



HAL
open science

Contribution à la Modélisation de la Combustion de Blocs de Propergol Solide Aluminisé après Eclatement d'un Propulseur

F. Chassagne

► **To cite this version:**

F. Chassagne. Contribution à la Modélisation de la Combustion de Blocs de Propergol Solide Aluminisé après Eclatement d'un Propulseur. Energie électrique. ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique - Poitiers, 2007. Français. NNT: . tel-00290814

HAL Id: tel-00290814

<https://theses.hal.science/tel-00290814>

Submitted on 26 Jun 2008

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.

THÈSE

pour l'obtention du Grade de

Docteur de l'Université de POITIERS

ÉCOLE NATIONALE SUPÉRIEURE de MÉCANIQUE et d'AÉROTECHNIQUE

FACULTÉ des SCIENCES FONDAMENTALES et APPLIQUÉES

(Diplôme National - Arrêté du 7 août 2006)

École Doctorale : Sciences Pour l'Ingénieur et Aéronautique

Secteur de Recherche : Énergétique, Thermique, Combustion

Présentée par :

Fabien CHASSAGNE

Contribution à la Modélisation de la Combustion de Blocs de Propergol Solide Aluminisé après Eclatement d'un Propulseur

Directeurs de thèse : **Pierre JOULAIN** et **Hui Ying WANG**

Soutenue le 16 octobre 2007

- Jury -

- | | |
|----------------|---|
| M. B. PORTERIE | Professeur, IUSTI, Université de Provence (Rapporteur) |
| M. M. TRINITE | Directeur de Recherche au CNRS, Rouen (Rapporteur) |
| M. K. JOULAIN | Maître de Conférences, LET, ENSMA, Poitiers |
| M. P. JOULAIN | Directeur de Recherche au CNRS, LCD, ENSMA, Poitiers |
| M. C. PERUT | Ingénieur SNPE, Centre de Recherche du Bouchet, Vert-le-Petit |
| M. H.Y. WANG | Chargé de Recherche au CNRS, LCD, ENSMA, Poitiers |

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier MM. Michel Champion et Henri-Noël Presles de m'avoir accueilli au sein du Laboratoire de Combustion et de Détonique (LCD), UPR 9028 du CNRS, durant ces trois années. Je remercie également M. Alain Tronche et Mme Maud Pawlowski d'avoir fait de la collaboration, entre le Centre d'Achèvement et d'Essais des Propulseurs et Engins (CAEPE/DGA), à Saint-Médard-en-Jalles, et le LCD, une réussite et de m'avoir si bien accueilli dans le service "Expertise et Calculs".

Je souhaite, par ailleurs, exprimer ma reconnaissance à M. Bernard Porterie, Professeur à l'Université de Provence, à Marseille, et à M. Michel Trinité, Directeur de Recherches au CNRS, au CORIA (Rouen), qui ont bien voulu être rapporteurs de ce travail. Je remercie également M. Karl Joulain, Maître de Conférences au Laboratoire d'Etudes Thermiques (LET), à Poitiers, et M. Christian Pérut, Conseiller Scientifique à la Société Nationale des Poudres et Explosifs (SNPE), d'avoir accepté de participer à ce jury de thèse.

M. Pierre Joulain a dirigé ces travaux de thèse et, par les liens étroits qu'il a su tisser avec le CAEPE depuis de nombreuses années, a fortement contribué à la réussite de ce projet. Sa curiosité et son humanisme m'ont permis de travailler sereinement et avec enthousiasme sur un sujet passionnant. Pour tout cela, je vous exprime ma profonde gratitude. Je remercie également M. Hui Ying Wang qui a codirigé cette thèse et a parfait ma connaissance du code de calcul FDS (Fire Dynamics Simulator).

J'adresse de sincères remerciements à M. Serge Bordachar, Ingénieur à l'Inspection des Poudres et Explosifs (IPE/DGA), à Paris, qui a participé activement à la mise en place puis au bon déroulement de cette thèse. Son implication dans la mise en oeuvre des essais expérimentaux, ainsi que celle de M. Laurent Hervouet, chargé d'études, ont permis de mener à bien cette partie de l'étude, réalisée au CAEPE. Je vous exprime, à tous les deux,

ma plus sincère reconnaissance et remercie également l'ensemble des personnes du CAEPE qui ont participé, de près ou de loin, à ces travaux de thèse. Je remercie aussi la SNPE, et plus particulièrement Mme Laurence Guenot, d'avoir fourni les blocs de propergol solide pour la réalisation de ces essais de thèse, et d'être ainsi partie prenante de ce projet.

Une thèse n'est pas un long fleuve tranquille. Aussi les conseils avisés prodigués par MM. Gérard Debenest, Yves D'Angelo, Jean-Pierre Vantelon et Hazeem El-Rabii m'ont été des plus utiles et leur grande disponibilité m'a permis de persévérer dans ce travail de recherche. Je leur exprime à tous ma profonde gratitude.

Les doctorants, que j'ai eu la chance de cotoyer à Poitiers, ont également grandement contribué à faire de mon passage au LCD une expérience agréable, rythmée par les "goûters du mercredi", rendez-vous gourmand mélangeant les cuisines du monde entier. Je remercie chaleureusement Olivier, Vincent, Elena, Bernardo, Gabriel, Camille, Raphaël, Arnaud, Laurence, Philippe, Tony, Rui, Larbi, Cherkaoui, John, Jean-François, Nicolas et tous les autres. Je tiens également à remercier les membres du bureau de l'association des doctorants ACATA, notamment Frédéric, Atabak et Jérôme du LEA, ainsi que David et Ronan du LET, avec qui j'ai eu plaisir à mener des projets inter-laboratoires et à multiplier les réunions, dans la joie et la bonne humeur. Par ailleurs, je remercie cordialement l'ensemble des membres du LCD, à Poitiers, pour leur aide et leur disponibilité, notamment dans les tâches administratives, ainsi que l'ensemble des membres du service "Expertises et Calculs" que j'ai cotoyés au CAEPE. Je tiens à remercier tout particulièrement Jocelyne Bardeau, qui, par sa gentillesse et son grand dévouement, est un peu notre deuxième maman, à nous thésards du LCD. Je souhaite également exprimer ma reconnaissance à tous mes proches qui m'ont encouragé sans relâche tout au long de cette expérience.

J'adresse, enfin, mes plus sincères remerciements à ma maman qui m'a apporté un soutien sans faille et qui fut de bon conseil, notamment dans les moments les plus difficiles.

Je ne pourrai terminer ces remerciements sans évoquer la femme qui partage ma vie depuis le début de cette expérience et qui, dans quelques semaines, fera de moi le plus heureux des papas. Pour tout l'amour que tu me donnes, qu'il me soit permis de te dire ici, Merci.

Table des matières

Remerciements	iii
Nomenclature	xi
Introduction générale	1
I Etat de l’art sur la combustion d’un propergol solide aluminisé	5
1 Les feux de propergol solide aluminisé au niveau macroscopique	7
1.1 Qu’est-ce qu’un feu de propergol solide?	7
1.1.1 Définition	7
1.1.2 Comparaison entre un feu de propergol et un feu d’hydrocarbure plus classique	8
1.2 Caractérisation des feux de propergol solide par approches expérimentales .	11
1.3 Simulations numériques d’un feu de propergol	14
1.4 Conclusion	16
2 Combustion d’un propergol solide PA/PBHT au niveau microscopique	17
2.1 Description d’un propergol composite	18
2.1.1 Composition d’un propergol composite	18
2.1.2 Caractéristiques du monopropergol PA	18
2.1.3 Visualisation microscopique	19
2.2 Structure d’une flamme de propergol PA/PBHT	20
2.2.1 Interactions entre plusieurs flammes	20

2.2.2	Effets de la pression sur la structure de flamme	23
2.2.3	Effets de la granulométrie sur la structure de flamme	24
2.3	Modèles de combustion stationnaire 0D-1D	25
2.3.1	Modèle ONERA	26
2.3.2	Modèle BDP (Beckstead, Derr and Price)	33
2.3.3	Atouts et limites des modèles globaux	36
2.4	Modèles de combustion instationnaire	36
2.5	Vers des simulations numériques multi-D instationnaires	38
2.5.1	Modélisation de la morphologie du propergol	38
2.5.2	Modélisation de la phase condensée	39
2.5.3	Conditions de saut à l'interface	40
2.5.4	Suivi d'interface	40
2.5.5	Modélisation de la phase gazeuse	41
2.6	Conclusion : à pression atmosphérique	42
3	Formation et combustion des gouttes d'aluminium	45
3.1	Principaux effets de l'ajout de particules d'aluminium	46
3.2	De la particule solide au globule liquide	47
3.2.1	Influence du packing	48
3.2.2	Effet des forces de tension superficielle	49
3.2.3	Connexion entre particules	49
3.2.4	Formation des globules	49
3.2.5	Prédisposition des gouttes à s'allumer à la surface du propergol	50
3.3	Combustion des gouttes d'aluminium	52
3.3.1	Phénoménologie	52
3.3.2	Approches théoriques de la combustion d'une goutte d'Al	54
3.3.3	Approches semi-empiriques de la combustion d'une goutte isolée	55
3.3.4	Approches numériques	58
3.4	Production d'oxydes d'aluminium	59
3.5	Conclusion : à pression atmosphérique	61

II Étude expérimentale de la combustion d'un bloc de pro- pergol PA/PBHT/Al à pression atmosphérique	63
4 Méthodes mises en oeuvre	65
4.1 Essais en champ libre	65
4.1.1 Dispositif expérimental	65
4.1.2 Spécimens pyrotechniques utilisés	66
4.1.3 Mesures ultrasonores	67
4.1.4 Moyens de thermographie IR et UV	70
4.1.5 Mesure du flux radiatif	71
4.2 Essais en cheminée	72
4.2.1 Dispositif expérimental	72
4.2.2 Spécimens pyrotechniques utilisés	73
4.2.3 Mesures pyrométriques	74
4.2.4 Principe de mesure de l'émissivité spectrale	75
5 Résultats et Discussion	77
5.1 Signature thermique IR d'un feu de propergol aluminisé	77
5.1.1 Effet du chargement initial en Al sur le rayonnement du feu	82
5.1.2 Effet du chargement initial en Al sur la vitesse de combustion du propergol	87
5.2 Mesures au coeur d'un feu de propergol aluminisé	88
5.2.1 Températures <i>in situ</i> mesurées par pyrométrie	91
5.2.2 Influence des gouttes Al/Al ₂ O ₃ sur les propriétés radiatives d'un feu de Butalane	94
5.2.3 Essais sur Butalite	96
5.3 Conclusion sur les essais	97
III Simulation numérique d'un feu de propergol solide alu- minisé	99
6 Description générale du code de calcul FDS	101

6.1	Motivations du choix de cet outil de simulation	102
6.2	Equations générales	102
6.2.1	Hypothèses générales	102
6.2.2	Equation d'état	103
6.2.3	Equation de continuité	103
6.2.4	Equation de conservation d'espèce	104
6.2.5	Equation bilan de quantité de mouvement	104
6.2.6	Equation de conservation d'énergie	105
6.2.7	Bilan : système d'équations à résoudre	107
6.2.8	Conditions limites (CL)	107
6.3	Modélisation des propriétés de transport	109
6.4	Modèle de rayonnement	110
6.4.1	Cas particulier d'un milieu gazeux non-diffusant	111
6.4.2	Méthode numérique	112
6.4.3	Conditions limites	114
6.5	Conclusion	116
7	Modélisation de la combustion d'un bloc de propergol solide aluminisé	117
7.1	Allumage et combustion du propergol solide	118
7.1.1	Modèle d'allumage du propergol	118
7.1.2	Composition du mélange de gaz brûlés à l'équilibre thermochimique	125
7.1.3	Définition de la CL <i>Flamme de propergol</i> pour le modèle macroscopique	126
7.2	Injection et combustion des gouttes d'aluminium	128
7.2.1	Hypothèses	130
7.2.2	Modèle d'injection de gouttes	130
7.2.3	Calcul de la trajectoire d'une goutte	131
7.2.4	Termes sources liés à la phase condensée	132
7.2.5	Bilan de matière et d'énergie sur une goutte	133
7.2.6	Modèle de combustion en phase gazeuse	135
7.3	Propriétés radiatives des gouttes Al/Al ₂ O ₃	137

7.3.1	Etude des indices	138
7.3.2	Modélisation des propriétés radiatives des particules	141
7.4	Rayonnement des gouttes Al/Al ₂ O ₃	147
7.5	Conclusion	149
8	Résultats et discussion	151
8.1	Etude paramétrique sur une configuration test	151
8.1.1	Définition de la configuration test CF1	151
8.1.2	Sensibilité au débit de gouttes \dot{m}_{Al}	154
8.1.3	Sensibilité au débit de gaz équivalent \dot{m}_g''	155
8.1.4	Sensibilité à la température initiale des gouttes $T^0_{gouttes}$	157
8.1.5	Sensibilité au maillage	160
8.1.6	Conclusion	162
8.2	Comparaison avec les résultats expérimentaux	164
8.2.1	Définition de la configuration des tests CF2	164
8.2.2	Comparaison pour une Butalane	165
8.2.3	Conclusions	169
8.3	Limites du modèle	169
	Conclusions et Perspectives	171
	ANNEXE A	175
	ANNEXE B	185
	ANNEXE C	189
	Bibliographie	203

Nomenclature

Acronymes et Symboles

ADN	: Ammonium DiNitramide
Al	: Aluminium
Al ₂ O ₃	: Alumine ou oxyde d'aluminium
BDP	: Beckstead-Derr-Price (Modèle de)
CAEPE	: Centre d'Achèvement et d'Essais des Propulseurs et Engins
CFD	: Computational Fluid Dynamics
CTSN	: Centre Technique des Systèmes Navals
DB	: Propergol Double-Base (Nitroglycérine + Nitrocellulose)
DBW	: Denison-Baum-Williams (Modèle de)
DGA	: Délégation Générale à l'Armement
DOZ	: Azélate de diisooctyle
FDS	: Fire Dynamic Simulator
HMX	: Propergol Octogène
IPDI	: Isophrone diisocyanate
IR	: Infrarouge
LII	: Incandescence Induite par Laser
LLNL	: Lawrence Livermore National Laboratory
MBE	: Microscope à Balayage Electronique
NIST	: National Institute of Standards and Technology
ONERA	: Office National d'Etudes et de Recherches Aérospatiales
PA	: Perchlorate d'Ammonium

PAG	: Polyazoture de Glycidyle
PBAN	: Polybutadiène acide acrylonitrile
PBCT	: Polybutadiène à terminaison carboxyle ou carboxytéléchélique
PBHT	: Polybutadiène à terminaison hydroxyle ou hydroxytéléchélique
PLIF	: Fluorescence Induite par Plan Laser
RDX	: Propergol Hexogène
SME	: Société des Matériaux Energétiques
SNPE	: Société Nationale des Poudres et Explosifs
TNT	: Tri-Nitro-Toluène
US	: Ultrason
UV	: Ultraviolet
WSB	: Ward-Son-Brewster (Modèle de)
ZN	: Zel'dovich-Novozhilov (Modèle de)

