

Influence de la dilution par l'argon d'un mélange C_2H_2/O_2 sur les conditions critiques de diffraction de sa détonation

VIANNEY GUILLY^a, BORIS KHASAINOV, HENRI-NOËL PRESLES ET DANIEL DESBORDES

Laboratoire de Combustion et de Détonique, UPR 9028 CNRS, ENSMA, BP 40109, 86961 Futuroscope, France

Reçu le 25 février 2005, accepté le 21 mars 2005

Résumé – Notre travail est consacré à l'étude de la diffraction de la détonation dans des mélanges acétylène/oxygène stoechiométriques dilués par l'argon (50 %; 66,7 % et 81 % en fraction molaire), d'un tube dans un cône. Les expériences ont été menées dans un tube de diamètre intérieur de 52 mm connecté à une chambre via des divergents coniques de demi angle variant de 15° à 90°. L'histoire de la transition a été enregistrée sur des plaques recouvertes de noir de carbone, ce qui nous a permis de déterminer les conditions critiques de transmission de la détonation et de décrire les phénomènes impliqués en fonction de l'angle de divergence et de la dilution en argon. Des résultats de simulations numériques bidimensionnelles axisymétriques sont présentés et discutés. Si les tendances expérimentales ont été reproduites, il est apparu qu'un accord quantitatif ne peut être obtenu en utilisant une réaction globale exothermique. Des calculs préliminaires ont été menés avec une loi de libération de l'énergie chimique en deux étapes exothermiques successives. Nos premiers résultats sont en accord qualitatif avec les observations expérimentales relatives à la double structure cellulaire de la détonation des systèmes réactifs où l'énergie est libérée conformément au modèle utilisé dans ces simulations, modèle qui pourrait s'avérer utile dans le cas des mélanges étudiés ici.

Mots clés : Détonation / diffraction / cellule

Abstract – Influence of argon dilution on critical detonation diffraction of a C_2H_2/O_2 mixture. Our work is devoted to the study of detonation diffraction from a tube into a cone in stoichiometric acetylene/oxygen mixtures diluted with argon (50; 66.7 and 81% mole fraction). The experiments were carried out in a 52-mm inner diameter tube connected with a large chamber through conical junctions with half cone angle ranging from 15 to 90°. The detonation transition history recorded by the soot tracks technique allowed us to determine critical conditions for detonation diffraction and to describe the mechanisms involved with respect to cone angle and argon dilution. Two-dimensional axi-symmetric simulations are displayed and discussed. They show that quantitative agreement with experiments cannot be obtained when using one-step global chemical reaction. Preliminary results based on two successive exothermic reactions qualitatively agree with experimental results on the double cellular structure of the detonation of reactive system where chemical energy is released according to the model used in the computations. That model could be useful to represent the heat release in the studied mixtures.

Key words: detonation / diffraction / detonation cells

1 Introduction

De nombreux travaux ont été consacrés à l'étude de la diffraction des détonations en raison de l'intérêt pratique dans les domaines de la sécurité des procédés chimiques et de la propulsion par détonation. Il a été montré que la dilution par un gaz monoatomique inerte a une grande influence sur les caractéristiques de la diffraction de la détonation. La relation qui traduit les conditions critiques

de transmission de la détonation ($d = 13\lambda$)_c [1] dans les mélanges hydrocarbure/oxygène (d est le diamètre du tube à détonation et λ la largeur de la cellule de détonation dans les conditions critiques) n'est plus valable lorsqu'ils sont fortement dilués avec l'argon [2, 3]. Lee [4] a également montré que le mécanisme même de la transmission dépend de la dilution et par exemple, pour des mélanges très dilués, la limite d'extinction de la détonation en sortie du tube ne correspond plus à la trajectoire de l'onde de raréfaction émise dans l'onde de détonation au passage de la discontinuité de confinement.

