178, pp. 179 - 187, 2016.
- [128] F. Jiao, H. Zhang, W. Li, Y. Zhao, J. Guo, X. Zhang, W. Cao et Y. Zhang, «Experimental and numerical study of the influence of initial temperature on explosion limits and explosion process of syngas-air mixtures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 47, pp. 22262 - 22272, 03 juin 2022.
- [129] Y. Shebeko, S. Tsarichenko, A. Korolchenko, A. Trunev, V. Navzenya, S. Papkov et A. Zaitzev, «Burning velocities and flammability limits of gaseous mixtures at elevated temperatures and pressures», *Combustion and Flame*, vol. 102, pp. 427 - 437, 1995.
- [130] G. Karim, I. Wierzba et S. Boon, «Some considerations of the lean flammability limits of mixtures involving hydrogen», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 10, n°1, pp. 117 - 123, 1985.
- [131] R. Shang, G. Li, Z. Wang et Z. Wang, «Lower flammability limit of H<sub>2</sub>/CO/air mixtures with N<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> dilution at elevated temperatures», *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020.
- [132] A. White, «Part III - The effect of temperature on the limits», chez *Limits for the Propagation of Flame in Inflammable Gas-Air Mixtures*, Journal of Chemical Society, 1925, pp. 672 - 684.
- [133] F. Van den Schoor, F. Norman, K. Vandermeiren, F. Verplaetsen, J. Berghmans et V. d. B. E., «Flammability limits, limiting oxygen concentration and minimum inert gas/combustible ratio of H<sub>2</sub>/CO/N<sub>2</sub>/Air mixtures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, pp. 2069 - 2075, 2009.
- [134] I. A. Zlochower, «Experimental flammability limits and associated theoretical flame temperatures as a tool for predicting the temperature dependence of these limits», *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 25, pp. 555 - 560, 2012.
- [135] V. Schroeder et K. Holtappels, «Explosion characteristics of hydrogen-air and hydrogen-oxygen mixtures at elevated pressures», chez *International Conference on Hydrogen Safety*, Pisa, Italie, 08 septembre 2005.
- [136] D. Crowl et J. Louvar, *Chemical process safety - Second Edition*, Upper Saddle River, New Jersey 07458: Prentice Hall international series in the physical and chemical engineering sciences, 2001, p. 236.
- [137] X. Liu et Q. Zhang, «Influence of initial pressure and temperature on flammability limits of hydrogen-air», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 39, pp. 6774 - 6782, 2014.

- [138] H. Le, S. Nayak et M. Mannan, «Upper flammability limits of hydrogen and light hydrocarbons in air at subatmospheric pressures», *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol. 51, n°27, pp. 9396 - 9402, 2012.
- [139] H. Le, Y. Liu et M. Manna, «Lower flammability limits of hydrogen and light hydrocarbons at subatmospheric pressures», *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol. 52, pp. 1372 - 1378, 2012.
- [140] G. Holmstedt, «The upper limit of flammability of hydrogen in air, oxygen, and oxygen-inert mixtures at elevated pressures», *Combustion and Flame*, vol. 17, pp. 295 - 301, 1971.
- [141] W. Bone, D. Newitt et C. Smith, «Part IX - The influence of pressure upon the "Explosion limits" of inflammable gas-air, etc., mixtures», chez *Gaseous Combustion at High Pressures*, Londres, Proceedings of the Royal Society of London, 01 février 1928, pp. 553 - 576.
- [142] E. Terres et F. Plenz, «Influence of pressure on the burning of explosive gas mixtures», *J. Gasbeleucht. Verw. Beleuchtungsarten*, vol. 57, pp. 990 - 995, 1001 - 1007, 1016 - 1019, 1025 - 1027, 1914.
- [143] E. Berle et G. Werner, «The limits of combustibility of flammable gas and vapor-air mixtures at high pressures», *Zeitschr Angew Chem*, p. 245, 1927.
- [144] H. Cheikhraivat, N. Chaumeix, A. Bentaib et C. Paillard, «Flammability limits of Hydrogen-Air mixtures», *Nuclear Technology*, vol. 178, n°1, pp. 5 - 16, 2012.
- [145] K. Zhang, T. Luo, Y. Li, T. Zhang, X. Li, Z. Zhang, S. Shang, Y. Zhou, C. Zhang, X. Chen et W. Gao, «Effect of ignition, initial pressure and temperature on the lower flammability limit of hydrogen/air mixture», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 47, pp. 15107 - 15119, 2022.
- [146] M. Kuznetsov, S. Kobelt, J. Grune et T. Jordan, «Flammability limits and laminar flame speed of hydrogen-air mixtures at sub-atmospheric pressures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 37, pp. 17580 - 17588, 2012.
- [147] F. Van den Schoor et F. Verplaetsen, «The upper flammability limit of methane/hydrogen/air mixtures at elevated pressures and temperatures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 32, pp. 2548 - 2552, 2006.
- [148] L. Huang, Y. Wang, L. Zhang, Y. Su, Z. Zhang et S. Ren, «Influence of pressure on the flammability limits and explosion pressure of ethane/propane-air mixtures in a cylinder vessel», *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 74, 2021.
- [149] W. Liang, J. Liu et C. Law, «On explosion limits of H<sub>2</sub>/CO/O<sub>2</sub>», *Combustion and Flame*, vol. 179, pp. 130 - 137, 2017.
- [150] J. Grune, W. Breitung, M. Kuznetsov, J. Yanez, W. Jang et W. Shim, «Flammability limits and burning characteristics of CO-H<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O-CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> mixtures at elevated temperatures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 40, pp. 9838 - 9846, 2015.
- [151] S. Kondo, K. Takizawa, A. Takahashi et K. Tokuhashi, «Extended Le Chatelier's formula and nitrogen dilution effect on the flammability limits», *Fire Safety Journal*, vol. 41, pp. 406 - 417, 2006.