Paramètres

A	(m/s)	: Facteur préexponentiel
a_p	(m ² /s)	: Diffusivité thermique du propergol
B_m		: Paramètre de Spalding
C_a	(m ²)	: Section efficace d'absorption
C_D		: Coefficient de traînée
C_{ext}	(m ²)	: Section efficace d'extinction
c_p	(J/kg/K)	: Chaleur spécifique massique du mélange
$c_{p,Al}$	(J/kg/K)	: Chaleur spécifique massique de l'aluminium liquide
$c_{p,g}$	(J/kg/K)	: Chaleur spécifique massique des gaz de propergol
$c_{p,i}$	(J/kg/K)	: Chaleur spécifique massique de l'espèce i
$c_{p,p}$	(J/kg/K)	: Chaleur spécifique massique du propergol
$c_{p,s}$	(J/kg/K)	: Chaleur spécifique massique du mur solide
C_s	(SI)	: Constante de Smagorinsky
C_{sc}	(m ²)	: Section efficace de diffusion
\mathcal{D}	(m ² /s)	: Coefficient de diffusion moléculaire (en régime laminaire)
$d_{Al,l}$	(μm)	: Diamètre des gouttes d'aluminium liquide
$d_{Al,s}$	(μm)	: Diamètre des particules solides d'aluminium
$d_{Al_2O_3}$	(μm)	: Diamètre des particules d'alumine
D_i	(m ² /s)	: Coefficient de diffusion moléculaire de l'espèce i
d_m	(μm)	: Diamètre moyen des gouttes d'aluminium
d_{ox}	(μm)	: Diamètre des grains d'oxydant PA
d_{PA}	(μm)	: Diamètre des grains de PA
$\bar{\bar{D}}$	(SI)	: Tenseur des contraintes des taux de déformation
E_c	(J/mol)	: Energie d'activation de la réaction en phase condensée
E_g	(J/mol)	: Energie d'activation de la réaction en phase gazeuse
$F(d)$: Fonction cumulative volumique
\vec{f}	(N/m ³)	: Forces volumiques appliquées à l'écoulement
$f_n(d)$: Fonction de densité de probabilité
g	(SI)	: Paramètre d'asymétrie
\vec{g}	(m/s ²)	: Champ de gravité terrestre

h	(J/kg)	: Enthalpie massique du mélange
h_i^0	(J/kg)	: Enthalpie de formation de l'espèce i
h_v	(J/kg)	: Chaleur d'évaporation de l'aluminium
H	(m)	: Hauteur de mesure au-dessus de la surface initiale de propergol
$I_\lambda(\vec{x}, \vec{s})$	(W/m ²)	: Luminance émise à la longueur d'onde λ , dans la direction \vec{x}
$I_{b,d}(\vec{x}, \lambda)$	(W/m ²)	: Luminance émise par un CN à la longueur d'onde λ , dans la direction \vec{x}
k	(W/m/k)	: Conductivité thermique du mélange gazeux
k_p	(W/m/k)	: Conductivité thermique du propergol
k		: Partie imaginaire de l'indice complexe de réfraction
M_g	(kg/mol)	: Masse molaire du mélange gazeux
$\dot{m}_{Al,l}$	(kg/s)	: Débit massique des gouttes d'aluminium
\dot{m}_g	(kg/s)	: Débit massique du gaz équivalent
\dot{m}_{liant}	(kg/s)	: Débit massique du liant
\dot{m}_{ox}	(kg/s)	: Débit massique de l'oxydant
\dot{m}_P	(kg/s)	: Débit massique du propergol
\dot{m}_i'''	(kg/s/m ³)	: Taux de production (ou de consommation) de l'espèce i
N		: Nombre de tranches modélisées dans le bloc de propergol
n		: Partie réelle de l'indice complexe de réfraction
p	(Pa)	: Pression du milieu gazeux considéré
p_0	(Pa)	: Pression atmosphérique
\tilde{p}	(Pa)	: Perturbation de pression
Q_a	(m ²)	: Efficacité d'absorption
Q_{ext}	(m ²)	: Efficacité d'extinction
Q_{sc}	(m ²)	: Efficacité de diffusion
\vec{q}_{pyro}	(W/m ²)	: Flux consommé par la réaction de pyrolyse
\vec{q}_r	(W/m ²)	: Flux radiatif net échangé
\dot{q}'''	(W/m ³)	: Energie libérée par la réaction par unité de volume
$q_{c,w}''$	(W/mm ²)	: Flux convectif net échangé entre un mur solide et le mélange gazeux
$q_{r,w}''$	(W/mm ²)	: Flux radiatif net échangé entre un mur solide et le mélange gazeux
R	(J/mol/K)	: Constante universelle des gaz
r_b	(mm/s)	: Vitesse de combustion du propergol (ou burning rate)

$r_{b,i}$	(mm/s)	: Vitesse de combustion du composé solide i ($i=ox,liant$)
S_0	(m ²)	: Surface totale de propergol
S_{ox}	(m ²)	: Surface d'oxydant
T	(°C ou K)	: Température du mélange gazeux calculée
T_f^{ad}	(°C ou K)	: Température adiabatique de flamme
T_b	(°C ou K)	: Température d'évaporation de l'aluminium
T_c	(°C ou K)	: Température à l'intérieur du propergol
T_{ECN}	(°C ou K)	: Température Equivalent Corps Noir
T_{fus}^i	(°C ou K)	: Température de fusion de l'espèce i
T_s	(°C ou K)	: Température de surface
T_{vap}^i	(°C ou K)	: Température d'évaporation de l'espèce i
T_{vraie}	(°C ou K)	: Température de flamme (ou température vraie)
T_w	(°C ou K)	: Température du mur solide
$U(d)$: Variable aléatoire
V_g	(m/s)	: Vitesse d'éjection des gaz de combustion de propergol
v_l	(m/s)	: Vitesse latérale de diffusion des gaz
$\vec{v} = (u, v, w)$	(m/s)	: Champ de vitesse de l'écoulement (calculé)
\dot{w}	(kg/m ³ /s)	: Taux de réaction chimique
x		: Paramètre de taille des particules
$X_{Al,sat}$: Fraction molaire d'aluminium saturant (en liquide)
x_f	(μm)	: Hauteur de flamme
x_{diff}	(μm)	: Hauteur d'une flamme de diffusion
x_{pr}	(μm)	: Hauteur d'une flamme de prémélange
x_i		: Fraction molaire de l'espèce i
$Y_{Al,g}$: Fraction massique d'aluminium gazeux
$Y_{Al,sat}$: Fraction massique d'aluminium saturant (en liquide)
Y_i		: Fraction massique de l'espèce i
Y_f		: Fraction massique de combustible
Y_p		: Fraction massique de propergol
Z		: Fraction de mélange
Z_f		: Fraction de mélange à la stoechiométrie

Symboles Grecs

α_{ox}		: Fraction massique de charge oxydante
β_F		: Fraction d'oxydant réagissant dans la flamme de diff. primaire
$\beta(\vec{x}, \lambda)$: Coefficient d'extinction monochromatique du milieu au point \vec{x}
δ	(m)	: Epaisseur du bloc de propergol modélisée
δ_s		: Pas de temps d'actualisation des CL thermiques
$\delta\Omega^l$	(sr)	: Angle solide autour de la direction l
δV	(m ³)	: Volume élémentaire
Δ	(m)	: Paramètre de taille pour le modèle de Smagorinsky
Δt	(s)	: Pas de temps
Δz	(m)	: Pas d'espace
$\epsilon(T)$: Emissivité totale
$\epsilon(\lambda, T)$: Coefficient d'émission monochromatique ou émissivité spectrale
$\kappa(\vec{x}, \lambda)$: Coefficient d'absorption monochromatique du milieu au point \vec{x}
λ	(μm)	: Longueur d'onde
μ_t	(Pois)	: Viscosité turbulente modélisée
ϕ	(rad)	: Angle azimutal
φ_{rad}	(W/m ²)	: Flux radiatif mesuré
Φ	(W/m ³)	: Fonction de dissipation de l'énergie cinétique du mélange
$\Phi(\vec{s}, \vec{s}')$: Fonction de phase associée à la diffusion de \vec{s} depuis \vec{s}'
Ψ		: Fonction marqueur
ρ	(kg/m ³)	: Masse volumique du mélange calculée
ρ_g	(kg/m ³)	: masse volumique des gaz de propergol
ρ_p	(kg/m ³)	: masse volumique du propergol
ρ_s	(kg/m ³)	: masse volumique d'un mur solide
$\sigma(\vec{x}, \lambda)$	(SI)	: Coefficient de diffusion du milieu au point \vec{x}
$\bar{\tau}$	(SI)	: Tenseur des contraintes de viscosité
τ_d	(s)	: Temps de diffusion

$\tau_{comb,Al}$	(s)	:	Temps de combustion d'une goutte d'aluminium
$\tau_{conv,Al}$	(s)	:	Temps de convection d'une goutte d'aluminium
θ	(rad)	:	Angle polaire
$\dot{\omega}_v$	(kg/s)	:	Taux d'évaporation d'une goutte
ξ_{FF}		:	Hauteur adimensionnée de la flamme de diffusion secondaire
ξ_{ox}		:	Fraction volumique de charge oxydante
ξ_{PA}		:	Hauteur adimensionnée de la flamme de PA
ξ_{PF}		:	Hauteur adimensionnée de la flamme de diffusion primaire
ξ_r		:	Fraction locale d'énergie émise
ξ_f		:	Fraction de luminance totale diffusée

Nombres Adimensionnés

Fr	: Nombre de Froude
M	: Nombre de Mach
Le	: Nombre de Lewis
Nu	: Nombre de Nusselt
Pr	: Nombre de Prandtl
Re	: Nombre de Reynlods
Re_d	: Nombre de Reynlods lié à la goutte
Sc	: Nombre de Schmidt
Sh	: Nombre de Sherwood

Indices

a	: absorption
all	: allumage
d	: goutte
diff	: flamme de diffusion
ext	: extinction
g	: produits gazeux
i	: espèce gazeuse
ijk	: maille ijk
inc	: incident
ox	: espèce oxydante
p	: propergol solide
pr	: flamme de prémélange
pyro	: pyrolyse
sc	: diffusion (<i>scattering</i>)
w	: mur
0	: instant initial

Exposants

eq : à l'équilibre

l : direction de propagation

Table des figures

1.1	Représentation schématique des transports de masse et d'énergie lors de la combustion d'un solide (\dot{m}'' , débit de masse par unité de surface des espèces gazeuses issues de la vaporisation du solide, \dot{Q}''_F , flux de chaleur émis par la flamme vers la surface, \dot{Q}''_L , pertes thermiques exprimées en terme de flux de chaleur issu de la surface [1]	8
1.2	Feu de propergol solide aluminisé (20%Al) lors d'un essai d'allumage (CAEPE-2006)	10
1.3	Schématisation d'un feu de propergol solide aluminisé (type UTP3001) [2] .	12
2.1	Photographies au Microscope à Balayage Electronique (MBE) d'une coupe de propergol composite [3]	19
2.2	Schématisation de la combustion d'un propergol composite [4]	21
2.3	Modèle BDP (Beckstead-Derr-Price) de la combustion d'un propergol composite [5]	22
2.4	Influence de la pression sur la structure de flamme pour des tailles de grain de PA de 10-100 μm [6]	24
2.5	Représentation de la vitesse de combustion moyenne	26
2.6	Flamme de diffusion prépondérante	29
2.7	Compétition entre les flammes de diffusion et de prémélange	32
2.8	Influence de la pression et de la granulométrie sur la vitesse de combustion [4]	32
2.9	Influence de la granulométrie et de la pression sur la vitesse de combustion [7]	36

2.10	Exemple d'un <i>Pack</i> de 10000 particules de différents diamètres	39
3.1	Combustion d'un propergol PA-PBHT-Al	47
3.2	Accumulation des particules d'Al formant des "poches" de part et d'autre des particules de PA	48
3.3	(a) Schématisation du mécanisme de formation d'un globule [8] (b) Prise de vue de la combustion de gouttes d'Al au-dessus de la surface d'un propergol PA/PBHT/Al ($p = 0,6$ MPa) [9]	50
3.4	Influence de la pression sur la taille moyenne des globules, pour une gra- nulométrie bimodale de particules de PA (taille des grains les plus fins indiquée en légende) [10]	51
3.5	Combustion d'une goutte d'aluminium en ambiance gaz de propergol [11, 12]	53
3.6	Exemple de distribution de taille de particule d'alumine mesurée dans un tuyère de propulseur [13]	60
3.7	Production puis agglomération des particules d'alumine Al_2O_3 à $p = 1$ atm [14]	61
4.1	Montage expérimental des essais en champ libre (schéma et photo)	66
4.2	Système de mesure ultrasonore	67
4.3	Principe de mesure et d'acquisition du système ultrasonore	67
4.4	Système d'acquisition du signal US	68
4.5	(a) Visualisation 2D du déplacement de l'écho de propergol vers la gauche (régression du bloc) au cours du tir ; (b) Visualisation de l'écho de propergol à chaque instant	69
4.6	Implantation des moyens de mesures optroniques	70
4.7	Moyens de mesures optroniques	71
4.8	Implantation des fluxmètres	72
4.9	Montage expérimental des essais en cheminée	73
4.10	Tubes de vue et d'alignement	73
4.11	Implémentation des pyromètres	74
4.12	Déroulement des essais en cheminée : rotation des systèmes de mesure	75

4.13	Principe des mesures <i>in situ</i> de température et émissivité locale dans un feu de propergol solide aluminisé PA/PBHT/Al	76
5.1	Visualisation par caméra IR d'un feu de propergol type Butalane (Bande II)	78
5.2	Visualisation par caméra IR d'un feu de propergol type Butalane (Bande III)	79
5.3	Visualisation par caméra IR d'un feu de propergol type Butalite (Bande II)	80
5.4	Visualisation par caméra IR d'un feu de propergol type Butalite (Bande III)	81
5.5	Comparaison des luminances totales émises par le feu de propergol en Bande II et en Bande III, entre les compositions Butalane et Butalite	82
5.6	Spectre du feu de propergol Butalite sur la largeur de bande [3-14 μm] . . .	83
5.7	Influence du chargement initial en aluminium sur le flux radiatif mesuré ($p = 1 \text{ atm}$)	85
5.8	Comparaison "Gauche-Droite" de l'évolution du flux radiatif au cours des tirs pour chaque composition	86
5.9	Evolution temporelle des vitesses de combustion brute (a) et moyennée (b), pour les compositions Butalane et Butalite	87
5.10	Mesures de température brutes en configuration 1, pour un feu de Butalane	89
5.11	Comparaison des signaux TECN450(t) et TECN466(t) : Décrochage brutale de TECN466 à $t = 50 \text{ s}$	90
5.12	Evolution temporelle des températures mesurées par pyrométrie en $H_1 = 6 \text{ cm}$, $H_2 = 26 \text{ cm}$ et $H_3 = 46 \text{ cm}$, pour un feu de propergol type Butalane	92
5.13	Température vraie T_{vraie} au coeur d'un feu de Butalane en fonction de la hauteur H ($H_1 = 6 \text{ cm}$, $H_2 = 26 \text{ cm}$, $H_3 = 46 \text{ cm}$)	93
5.14	Comparaison de la température vraie du milieu T_{vraie} d'un feu de Butalane, mesurée en H_1 sur l'intervalle de temps [60 - 70 s], avec les mesures issues de la littérature	94
5.15	Evolution au cours du temps de l'émissivité monochromatique locale du milieu à $\lambda = 0,9 \mu\text{m}$, $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$ et $\lambda = 4,66 \mu\text{m}$ (Butalane, 1 atm) . . .	94
5.16	Emissivités monochromatiques locales du milieu (valeurs moyennées sur [60 - 70 s])	95

5.17	Comparaison du spectre d'émissivité monochromatique d'un feu de Butane avec celui de l'alumine solide Al_2O_3 [15]	96
7.1	Discrétisation spatiale 1D du bloc de propergol	118
7.2	Délai d'allumage t_{all} en fonction du flux incident \dot{q}_0'' ($p = 1 \text{ atm}$)	124
7.3	Profil de température dans le bloc de propergol à l'allumage ($q_0 = 15 \text{ cal/cm}^2/\text{s}$)	125
7.4	(a) Comparaison des Fonctions Cumulatives Numérique (log-normale), Volumique (Rosin-Rammler) et Combinée (log-normale/Rosin-Rammler) pour $d_m = 100 \text{ }\mu\text{m}$; (b) Sensibilité de la Fonction Cumulative combinée au diamètre moyen d_m	131
7.5	Fractions massiques $Y_i(z)$ vs Fraction de mélange Z pour une combustion de gouttes d'aluminium dans l'air	136
7.6	Efficacités d'extinction (a), de diffusion (b), d'absorption (c) et paramètre d'asymétrie (d) pour une particule d'alumine de rayon $r = 0,5 \text{ }\mu\text{m}$ ($T = 3000 \text{ K}$)	145
7.7	Efficacités d'extinction (a), de diffusion (b), d'absorption (c) et paramètre d'asymétrie (d) pour une particule d'alumine de rayon $r = 40 \text{ }\mu\text{m}$ ($T = 3000 \text{ K}$)	146
8.1	Visualisation du domaine de calcul	152
8.2	Points considérés pour le post-traitement des grandeurs caractéristiques de l'environnement thermique du feu de propergol	154
8.3	Influence du débit de gouttes \dot{m}_{Al} sur le flux radiatif émis par le feu de propergol en $H = 1 \text{ m}$ et $H = 2 \text{ m}$ ($T_{gouttes}^0 = 2182 \text{ }^\circ\text{C}$; $\dot{m}_g'' = 2,31 \text{ kg/m}^2/\text{s}$)	155
8.4	Influence du débit de gouttes \dot{m}_{Al} sur la température de l'écoulement ($T_{gouttes}^0 = 2182 \text{ }^\circ\text{C}$; $\dot{m}_g'' = 2,31 \text{ kg/m}^2/\text{s}$)	156
8.5	Influence du débit de gouttes \dot{m}_{Al} sur la structure de l'écoulement ($T_{gouttes}^0 = 2182 \text{ }^\circ\text{C}$; $\dot{m}_g'' = 2,31 \text{ kg/m}^2/\text{s}$; $t = 5 \text{ s}$)	156
8.6	Influence du débit de gaz équivalent \dot{m}_g'' sur la structure de l'écoulement ($T_{gouttes}^0 = 2182 \text{ }^\circ\text{C}$; $\dot{m}_{Al} = 1 \text{ kg/s}$; $t = 5 \text{ s}$)	157