^a Auteur correspondant : vianney.guilly@lcd.ensma.fr

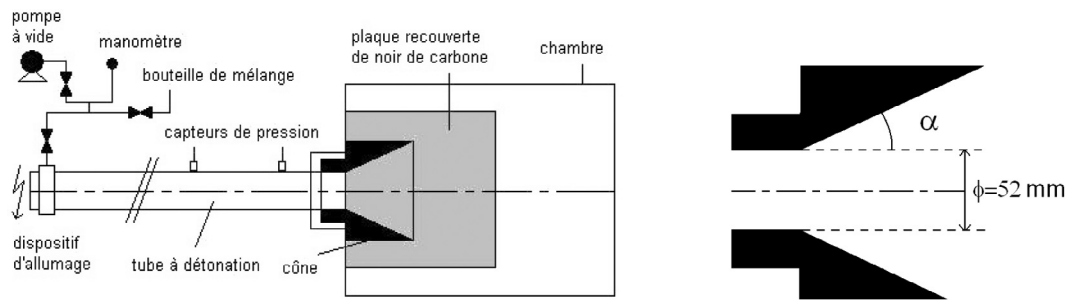


Fig. 1. Schéma du dispositif expérimental.

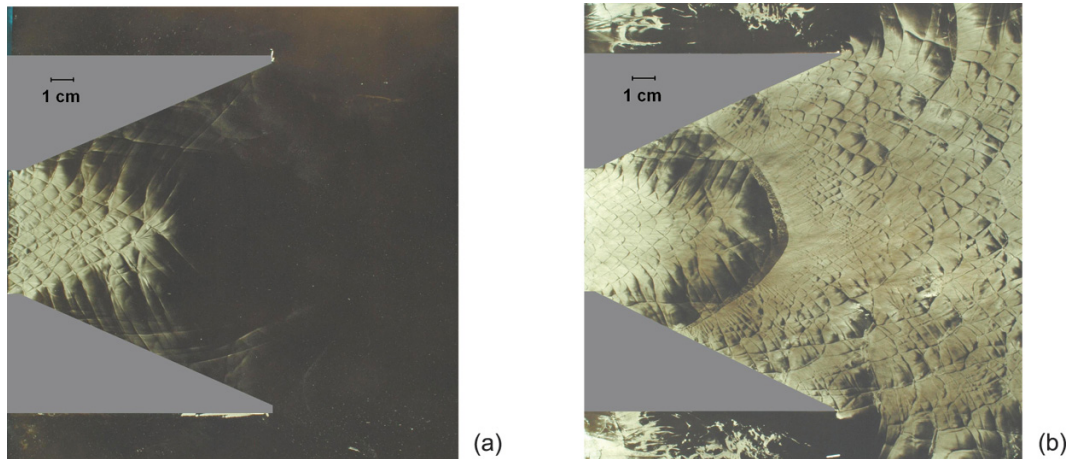


Fig. 2. (a) Extinction de la détonation dans le mélange dilué avec 66,7 % d'Ar à $P_0 = 95$ mbar, lors de sa diffraction dans un cône de 25° . (b) Transmission de la détonation dans le mélange dilué avec 66,7 % d'Ar à $P_0 = 120$ mbar, lors de sa diffraction dans un cône de 25° .

Néanmoins, de nombreux travaux restent à faire pour comprendre les mécanismes contribuant à la transmission de la détonation dans de tels mélanges.

2 Dispositif expérimental

Le tube à détonation utilisé a une longueur de 4 m et un diamètre intérieur de 52 mm. Il est connecté à une chambre cylindrique de longueur 497 mm et de diamètre intérieur 378 mm par l'intermédiaire de pièces coniques de demi angle au sommet $\alpha = 15^\circ$; 25° ; 35° ; 45° ; 55° et 90° (Fig. 1).

La détonation a été initiée à l'autre extrémité du tube par un fil explosé ou par un détonateur lorsque l'énergie d'amorçage nécessaire était plus importante (mélanges fortement dilués par l'argon et à faible pression initiale). Deux capteurs de pression distants de 600 mm placés sur la partie terminale du tube ont permis de mesurer la pression et la célérité de la détonation et donc de contrôler le régime de détonation juste avant la diffraction.