- [152] P. Wang, Y. Zhao, Y. Chen, L. Bao, S. Meng et S. Sun, «Study on the lower flammability limit of H<sub>2</sub>/CO in O<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O environment», *International Journal of Hydrogen Energy*, pp. 1 - 11, 2017.
- [153] P. Holborn, P. Battersby, J. Ingram, A. Averill et P. Nolan, «Modelling the effect of water fog on the upper flammability limit of hydrogen-oxygen-nitrogen mixtures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 38, pp. 6896 - 6903, 2013.
- [154] A. Mendiburu, J. De Carvalho et C. Coronado, «Method for determination of flammability limits of gaseous compounds diluted with N<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> in air», *Fuel*, vol. 226, pp. 65 - 80, 2018.
- [155] S. Li, Y. Zhang, X. Qiu, B. Li et H. Zhang, «Effects of inert dilution and preheating temperature on lean flammability limit of syngas», *Energy & Fuels*, vol. 28, pp. 3442 - 3452, 2014.
- [156] C. Chen, T. Wang, H. Liaw et H. Chen, «Nitrogen dilution effect on the flammability limits for hydrocarbons», *Journal of Hazardous Materials*, vol. 166, pp. 880 - 890, 2009.
- [157] Y. Xie, X. Wang, J. Wang et Z. Huang, «Explosion behavior predictions of syngas/air mixtures with dilutions at elevated pressures : Explosion and intrinsic flame instability parameters», *Fuel*, vol. 255, 2019.
- [158] T. Katsumi, Y. Yoshida, R. Nakagawa, S. Yazawa, M. Kumada, D. Sato, T. Aung, N. Chaumeix et S. Kadowaki, «The effects of addition of carbon dioxide and water vapor on the dynamic behavior of spherically expanding hydrogen-air premixed flames», *Journal of Thermal Science and Technology*, vol. 16, n°2, 2021.
- [159] M. Tran, G. Scribano, C. Chong et T. Ho, «Influence of hydrocarbon additions and dilutions on explosion behavior of syngas/air mixtures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 42, pp. 27416 - 27427, 2017.
- [160] C. Yan, M. Bi, Y. Li et W. Gao, «Effects of nitrogen and carbon dioxide on hydrogen explosion behaviors near suppression limit», *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 67, pp. 1 - 10, 2020.
- [161] H. Cheikhvat, J. Goulier, A. Bentaib, N. Meynet, N. Chaumeix et C. Paillard, «Effects of water sprays on flame propagation in hydrogen-air-steam mixtures», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 35, pp. 2715 - 2722, 2015.
- [162] T. Poinot et D. Veynante, *Theoretical and numerical combustion*, Philadelphia, Etats Unis: Edwards, 2005.
- [163] N. Bouvet, «Experimental and numerical studies of the fundamental flame speeds of methane/air and syngas (H<sub>2</sub>/CO)/Air mixtures», École doctorale sciences et technologies - Université d'Orléans / ICARE, Orléans, 17 décembre 2009.
- [164] G. Markstein, «Experimental and Theoretical studies of Flame-Front Stability», *Journal of the Aeronautical Sciences*, vol. 18, pp. 199 - 209, 1951.
- [165] M. Matalon et B. Matkowsky, «Flames as gasdynamic discontinuities», *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 124, pp. 239 - 259, 1982.
- [166] P. Clavin, «Dynamic behavior of premixed flame fronts in laminar and turbulent flows», *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 11, pp. 1 - 59, 1985.

- [167] P. Ronney et G. Sivashinsky, «A theoretical study of propagation and extinction of nonsteady spherical flame fronts», *SIAM Journal on Applied Mathematics*, vol. 49, pp. 1029 - 1046, 1989.
- [168] A. Kelley et C. Law, «Nonlinear effects in the extraction of laminar flame speeds from expanding spherical flames», *Combustion and Flame*, vol. 156, pp. 1844 - 1851, 2009.
- [169] A. Kelley, J. Bechtold et C. Law, «Premixed flame propagation in a confining vessel with peak pressure rise», *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 691, pp. 26 - 51, 2012.
- [170] F. Halter, T. Tahtouh et C. Mounaïm-Rousselle, «Nonlinear effects of stretch on the flame front propagation», *Combustion and Flame*, vol. 157, pp. 1825 - 1832, 2010.
- [171] Z. Chen, «On the extraction of laminar flame speed and Markstein length from outwardly propagating spherical flames», *Combustion and Flame*, vol. 158, pp. 291 - 300, 2011.
- [172] F. Wu, W. Liang, Z. Chen, Y. Ju et C. Law, «Uncertainty in stretch extrapolation of laminar flame speed from expanding spherical flames», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 35, pp. 663 - 670, 2015.
- [173] I. Glassman, *Combustion - Third Edition*, Department of Mechanical and Aerospace Engineering Princeton University Princeton, New Jersey: Elsevier Science & Technology Books, 17 décembre 1996.
- [174] N. Lamoureux, N. Djebaili-Chaumeix et C. Paillard, «Laminar flame velocity determination for H<sub>2</sub>-air-He-CO<sub>2</sub> mixtures using the spherical bomb method», *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 27, n°4, pp. 385 - 393, 2003.
- [175] D. Bradley, T. Cresswell et J. Puttock, «Flame acceleration due to flame-induced instabilities in large-scale explosions», *Combustion and Flame*, vol. 124, n°4, pp. 551 - 559, 2001.
- [176] V. Karpov, A. Lipatnikov et P. Wolanski, «Finding the Markstein number using the measurements of expanding spherical laminar flames», *Combustion and Flame*, vol. 109, n°3, pp. 436 - 448, 1997.
- [177] S. Kwon, L. Tseng et G. Faeth, «Laminar burning velocities and transition to unstable flames in H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> and C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> mixtures», *Combustion and Flame*, vol. 90, n°3 - 4, pp. 230 - 246, 1992.
- [178] K. Aung, M. Hassan et G. Faeth, «Effects of pressure and nitrogen dilution on flame/stretch interactions of laminar premixed H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> flames», *Combustion and Flame*, vol. 112, n°1 - 2, pp. 1 - 15, 1998.
- [179] T. Scholte et P. Vaags, «Burning velocities of mixtures of Hydrogen, Carbon monoxide and Methane with Air», Centraal Laboratorium, Staatsmijnen in Limburg, Geleen, The Netherlands, décembre 1958.
- [180] C. Dong, Q. Zhou, Q. Zhao, Y. Zhang, T. Xu et S. Hui, «Experimental study on the laminar flame speed of hydrogen/carbon monoxide/air mixtures», *Fuel*, vol. 88, pp. 1858 - 1863, 2009.
- [181] P. Guo, S. Liu, X. Chang, Z. Wang, C. Xu, L. Hu et J. Lu, «The synergistic effect of equivalence ratio and initial temperature on laminar flame speed of syngas», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 47, pp. 23106 - 23117, 2022.