8.7	Influence du débit de gaz équivalent \dot{m}_g'' sur l'environnement thermique du feu ($T_{gouttes}^0 = 2182$ °C; $\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s)	158
8.8	Influence de la température initiale des gouttes $T_{gouttes}^0$ sur l'évaporation des gouttes d'Al ($\dot{m}_g'' = 2,31$ kg/s; $\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s; $t = 5$ s)	159
8.9	Influence de la température initiale des gouttes $T_{gouttes}^0$ sur la production d'aluminium gazeux ($\dot{m}_g'' = 2,31$ kg/m ² /s; $\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s; $t = 5$ s)	159
8.10	Influence de la température initiale $T_{gouttes}^0$ sur la structure de l'écoulement ($\dot{m}_g'' = 2.31$ kg/m ² /s; $\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s; $t = 5$ s)	160
8.11	Influence de la température initiale des gouttes $T_{gouttes}^0$ sur l'environnement thermique du feu ($\dot{m}_g'' = 2.31$ kg/m ² /s; $\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s)	161
8.12	Visualisation des maillages non uniformes M1 (a) et M2 (b)	162
8.13	Influence du maillage sur l'environnement thermique du feu ($T_{gouttes}^0 = 2040$ °C; $\dot{m}_g'' = 2.31$ kg/m ² /s; $\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s)	163
8.14	Domaine de calcul en configuration CF2 et points de mesures de l'environnement thermique du feu	165
8.15	Comparaison des températures calculées et mesurées en trois hauteurs H_1 , H_2 et H_3 , au coeur du feu de Butalane	166
8.16	Comparaison des flux radiatifs calculés et mesurés à $D = 1$ m et $D = 2$ m autour du feu de Butalane ($\dot{m}_{Al} = 2.16E-2$ kg/s)	166
8.17	Structure de l'écoulement d'un feu de Butalane modélisé avec $\dot{m}_{Al} = 2.16E-2$ kg/s	167
8.18	Comparaison des flux radiatifs calculés et mesurés à $D = 1$ m et $D = 2$ m autour du feu de Butalane ($\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s)	168
8.19	Comparaison des températures calculées et mesurées en trois hauteurs H_1 , H_2 et H_3 , au coeur du feu de Butalane ($\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s)	168
8.20	Structure de l'écoulement d'un feu de Butalane modélisé avec $\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s	169
21	Représentation schématique de la flamme de propergol	175
22	Facteur d'émission monochromatique de la flamme	176
23	Configuration académique utilisée pour le calcul des facteurs de forme	177
24	Variations du flux rayonné en fonction des températures de zone T_1 et T_2	178

25	Collage du capteur US au fond du bloc de propergol	181
26	Etalonnage en température des caméras IR (bandes II et III)	182
27	Etalonnage en luminance des caméras IR (bandes II et III)	183
28	Niveaux de quantité de photons émis [n° d'image (temps)] dans la flamme de propergol type Butalane	186
29	Niveaux de quantité de photons émis [n° d'image (temps)] dans la flamme de propergol type Butalite	187
30	Evolution temporelle des températures mesurées par pyrométrie en $H_1 =$ 6 cm, $H_2 = 26$ cm et $H_3 = 46$ cm, pour un feu de propergol type Butalite .	190
31	Comparaison des Températures ECN brutes en $\lambda = 0,90 \mu\text{m}$, $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$, $\lambda = 4,66 \mu\text{m}$, à chaque hauteur de mesure, entre les compositions Butalane et Butalite	191

Liste des tableaux

1.1	Comparaison de la pyrolyse des matériaux plastiques à celle des propergols solides ($P = 1 \text{ atm}$) [16]	9
1.2	Propriétés du propergol solide utilisé par E.W. Price (1979)	11
1.3	Propriétés du propergol solide utilisé par J.C. Diaz (1993)	13
1.4	Principaux résultats obtenus lors de la combustion d'un bloc de propergol aluminisé à l'air libre ([2, 17])	14
3.1	Propriétés de l'aluminium solide	46
4.1	Caractéristiques des deux compositions de propergol	66
4.2	Caractéristiques des deux compositions de propergol	74
5.1	Composition des gaz brûlés à l'équilibre thermochimique (espèces prépondérantes), après combustion adiabatique de la composition butalite ($p = 1 \text{ atm}$)	84
5.2	Flux radiatifs moyens mesurés autour du spécimen pyrotechnique	84
5.3	Synthèse proposée pour caractériser un feu de propergol de type Butalane ($p = 1 \text{ atm}$)	97
6.1	Calcul des intégrales sur l'angle solide Ω^l utiles à la résolution de l'ETR	115
7.1	Paramètres de calcul	123
7.2	Propriétés physico-chimiques du propergol	123
7.3	Caractéristiques de la pyrolyse du propergol à l'allumage	124
7.4	Composition des propergols solides aluminisés étudiés	126

7.5	Composition des gaz brûlés à l'équilibre thermochimique (espèces prépondérantes), après combustion adiabatique des compositions butalane et butalite ($p = 1 \text{ atm}$)	127
7.6	Définition de la CL <i>Flamme de popergol</i> (a) Propriétés et composition du mélange gazeux à l'équilibre thermochimique, communes aux deux compositions Butalane et Butalite ; (b) Spécificités liées au chargement initial en aluminium et à la vitesse de combustion mesurée expérimentalement v_c^{exp} .	129
7.7	Dépendance spectrale de la partie réelle de l'indice optique de l'alumine solide $n_s(\lambda)$, à $T = 2300 \text{ K}$	139
7.8	Valeurs des coefficients de tabulation A_i et B_i	139
8.1	Définition du domaine de calcul CF1 pour un maillage initial M_0	152
8.2	Valeurs par défaut de la CL <i>Flamme de propergol</i> et des propriétés des gouttes d'Al	153
8.3	Définition des maillages testés au cours de l'étude	160
8.4	Définition du domaine de calcul CF2 / Maillage M_3	164
8.5	Débits associés à la composition de propergol considérée	165
8.6	Jeu de paramètre optimal pour modéliser un feu de Butalane	169
7	Facteurs de forme Flamme-Capteur	178
8	Flux radiatif reçu par le capteur pour $[T_1, T_2] = [2300^\circ\text{C}, 1900^\circ\text{C}]$	178

Introduction générale

Depuis plusieurs dizaines d'années, la propulsion solide s'est beaucoup développée dans les domaines spatial et militaire, et nombre de moteurs, dits à poudre, utilisent le propergol solide comme principal "carburant". L'exemple le plus fameux reste le lanceur Ariane V, qui est équipé de deux moteurs à propulsion solide MPS230, contenant 230 tonnes de propergol chacun et assurant à eux deux 90% de la poussée durant les deux premières minutes de vol. Moins connues mais tout aussi répandues, de nombreuses applications militaires (missiles balistiques et tactiques notamment) sont également dotées de ce type de propulseur, la charge et la composition du propergol solide variant selon les applications considérées. Cependant, l'utilisation de matériaux hautement énergétiques tels que le propergol solide pose rapidement des problèmes de sécurité aussi bien pendant la conception du moteur qu'après sa mise en service. Des zones de danger doivent ainsi être définies et prises en compte lors des phases d'assemblage et de stockage du propulseur. Elles dépendent notamment de l'architecture du moteur et de la nature du propergol utilisées, et sont déterminées en fonction de la réaction du propulseur à une agression donnée (thermique, mécanique, etc). Le type de réaction d'un propulseur est souvent donné par des approches probabilistes qui ne précisent que partiellement les phénomènes physiques mis en jeu lors d'un accident. Par conséquent, les zones de danger sont souvent surestimées, ce qui, parfois, peut être pénalisant pour la conception de bâtiments adaptés à l'assemblage ou au stockage de ces systèmes propulsifs.

Prenons l'exemple d'un scénario accidentel amenant à l'éclatement pneumatique d'un propulseur à propergol solide dans un bâtiment d'assemblage. Alors que le moteur est prêt à être manipulé, un incendie se déclare dans l'enceinte, suite à un court-circuit ou à une fuite hydraulique d'un des appareils de manutention. La structure du moteur s'échauffe

alors progressivement, jusqu'à atteindre la température d'auto-inflammation du propergol, à partir de laquelle le propulseur monte en pression et éclate en plusieurs parties (fond de virole avant, fond de virole arrière et coiffe). La charge de propergol solide se fragmente également en blocs de différentes tailles, qui sont dispersés de part et d'autre du moteur accidenté et qui brûlent à une pression proche de la pression atmosphérique¹. Ce type de réaction n'est pas le plus critique car il n'y pas ici détonation du système. Pour autant, la combustion des blocs de propergol dispersés peut propager un incendie vers d'autres propulseurs stockés dans le bâtiment, également susceptibles d'éclater et de provoquer des dégâts matériels et humains plus importants encore.

C'est pourquoi, afin d'éviter cet "effet domino", l'objectif de la présente étude est de prédire l'impact thermique de cette combustion résiduelle de blocs de propergol solide. Nous nous limiterons ici aux propergols solides composés de Perchlorate d'Ammonium (PA), de Polybutadiène (PBHT) et de particules solides d'aluminium, chargement usuel des applications spatiales et militaires.

Ces trente dernières années, la combustion de ce type de matériau énergétique a d'ailleurs fait l'objet de nombreuses recherches [4, 5, 8]. Cependant, celles-ci ont principalement été réalisées à l'échelle laboratoire, sur des échantillons de quelques milligrammes, afin de mieux comprendre les mécanismes physico-chimiques mis en jeu au niveau microscopique. Elles ont notamment montré que la vitesse de combustion du propergol PA/PBHT dépend principalement de deux paramètres : la pression du milieu ambiant et la granulométrie du PA [7]. D'autre part, divers modèles numériques ont été développés afin de prédire la combustion d'un propergol PA/PBHT/Al. Mais l'approche numérique se limite à la simulation de la combustion d'échantillons de propergol de quelques milligrammes et à des domaines représentatifs d'une chambre de combustion de moteur. En effet, dans la plupart des cas, l'objectif final est de prédire la vitesse de combustion du matériau et d'optimiser les performances propulsives du propulseur.

En fait, seuls quelques travaux ont été présentés à plus grande échelle, dans un contexte de sécurité pyrotechnique. Certaines approches, plus expérimentales, ont permis de ca-

¹la surpression aérienne générée par l'éclatement du propulseur a supprimé les portes soufflables du bâtiment, ce qui a pour conséquence de faire chuter la pression dans l'enceinte.

racteriser la combustion de blocs de propergol aluminisés, brûlant à l'air libre [2, 17]. Différents moyens de mesure (pyrométrie, spectrométrie, etc) ont été mis en oeuvre afin de quantifier le plus finement possible les phénomènes caractéristiques de cette combustion à grand échelle. D'autres études, cette fois numériques, ont été menées plus récemment, dans le but de prédire l'impact thermique d'un feu de propergol [18]. Cependant, la composition du propergol solide considéré était différente et ne contenait pas de particules d'aluminium, espèces jouant un rôle non négligeable dans les transferts de chaleur vers l'extérieur, comme nous le verrons au cours de cette étude.

Finalement, peu de données quantitatives existent sur la combustion d'un bloc de propergol solide aluminisé et aucun modèle, capable de prédire son impact thermique sur l'environnement, n'a été, à ma connaissance, présenté jusqu'à présent. Aussi, ces travaux ont pour but de contribuer à la modélisation de ce type de feu à grande échelle. Pour ce faire, ce mémoire s'articule autour de trois parties principales :

1. La première partie dresse un état de l'art de la combustion d'un propergol solide de type PA/PBHT/Al aux niveaux micro- et macroscopique. Le premier chapitre définit ce qu'on entend par feu de propergol et présente les travaux majeurs réalisés à grande échelle sur ce type d'incendie. Le deuxième chapitre est consacré aux principaux modèles de combustion du propergol solide PA/PBHT, au niveau microscopique. L'évolution des approches numériques sur ce sujet est notamment présentée. Enfin, le chapitre 3 décrit les différents phénomènes liés à l'ajout de particules solides d'aluminium dans la composition initiale du matériau. La formation puis la combustion des gouttes d'Al en ambiance gaz de propergol sont principalement abordées, ainsi que les modèles qui leur sont associés.
 2. La deuxième partie présente la mise en oeuvre d'essais expérimentaux, l'objectif étant d'enrichir une base de données utile au développement et à la validation de notre futur modèle. Deux compositions de propergol solide aluminisé sont testées et deux dispositifs d'essais sont conçus pour cette étude. Le premier permet de mesurer la signature thermique de la combustion d'un bloc de propergol de type PA/PBHT/Al à l'air libre, alors qu'à l'aide du second, des mesures pyrométriques
-

sont réalisées au coeur de l'écoulement multiphasique et en différents points.

3. Enfin, dans la troisième partie, un modèle numérique est développé à partir du code de simulation d'incendie FDS (Fire Dynamics Simulator) [19] (chapitre 6). Le chapitre 7 souligne les différentes modifications apportées à ce code afin de tenir compte de la spécificité d'un feu de propergol aluminisé. Une étude de sensibilité du modèle aux principaux paramètres est ensuite menée et la simulation d'un scénario de défaillance, comme celui présenté précédemment, est réalisée.

L'outil numérique ainsi développé devrait alors être intégré à la simulation globale du scénario de défaillance décrit précédemment et permettre de mieux prédire les effets thermiques d'un feu de propergol aluminisé induit par l'éclatement d'un propulseur.

Première partie

Etat de l'art sur la combustion d'un propergol solide aluminisé

Chapitre 1

Les feux de propergol solide aluminisé au niveau macroscopique

Dans le cadre d'une étude de sécurité incendie, il est primordial de bien définir la source d'énergie à l'origine d'un feu afin de prédire correctement sa propagation et ainsi mieux le contrôler. Il en va de même en sécurité pyrotechnique, où la nature du combustible est cependant bien différente. En effet, il ne s'agit plus d'étudier des feux d'hydrocarbures classiques tels que le kérosène, le méthane, l'éthylène, etc, mais plutôt des incendies résultant de la combustion de matériaux hautement énergétiques, tels que des propergols solides. Aussi, l'objet de ce chapitre est de préciser ce qu'on entend par feu de propergol solide et de présenter les principales études menées jusqu'à présent sur ce sujet.

1.1 Qu'est-ce qu'un feu de propergol solide ?

1.1.1 Définition

Lors de l'éclatement pneumatique d'un propulseur à poudre, le propergol solide se fragmente en plusieurs blocs projetés tout autour du propulseur initial et qui brûlent en combustion type "tas de poudre" (ou "cigarette"). Ces blocs résiduels, de plusieurs dizaines de centimètres de diamètre, libèrent une grande quantité d'énergie et sont susceptibles de propager l'incendie, voire de provoquer l'éclatement d'autres propulseurs. Tout au long de cette étude, on parlera donc de "feu de propergol" pour définir la com-

bustion de blocs de propergol solide de plusieurs dizaines de kilogrammes, par opposition aux échantillons de quelques milligrammes utilisés à l'échelle d'un laboratoire.

1.1.2 Comparaison entre un feu de propergol et un feu d'hydrocarbure plus classique

Un feu de propergol solide, comme son nom l'indique, résulte de la combustion d'un matériau énergétique solide de type propergol. En général, on parle de feu pour une combustion à grande échelle, induisant des hauteurs de flamme de l'ordre de la dizaine de centimètres, voire du mètre, et impliquant des réactions entre des espèces combustibles et l'oxygène de l'air environnant. Lors de la combustion de matériaux solides plus classiques (bois, polypropylène, polyuréthane, etc), il est alors possible de représenter les transports de masse et de chaleur par la Figure 1.1. Dans le cas d'un propergol solide,

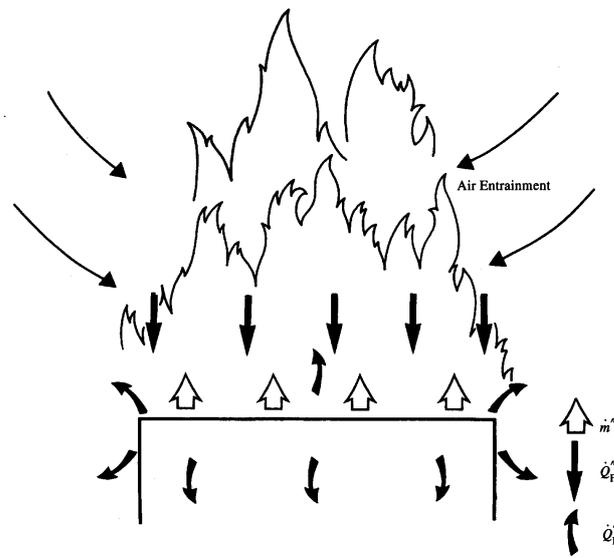


FIG. 1.1 – Représentation schématique des transports de masse et d'énergie lors de la combustion d'un solide (\dot{m}'' , débit de masse par unité de surface des espèces gazeuses issues de la vaporisation du solide, \dot{Q}_F'' , flux de chaleur émis par la flamme vers la surface, \dot{Q}_L'' , pertes thermiques exprimées en terme de flux de chaleur issu de la surface [1])

parler de "feu de propergol" peut paraître abusif puisque la combustion d'un propergol solide PA/PBHT s'autoentretient, même sans présence d'air environnant, le perchlorate d'ammonium PA jouant à la fois le rôle d'oxydant et de réducteur (§ 2.1.2). De plus, la

grande hétérogénéité de ce type de matériau induit des réactions en phase condensée mais aussi la coexistence des deux grands régimes de combustion gazeuse : flamme de diffusion et flamme de prémélange, dont les hauteurs sont seulement de quelques dizaines de micromètres (§ 2.2.1). Ainsi, le débit de masse par unité de surface des espèces gazeuses issues de la vaporisation du propergol est bien plus élevé que lors d'une combustion de solides plastiques (Tab.1.1).