Une plaque recouverte de noir de carbone était placée le long de l'axe du système en appui sur la coupe longitudinale du divergent conique pour enregistrer l'évolution de la structure cellulaire de la détonation pendant son passage du tube au cône.

L'étude a porté sur le mélange stoechiométrique $C_2H_2-O_2$ dilué avec de l'argon (50 %; 66,7 % et 81 %).

3 Résultats expérimentaux

Les figures 2a et 2b montrent les traces laissées sur la plaque recouverte de noir de carbone lors de la diffraction de la détonation dans le mélange dilué avec 66,7 % d'argon et un divergent d'angle $\alpha = 25^\circ$. À la pression initiale $P_0 = 95$ mbar la détonation s'éteint (Fig. 2a) : le régime est sous-critique. Pour $P_0 = 120$ mbar, malgré une extinction momentanée de la détonation, la transition est réussie (Fig. 2b) : le régime est sur-critique. Ainsi, pour un mélange donné, il existe pour chaque angle de divergence une pression critique qui sépare les régimes sous-critique et sur-critique.

Dans le cas du mélange utilisé dans les deux expériences précédentes, la détente latérale qui remonte dans l'onde de détonation au passage de la discontinuité de section provoque le découplage entre la flamme et l'onde de choc, ce qui se traduit par l'existence d'un cône d'extinction. Néanmoins il apparaît que la forme de ce cône dépend de la dilution par l'argon ainsi que l'a décrit Lee [4]. Pour les faibles dilutions (< 50 %), la limite du cône d'extinction correspond à la trajectoire de l'onde de raréfaction issue de la discontinuité de confinement. Cela est dû au fait que le taux de réaction est très sensible aux variations de température (loi d'Arrhenius) et que la baisse de température induite par l'onde de raréfaction est suffisante pour entraîner le découplage

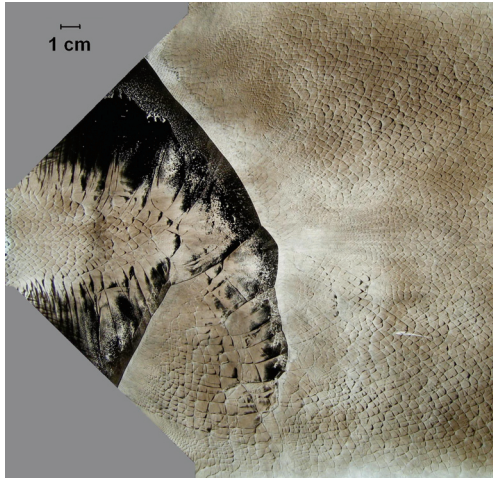


Fig. 3. Transmission de la détonation dans le mélange dilué avec 66,7 % d'Ar à $P_o = 200$ mbar, lors de sa diffraction dans un cône de 45° .

choc-flamme. Au contraire, le taux de réaction est moins sensible à la température dans le cas des mélanges fortement dilués par l'argon puisque l'énergie d'activation réduite (E_a/RT_{ZND}) dans la loi d'Arrhenius diminue avec la dilution par l'argon (T_{ZND} est la température du choc dans une détonation se propageant à la célérité idéale D_{CJ}). Ainsi, la limite du cône d'extinction ne correspond plus à l'interaction du front de détonation avec l'onde de raréfaction.

Deux mécanismes de ré-initiation sont observés en fonction de l'angle de divergence α . Pour les faibles valeurs de α , la ré-initiation se produit à la paroi (Fig. 2b). Une super-détonation se propage alors transversalement vers l'axe du système dans la zone de mélange comprimé entre l'onde de choc et la flamme décollée. Cette super-détonation est constituée de cellules très petites caractéristiques de très hauts niveaux de pression. Pour les plus grandes valeurs de α ($\alpha \geq 45^\circ$), la super-détonation naît au voisinage de l'axe et se propage également transversalement dans la zone de mélange comprimé entre le choc et la flamme vers la paroi du divergent (Fig. 3).