- [182] H. Lee, L. Jiang et A. Mohamad, «A review on the laminar flame speed and ignition delay time of syngas mixtures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 39, pp. 1105 - 1121, 2013.
- [183] N. Bouvet, C. Chauveau, I. Gökalp, S. Lee et R. Santoro, «Characterization of syngas laminar flames using the Bunsen burner configuration», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, pp. 992 - 1005, 2010.
- [184] R. Varghese, H. Kolekar, V. Hariharan et S. Kumar, «Effect of CO content on laminar burning velocities of syngas-air premixed flames at elevated temperatures», *Fuel*, vol. 214, pp. 144 - 153, 2018.
- [185] D. Lapalme et P. Seers, «Influence of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and initial temperature on H<sub>2</sub>/CO laminar flame speed», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 39, pp. 3477 - 3486, 2014.
- [186] C. Prathap, A. Ray et M. Ravi, «Investigation of nitrogen dilution effects on the laminar burning velocity and flame stability of syngas fuel at atmospheric condition», *Combustion and Flame*, vol. 155, pp. 145 - 160, 2008.
- [187] H. Burbano, J. Pareja et A. Amell, «Laminar burning velocities and flame stability analysis of syngas mixtures at sub-atmospheric pressures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, pp. 3243 - 3252, 2011.
- [188] F. Egolfopoulos et C. Law, «Chain mechanisms in the overall reaction orders in laminar flame propagation», *Combustion and Flame*, vol. 80, pp. 7 - 16, 1990.
- [189] E. Monteiro, M. Bellenoue, J. Sotton, N. Moreira et S. Malheiro, «Laminar burning velocities and Markstein numbers of syngas-air mixtures», *Fuel*, vol. 89, pp. 1985 - 1991, 2009.
- [190] R. Rabello de Castro, P. Brequigny, J. Dufitumukiza et C. Mounaïm-Rousselle, «Laminar flame speed of different syngas compositions for varying thermodynamic conditions», *Fuel*, vol. 301, 2021.
- [191] S. Ravi et E. Petersen, «Laminar flame speed correlations for pure-hydrogen and high-hydrogen content syngas blends with various diluents», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 37, pp. 19177 - 19189, 2012.
- [192] Y. Zhang, W. Shen, M. Fan, H. Zhang et S. Li, «Laminar flame speed studies of lean premixed H<sub>2</sub>/CO/Air flames», *Combustion and Flame*, 2014.
- [193] M. Burke, X. Qin, Y. Ju et F. Dryer, «Measurements of Hydrogen syngas flame speeds at elevated pressures», chez *5th US Combustion Meeting*, University of California at San Diego, 25 - 28 mars 2007.
- [194] M. Yu, F. Zhai, H. Li, S. Han, S. Li, K. Zheng et Y. Yu, «Comparative study on the effect of initial temperatures and pressures on the laminar flame speed of the heavily carbonaceous syngas containing water vapor via reaction kinetics simulation», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 47, pp. 32763 - 32775, 2022.
- [195] S. Davis, A. Joshi, H. Wang et F. Egolfopoulos, «An optimized kinetic model of H<sub>2</sub>/CO combustion», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 30, n°1, pp. 1283 - 1292, 2005.
- [196] H. Wang, X. You, A. Joshi, S. Davis, A. Laskin, F. Egolfopoulos et C. Law, «High-Temperature Combustion Reaction Model of H<sub>2</sub>/CO/C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> Compounds - USC Mech Version II», mai 2007.