Débit massique par unité de surface \dot{m}'' (g/m².s)	
<i>Matières Plastiques</i>	
Polystyrène	14.1
Polypropylène	8.4
Polyurethane	8.2
<i>Propergols solides</i>	
Butalane	2566
Butalite	1854

TAB. 1.1 – Comparaison de la pyrolyse des matériaux plastiques à celle des propergols solides (P = 1 atm) [16]

On peut cependant trouver des analogies avec les feux classiques, au regard de la structure de l'écoulement réactif résultant de la combustion d'un bloc de propergol solide aluminisé. Comme pour un panache de feu d'hydrocarbure [20], trois zones distinctes de l'écoulement peuvent être mises en avant (Fig.1.2) :

1. Cône 1 : zone réactive de très hautes températures, très lumineuse et proche de la surface de combustion du propergol ; lieu très peu affecté thermiquement par l'air ambiant, où les gouttelettes d'aluminium s'oxydent et libèrent une grande quantité d'énergie ;
2. Cône 2 : zone intermédiaire, plus éloignée de la surface de propergol, où les gouttelettes d'aluminium continuent de s'oxyder ;
3. Cône 3 : panache du feu, principalement non réactif, où les gouttes d'aluminium ne brûlent plus et se retrouvent sous la forme d'oxydes résiduels (alumine Al₂O₃) liquides ou solides ; lieu de formation de grandes structures tourbillonnaires qui

dispersent les fumées d'alumine et qui font fortement chuter la température de l'écoulement.



FIG. 1.2 – Feu de propergol solide aluminisé (20%Al) lors d'un essai d'allumage (CAEPE-2006)

Cependant, compte tenu des grandes vitesses atteintes par l'écoulement gazeux ($V_g \approx 20$ m/s), le panache n'est pas contrôlé par la gravité (Nombre de Froude élevé $Fr \approx 200$) et demeure une zone de très fortes turbulences (Nombre de Reynolds $Re \approx 5000$). La naissance de grosses structures tourbillonnaires induit ainsi une forme caractéristique, dite en champignon. Plusieurs études expérimentales, présentées dans la partie suivante, ont permis de mieux caractériser les feux de propergol aluminisé, et servent ainsi de bases aux études théoriques correspondantes.

1.2 Caractérisation des feux de propergol solide par approches expérimentales

A la fin des années 70, E.W. Price et al. caractérisent un feu de propergol aluminisé à l'air libre, à l'aide d'un dispositif expérimental conséquent [2]. Des visualisations par caméras et des mesures par photographies rapides permettent d'estimer certaines caractéristiques de ce feu de propergol solide à pression atmosphérique. La composition et les propriétés du propergol utilisé sont indiquées dans le tableau 1.2. Etant donnée la faible pression environnante, la vitesse de combustion r_b est de l'ordre de 1 mm/s et la vitesse d'éjection des gaz V_g varie de 15 à 30 m/s. La formation de grosses gouttes d'aluminium est également mise en évidence et leur temps de combustion t_c est estimé à 70 ms.

Formulation	UTP 3001
AP (%)	68
Al (%)	16
PBAN (%)	16
T_f^{ad} (°C)	3136
Application	Titan IIIC

TAB. 1.2 – Propriétés du propergol solide utilisé par E.W. Price (1979)

Cependant, les mesures de température par sonde immergée dans le feu restent peu fiables en raison de la nature extrême du milieu dans lequel elles sont effectuées. En effet, un dépôt d'oxyde d'aluminium se forme sur les sondes, ce qui fausse les mesures. L'auteur teste alors différentes techniques permettant de mesurer la température et l'émissivité d'un feu de propergol, en utilisant notamment des photomultiplicateurs sur trois longueurs d'onde données (405 nm, 505 nm et 600 nm). Les résultats les plus probants sont obtenus en supposant que le milieu se comporte comme un corps gris sur le domaine spectral [400-600 nm]. Ils dépendent toutefois grandement du couple de longueur d'onde considéré et l'hypothèse d'un comportement type corps gris reste à démontrer.

Finalement, à partir des quantités mesurées et des observations faites (Tab.1.4), un modèle global, dit à trois cônes, est proposé, lequel prend en compte les principaux phénomènes se produisant dans chaque zone du feu (Fig.1.3).

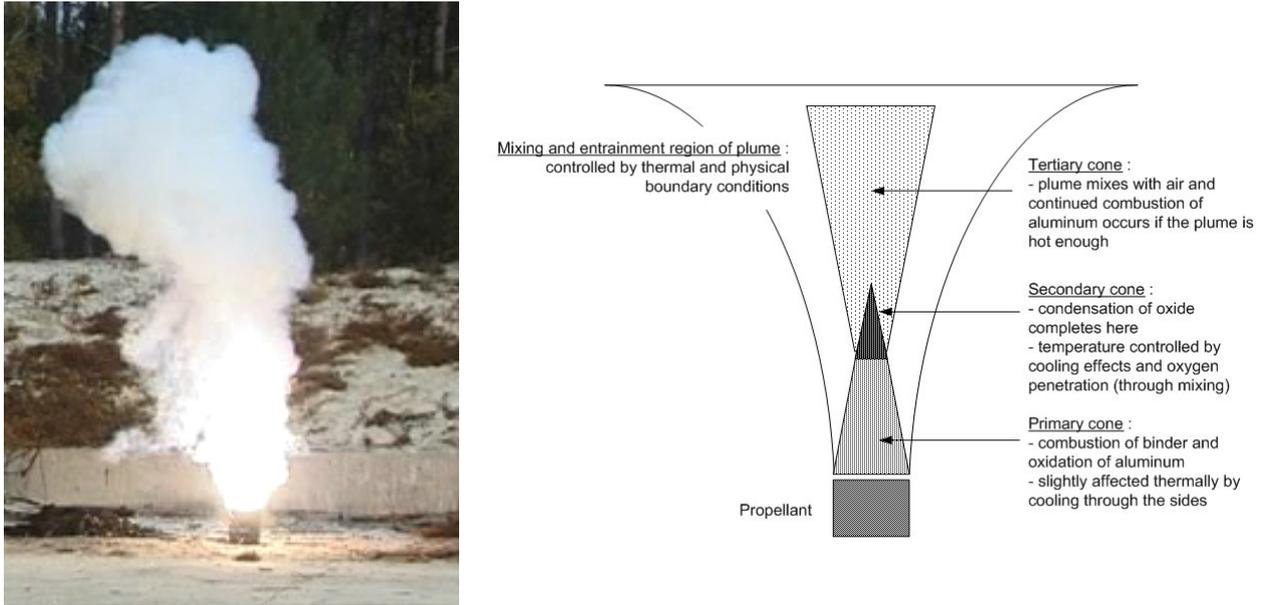


FIG. 1.3 – Schématisation d'un feu de propergol solide aluminisé (type UTP3001) [2]

Suite aux travaux de E.W. Price et al., J.C. Diaz met en place, au Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL), un dispositif expérimental visant à obtenir des données plus fines sur l'environnement thermique d'un feu de propergol aluminisé [17]. La composition considérée correspond au chargement du troisième étage du missile américain Minuteman et demeure fortement chargée en particules d'aluminium (Tab.1.3). Des tests sont réalisés pour la mise au point des techniques de mesure les mieux adaptées à ce type de milieu réactif et différentes méthodes de diagnostic sont employées selon les grandeurs à mesurer.

Compte tenu des très hautes températures atteintes et de la grande hétérogénéité du milieu, le dispositif expérimental retenu comprend une cheminée en graphite, à l'intérieur de laquelle est placé le bloc de propergol étudié. Cette cheminée est percée à différentes hauteurs et sert de support à des tubes de vue, également en graphite. Ceux-ci visent l'intérieur de la flamme et sont reliés à des tubes d'alignement afin d'assurer la transmission de l'émission lumineuse de la flamme vers des pyromètres et des spectromètres infrarouges (IR). Un cône calorimétrique est en outre placé dans le feu afin de déduire, par méthode inverse, le flux de chaleur échangé. Des diamètres intérieurs de cheminée entre 17 cm et 35 cm ont été testés afin d'étirer la cône primaire et ainsi effectuer plus de

mesures dans cette zone.

Formulation	ANB 3066
AP (%)	73
Al (%)	15
CTPB (%)	12
T_f^{ad} (°C)	2730
Dimension du bloc	Cylindre (H = 15cm / D = 17cm)
Application	3ème étage Minuteman III

TAB. 1.3 – Propriétés du propergol solide utilisé par J.C. Diaz (1993)

La température locale du milieu est mesurée à plusieurs hauteurs, soit par spectrométrie, soit par pyrométrie infrarouge (IR). La méthode par spectrométrie se base sur les travaux de Eckl et al. [21], et superpose le spectre mesuré de la flamme avec celui, théorique, d'un corps gris de température et émissivité données. Elle permet non seulement de montrer que le milieu se comporte comme un corps gris sur la bande spectrale [400-1000 nm] mais aussi de déduire les température et émissivité correspondantes.

Le méthode par pyrométrie IR fait pointer deux pyromètres sur un même volume de mesure, l'un monochromatique centré sur la longueur d'onde 950 nm, l'autre bichromatique centré sur deux longueurs d'onde, 700 nm et 1000 nm. Cette technique, validée par Johnson et al. [22], suppose que le milieu se comporte comme un corps gris sur cette bande spectrale, ce qui est ici vérifié par la première méthode. Elle permet non seulement de mesurer la température vraie de la flamme en différents points mais surtout de déduire le coefficient d'émission monochromatique local du milieu.

Le tableau 1.4 récapitule les résultats obtenus par Price (1979) et Diaz (1993). Bien que les propergols composites testés soient de composition différente, il montre que les vitesses de combustion mesurées sont de l'ordre de 1 à 2 mm/s, valeur tout à fait caractéristique d'une combustion à pression atmosphérique. En outre, les valeurs de température et d'émissivité du milieu indiquent le comportement émissif du milieu dans les domaines visible et proche infrarouge. Enfin, la vitesse de l'écoulement et le diamètre moyen des gouttes d'aluminium caractérisent quantitativement le phénomène bien que de manière

Etude	PRICE (79)	DIAZ (93)
Formulation	PA/PBAN/Al	PA/PBCT/Al
Composition (%)	68/16/16	73/12/15
Temp. adiab. de flamme T_f^{ad} (°C)	3130 (calculé)	2730 (calculé)
Forme du bloc	-	Cylindre
Diamètre du bloc	-	D = 17 cm
Présence d'une cheminée	non	oui (D = 35 cm)
Vitesse de combustion r_b (mm/s)	1.27	1.34
Temp. mesurée à la hauteur H (°C)	2570 (H = 15 cm)	2400 (H = 20 cm)
Corps gris sur [400-1000 nm]	Hypothèse	Hypothèse validée
Emissivité monochromatique $\epsilon(\lambda, T)$	0.03 ($\lambda = 0.5 \mu\text{m}$)	0.04 ($\lambda = 0.95 \mu\text{m}$)
Flux de chaleur (W/cm^2)	-	54.3 (H = 83 cm)
Temps de combustion des gouttes d'Al $T_{c,Al}$ (ms)	70 (estimé)	-
Vitesse des produits de comb. du propergol V_g (m/s)	15-30 (estimée)	-

TAB. 1.4 – Principaux résultats obtenus lors de la combustion d'un bloc de propergol aluminisé à l'air libre ([2, 17])

sommaire.

Aussi, et malgré un nombre conséquent de tests réalisés jusqu'à aujourd'hui, il semble utile de compléter les données expérimentales existantes pour mieux quantifier les transferts de chaleur entre ce type de feu et l'extérieur. Peu de résultats expérimentaux concernent la combustion à l'air libre d'un bloc de propergol (plusieurs kilos en utilisation industrielle) et les moyens de calculs actuels peuvent constituer un complément efficace aux essais, qui sont, malgré tout, lourds à mettre en oeuvre et coûteux.

1.3 Simulations numériques d'un feu de propergol

Beaucoup d'études numériques ont décrit la combustion d'un propergol lors du fonctionnement nominal d'un propulseur mais peu ont été réalisées afin de prédire la propagation d'un feu de propergol, bien que nombre d'incendies aient montré le danger potentiel d'une combustion incontrôlée de ces matériaux hautement énergétiques (USS Stark 1987, conflit des Falkland 1984).

Ainsi, en collaboration avec le Centre Technique des Systèmes Navals (CTSN), Porterie et al. (1995) ont simulé les effets thermiques d'un feu de propergol homogène dans une enceinte, représentant typiquement une soute de navire [18]. Deux configurations ont été testées : la première avec ouverture au plafond dès le début de la combustion, la seconde avec ouverture seulement à partir d'un certain niveau de pression. Une attention particulière a été portée sur le couplage entre les phénomènes de diffusion des espèces gazeuses et la post-combustion des produits issus de la réaction du propergol (post-combustion CO-O_2 et $\text{H}_2\text{-O}_2$). Les conditions aux limites spécifiques (surface de propergol et ouverture d'évacuation) ont été traitées par une méthode de Riemann et les équations de Navier-Stokes complètes ont été résolues sur l'ensemble du domaine de calcul. Les effets de montée en pression liée à la combustion du bloc ainsi que le rôle de l'ouverture sur la propagation de l'incendie ont été simulés. Les niveaux de température atteints ainsi que l'évolution temporelle des différentes espèces gazeuses ont également été prédits.

Quelques années plus tard, et dans un contexte similaire, White et al. (2000) ont simulé la propagation d'un feu de propergol dans une enceinte confinée ou semi-confinée [23]. Ils ont utilisé le code numérique FAST, développé par la NIST (National Institute of Standards and Technology, USA), qui s'appuie principalement sur un modèle de zones. L'évolution de la température de la zone chaude est ainsi prédite puis comparée aux données d'essais correspondants.

Cependant, l'approche par zones de White et al. (2000), trop simplifiée, ne rend que peu compte de la complexité des phénomènes mis en jeu par un feu de propergol aluminisé en milieu confiné. Un modèle de champs semble plus approprié pour prédire plus finement les effets thermiques et les effets de surpression induits par ce type d'incendie. Le modèle proposé par Porterie et al. (1995), qui inclut bien un modèle de champs, considère seulement des feux de propergol solide homogène. Or la combustion d'un bloc de propergol solide composite, chargé en particules d'aluminium, génère un panache très fortement hétérogène dans lequel des gouttes d'aluminium, de diamètre variable, vont brûler et produire des particules d'alumine très émissives. La prise en compte de ces phénomènes dans

un modèle numérique devrait donc permettre de prédire mieux encore ce type d'incendie.

1.4 Conclusion

Un feu de propergol composite met en jeu des phénomènes physico-chimiques complexes (combustion du propergol, formation puis combustion des gouttes d'aluminium) que l'on peut représenter par un schéma simplifié dit à cônes renversés. Les mesures *in situ* permettant de quantifier le champ de température et les échanges de flux de chaleur restent néanmoins limitées et demandent des méthodes de diagnostic lourdes à mettre en place. Aussi l'outil numérique peut s'avérer être une alternative intéressante à la simulation d'un feu de propergol à grande échelle.

Pour appréhender le problème posé et émettre des hypothèses pertinentes pour notre étude, il convient d'abord de cerner les processus intimes de combustion qui se déroulent au niveau microscopique :

- mécanismes pilotant la régression du matériau composite à pression atmosphérique ;
- paramètres dont dépend la structure de la flamme d'un propergol composite ;
- lois régissant la formation et la combustion des gouttelettes d'aluminium ;
- ...

Ainsi, nous présenterons, ci-après, l'état des connaissances actuelles sur la combustion d'un propergol composite de type PA/PBHT, aluminisé ou non.

Chapitre 2

Combustion d'un propergol solide PA/PBHT au niveau microscopique

Afin d'appréhender au mieux la description macroscopique de la combustion d'un bloc de propergol composite PA-PBHT, il est nécessaire de comprendre les phénomènes physico-chimiques existant au plus près de la surface de pyrolyse (quelques microns). Les transitions solide-gaz du perchlorate d'ammonium (PA) et du liant (PBHT), ainsi que les phénomènes de transport et de réaction des espèces gazeuses nouvellement formées seront étudiés dans cette partie.