La figure 4 représente l'évolution du nombre critique mesuré $(d/\lambda)_c$ de cellules de détonation sur le diamètre d ($d = 52$ mm) du tube en fonction de l'angle de divergence α . L'évolution de la pression initiale critique avec la divergence est équivalente à l'évolution du rapport $(d/\lambda)_c$ car pour chaque mélange il existe une relation entre λ et P_o , i.e. $\lambda = a \cdot P_o^{-n}$. Pour des dilutions en argon de 50 %, 66,7 % et 81 %, les coefficients a et n valent respectivement $a = 0,20$; $0,32$ et $1,28$ et $n = 1,25$; $1,27$ et $1,23$ (λ (mm) et P_o (bar)). La transmission de la détonation a lieu pour toute pression située au-dessus de la courbe du mélange correspondant.

Dans le cas des mélanges dilués avec 50 % et 66,7 % d'argon, on remarque que l'évolution de $(d/\lambda)_c$ avec α est linéaire pour les angles allant de 15° à environ 40° , comme pour le mélange non-dilué par l'argon [5]. Pour la plus grande dilution étudiée (81 %), cette relation de proportionnalité n'est plus vérifiée. Il apparaît également

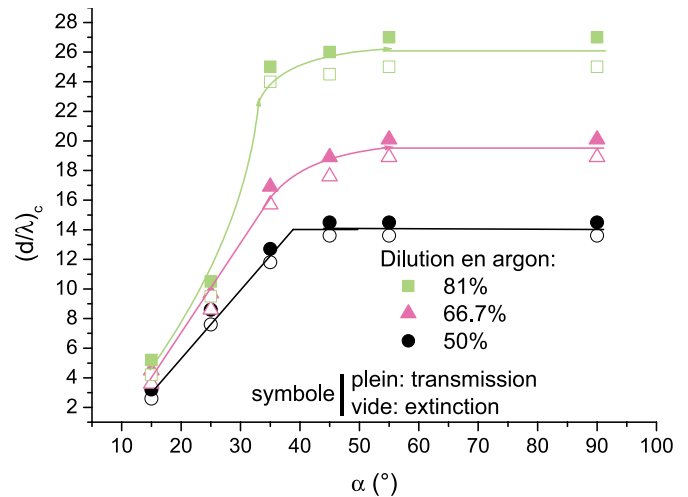


Fig. 4. Nombre critique de cellules de détonation $(d/\lambda)_c$ en fonction de α .

que $(d/\lambda)_c$ présente un plateau pour $\alpha \geq 40^\circ$ dans le cas de la dilution à 50 % et $\alpha \geq 55^\circ$ pour les deux autres.

Le nombre critique de cellules de détonation $(d/\lambda)_c$ augmente avec la dilution par l'argon. En effet, la relation $(d = 13\lambda)_c$ généralement admise pour les mélanges hydrocarbure/oxygène avec $\alpha = 90^\circ$ n'est plus valable lorsqu'ils sont fortement dilués par l'argon. Dans les mêmes conditions, nous avons obtenu $(d/\lambda)_c = 14, 20, 26$ avec des dilutions en argon respectivement de 50 %, 66,7 % et 81 %. Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par Moen et al. [2] et Desbordes et al. [3].

4 Étude numérique

Nous avons effectué des simulations numériques bi-dimensionnelles axisymétriques de la transition de la détonation dans les mêmes configurations géométriques au moyen du code EFAE développé par Khasainov [6] et basé sur la technique LCPFCT de Oran et Boris [7].

La figure 5a présente les traces calculées de pression maximale lors de la diffraction de la détonation dans le mélange dilué avec 81 % d'argon à $P_o = 500$ mbar et pour $\alpha = 90^\circ$. Les tendances expérimentales précédemment décrites sont raisonnablement reproduites par les simulations numériques. En effet, après la diffraction, de grandes cellules de détonations persistent sur l'axe du système sur une distance assez importante. De plus, une super-détonation émerge de ces grandes cellules et se propage vers la paroi du divergent. Un agrandissement de la zone correspondant au passage de la super-détonation est présenté sur la figure 5b où les petites cellules caractéristiques du phénomène sont clairement visibles (noter aussi l'augmentation importante de pression maximale en comparaison avec la Fig. 5a).