- [197] G. Smith, D. Golden, M. Frenklach, N. Moriarty, B. Eiteneer et M. Goldenberg, «GRI-Mech 3.0».
- [198] J. Li, Z. Zhao, A. Kazakov, M. Chaos, F. Dryer et J. Scire, «A comprehensive kinetic mechanism for CO, CH<sub>2</sub>O, and CH<sub>3</sub>OH combustion», *International Journal of Chemical Kinetics*, vol. 39, n°3, pp. 109 - 136, 2007.
- [199] A. Frassoldati, T. Faravelli et E. Ranzi, «The ignition, combustion and flame structure of carbon monoxide/hydrogen mixtures. Note 1: detailed kinetic modeling of syngas combustion also in presence of nitrogen compounds», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 32, n°15, pp. 3471 - 3485, 2007.
- [200] A. Kéromnès, W. Meltcafe, K. Heufer, N. Donohoe, A. Das et C. Sung, «An experimental and detailed chemical kinetic modeling study of hydrogen and syngas mixture oxidation at elevated pressures», *Combustion and Flame*, vol. 160, n°6, pp. 995 - 1011, 2013.
- [201] H. Sun, S. Yang, G. Jomaas et C. Law, «High-pressure laminar flame speeds and kinetic modeling of carbon monoxide/hydrogen combustion», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 31, pp. 439 - 446, 2007.
- [202] G. La Jolla, «The San Diego Mechanism - Chemical-Kinetic mechanisms for combustion applications», University of California, California, 2012.
- [203] E. Ranzi, A. Frassoldati, A. Stagni, M. Pelucchi, A. Cuoci et T. Faravelli, «Reduced kinetic schemes of complex reaction systems: Fossil and biomass-derived transportation fuels», *International Journal of Chemical Kinetics*, vol. 46, n°9, pp. 512 - 542, 2014.
- [204] N. Bouvet, S. Lee, I. Gökalp et R. Santoro, «Flame speed characteristics of syngas (H<sub>2</sub>-CO) with straight burners for laminar premixed flames,» chez *Third european combustion meeting ECM*, 2007.
- [205] Y. Xie, X. Wang, H. Bi, Y. Yuan, J. Wang, Z. Huang et B. Lei, «A comprehensive review on laminar spherically premixed flame propagation of syngas», *Fuel Processing Technology*, vol. 181, pp. 97 - 114, 2018.
- [206] J. Natarajan, T. Lieuwen et J. Seitzman, «Laminar flame speeds of H<sub>2</sub>/CO mixtures : Effect of CO<sub>2</sub> dilution, preheat temperature, and pressure», *Combustion and Flame*, vol. 151, pp. 104 - 119, 2007.
- [207] I. McLean, D. Smith et S. Taylor, «The use of carbon monoxide/hydrogen burning velocities to examine the rate of the CO+OH reaction», chez *Twenty-Fifth Symposium (International) on Combustion/ The Combustion Institute*, 1994.
- [208] H. Li, G. Li, Z. Sun, Z. Zhou, Y. Li et Y. Yuan, «Investigation on dilution effect on laminar burning velocity of syngas premixed flames», *Energy*, vol. 112, pp. 146 - 152, 2016.
- [209] M. Esfe, S. Esfandeh et M. Kamyab, «Chapter 1 - History and introduction», chez *Hybrid nanofluids for convection heat transfer*, 2020, pp. 1 - 48.
- [210] Y. Ai, Z. Zhou, Z. Chen et W. Kong, «Laminar flame speed and Markstein length of syngas at normal and elevated pressures and temperatures», *Fuel*, vol. 137, pp. 339 - 345, 2014.

- [211] M. Han, Y. Ai, Z. Chen et W. Kong, «Laminar flame speeds of H<sub>2</sub>/CO with CO<sub>2</sub> dilution at normal and elevated pressures and temperatures», *Fuel*, vol. 148, pp. 32 - 38, 2015.
- [212] J. Natajara, Y. Kochar, T. Lieuwen et J. Seitzman, «Pressure and preheat dependence of laminar flame speeds of H<sub>2</sub>/CO/CO<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/He mixtures», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 32, pp. 1261 - 1268, 2009.
- [213] Z. Wang, W. Weng, Y. He, Z. Li et K. Cen, «Effect of H<sub>2</sub>/CO ratio and N<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> dilution rate on laminar burning velocity of syngas investigated by direct measurement and simulation», *Fuel*, vol. 141, pp. 285 - 292, 2014.
- [214] R. Shang, Y. Zhang, M. Zhu, Z. Zhang, D. Zhang et G. Li, «Laminar flame speed of CO<sub>2</sub> and N<sub>2</sub> diluted H<sub>2</sub>/CO/Air flames», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 41, pp. 15056 - 15067, 2016.
- [215] C. Vagelopoulos et F. Egolfopoulos, «Laminar flame speeds and extinction strain rates of mixtures of carbon monoxide with hydrogen, methane, and air», chez *Twenty-Fifth Symposium (International) on Combustion / The Combustion Institute*, 1994.
- [216] I. Sutton, «Chapter 7 - Formal safety assessments», chez *Offshore Safety Management - Implementing a SEMS Program*, Copyright © 2012 Elsevier Inc. All rights reserved, 2012, pp. 214 - 260.
- [217] E. Oran, G. Chamberlain et A. Pekalski, «Mechanisms and occurrence of detonations in vapor cloud explosions», *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 77, 2020.
- [218] W. Chapman et R. Wheeler, «The propagation of flame in mixtures of methane and air», *Journal of the Chemical Society*, pp. 2139 - 2147, 1926.
- [219] G. Ciccarelli et S. Dorofeev, «Flame acceleration and transition to detonation in ducts», *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 34, n°4, pp. 499 - 550, 2008.
- [220] Y. Ballossier, «Topologies de l'accélération de flammes d'H<sub>2</sub>-O<sub>2</sub>-N<sub>2</sub> dans des canaux étroits : de l'allumage jusqu'à la détonation», École doctorale Sciences et ingénierie des matériaux, mécanique, énergétique (Poitiers ; 2018-2022), en partenariat avec Institut Pprime / PPRIME (laboratoire), Poitiers, 16 décembre 2021.
- [221] F. Tamanini et J. Chaffee, «Turbulent vented gas explosions with and without acoustically-induced instabilities», chez *Symposium (International) on combustion*, 1992.
- [222] G. Salamandra, T. Bazhenova et I. Naboko, «Formation of detonation wave during combustion of gas in combustion tube», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 7, pp. 851 - 855, 1959.
- [223] A. Kanury, Introduction to combustion phenomena, vol. Edition I, Combustion Science and Technology Book Series, 1994.
- [224] H. Phylaktou, G. Andrews et P. Herath, «Fast flame speeds and rates of pressure rise in the initial period of gas explosions in large L/D cylindrical enclosures», *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 3, pp. 355 - 364, 1990.
- [225] N. Lamoureux, «Propriétés explosives de mélanges à base d'hydrocarbures légers et de gaz naturel. Analyse de la propagation des flammes de ces mélanges en présence d'obstacles répétés», Université d'Orléans, Orléans, 1995.