Nous développerons, tout d'abord, les théories dominantes, mettant en évidence la coexistence de plusieurs types de flamme au-dessus de la surface de pyrolyse du propergol. Puis nous décrirons les principaux modèles monodimensionnels associés et essaierons de mieux cerner les besoins qui nous amènent à nous orienter vers des simulations numériques multidimensionnelles. Enfin, nous terminerons ce chapitre par une synthèse des mécanismes réactionnels mis en jeu à la pression atmosphérique, conditions correspondant au cadre de notre étude.

2.1 Description d'un propergol composite

2.1.1 Composition d'un propergol composite

Bien qu'il existe également des propergols composites à liants nitrés, à base de PA (PA + Nitroglycérine + Nitrocellulose) ou non (Octogène (HMX) ou Hexogène (RDX) + Polymère + Nitroglycérine), et dont le développement est manifeste depuis plusieurs années, le cadre de ces travaux se limitera, néanmoins, au propergol composite à liant inerte de type PA-PBHT.

Dans ce cas, le perchlorate d'ammonium (PA) correspond à la charge oxydante et se présente sous une forme pulvérulente, contrairement au constituant maintenant la structure du matériau, appelé liant, qui assure la fonction réductrice. Parmi les principaux composants du liant, on peut caractériser un prépolymère, un plastifiant et un agent réticulant, qui sont respectivement du polybutadiène (PBHT), un azélate de diisooctyle (DOZ) et de l'isophorone diisocyanate (IPDI). La fonction réductrice peut être augmentée par l'ajout de particules métalliques d'aluminium (éventuellement de magnésium ou de zirconium). Par ailleurs, divers additifs sont également injectés en faible quantité dans la composition de ce type de propergol composite. Citons, par exemple, les accélérateurs (ex : Cu, Fe, Cr ou Bo) et les ralentisseurs dont le rôle est d'ajuster la vitesse de combustion selon les performances propulsives souhaitées. Ces derniers interviennent, soit directement sur la cinétique de combustion de l'oxydant, soit en abaissant la température de combustion. Dans ce second cas, ils sont qualifiés d'"oxydants froids" ou de "refroidissants". A cette composition type, s'ajoutent des agents de conservation qui permettent de contrôler le vieillissement du matériau en empêchant l'oxydation du liant ou sa dépolymérisation.

2.1.2 Caractéristiques du monopropergol PA

De formule brute NH_4ClO_4 , le perchlorate d'ammonium (PA) reste très fréquemment utilisé en propulsion, dans les domaines spatial et militaire. Son principal intérêt réside dans sa capacité à rester stable à température ambiante, sa pression d'auto-allumage étant de 20 atm dans ce cas. D'autre part, son caractère à la fois oxydant et réducteur lui permet de générer sa propre flamme, appelée communément "flamme de monopropergol"

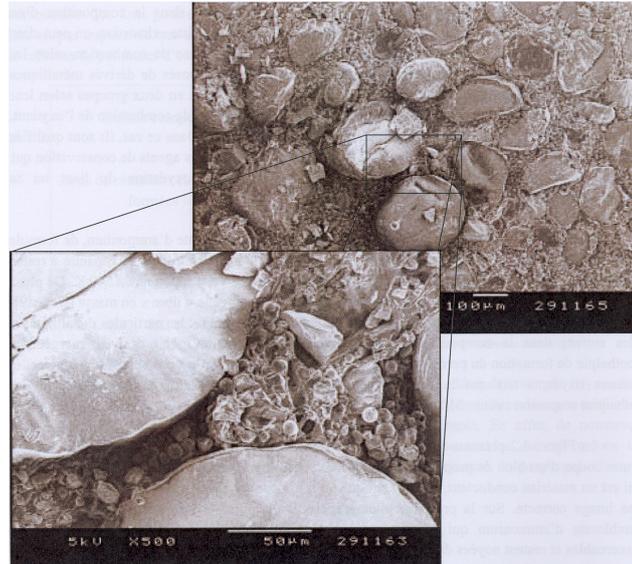


FIG. 2.1 – Photographies au Microscope à Balayage Electronique (MBE) d'une coupe de propergol composite [3]

PA". Cette flamme, dite de prémélange, a une température adiabatique d'environ 1500K [4] et sera décrite plus en détail par la suite.

2.1.3 Visualisation microscopique

L'échantillon présenté Fig.2.1 est composé d'un mélange de gros grains de PA, de diamètre moyen $200 \mu\text{m}$, de grains plus fins de diamètre $10 \mu\text{m}$, et de particules d'aluminium dont le diamètre $d_{Al,s}$ est de l'ordre de $40 \mu\text{m}$. Cet ensemble est "noyé" dans le liant, constitué de polybutadiène et d'additifs. En général, le perchlorate d'ammonium (PA) représente entre 60% et 80% de la masse d'un propergol. Le chargement est cependant limité par l'agencement des grains dans le liant. Aussi, il est possible d'augmenter le taux de chargement en utilisant plusieurs granulométries, les grains les plus petits pouvant se loger entre les plus gros. La photographie au premier plan (fort grossissement) met justement en évidence une telle configuration où l'on distingue deux types de grain. La première granulométrie est représentée par de gros grains de forme approximativement sphérique de diamètre $150\text{-}200 \mu\text{m}$. La seconde, plus fine, est formée de grains d'aspect plus anguleux et de diamètres d'environ $50 \mu\text{m}$. La forme des grains résulte directement du mode de fabrication : les gros étant obtenus par croissance tandis que les plus petits

par fragmentation des premiers. Par ailleurs, on observe de petites sphères régulières correspondant aux particules d'aluminium, dont le diamètre est de $10\ \mu\text{m}$ dans le cas présent. Notons que, si le chargement en aluminium est composé de grosses particules, la forme des particules n'est plus aussi régulière mais beaucoup plus oblongue.

2.2 Structure d'une flamme de propergol PA/PBHT

La nature très hétérogène du matériau énergétique étudié est à l'origine de processus physico-chimiques complexes ayant lieu tant en phase condensée que gazeuse. Plusieurs flammes coexistent à quelques dizaines de microns au-dessus de la surface du propergol, leur influence sur la pyrolyse du matériau dépendant très fortement de :

- la pression du milieu environnant ;
- la granulométrie des particules de PA.

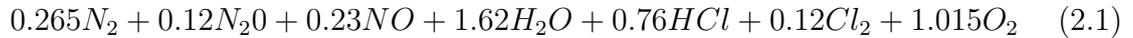
2.2.1 Interactions entre plusieurs flammes

Deux types de réaction se produisent lors de la combustion d'un propergol PA/PBHT :

- *des réactions de surface* : ce sont des réactions de décomposition de l'oxydant (PA) et du liant (PBHT) qui ont lieu dans les fines couches de mélange, sous la surface de pyrolyse ;
- *des réactions gazeuses* qui mettent en jeu les produits de décomposition de l'oxydant PA et du liant PBHT, lequel joue alors le rôle de combustible.

Plus précisément, le perchlorate d'ammonium NH_4ClO_4 , dont la température de fusion est estimée à 835 K, réagit principalement en phase condensée, au niveau d'une fine couche liquide (quelques micromètres) résultant de la pyrolyse de la particule solide [24, 25, 26, 27]. Cette réaction est exothermique ($Q_s = 120\ \text{cal/g}$), et consomme près de 70% de la masse de PA. Les 30% restants se subliment en ammoniac NH_3 et acide perchlorique HClO_4 , qui réagissent selon l'étape globale (Eq.2.1). Cette réaction en phase gazeuse est exothermique ($Q_g = 265\ \text{cal/g}$) et reste contrôlée par la cinétique chimique. Elle correspond donc à une flamme de prémélange, dont la température adiabatique T_f^{ad} est d'environ 1500 K, et d'où s'échappent des espèces oxydantes excédentaires (O_2 et H_2O)

[4].



Résultant de la réaction entre les produits issus de la vaporisation du perchlorate d'ammonium, on parle de **flamme de monopropergol PA**. C'est une flamme de type prémélangé, dont la hauteur est, par conséquent, très sensible à la pression.

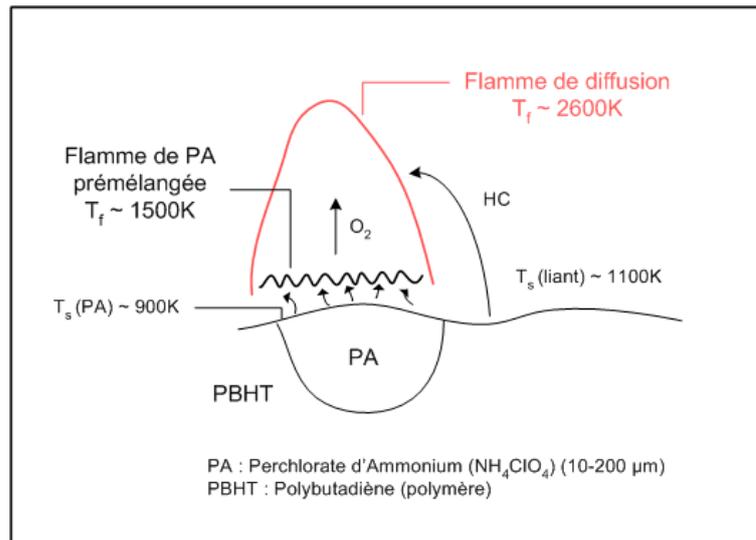


FIG. 2.2 – Schématisation de la combustion d'un propergol composite [4]

Simultanément à la combustion du PA, le liant PBHT se décompose en hydrocarbures gazeux qui vont réagir avec les espèces oxydantes issues de la flamme de monopropergol PA (principalement O_2) (Fig.2.2). Dans le cas d'un polybutadiène (PBHT), l'hydrocarbure prépondérant est du butadiène de formule brute C_4H_6 . La flamme, qui s'établit alors, est contrôlée par le temps de diffusion des espèces gazeuses réactantes. On parle de **flamme de diffusion finale ou secondaire**, par opposition à la flamme de diffusion primaire.

En effet, le modèle Beckstead-Derr-Price (BDP) met en évidence l'interaction des deux flammes précédemment décrites avec une troisième, dite **flamme de diffusion primaire** (Fig.2.3) [5]. Celle-ci s'établit à proximité de la surface de pyrolyse et résulte de la réaction entre les produits de décomposition du liant avec les produits oxydants issus de la décomposition du PA (ClO_2 , $ClOH$, ClO , ...) [28]. Alors que la flamme de diffusion secondaire se situe loin de la surface de combustion, la flamme de diffusion primaire en

est beaucoup plus proche. Hautement énergétique, elle dégage une grande quantité de chaleur qui, dans la plupart des cas, pilote la pyrolyse du propergol solide [7].

D'autre part, en raison de leur nature diffusive, ces deux flammes ont une hauteur qui dépend très fortement de la taille des particules de PA. Cependant, elles ont une cinétique finie et ne peuvent être modélisées par une flamme de type Burke-Schumann, à la cinétique chimique infiniment rapide [6]. Contrairement à une flamme de diffusion idéale, les réactions ayant lieu en leur sein peuvent être contrôlées par la cinétique chimique, dans certaines conditions de pression ou pour certaines tailles de grain de PA.

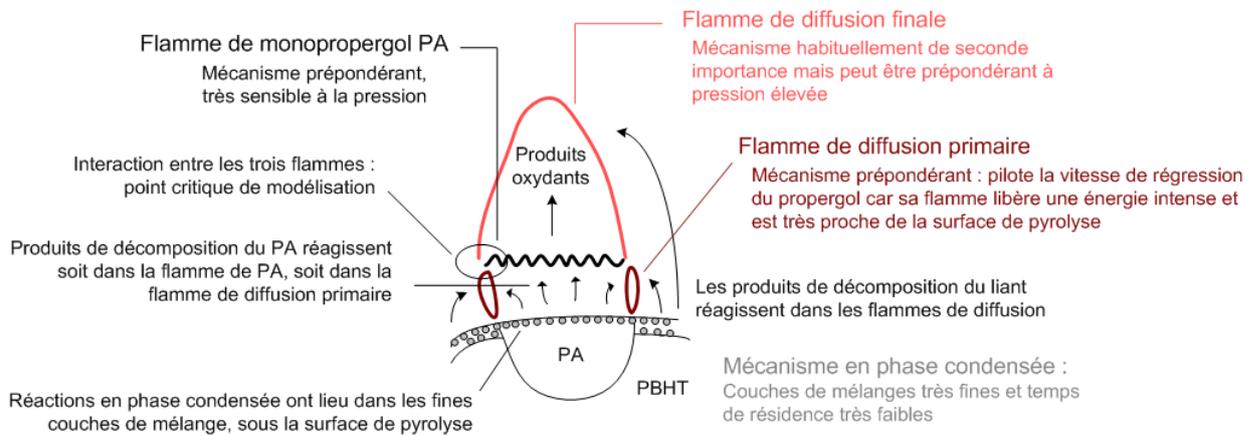


FIG. 2.3 – Modèle BDP (Beckstead-Derr-Price) de la combustion d'un propergol composite [5]

Finalement, la compétition entre ces différents mécanismes rend complexe la compréhension des processus mis en jeu. Néanmoins, le développement des techniques de diagnostic optique, telles que la Fluorescence Induite par Plan Laser (PLIF) ou l'Incandescence Induite par Laser (LII), permet aujourd'hui d'obtenir des données qualitatives et parfois quantitatives sur la structure d'une flamme de propergol composite, à base de PA, pour des configurations simplifiées et à pression relativement faible ($p = 0,1$ à $2,5$ MPa). Par exemple, des études récentes sur échantillons de propergol de type *sandwich* ont montré le rôle clé joué par la flamme de diffusion primaire, plus énergétique, et la grande influence de l'épaisseur de combustible sur la structure de flamme [29]. Ces mesures *in situ*, très

déliçates à mettre en oeuvre compte tenu de l'échelle à laquelle les phénomènes ont lieu, restent un moyen important pour mieux comprendre les effets de la taille des particules de PA et de la pression sur la combustion du propergol.

2.2.2 Effets de la pression sur la structure de flamme

La figure 2.4 décrit l'influence de la pression sur la structure de la flamme de propergol composite pour des particules de PA de tailles intermédiaires ($d_{PA} = 10-100 \mu\text{m}$) [6].

A basse pression ($p \leq 1 \text{ atm}$), la flamme de monopropergol PA, dont la hauteur est inversement proportionnelle à la pression, peut avoir une hauteur supérieure à celle de la flamme de diffusion primaire. Par conséquent, dans ces conditions, seule la flamme de diffusion primaire existe et pilote la pyrolyse du propergol. Par ailleurs, l'onde thermique pénètre en profondeur dans le matériau et les réactions en phase condensée se font sur une grande épaisseur.

A pression modérée ($p = 10-100 \text{ atm}$), la flamme de monopropergol PA peut s'établir et coexister avec la flamme de diffusion primaire dont la structure ne dépend quasiment pas de la pression. On retrouve alors le modèle BDP qui prend en compte l'interaction entre les trois flammes décrites au paragraphe précédent (flammes de diffusion primaire et secondaire et flamme de PA). La flamme de monopropergol PA se rapproche de la surface du matériau solide et commence à être en compétition avec la flamme de diffusion primaire pour le contrôle de la pyrolyse.

A haute pression ($p \geq 100 \text{ atm}$), la flamme de monopropergol PA est très proche de la surface (hauteur de flamme très faible, de l'ordre du micron) et pilote la pyrolyse du propergol. Par conséquent, la flamme de diffusion primaire ne peut s'établir, et seules deux flammes coexistent. En phase condensée, la couche de mélange devient très fine et ce type de réaction perd de son importance.

Ces variations de structure, plutôt qualitatives, ont un impact direct sur la réponse d'un tel propergol aux variations de pression, lors du fonctionnement d'un propulseur à poudre. On retrouve en outre des changements similaires de structure en faisant varier la taille des particules de PA.