Cependant, les résultats des simulations numériques ne correspondent pas encore quantitativement aux résultats expérimentaux puisque la pression critique calculée est de 450 mbar, soit environ 28 % plus basse que

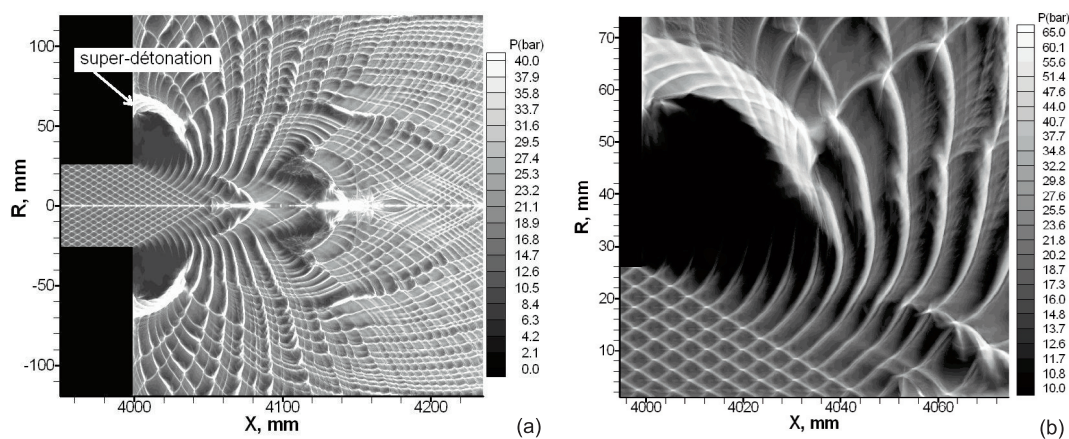


Fig. 5. (a) Calcul des traces des maxima de pression pour la diffraction de la détonation du mélange dilué avec 81 % d'Ar, à $P_o = 500$ mbar et pour $\alpha = 90^\circ$. (b) Agrandissement de la partie de la figure 5a correspondant au passage de la super-détonation.

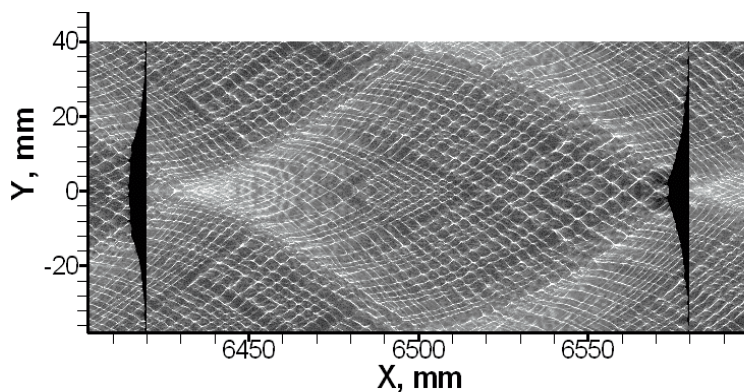


Fig. 6. Simulation numérique d'une double structure cellulaire caractéristique des mélanges où NO_2 est l'oxydant.

la pression critique expérimentale qui est de 625 mbar. Ainsi – par rapport aux résultats expérimentaux – la détonation aurait dû s'éteindre dans les conditions des figures 5 (81 % Ar, $P_o = 500$ mbar et $\alpha = 90^\circ$). Une probable explication de cet écart réside dans le caractère non-monotone de la libération de l'énergie dans le cas des mélanges fortement dilués par l'argon, ce que nous avons établi en utilisant le code CHEMKIN et un schéma détaillé de cinétique chimique pour la détonation autonome stationnaire.