- [226] S. Han, M. Yu, X. Yang et X. Wang, «Effects of obstacle position and hydrogen volume fraction on premixed syngas-air flame acceleration», *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020.
- [227] D. Dunn-Rankine, P. Barr et R. Sawyer, «Numerical and experimental study of “tulip” flame formation in a closed vessel», chez *21st International Symposium on Combustion*, Munich, Allemagne, 1986.
- [228] E. Schmidt, H. Steinicke et U. Neubert, «Flame and schlieren photographs of combustion waves in tubes», chez *International Symposium on Combustion*, Baltimore, USA, 1953.
- [229] J. Leyer et N. Manson, «Development of vibratory flame propagation in short closed tubes and vessels», chez *13th International Symposium on Combustion*, Utah, USA, 1971.
- [230] R. Starke et P. Roth, «An experimental investigation of flame behavior during cylindrical vessel explosions», *Combustion and Flame*, vol. 66, n°3, pp. 249 - 259, 1986.
- [231] D. Rotman et A. Oppenheim, «Aerothermodynamic properties of stretched flames in enclosures», chez *Twenty-First Symposium (International) on Combustion*, Pittsburgh, 1986.
- [232] A. Oppenheim et A. Ghoniem, «Aerodynamic features of turbulent flames», chez *21st American Institute of Aeronautics and Astronautics, Aerospace Science Meeting*, Reno, Nevada, USA, janvier 1983.
- [233] R. Strehlow, *Fundamentals of combustion*, Scranton, Pennsylvanie, USA: International Textbook Co, 1968.
- [234] C. Clanet et G. Searby, «On the "tulip flame" phenomenon», *Combustion and Flame*, vol. 105, n°1-2, pp. 225 - 238, 1996.
- [235] B. Ponizy, A. Claverie et B. Veyssi re, «Tulip flame - the mechanism of flame front inversion», *Combustion and Flame*, vol. 161, pp. 3051 - 3062, 2014.
- [236] G. Markstein, «A shock-tube study of flame front-pressure wave interaction», *Symposium International on Combustion*, vol. 6, n°1, pp. 387 - 398, 1957.
- [237] S. Kerampran, D. Desbordes et B. Veyssi re, «Study of the mechanisms of flame acceleration in a tube of constant cross section», *Combustion Science and Technology*, vol. 158, n°1, pp. 71 - 91, 2000.
- [238] O. Peraldi, R. Knystautas et J. Lee, «Criteria for transition to detonation in tubes», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 21, pp. 1629 - 1637, 1986.
- [239] I. Moen, M. Donato, R. Knystautas et J. Lee, «Flame acceleration due to turbulence produced by obstacles», *Combustion and Flame*, vol. 39, pp. 21 - 32, 1980.
- [240] S. Dorofeev, «Flame acceleration and DDT in gas explosions», *Journal de Physique IV France*, vol. 12, n°7, pp. 3 - 10, 2002.
- [241] J. Lee et I. Moen, «The mechanism of transition from deflagration to detonation in vapor cloud explosions», *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 6, pp. 359 - 389, 1980.
- [242] J. Lee, R. Knystautas et A. Freiman, «High speed turbulent deflagrations and transition to detonation in H<sub>2</sub>-Air mixtures», *Combustion and Flame*, vol. 56, pp. 227 - 239, 1984.

- [243] J. Chao et J. Lee, «The propagation mechanism of high speed turbulent deflagrations», *Shock Waves*, vol. 12, pp. 277 - 289, 2003.
- [244] J. Lee, R. Knystautas et C. Chan, «Turbulent flame propagation in obstacle-filled tubes», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 20, pp. 1663 - 1672, 1984.
- [245] P. Thibault, Y. Liu, C. Chan, J. Lee, R. Knystautas et C. Guirao, «Transmission of an explosion through an orifice», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 19, pp. 599 - 606, 1982.
- [246] C. Johansen et G. Ciccarelli, «Visualization of the unburned gas flow field ahead of an accelerating flame in an obstructed square channel», *Combustion and Flame*, vol. 156, n°2, pp. 405 - 416, 2009.
- [247] A. Teodorczyk et J. Lee, «Detonation attenuation by foams and wire meshes lining the walls», *Shock Waves*, vol. 4, n°4, pp. 225 - 236, 1995.
- [248] S. Diao, X. Wen, Z. Guo, W. He, H. Deng et F. Wang, «Flame propagation characteristics of syngas-air in the Hele-Shaw duct with different equivalence ratios and ignition positions», *ACS Omega*, vol. 20, pp. 118 - 128, septembre 2022.
- [249] M. Yu, P. Luan, K. Zheng, X. Yang, S. Han et Y. Duan, «Experimental study on explosion characteristics of syngas with different ignition positions and hydrogen fraction», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 44, pp. 15553 - 15564, 2019.
- [250] Z. Yao, H. Deng, W. Zhao, X. Wen, J. Dong, F. Wang, G. Chen et Z. Guo, «Experimental study on explosion characteristics of premixed syngas-air mixture with different ignition positions and opening ratios», *Fuel*, vol. 279, pp. 118 - 426, 2020.
- [251] X. Yang, M. Yu, K. Zheng, S. Wan et L. Wang, «A comparative investigation of premixed flame propagation behavior of syngas-air mixtures in closed and half-open ducts», *Energy*, vol. 178, pp. 436 - 446, 2019.
- [252] H. Xiao, Q. Wang, X. Shen, W. An, Q. Duan et J. Sun, «An experimental study of premixed hydrogen/air flame propagation in a partially open duct», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 39, n°11, pp. 6233 - 6241, 2014.
- [253] X. Yang, M. Yu, S. Han et Z. Luo, «Experimental study on the premixed syngas-air explosion in duct with both ends open», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 46, pp. 4 - 14, 2021.
- [254] V. Bychkov, V. Akkerman, G. Fru, A. Petchenko et L. Eriksson, «Flame acceleration in the early stages of burning in tubes», *Combustion and Flame*, vol. 150, n°4, pp. 263 - 276, 2007.
- [255] W. Cao, W. Li, Y. Zhang, Z. Zhou, Y. Zhao, Z. Yang, X. Liu, S. Yu et Y. Tan, «Experimental study on the explosion behaviors of premixed syngas-air mixtures in ducts», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 46, pp. 23053 - 23066, 2021.
- [256] V. Di Sarli, F. Cammarota et E. Salzano, «Explosion parameters of wood choip-derived syngas in air», *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 32, pp. 399 - 403, 2014.
- [257] O. Ellis, «Flame movement in gaseous explosive mixtures», *J. Fuel Sci.*, vol. 7, pp. 502 - 508, 1928.