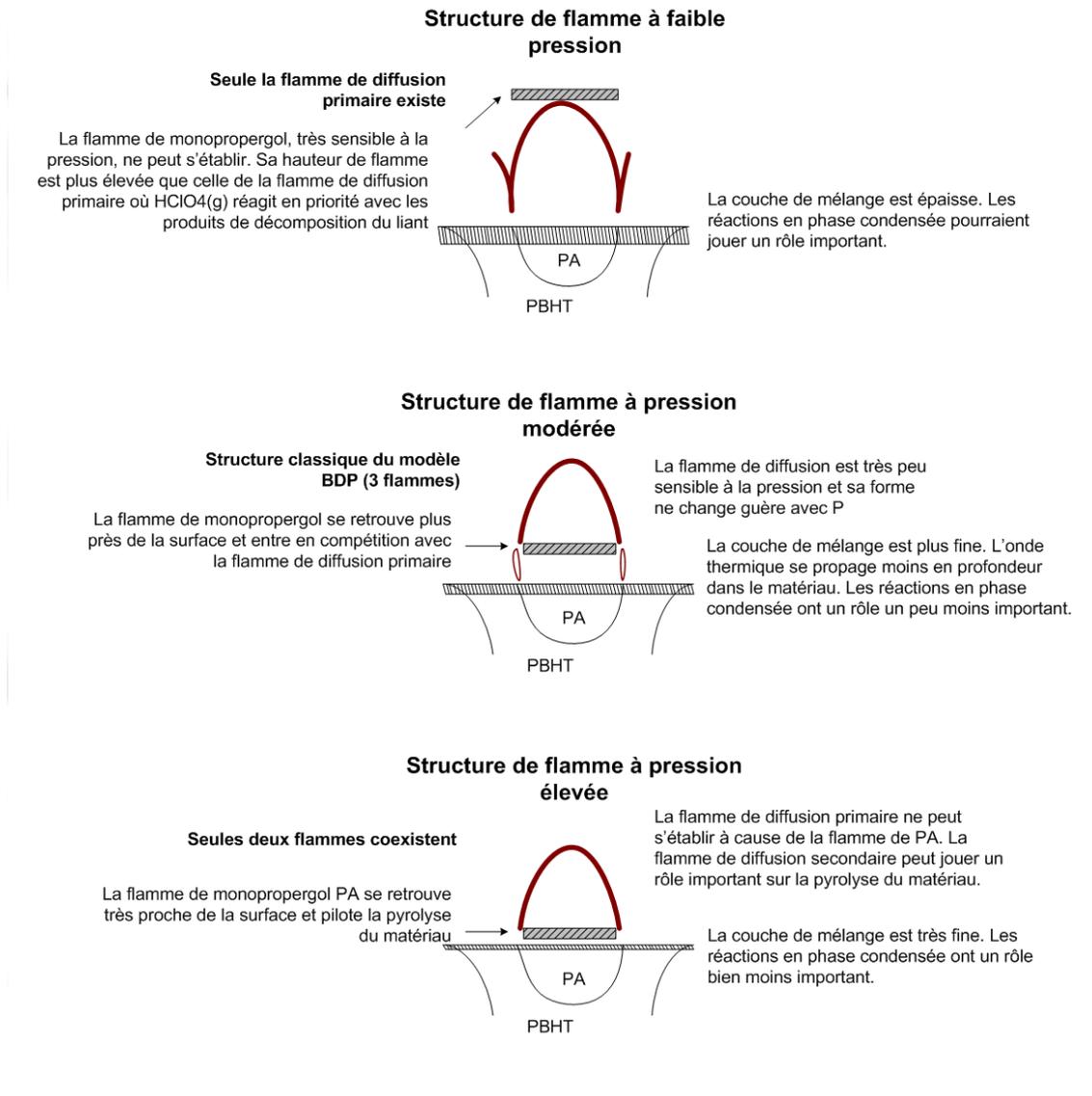


FIG. 2.4 – Influence de la pression sur la structure de flamme pour des tailles de grain de PA de 10-100 μm [6]

2.2.3 Effets de la granulométrie sur la structure de flamme

Le deuxième paramètre, qui influe directement sur la structure de la flamme de propergol composite, est la granulométrie des particules de PA. Sur une gamme de pression de fonctionnement classique des propulseurs à propergol solide ($p = 10\text{-}100 \text{ atm}$), et pour de petites tailles de particule ($d_{PA} \leq 5 \mu\text{m}$), on retrouve ainsi la même structure que celle établie à faible pression [6]. Seule la flamme de diffusion primaire existe dans ce cas, ou

plutôt, seules les réactions entre les produits de décomposition du liant et ceux du PA ont lieu. Dans ces conditions, c'est le régime prémélangé qui prédomine, le temps de diffusion étant très faible devant le temps de cinétique chimique.

Pour des tailles de grain intermédiaires ($d_{PA} = 5-100 \mu\text{m}$), la structure de flamme correspond au modèle BDP, tandis que, pour des particules de grande taille ($d_{PA} \geq 100 \mu\text{m}$), c'est la flamme de monopropérol PA qui prédomine et qui contrôle le processus de pyrolyse.

Aux deux schématisations décrites ici, ont été associés des modèles de combustion stationnaire, à chimie simplifiée, que nous allons préciser. Ils mettent non seulement en évidence la compétition entre les différentes flammes mais permettent aussi de retrouver les effets de la pression et de la granulométrie du PA sur la vitesse de combustion du matériau.

2.3 Modèles de combustion stationnaire 0D-1D

Différentes approches globales ont été proposées afin de prédire au mieux la vitesse de combustion d'un propergol composite [30, 31, 32]. D'une manière générale, ces approches considèrent la combustion du propergol monodimensionnelle et séquentielle : combustion du grain de PA oxydant puis combustion du liant PBHT et ainsi de suite [5]. Les grains de PA sont supposés sphériques et la vitesse de combustion r_b (valeur moyenne temporelle sur un intervalle Δt) liée au temps mis pour brûler une épaisseur de matériau $h = h_{ox} + h_{liant}$ (Fig.2.5). Le temps mis pour consommer la hauteur h de propergol est donc égal à :

$$\Delta t = \frac{h}{r_b} = \frac{h_{ox}}{r_{b_{ox}}} + \frac{h_{liant}}{r_{b_{liant}}} \quad (2.2)$$

En introduisant la fraction volumique de charge ξ_{ox} , on obtient :

$$\frac{1}{r_b} = \frac{\xi_{ox}}{r_{b_{ox}}} + \frac{1 - \xi_{ox}}{r_{b_{liant}}} \quad (2.3)$$

soit en fonction de la fraction massique de charge, α_{ox} , paramètre communément utilisé :

$$\frac{1}{\dot{m}_p} = \frac{\alpha_{ox}}{\dot{m}_{ox}} + \frac{1 - \alpha_{ox}}{\dot{m}_{liant}} \quad (2.4)$$

\dot{m}_p , \dot{m}_{ox} et \dot{m}_{liant} étant respectivement les débits massiques du propergol, de l'oxydant (PA) et du liant (PBHT).

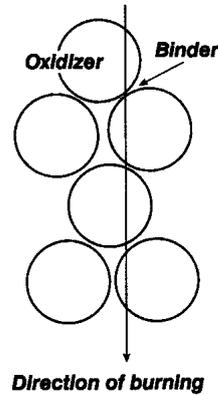


FIG. 2.5 – Représentation de la vitesse de combustion moyenne

Cependant le couplage entre les phases solide et gazeuse, ainsi que l'interaction entre les différentes flammes, ne sont pas toujours modélisés de façon analogue. Aussi il ne s'agit pas ici d'énumérer de manière exhaustive les différents modèles théoriques de combustion de propergol PA-PBHT, mais de présenter les deux modèles associés aux schématisations précédemment décrites (modèle ONERA et modèle BDP), à la base de la plupart des travaux actuels. Ces deux approches, bien que simplifiées et semi-prédictives, traduisent nettement la dépendance de la vitesse de combustion du matériau à la pression et à la taille des grains de PA.

2.3.1 Modèle ONERA

Tout au long de cette partie, des flammes à caractère tridimensionnel sont ramenées à une modélisation monodimensionnelle. Cette hypothèse forte simplifie les calculs et une résolution analytique permet de trouver rapidement le profil de température dans le propergol et la vitesse de combustion. Enfin, ce modèle fait l'hypothèse d'un régime de combustion stationnaire et reprend le schéma présenté Figure 2.2.

Réaction en phase condensée

Lorsqu'un matériau solide est exposé à un flux de chaleur (dans le cas du propergol, le flux issu de la zone de flamme), sa surface régresse et une onde thermique stationnaire s'établit. Le profil de température résulte alors de la conservation de l'énergie exprimée dans un système lié à la surface en régression, à la vitesse r_b et vérifie l'équation de la chaleur :

$$c_{p,p}\rho_p r_b \frac{dT}{dx} = \frac{d}{dx} \left(k_p \frac{dT}{dx} \right) \quad (2.5)$$

Dans cette relation, ρ_p , $c_{p,p}$ et k_p sont les masse, chaleur spécifique et conductivité thermique du propergol. Dans le cas d'un propergol solide composite, ces caractéristiques sont prises constantes à une valeur moyenne et résultent d'une homogénéisation du matériau. La coordonnée x est prise ≤ 0 dans le bloc et les conditions limites sont telles que :

$$T(x = 0) = T_s \quad \text{et} \quad T(x \rightarrow -\infty) = T_0$$

où T_s et T_0 correspondent respectivement aux température de surface et température initiale du matériau.

Par ailleurs, la vitesse de dégradation du propergol dépend de la température, suivant une loi d'Arrhenius. L'évolution de la fraction massique Y_p de propergol non décomposé, en fonction de la position par rapport à la surface, résulte alors de l'équation de conservation :

$$\rho_p r_b \frac{dY_p}{dx} = -\rho_p A e^{\left(-\frac{E_c}{RT}\right)} \quad (2.6)$$

pour une dégradation d'ordre zéro vis à vis de la masse de propergol restant. Les conditions limites associées sont les suivantes :

$$Y_p(x = 0) = 0 \quad \text{et} \quad Y_p(x \rightarrow -\infty) = 1$$

Réaction en phase gazeuse

Le modèle considère une réaction caractérisée par un taux de réaction qui varie suivant $\propto A e^{(-E_g/RT)}$, avec E_g , l'énergie d'activation de la réaction gazeuse supposée très élevée [33]. Il existe alors une zone de l'écoulement où la réaction chimique est peu active (zone non réactive) et une zone de flamme fine où cette réaction se produit (zone réactive).

Dans la phase gazeuse réactive, la conservation de l'énergie dans l'écoulement, exprimée dans un système de référence lié à la surface du propergol en régression à la vitesse r_b , s'écrit, avec $x \geq 0$:

$$\dot{m}'' c_{p,g} \frac{dT}{dx} = k_g \frac{d^2T}{dx^2} + Q_g \left(\frac{P}{T} \right)^m B e^{-\frac{E_g}{RT}} \quad (2.7)$$

Le dernier terme correspond à la chaleur dégagée par la réaction gazeuse exothermique ($Q_g \geq 0$). Les termes $c_{p,g}$ et k_g sont les chaleur spécifique et conductivité thermique des gaz (prises constantes à une valeur moyenne). Le débit de masse unitaire des gaz \dot{m}'' en $kg/m^2/s$ est, par conservation de la masse, constant et égal à $\dot{m}'' = \rho_p r_b$. L'ordre de la réaction est m . m est égal à 2 si la réaction est bimoléculaire, ce qui est le cas le plus fréquent.

Dans la zone non réactive, l'évolution de la température résulte du bilan :

$$\dot{m}'' c_{p,g} \frac{dT}{dx} = k_g \frac{d^2T}{dx^2} \quad (2.8)$$

avec pour conditions aux limites :

$$\begin{cases} T_{x=0} = T_s \\ k_g \left(\frac{dT}{dx} \right)_{x=0} = \dot{m}'' Q_c = \dot{m}'' [c_{p,g} T_s - c_{p,p} T_0 - Q_s] \end{cases}$$

D'après cette dernière relation, le flux de chaleur issu de la flamme vers la surface entretient l'élévation de température du propergol de T_0 à T_s , la chaleur dégagée par la décomposition du propergol Q_s étant prise en compte. L'équation (2.8) a pour solution :

$$T(x) = T_s + \frac{Q_c}{c_{p,g}} \left(e^{x \dot{m}'' c_{p,g}/k_g} - 1 \right) \quad (2.9)$$

qui satisfait aux conditions aux limites. La température de fin de combustion T_f est atteinte à une hauteur x_f (la hauteur de flamme) donnée par l'équation (2.9) avec $T(x_f) = T_f$:

$$x_f = \frac{k_g}{\dot{m}'' c_{p,g}} \ln [1 + c_{p,g} (T_f - T_s) / Q_c] \quad (2.10)$$

A cette relation, il faut ajouter une équation de conservation de l'énergie entre le propergol à température initiale et les gaz issus de la flamme à température T_f :

$$\dot{m}'' (c_{p,g} T_f - c_{p,p} T_0) = \dot{m}'' (Q_g + Q_s) \quad (2.11)$$

qui, incluse dans l'Eq.(2.10) donne :

$$x_f = \frac{k_g}{\dot{m}'' c_{p,g}} \ln \left(\frac{Q_g}{Q_c} \right) \quad (2.12)$$

Si on prend, par exemple, les caractéristiques physico-chimiques d'un propergol composite PA/PBHT, en estimant la température de flamme à $T_f = 2500$ K et la température de surface à $T_s = 650$ K, on obtient une hauteur de flamme $x_f \approx 30 \mu\text{m}$. Cette zone est tout aussi fine que la zone chauffée de la phase solide.

Modélisation des flammes de propergol

En reprenant le schéma Fig.2.2, la flamme de diffusion finale est le lieu de réactions entre l'oxygène excédentaire O_2 , produit par la flamme de PA, et les produits de décomposition du liant (§ 2.2.1). Etant, par définition, entièrement pilotée par les phénomènes de diffusion, on peut établir la loi d'évolution de sa hauteur $x_{f,diff}$ en considérant une colonne de gaz O_2 s'échappant d'une particule de perchlorate d'ammonium de diamètre d_{ox} (Fig.2.6). On note V_g la vitesse des gaz s'échappant de la surface et $x_{f,diff}$ la hauteur de flamme

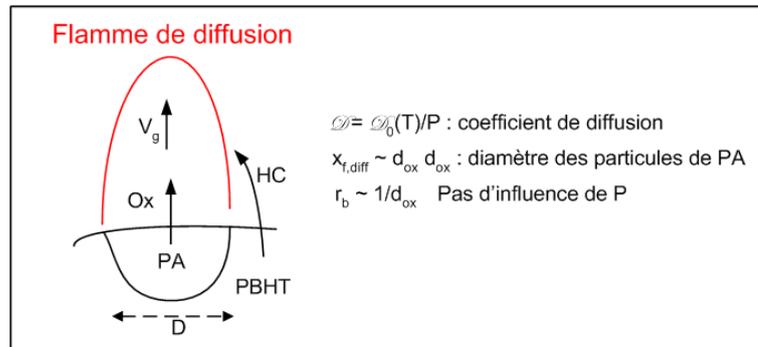


FIG. 2.6 – Flamme de diffusion prépondérante

qui lui est liée :

$$x_{f,diff} \propto V_g \tau_d$$

τ_d est un temps caractéristique de diffusion requis pour que la colonne de gaz oxydant, de diamètre d_{ox} , soit consommée par la diffusion des hydrocarbures issus de la décomposition du liant environnant. Le coefficient \mathcal{D} , qui caractérise la diffusion moléculaire en régime laminaire, s'exprime en cm^2/s , est une fonction de la température et est inversement

proportionnel à la pression : $\mathcal{D} = \mathcal{D}_0(T)/P$. La vitesse latérale de diffusion v_d peut s'écrire :

$$v_d \propto \mathcal{D}/d_{ox} \quad \text{en cm/s}$$

et le temps de diffusion τ_d est donné par :

$$v_d \tau_d \propto d_{ox}$$

Ainsi :

$$\tau_d \propto d_{ox}^2/\mathcal{D} \quad [cm^2]/[cm^2/s] \rightarrow [s]$$

D'où on obtient :

$$V_g \tau_d \propto V_g \frac{d_{ox}^2}{\mathcal{D}} \propto x_{f,diff} \quad (2.13)$$

Par conservation du débit de masse de part et d'autre de la surface de propergol solide, on écrit : $\dot{m}'' = \rho_p r_b = \rho_g V_g$, ρ_g étant la masse volumique du mélange gazeux, donné par l'équation des gaz parfaits. Par l'équation (2.13), on a :

$$x_{f,diff} \propto d_{ox}^2 \dot{m}'' / (\rho_g \mathbf{D}) \quad (2.14)$$

La combinaison des équations (2.12) et (2.14) permet d'obtenir :

$$x_{f,diff}^2 \propto d_{ox}^2 \frac{1}{\rho_g \mathcal{D}} \frac{k_g}{c_{p,g}} \ln \left(\frac{Q_g}{Q_c} \right)$$

Le coefficient $k_g/c_{p,g}$ caractérise le transfert d'énergie par conduction tandis que le coefficient $\rho_g \mathcal{D}$ caractérise le transfert par diffusion et ne dépend que de la température :

$$\rho_g \mathcal{D} = \frac{\mathcal{D}_0(T)}{p} \frac{p}{RT/M}$$

En introduisant le nombre de Lewis, rapport des coefficients d'échanges par diffusion moléculaire, la hauteur de flamme s'écrit finalement :

$$x_{f,diff} \propto d_{ox} (Le)^{-1/2} \left[\ln \left(\frac{Q_g}{Q_c} \right) \right]^{1/2} \quad (2.15)$$

Cette relation montre que la hauteur de flamme, pilotée par la diffusion, est liée essentiellement à la taille des particules de PA et est du même de grandeur ($Le \approx 1$, Q_g et Q_c sont du même ordre de grandeur). D'après l'équation (2.12), on trouve également que :

$$\rho_p r_b = \dot{m}'' \propto \frac{1}{d_{ox}}$$

c'est-à-dire que plus la taille des particules est petite, plus la vitesse de combustion est élevée.