Pour simuler le caractère non-monotone de la libération d'énergie, nous avons fait l'hypothèse de deux étapes réactionnelles successives de temps caractéristiques différents (un ordre de grandeur) et de niveau énergétique équivalent. Nos premiers résultats (Fig. 6) sont en accord qualitatif avec les observations expérimentales relatives à la double structure cellulaire de la détonation des systèmes réactifs où l'énergie est libérée conformément au modèle utilisé [8]. La limite à gauche des traces noires représente la forme instantanée du front de détonation quand le point le plus avancé du choc est à 6420 mm et à 6580 mm. Il reste maintenant à jouer sur les différents paramètres du modèle pour restituer les observations relatives à la détonation des mélanges réactifs à simple structure cellulaire fortement dilués par l'argon pour lesquels la libération d'énergie est non-monotone.

5 Conclusion

Nos travaux sur la diffraction de la détonation du mélange stoechiométrique $\text{C}_2\text{H}_2/\text{O}_2$ dilué par l'argon d'un tube dans un cône nous ont permis d'établir les relations entre le nombre de cellules de détonation $(d/\lambda)_c$ de la diffraction critique avec l'angle de divergence α pour trois valeurs de dilution par l'argon : 50 %, 66,7 % et 81 %. La technique des traces sur plaque recouverte de noir de carbone nous a permis de décrire les mécanismes mis en jeu lors de la diffraction de la détonation en fonction de l'angle de divergence et de la dilution en argon. Ainsi, la transmission critique de la détonation est due à une super-détonation transversale qui se propage depuis la paroi du cône vers l'axe du système dans le cas des angles de divergence $\alpha \leq 45^\circ$, et inversement pour les angles supérieurs. Ces tendances sont similaires à celles précédemment observées dans les mélanges non-dilués. Pour les grandes dilutions on observe expérimentalement et numériquement la persistance au voisinage de l'axe du système d'une structure constituée de grandes cellules.

Même si nos simulations numériques de la diffraction basées sur une loi d'Arrhenius sont qualitativement en accord avec les observations expérimentales, nous savons maintenant que ce modèle doit être modifié pour exprimer la libération non-monotone de l'énergie chimique

dans le cas des systèmes réactifs fortement dilués en argon. Nos calculs basés sur une loi en deux étapes exothermiques successives (loi non-monotone) nous ont déjà permis de restituer la double structure cellulaire observée expérimentalement dans des systèmes réactifs où l'oxydant est NO_2 et confirment qu'il faut continuer d'explorer cette voie pour les systèmes réactifs étudiés dans ce travail.

Références

- [1] V.V. Mitrofanov, R.I. Soloukhin, The Diffraction of Multifront Detonation Waves, *Sov. Phys. Dokl.* 9 (1964) 1055
- [2] I.O. Moen, A. Sulmistras, G.O. Thomas, D. Bjerketvedt, P.A. Thibault, Influence of Cellular Regularity on the Behaviour of Gaseous Detonation, *Progress in Astronautics and Aeronautics* 106 (1986) 200–243
- [3] D. Desbordes, C. Gueraud, L. Hamada, H.N. Presles, Failure of the Classical Dynamic Parameters Relationships in Highly Regular Cellular Detonation Systems, *American Institute of Aeronautics and Astronautics*, 1993, pp. 347–359
- [4] J.H.S. Lee, On the Critical Diameter Problem, *Combustion Science and Technology* 2 (1996) 321–337
- [5] B. Khasainov, H.N. Presles, D. Desbordes, P. Demontis, P. Vidal, Detonation Diffraction from Circular Tubes to Cones, Accepted for publication in *Shock Waves*, 2004
- [6] B.A. Khasainov, B. Veyssiere, Initiation of détonation regimes in Hybride Two-Phase Mixture, *Shock Waves* 6 (1996) 9–15
- [7] E.S. Oran, J.P. Boris, Numerical Simulations of Reactive Flow, Elsevier Science Publishing Co., Inc., 1987
- [8] H.N. Presles, D. Desbordes, M. Guirard, C. Gueraud, Gaseous nithromethane and nitromethane-oxygen mixtures: a new detonation structure, *Shock Wave* 6 (1996) 111–114