- [258] M. Yu, K. Zheng, L. Zheng, T. Chu et P. Guo, «Scale effects on premixed flame propagation of hydrogen/methane deflagration», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 40, n°38, pp. 121 - 133, 2015.
- [259] X. Yang, Y. Minggao, K. Zheng, P. Luan et S. Han, «An experimental study on premixed syngas/air flame propagating across an obstacle in closed duct», *Fuel*, vol. 267, pp. 117 - 200, 2020.
- [260] V. Bychkov, D. Valiev et L. Eriksson, «Physical mechanism of ultrafast flame acceleration», *Physical Review Letters*, vol. 101, 13 octobre 2008.
- [261] A. Na'inna, H. Phylaktou et G. Andrews, «The acceleration of flames in tube explosions with two obstacles as a function of the obstacle separation distance», *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 26, pp. 1597 - 1603, 2013.
- [262] J. McGarry et K. Ahmed, «Flame turbulence interaction of laminar premixed deflagrated flames», *Combustion and Flame*, vol. 50, pp. 176 - 439, 2017.
- [263] M. Yu, K. Zheng et T. Chu, «Gas explosion flame propagation over various hollow-square obstacles», *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, vol. 30, pp. 221 - 227, 2016.
- [264] W. Baines et E. Peterson, «An investigation of flow through screens», *Transactions of the American Society of Mechanical Engineers - ASME*, vol. 73, n°5, pp. 467 - 677, 1951.
- [265] M. Yu, X. Yang, K. Zheng, L. Zheng et S. Wan, «Experimental study of premixed syngas-air flame propagation in a half-open duct», *Fuel*, vol. 225, pp. 192 - 202, 2018.
- [266] M. Tran, G. Scribano, C. Chong, T. Ho et T. Huynh, «Experimental and numerical investigation of explosive behavior of syngas-air mixtures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 43, pp. 8152 - 8160, 2018.
- [267] M. Yu, X. Yang, K. Zheng, L. Zheng et X. Wen, «Experimental study of premixed syngas-air flame deflagration in a closed duct», *International Journal of Hydrogen Energy*, pp. 1 - 11, 2018.
- [268] M. Yu, B. Qi, X. Yang et S. Han, «An experimental study on the oscillation of the propagating syngas-air flame in a duct», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 46, pp. 22234 - 22243, 2021.
- [269] C. Chesneau, «Sur l'estimateur du maximum de vraisemblance (emv)», Université de Caen, Caen, 23 octobre 2018.
- [270] E. O. SARL, «Filtre Passe-Bande en Verre Coloré SCHOTT UG11, 25,4 mm de dia., 3 mm d'épaisseur», [En ligne]. Available: <https://www.edmundoptics.fr/p/ug-11-uv-254mm-dia-colored-glass-bandpass-filter-/27894/>.
- [271] A. Gaydon et I. Hurlle, *The shock tube in High-Temperature chemical Physics*, Londres: Chapman & Hall, 1963, p. 307.
- [272] Rotexo Beteiligungs-GmbH, «COSILAB - Combustion Simulation Laboratory», [En ligne]. Available: <https://www.rotexo.com/index.php/en/impressum-en-gb-menu>. [Accès le 10 mai 2023].

- [273] J. Sabard, «Etude de l'explosion de mélanges diphasiques : hydrogène et poussières», Université d'Orléans, Orléans, 2013.
- [274] F. Robledo, J. Martín-Valdepeñas, M. Jiménez et F. Martín-Fuertes, «Development of a Simple Computer Code to Obtain Relevant Data on H<sub>2</sub> and CO Combustion in Severe Accidents and to Aid in PSA-2 Assessments», oecd-nea, Espagne, 2007.
- [275] R. Addabbo, J. Bechtold et M. Matalon, «Wrinkling of spherically expanding flames», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 29, pp. 1527 - 1535, 2002.
- [276] J. Beeckmann, R. Hesse, S. Kruse, A. Berens, N. Peters, H. Pitsch et M. Matalon, «Propagation speed and stability of spherically expanding hydrogen/air flames : Experimental study and asymptotics», *Proceedings of the Combustion Institute*, pp. 1 - 8, 2016.
- [277] C. Sun, C. Sung, L. He et C. Law, «Dynamics of weakly stretched flames : Quantitative description and extraction of global flame parameters», *Combustion and Flame*, vol. 118, pp. 108 - 128, 1999.
- [278] B. Marshall, «Hydrogen:Air:Steam flammability limits and combustion characteristics in the FITS vessel», Sandia National Laboratoire, Albuquerque, New Mexico , Décembre 1986.
- [279] R. Shang, G. Li, Z. Wang et Z. Wang, «Lower flammability limit of H<sub>2</sub>/CO/Air mixtures with N<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> dilution at elevated temperatures», *International Journal of Hydrogen Energy*, pp. 1 - 12, 2020.
- [280] R. Li, Z. Liu, P. Li, M. Li et Y. Zhao, «Investigation on the flammability limit and limiting oxygen concentration of N<sub>2</sub>-diluted H<sub>2</sub>/CO/Air mixtures at high temperature and pressure», *Fuel*, vol. 308, p. 121955, 2022.
- [281] R. Li, Z. Liu, P. Li, M. Li et Y. Zhao, «Investigation on the flammability limit and limiting oxygen concentration of N<sub>2</sub>-diluted H<sub>2</sub>/CO/Air mixtures at high temperature and pressure», *Fuel*, vol. 308, n°121955, 2022.
- [282] L. Huang, Y. Wang, S. Pei, G. Cui, L. Zhang et S. Ren, «Effect of elevated pressure on the explosion and flammability limits of methane-air mixtures», *Energy*, vol. 186, pp. 115-840, 2019.
- [283] W. Muth, «Effect of pressure on the flammable limits of some hydrocarbon-air mixtures», Iowa State University, Ames, 1963.
- [284] R. Shang, Z. Zhuang, J. Niu, Q. Han, G. Li et P. Zhang, «Experimental study on the lower flammability limit of N<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> diluted H<sub>2</sub>/CO/Air mixtures at high initial pressure», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 48, n°1, pp. 393 - 406, 2023.
- [285] V. Kilchyk, «Flammability limits of carbon monoxide and carbon monoxide-hydrogen mixtures in air at elevated temperatures», Department of mechanical and manufacturing engineering, University of Calgary, Calgary, Alberta, novembre 2000.
- [286] K. N'Guessan, M. Idir, J. Pavageau, T. Cu villier et N. Chaumeix, «Evaluation of flammability limits of H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> mixtures in conditions relevant to nuclear waste transportation», chez *Proceedings of the 18th International Symposium on the Packaging and Transportation of Radioactive Materials - PATRAM*, Kobe, Japon, 18 - 23 septembre 2016.