Dans certaines conditions, la cinétique chimique contrôle la combustion et induit une zone de réaction plus épaisse. La hauteur de flamme est alors liée au temps nécessaire pour que la réaction chimique se produise. Le taux de la réaction chimique étant \dot{w} en $\text{g}/\text{cm}^3/\text{s}$, on a :

$$\dot{w} \propto p^2 e^{-E_g/RT} \quad \text{pour une réaction du 2nd ordre}$$

Le temps caractéristique de la réaction chimique s'écrit : $\tau_{ch} \propto \rho_g / \dot{w}$,

La hauteur de flamme $x_{f,pr}$ est alors la distance parcourue par les gaz à la vitesse V_g pendant que se déroule la réaction :

$$x_{f,pr} \propto V_g \tau_{ch}$$

soit avec $\rho_g V_g = \dot{m}''$:

$$x_{f,pr} \propto \frac{\dot{m}''}{\rho_g} \tau_{ch} \propto \frac{\dot{m}''}{\dot{w}}$$

Et, en utilisant la relation (2.12), on déduit finalement :

$$x_{f,pr} \propto \frac{1}{\dot{w}^{1/2}} \propto \frac{1}{p} e^{-E_g/2RT_f}$$

La hauteur d'une flamme contrôlée par la cinétique chimique (flamme de prémélange) est inversement proportionnelle à la pression (pour une réaction d'ordre 2).

Globalement, on représente alors la zone de réaction par une flamme au niveau des particules de PA, flamme prémélangée dont la hauteur x_{PA} est inversement proportionnelle à p , et par une flamme entre oxygène excédentaire et hydrocarbures issus de la décomposition du liant (Fig.2.7). Cette dernière est pilotée par la diffusion, donnant lieu à une hauteur $x_{f,diff} \propto d_{ox}$, à laquelle est ajoutée une épaisseur de flamme prenant en compte la cinétique chimique de la réaction $x_{f,pr} \propto 1/p$. Ainsi la hauteur totale de la flamme de diffusion correspond à la somme de $x_{f,diff}$ avec $x_{f,pr}$ [4]. Les effets de la pression et de la granulométrie peuvent alors être retrouvés par le calcul et directement comparés à ceux observés expérimentalement.

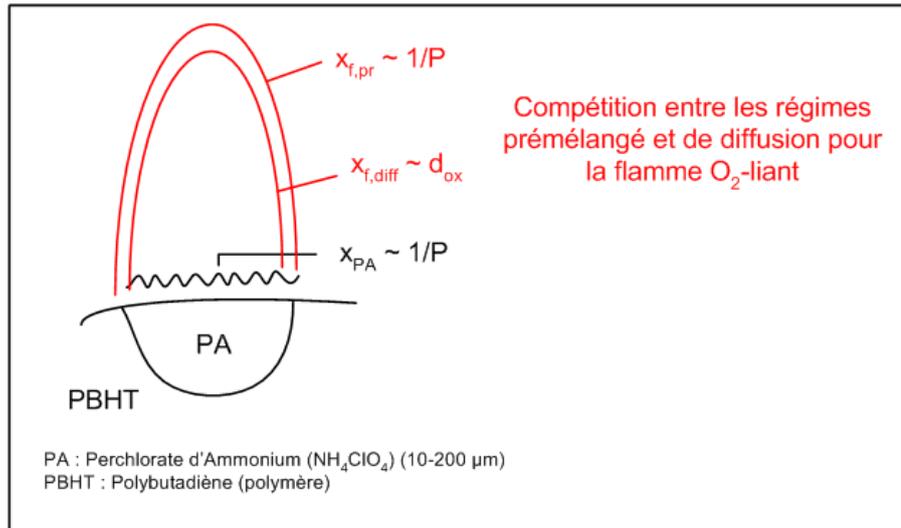


FIG. 2.7 – Compétition entre les flammes de diffusion et de prémélange

Effets de la granulométrie et de la pression sur la vitesse de combustion

D'après le modèle décrit dans cette partie, on peut obtenir, par la modélisation, une estimation de l'évolution de la vitesse de combustion en fonction de la pression et pour différentes tailles de particules PA ($ox = PA$). Les résultats obtenus par le calcul sont comparés, dans certains cas, à ceux issus de l'expérience et présentés Figure 2.8.

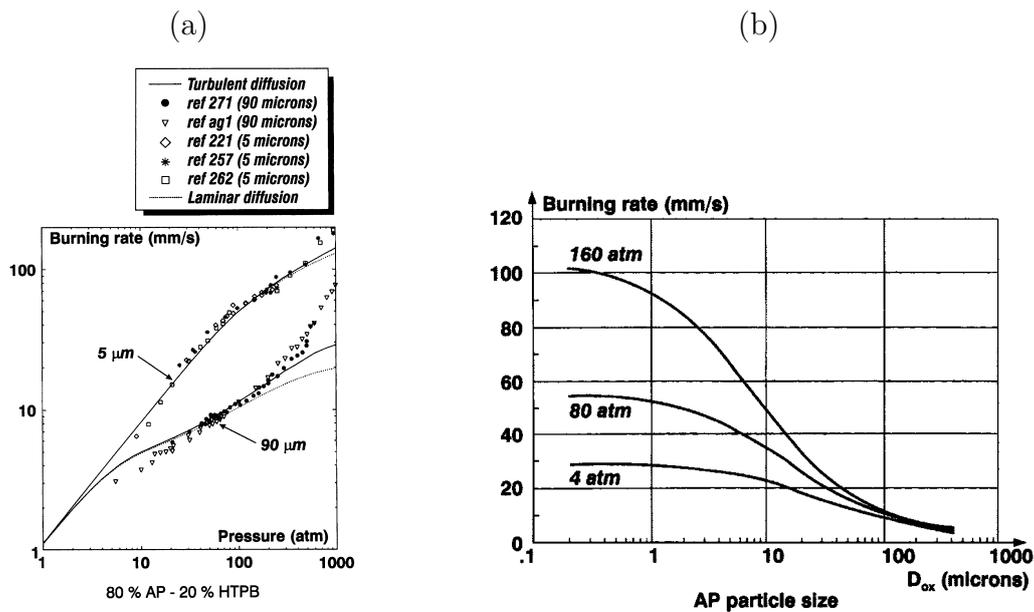


FIG. 2.8 – Influence de la pression et de la granulométrie sur la vitesse de combustion [4]

Pour les particules de PA de petite taille ($d_{PA} = 5 \mu\text{m}$), les réactions en phase gazeuse sont contrôlées par la cinétique chimique et sont très sensibles à la pression. L'exposant de pression de la loi empirique $r_b = ap^n$ est alors proche de 1 (Fig.2.8(a)).

Pour les particules de PA de grande taille ($d_{PA} = 90 \mu\text{m}$), la flamme de diffusion finale est prépondérante. Par conséquent, la vitesse de combustion augmente certes avec la pression mais bien plus modérément que pour de petites particules. Par ailleurs, à pression très élevée, la contribution de la turbulence devient importante mais le modèle ne peut suivre l'augmentation brutale de la vitesse de combustion à partir de 300-400 atm.

Finalement, diminuer la taille des particules de PA revient à augmenter significativement la vitesse de combustion, et ce quel que soit le régime de pression considéré (Fig.2.8(b)). Pour des particules de PA de très petite taille ($d_{PA} \leq 1 \mu\text{m}$), le régime prémélangé étant prépondérant, on arrive à une vitesse limite qu'on ne peut dépasser qu'en introduisant des additifs solubles, tels que des ferrocéniques. Ces derniers laissent un réseau de résidus d'oxyde à la surface, dont l'action est plutôt physique, probablement par rapprochement de la flamme.

2.3.2 Modèle BDP (Beckstead, Derr and Price)

Au début des années 1970, Beckstead et al. ont présenté leur modèle de combustion pour le propergol composite PA-PBHT [5]. Ils soulignent la coexistence de la flamme de monopropergol PA avec deux types de flamme de diffusion (flamme de diffusion primaire et secondaire) et reprend le schéma présenté Figure 2.3.

Phase condensée

La phase condensée se limite à une réaction globale où le débit massique (par unité de surface) d'espèces oxydantes s'écrit selon l'expression d'Arrhénius suivante :

$$\dot{m}_{ox}'' = A_{ox} \exp(-E_{ox}/RT_s) \quad (2.16)$$

qui est directement liée au débit massique total de propergol $\dot{m}_T'' = \rho_p r_b$ selon la formule :

$$\dot{m}_T'' = (\dot{m}_{ox}''/\alpha_{ox})(S_{ox}/S_0) \quad (2.17)$$

où α est la fraction massique d'oxydant, r_b la vitesse de combustion, S_{ox} la surface d'oxydant PA et S_0 la surface totale de propergol.

La température T_s correspond à la température moyenne de surface de propergol et résulte du bilan d'énergie suivant :

$$\begin{aligned} \dot{m}_T'' c_{p,p}(T_s - T_0) = & -\dot{m}_{ox}'' \frac{S_{ox}}{S_0} Q_L - m_f'' \frac{S_f}{S_0} Q_{fuel} + \beta_F Q_{PF} m_T'' \exp(-\xi_{PF}^*) + \\ & (1 - \beta_F) m_{ox}'' \times \frac{S_{ox}}{S_0} [Q_{PA} \exp(-\xi_{PA}^*) + Q_{FF} \exp(-\xi_{FF}^*)] \end{aligned} \quad (2.18)$$

- Q_L et Q_{fuel} (kcal/kg) sont respectivement la chaleur de sublimation du PA et la chaleur nécessaire à la pyrolyse du liant PBHT.
- Q_{PF} , Q_{FF} et Q_{PA} (kcal/kg) correspondent à l'énergie dégagée respectivement par la flamme de diffusion primaire, secondaire (ou finale) et par la flamme de mono-propergol PA.
- ξ_{PF}^* , ξ_{FF}^* et ξ_{PA}^* sont les hauteurs addimensionnées respectivement des flammes de diffusion primaire, secondaire et de la flamme de PA.
- le facteur β_F représente la fraction d'oxydant qui réagit dans la flamme de diffusion primaire
- c_p (cal/kg/K) est la chaleur spécifique moyenne du propergol.

Phase gazeuse

Au contraire du modèle ONERA, trois flammes sont mises en avant. Les flammes de diffusion primaire et secondaire sont, par définition, pilotées par la diffusion des espèces réactantes. Leur hauteur de flamme est donc proportionnelle au diamètre de grain de perchlorate d'ammonium : d_{ox} . Par ailleurs, un terme tenant compte de la hauteur de flamme de PA est ajouté dans le cas de la flamme de diffusion secondaire (Eq.2.19). De même, la hauteur de la flamme de diffusion primaire est la somme de deux termes : le premier est directement lié à la hauteur d'une flamme de diffusion infiniment rapide, type Burke-Schumann, le second correspond à la hauteur d'une flamme contrôlée par la cinétique chimique (Eq.2.20). Enfin, la hauteur de la flamme de PA est directement calculée à partir de l'expression obtenue dans le cas d'une flamme contrôlée par la cinétique

chimique (Eq.2.21).

$$\xi_{FF}^* = c_{p,p} \dot{m}_{ox}''(x_{PA}^* + \bar{x}_D^*)/k_p \quad (2.19)$$

$$\xi_{PF}^* = c_{p,p} \dot{m}_T''(\bar{x}_{PD}^* + x_{PF}^*)/k_p \quad (2.20)$$

$$\xi_{PA}^* = (c_{p,p} \dot{m}_{ox}''/k_p) x_{PA}^* = c_{p,p} \dot{m}_{ox}''^2 / (k_p R_{PA} P^\delta) \quad (2.21)$$

k_p et $c_{p,p}$ étant respectivement les conductivité thermique et chaleur spécifique moyennes du propergol. R_{PA} correspond au taux de réaction de la pyrolyse du PA.

D'autre part, le facteur β_F rend directement compte de la compétition entre ces trois flammes. A basse pression, β_F vaut 1 et seule la flamme de diffusion primaire s'établit. A pression plus élevée, il est compris entre 0 et 1 : les flammes de diffusion primaire et de monopropergol PA coexistent. A haute pression, la hauteur de la flamme de PA est si petite que les produits issus de la décomposition du PA réagissent très peu avec ceux issus du liant : β_F est très proche de 0.

Effets de la pression et de la granulométrie sur la vitesse de combustion

La figure 2.9 traduit la forte dépendance de la vitesse de combustion du propergol à la granulométrie. A pression modérée (de l'ordre de 68 bars), pour de petites particules de PA, la flamme de diffusion primaire est dominée par la cinétique chimique. Dans ces conditions, les espèces réactantes issues du liant et du PA s'approchent d'un régime de prémélange. Pour des particules un peu plus grosses, la flamme de diffusion primaire prédomine (régime BDP) puis, pour de très gros grains de PA, la flamme de monopropergol tend à être prépondérante et l'effet de la granulométrie s'atténue. Ces résultats montrent bien que la vitesse de combustion peut changer d'un ordre de grandeur en fonction de la taille des grains de PA. Notons que, pour les pressions plus faibles, la courbe se décale vers le bas et la gauche : on atteindra la limite du régime prémélangé pour des tailles de particules plus grandes. Pour des pressions élevées, le décalage se fera vers le haut et la droite, et la flamme de monopropergol PA sera prédominante.

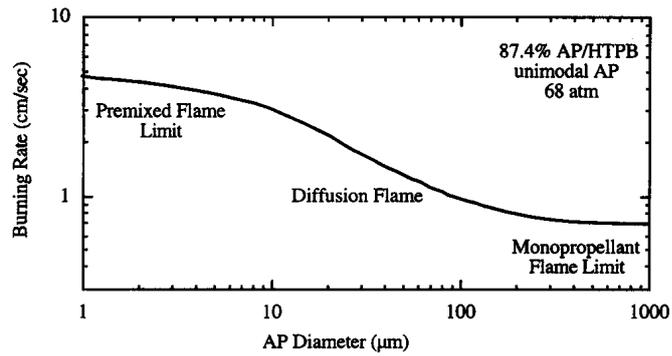


FIG. 2.9 – Influence de la granulométrie et de la pression sur la vitesse de combustion [7]

2.3.3 Atouts et limites des modèles globaux

Ce type de modèle décrit les phénomènes physico-chimiques prépondérants de la combustion d'un propergol solide type PA-PBHT et souligne la grande influence de la pression et de la taille des grains de PA sur la nature des flammes mises en jeu. Malgré leur relative simplicité, les deux modèles présentés dans cette partie donnent des résultats tout à fait en accord avec l'expérience.

Cependant, une telle schématisation ne tient pas compte de la nature tridimensionnelle de la flamme. Il simplifie également les hétérogénéités du matériau qui accentuent pourtant la non-linéarité de la régression de la surface de pyrolyse. D'autre part, les réactions en phase condensée sont simplifiées et le régime de combustion transitoire n'est pas pris en compte, point que nous abordons dans la partie suivante.

2.4 Modèles de combustion instationnaire

Tandis que les deux modèles globaux précédents supposent établi le régime de combustion en phases gazeuse et condensée, d'autres modèles monodimensionnels tiennent compte de la dépendance au temps du phénomène. L'objectif principal est alors de prédire la réponse du matériau énergétique à des fluctuations de pression ou de flux radiatif incident. Les hypothèses considérées sont en général les suivantes :

1. régime quasi-stationnaire en phase gazeuse
2. régime instationnaire en phase condensée

3. matériau énergétique homogène
4. transports monodimensionnels
5. chimie simplifiée

Sous ces hypothèses, deux approches ont été développées ces dernières années. La première, plus phénoménologique, se base sur le modèle de Zel'dovich-Novozhilov (ZN) [34]. Elle s'affranchit des paramètres liés à la cinétique chimique aussi bien en phase condensée qu'en phase gazeuse. Elle suppose, d'une part, la zone de décomposition du solide suffisamment petite pour être considérée comme un phénomène de surface et, d'autre part, le temps de transit des espèces très petit devant le temps caractéristique des perturbations.

Contrairement à la première, la seconde approche consiste à modéliser la réaction en phase gazeuse par une expression de type Arrhénius [$M = A_g P^n \exp(-E_g/2RT_{inf})$], puis à la coupler avec la réaction en phase condensée. Le modèle DBW (Denison-Baum-Williams), qui en est l'un des premiers exemples, vérifie le couplage phase solide - phase gazeuse pour de grandes énergies d'activation E_g ($E_g/RT \gg 1$), cependant il ne peut prédire avec précision la dépendance de la vitesse de combustion à la pression [35]. Plus récemment, le modèle WSB (Ward-Son-Brewster) suppose, au contraire, l'énergie d'activation de la réaction en phase gazeuse très petite et ce, dans le but de mieux représenter globalement le champ de température en phase gazeuse et la dépendance à la pression de la vitesse de combustion [36]. Ce modèle fut dans un premier temps développé en régime stationnaire puis étendu au régime transitoire [37, 38].

C'est d'ailleurs à partir de ce modèle que Jackson et al. [39] comparent les solutions obtenues dans le cas d'un problème complet, d'un modèle asymptotique et d'un simple modèle de pyrolyse. La signification des paramètres de calcul tels que le coefficient de pression n_s ou l'énergie d'activation E_g de la réaction gazeuse, est notamment discutée.