- [287] Y. Liu, Q. Xue, H. Zuo, F. Yang, X. Peng et J. Wang, Effects of CO<sub>2</sub> and N<sub>2</sub> dilution on the combustion characteristics of H<sub>2</sub>/CO mixture in a turbulent, partially premixed burner, American Chemical Society Omega, 07 juin 2021.
- [288] M. Burgess et R. Wheeler, «The lower limit of inflammation of mixtures of paraffin hydrocarbons with air», *Journal of Chemical Society Transactions*, vol. XCIX, pp. 2013 - 2030, 1911.
- [289] S. Dorofeev, M. Kuznetsov, A.V.I., E.A. et B.W., «Evaluation of limits for effective flame acceleration in hydrogen mixtures», *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, vol. 14, pp. 583 - 589, 2001.
- [290] F. Malet, «Etude expérimentale et numérique de la propagation de flamme prémélangées turbulentes dans une atmosphère pauvre en hydrogène et humide», Université d'Orléans, Orléans, 2005.
- [291] N. Lamoureux, F. Malet, N. Djebaïli-Chaumeix et C. Paillard, «H<sub>2</sub> gradient effect on premixed flame propagation in a vertical facility : ENACCEF», chez *Proceedings of the 20th International Colloquium on Dynamics of Explosions and Reactive Systems*, 2005.
- [292] D. Lapalme, «Impact de la composition du syngas sur la vitesse de flamme et la stabilité du front de flamme», École de technologie supérieure - Université du Québec, Québec, 2 juin 2017.
- [293] M. Hassan, K. Aung et G. Faeth, «Properties of Laminar Premixed CO/H<sub>2</sub>/Air Flames at Various Pressures», *Journal of Propulsion and Power*, vol. 13, n°2, pp. 239-245, 1997.
- [294] K. Yamamoto, M. Ozeki, N. Hayashi et H. Yamashita, «Burning velocity and OH concentration in premixed combustion», *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 32, n°1, pp. 1227-1235, 2009.
- [295] W. Zhang, Z. Chen et W. Kong, «Effects of diluents on the ignition of premixed H<sub>2</sub>/air mixtures», *Combustion and Flame*, vol. 159, n°1, pp. 151-160, 2012.
- [296] M. Kuznetsov, M. Alekseev, A. Bezmelnitsyn, W. Breitung, S. Dorofeev, I. Matsukov, A. Vesper et Y. Yankin, «Effect of obstacle geometry on behavior of turbulent flames», Institut für Kern- und Energietechnik - Projekt Nukleare Sicherheitsforschung, juillet 1999.
- [297] S. Dorofeev, M. Kuznetsov, V. Alekseev, A. Efimenko, A. Bezmelnitsyn, Y. Yankin et W. Breitung, «Effect of scale and mixture properties on behavior of turbulent flames in obstructed areas», FZKA-6268, IAE-6127/3, 1999.
- [298] W. Breitung, C. Chan, S. Dorofeev, A. Eder, B. Gelfand, M. Heitsch, R. Klein, A. Malliakos, E. Shepherd, E. Studer et P. Thibault, «State-of-the-Art Report on flame acceleration and Deflagration-to-Detonation Transition in Nuclear Safety», 2000.
- [299] V. Babkin, A. Vykhristuk et V. Krivukin, *Archivum Combustionis*, vol. 4, 1984, p. 321.
- [300] I. Wierzba et V. Kilchyk, «Flammability limits of hydrogen-carbon monoxide mixtures at moderately elevated temperatures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 26, pp. 639 - 643, 2001.

- [301] R. Mével, F. Lafosse, N. Chaumeix, G. Dupré et C. Paillard, «Spherical expanding flames in H<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>O-Ar mixtures : flame speed measurements and kinetic modeling», *International Journal of Hydrogen Energy*, pp. 9007 - 9018, 2009.
- [302] Y. Zhang, M. Zhu, Z. Zhang, R. Shang et D. Zhang, «Ozone effect on the flammability limit and near-limit combustion of syngas/air flames with N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, and H<sub>2</sub>O dilutions», *Fuel*, vol. 186, pp. 414 - 421, 2016.
- [303] F. Van den Schoor, F. Norman, K. Vandermeiren, F. Verplaetsen, J. Berghmans et E. Van den Bulck, «Flammability limits, limiting oxygen concentration and minimum inert gas/combustible ratio of H<sub>2</sub>/CO/N<sub>2</sub>/Air mixtures», *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 34, pp. 2069 - 2075, 2009.
- [304] G. Fiechtner, P. Renard, J. Gord, K. Grinstead, C. Carter et J. Rolon, «Application of imaging techniques to the study of vortex-flame interactions», *Proceedings of the SPIE, The International Society for Optical Engineering*, vol. 3783, pp. 23 - 34, 1999.
- [305] Y. Yankin et W. Breitung, «Effect of scale mixture properties on behavior of turbulent flames in obstructed areas», Report FZKA-6268, Moscow, 1999.
- [306] INRS, «Base de données Fiches Toxicologiques - Hydrogène (Fiche toxicologique n°326)», INRS, décembre 2021.
- [307] INRS, «Base de données Fiches Toxicologiques - Monoxyde de carbone (Fiche toxicologique n°47)», INRS, avril 2021.
- [308] G. Karim, I. Wierzba et S. Boon, «The lean flammability limits in air of methane, hydrogen and carbon monoxide at low temperatures», *Cryogenics*, 1984.





**Laura VASTIER**

## **Étude de la propagation de flamme dans une atmosphère gazeuse représentative de la phase tardive d'un accident grave dans un REP**

La France possède aujourd'hui 58 réacteurs nucléaires qui permettent de fournir trois quarts de l'énergie nécessaire au bon fonctionnement de la vie quotidienne de ses 67 millions d'habitants. Cependant, cette source d'énergie n'est pas exempte d'incidents ou d'accidents, dont la gravité est classée dans ce que l'on appelle l'échelle INES (International Nuclear Event Scale).

Dans le contexte de l'étude des accidents graves des réacteurs refroidis à l'eau, le risque hydrogène est défini comme la possibilité d'une perte de l'intégrité du confinement du réacteur ou de ses systèmes de sûreté à la suite d'une combustion de l'hydrogène. L'hydrogène est issu principalement de l'oxydation du zirconium des gaines et des structures des éléments combustibles lors de la phase de dégradation du cœur et de l'oxydation des métaux présents dans le bain de corium (cœur fondu) ou dans le radier lors de l'interaction du corium et du béton (phase tardive de l'accident grave). Cette interaction génère aussi un autre gaz combustible : le monoxyde de carbone. L'hydrogène et le monoxyde de carbone ainsi produits sont transférés puis transportés dans l'enceinte par les boucles de convection induites essentiellement par la condensation de la vapeur émise via la brèche primaire ou lors de l'interaction corium/béton. Suivant le brassage de l'atmosphère de l'enceinte, la répartition d'hydrogène et du monoxyde de carbone dans l'enceinte de confinement se fait de manière plus ou moins homogène. En cas de forte hétérogénéité, ces gaz combustibles peuvent atteindre des concentrations locales importantes qui dépassent le seuil d'inflammabilité du mélange gazeux.

Ce travail s'intéresse à la caractérisation expérimentale des conditions d'inflammation des mélanges gazeux représentatifs de l'atmosphère de l'enceinte de confinement lors de la phase tardive d'un accident grave. À cet égard, les effets du manque d'oxygène, de la pression et de la température sont instruits. Pour ce faire, deux dispositifs expérimentaux ont été utilisés : une bombe sphérique permettant de déterminer l'influence de plusieurs paramètres initiaux sur les limites d'inflammabilité des mélanges H<sub>2</sub>/CO/Air, et une enceinte d'accélération de flamme dans le but de voir le comportement de ces flammes en présence d'obstacles dans un tube fermé représentant l'intérieur d'un REP (Réacteur à Eau Pressurisée).

Mots clés : Sécurité, Flamme accélérée, Limites d'inflammabilité, Hydrogène, Nucléaire.

## **Study of flame propagation in a gaseous atmosphere representative of the late phase of a severe accident in a PWR**

France currently has 58 nuclear reactors, which provide approximately three quarters of the energy needed to run the daily lives of its 67 million inhabitants. Nevertheless, this source of energy is not immune to incidents and accidents, the severity of which is classified on the International Nuclear Event Scale (INES).

In the context of the study of severe accidents in water-cooled reactors, the term "hydrogen risk" is defined as the possibility of a loss of containment integrity in the reactor or its safety systems as a result of hydrogen combustion. Hydrogen is produced primarily by the oxidation of zirconium in fuel element cladding and structures during the core degradation phase, and by the oxidation of metals in the corium bath (molten core) or in the raft during the interaction of corium and concrete (late phase of a severe accident). This interaction also generates another combustible gas: carbon monoxide. The hydrogen and carbon monoxide produced in this manner are conveyed and subsequently transported into the containment via convection loops, which are primarily caused by the condensation of steam emitted via the primary breach or during the corium/concrete interaction. The distribution of hydrogen and carbon monoxide within the containment is either more or less homogeneous, depending on the mixing of the containment atmosphere. In the event of strong heterogeneity, the combustible gases can reach significant local concentrations that exceed the flammability threshold of the gas mixture.

This study is concerned with the experimental characterisation of the ignition conditions of gas mixtures representative of the atmosphere in the containment during the late phase of a severe accident. The impact of oxygen deficiency, pressure and temperature are examined. In order to achieve this objective, two experimental devices were employed: a spherical bomb was utilized to ascertain the impact of a number of initial parameters on the flammability limits of H<sub>2</sub>/CO/Air mixtures, while a flame acceleration tube was employed to observe the behavior of these flames in the presence of obstacles within a closed tube, which represented the interior of a PWR (Pressurized Water Reactor).

Keywords: Safety, Accelerated Flames, Flammability limits, Hydrogen, Nuclear.



**ICARE – CNRS**  
1C avenue de la Recherche Scientifique  
45071 Orléans Cedex 2, France