Toutefois, si ce genre d'approche donne des résultats satisfaisants pour la combustion de propergols homogènes, cela reste beaucoup moins évident concernant les propergols composites à base de perchlorate d'ammonium [38]. La structure hétérogène du matériau ne permet pas, jusqu'à présent, de prédire avec précision la réponse de la combustion à

des fluctuations de pression ou de flux incident et ce, malgré les efforts récents menés dans ce sens [40, 41]. C'est pourquoi, des simulations multidimensionnelles, certes plus coûteuses en ressources de calcul, représentent désormais une approche plus réaliste et capable de mieux rendre compte de la complexité des phénomènes due à la nature hétérogène du matériau.

2.5 Vers des simulations numériques multi-D instationnaires

Au cours des années 2000, le formidable essor des moyens de calculs a permis de résoudre numériquement des problèmes de plus en plus complexes, demandant des ressources en mémoire de plus en plus grandes. Ainsi, les simulations de la combustion de propergol solide PA/PBHT sont désormais bidimensionnelles (2D) [42] voire même tridimensionnelles (3D) [43]. De tels modèles calculent les champs de température, vitesse et pression, dans deux ou trois directions, en se basant sur les équations de conservation pour des écoulements à faible nombre de Mach. La plupart des modèles 2D ont été développés dans le but de retrouver la structure d'une flamme de propergol PA/PBHT de type *sandwich* [42, 44], configuration simplifiée pour laquelle on s'affranchit de la troisième dimension et qui a servi de base à de nombreuses études expérimentales [45, 46, 29]. Ce dernier type de modélisation ne sera cependant pas abordé dans cette partie et nous nous limiterons à une présentation succincte des simulations 3D, principalement développées par Buckmaster et al. [47].

2.5.1 Modélisation de la morphologie du propergol

Des modèles de *Packing* ont été utilisés pour décrire la structure hétérogène d'un propergol composite [48]. Ainsi, des sphères de diamètres différents sont réparties aléatoirement dans un cube de plus grandes dimensions (Fig.2.10). Les paramètres à fixer pour générer ce type de *Packing* sont les dimensions du cube, le diamètre des sphères (densité de probabilité de forme gaussienne centrée sur un diamètre moyen de 100 μm par exemple) et la fraction volumique des sphères dans le cube. Un tel modèle représente assez fidèlement

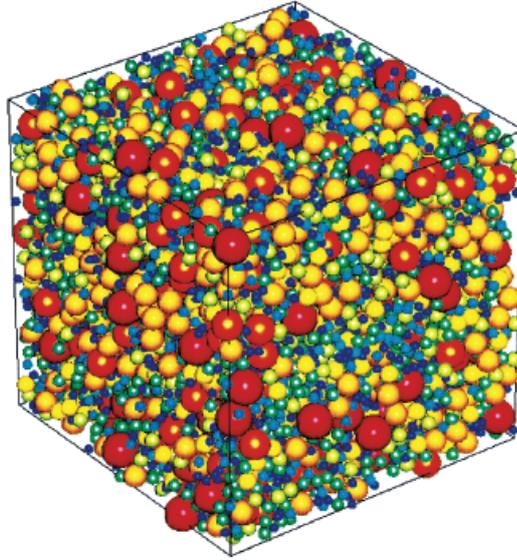
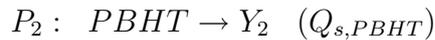
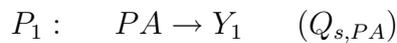


FIG. 2.10 – Exemple d'un *Pack* de 10000 particules de différents diamètres

la répartition des grains de PA dans la matrice de liant, même si, en réalité, la forme des particules de PA n'est pas parfaitement sphérique.

2.5.2 Modélisation de la phase condensée

Une fois la morphologie du propergol définie, la décomposition du liant et du PA solides est définie par une loi de pyrolyse 0D (expression de type Arrhénius), dont les paramètres (facteur pré exponentiel A_p et énergie d'activation E_p) ont été déterminés de telle façon qu'une petite variation de température de surface engendre de grandes variations de vitesse de combustion.



avec la loi de pyrolyse suivante $r_b = \begin{cases} r_{PA} = A_{PA} \exp[-E_{PA}/(RT_{PA,s})] & (PA) \\ r_{liant} = A_{liant} \exp[-E_{liant}/(RT_{liant,s})] & (PBHT) \end{cases}$

La définition d'une fonction marqueur Ψ permet de savoir si un point se trouve sur une particule de PA ou sur la matrice de liant PBHT [44]. Ainsi, les propriétés physico-chimiques

du matériau (conductivité thermique k_c et masse volumique ρ_c) sont des propriétés locales déterminées comme suit :

$$\rho_c = \begin{cases} \rho_{PA} \\ \rho_{PBHT} \end{cases} \quad k_c = \begin{cases} k_{PA} & \text{si } \Psi \geq 0 \\ k_{PBHT} & \text{si } \Psi < 0 \end{cases}$$

Enfin, les effets de diffusion de masse liés à la régression du solide sont négligés, et une simple équation de la chaleur est résolue dans cette phase.

2.5.3 Conditions de saut à l'interface

Le couplage avec la phase gazeuse a ensuite été réalisé en définissant des conditions de saut appropriées, où l'opérateur de saut est défini tel que : $[\cdot] = (\cdot)_g - (\cdot)_c$. La température, le débit massique normal à l'interface ainsi que la composante tangentielle de la vitesse sont considérés comme continus au niveau de l'interface gaz-solide :

$$[T] = 0 \quad (2.22)$$

$$[\vec{v} \times \vec{n}] = 0 \quad (2.23)$$

$$[M] = [\rho(v_n + r_b)] = 0 \quad (2.24)$$

De plus, les conservations d'énergie et de masse à l'interface donnent deux conditions supplémentaires :

$$\left[k_g \vec{n} \cdot \vec{\nabla} T \right] = -Q_s \rho_c r_b \quad (2.25)$$

$$\left[\frac{k_g}{c_{p,p}} \vec{n} \cdot \vec{\nabla} Y_i \right] = \rho_c r_b [Y_i] \quad (2.26)$$

2.5.4 Suivi d'interface

Dans un premier temps, la méthode dite de *mapping* a été utilisée par Massa et al. [49]. Elle consiste à représenter l'interface gaz-solide par une seule fonction dépendant du temps et de l'espace et gouvernée par une équation d'Hamilton-Jacobi. Néanmoins, une telle approche ne permet pas numériquement de rendre compte de la complexité de la régression de surface. Elle a donc été abandonnée au profit d'une technique de suivi d'interface plus générale, telle que la méthode des lignes de niveau (ou *level set method*)

[50]. Cette dernière consiste à introduire une fonction de ligne de niveau ϕ définie par l'équation de transport suivante :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \vec{V} \cdot \vec{\nabla} \phi = 0 \quad (2.27)$$

avec : $\phi(x, y, t) > 0$ dans la phase gazeuse

$\phi(x, y, t) < 0$ dans la phase solide

$\phi(x, y, t) = 0$ à l'interface

Puis, en définissant la normale à l'interface \vec{n} et la vitesse de déplacement du front \vec{V} à partir de la vitesse de combustion du propergol r_b :

$$\vec{V} = -r_b \vec{n} \quad \text{et} \quad \vec{n} = \frac{\vec{\nabla} \phi}{|\vec{\nabla} \phi|}$$

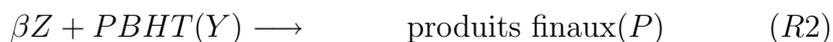
on obtient l'équation de suivi d'interface :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} - r_b \cdot |\vec{\nabla} \phi| = 0 \quad (2.28)$$

Cette méthode est couplée à un solveur en phase gazeuse qui résout les équations de conservation de masse, d'espèces, d'énergie et de quantité de mouvement, pour les écoulements à faible nombre de Mach, et dont nous allons maintenant préciser le modèle de cinétique chimique.

2.5.5 Modélisation de la phase gazeuse

Même si Massa et al. [49] ont obtenu des résultats numériques probants sur l'interaction entre les trois types de flamme en représentant le modèle BDP par un schéma cinétique à trois étapes réactionnelles (1 étape \equiv 1 flamme), la plupart des approches multi-D, avec suivi d'interface, utilisent un schéma à deux étapes. Une telle approche est volontairement simplifiée afin de ne pas accroître la demande en ressources de calcul et de pouvoir ainsi être couplée à une méthode de suivi d'interface plus complexe, telle que la méthode des lignes de niveau. Dans ce cas, le mécanisme simplifié s'écrit :



où les vitesses de réaction s'écrivent :

$$\begin{aligned} R_1 &= D_1 P_0^{n_1} X \cdot \exp \left[-\frac{E_1}{RT} \right] \\ R_2 &= D_2 P_0^{n_2} X \cdot \exp \left[-\frac{E_2}{RT} \right] \end{aligned}$$

X, Y et Z sont les fractions massiques des espèces globales considérées et D_i et E_i ($i=1,2$) sont respectivement les facteurs préexponentiels et énergies d'activation des deux réactions. Ces deux constantes sont obtenues par recalage, de même que l'exposant de pression n_i , ce qui limite l'aspect prédictif du modèle. En outre, les chaleurs $Q_{g,1}$ et $Q_{g,2}$ des réactions 1 et 2 sont choisies afin d'obtenir les températures adiabatiques de la flamme de monopropérol ($T_{PA}^{ad} = 1500$ K) et de la flamme de diffusion secondaire (ou finale) ($T_{diff}^{ad} = 2500$ K).

Ce type de modélisation ouvre un champ d'investigation intéressant sur la modélisation numérique tridimensionnelle de la combustion des propergols composites. L'ajout de particules d'aluminium n'est plus, grâce aux méthodes développées, un obstacle à la modélisation [51] et permet de mieux appréhender la structure des différentes flammes mises en jeu. Toutefois, ces approches multi-D demandent encore des ressources de calcul considérables et seules des simulations à échelles microniques, et en considérant des chimies très simplifiées, ont été jusqu'à présent réalisées. La perspective ambitieuse d'affiner la modélisation de la cinétique chimique ou d'étendre ces modèles à des domaines d'application plus grands (chambre de combustion, bâtiments de stockage de gros propulseurs, etc) devrait entraîner le développement de nouvelles méthodes numériques dans les années à venir.

2.6 Conclusion : à pression atmosphérique

Ce premier chapitre a mis en avant la complexité des phénomènes physico-chimiques ayant lieu lors de la combustion d'un propergol solide PA/PBHT. Deux, voire trois flammes coexistent et se retrouvent en compétition pour le contrôle de la pyrolyse du matériau. La structure d'une flamme de propergol composite est par conséquent très difficile à appréhender et ce d'autant plus qu'elle dépend fortement de deux paramètres : la

taille des particules de PA et la pression. Aussi, les différents modèles développés au cours des 40 dernières années, qu'ils soient globaux, mono-, bi- ou tridimensionnels, ont eu pour principal objectif de représenter la dépendance de la vitesse de combustion du propergol à ces deux paramètres. Ils ont, pour la plupart, négligé le rôle des réactions en phase condensée qui, pour des pressions de fonctionnement de propulseur, restent confinées à une zone très fine et n'ont, par conséquent, qu'une influence limitée sur la vitesse de régression du matériau.

Cependant, notre cadre d'étude se limite à la pression atmosphérique. Dans ce cas, la couche de mélange est plus épaisse et les réactions exothermiques en phase condensée pourraient être non négligeables. De plus, en phase gazeuse, c'est la cinétique chimique qui contrôle les réactions, d'après les modèles globaux considérés. Enfin, nous nous intéressons aux propergols solides de type PA-PBHT, auxquels ont été ajoutées des particules métalliques d'aluminium. L'objet de la partie suivante est alors de préciser les phénomènes associés à la combustion de ces propergols aluminisés.

Chapitre 3

Formation et combustion des gouttes d'aluminium

Les premiers propergols solides aluminisés ont été fabriqués dans les années 1950, équipant principalement des propulseurs tactiques américains de tailles modérées. Ayant pour effet de limiter les instabilités de combustion, leur utilisation est étendue aux missiles balistiques longue et moyenne portées, jusqu'au programme du missile nord-américain Subroc qui démontre que les effets "magiques" de l'aluminium ne fonctionnent pas dans tous les cas [52]. A partir des années 1970, de gros efforts sont alors fournis afin de mieux comprendre les phénomènes physiques mis en jeu dans le but de :

- réduire les instabilités de combustion [53, 54, 55];
- contrôler la luminosité du panache de la flamme en sortie de tuyère.

De nombreux travaux sur la formation et la combustion des gouttelettes d'aluminium ont été menés depuis et mettent en évidence les grands mécanismes suivants [8, 56, 57, 58] :

- Accumulation et agglomération de l'aluminium en surface de propergol;
- Formation, allumage et combustion des gouttes d'aluminium;
- Production, agglomération et fragmentation des particules d'alumine Al_2O_3 .

Plusieurs études sont, aujourd'hui encore, effectuées sur la combustion des propergols aluminisés, principalement dans des conditions de fonctionnement de propulseur. L'objectif est notamment de limiter l'accumulation des gouttes d'alumine en fond de tuyère [59]. Le cadre de notre étude est certes quelque peu différent, mais il est important de bien comprendre les mécanismes physico-chimiques mis en jeu pour mieux appréhender les

feux de propergol. Ainsi, nous décrivons les principaux phénomènes observés puis nous présenterons les travaux menés sur ce sujet, qu'ils soient théoriques ou expérimentaux.

3.1 Principaux effets de l'ajout de particules d'aluminium

Encore relativement bon marché et assez sûr d'utilisation, l'aluminium demeure un métal dont les propriétés en ont fait un additif de premier choix pour la composition des propergols solides (Tab.3.1). La combustion des gouttes d'Al, dans les gaz de propergol, libère une grande énergie, ce qui augmente significativement la température du milieu ($T = 3000-3500$ K). L'impulsion spécifique du propulseur croît alors de près de 10% et les instabilités de combustion sont atténuées [53, 54, 55].

Densité		2.70
Conductivité thermique k_{Al}	(J/cm/K)	2.10
Chaleur spécifique $c_{p,Al}$	(J/g/K)	0.895
Température de fusion T_{fus}^{Al}	(K)	933
Température d'évaporation T_{vap}^{Al}	(K)	2740

TAB. 3.1 – Propriétés de l'aluminium solide

Néanmoins, les fumées d'alumine Al_2O_3 résultant de cette combustion de goutte ont pour effet négatif de se déposer en fond arrière de propulseur (*slag accumulation*), comme dans le cas du lanceur Ariane V, et nuisent aux performances dudit moteur. Les effets thermiques de cette zone de mélange multiphasique très chaude et très émissive ($\epsilon_{Al_2O_3} = 0,15-0,35$ sur la bande spectrale $[2,25 \mu m - 3,45 \mu m]$ [60]), sur les composés du moteur, imposent également de concevoir des protections adéquates résistant à des contraintes aussi sévères.

D'un point de vue sécurité pyrotechnique, en cas d'éclatement pneumatique d'un propulseur à poudre par exemple, l'ajout de particules d'aluminium pourrait enfin avoir des effets aggravants sur la propagation d'un feu de propergol.

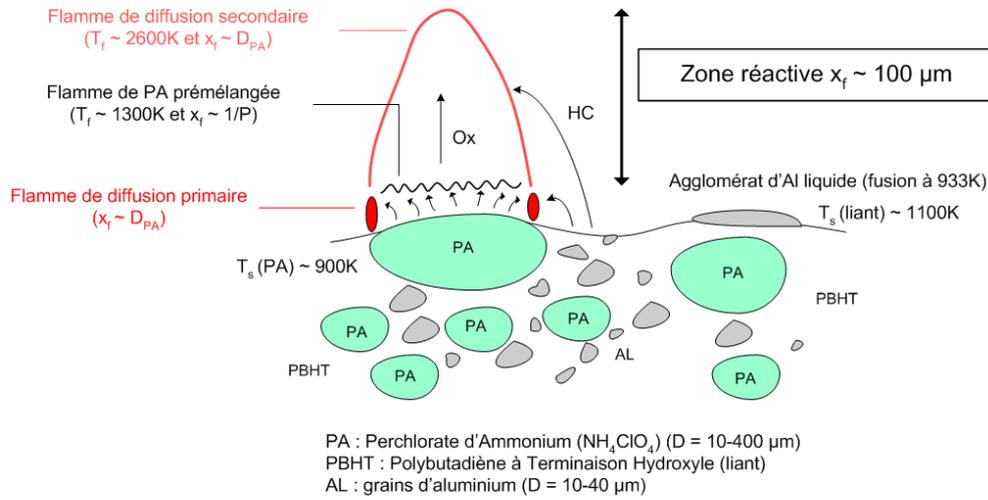


FIG. 3.1 – Combustion d'un propergol PA-PBHT-Al

3.2 De la particule solide au globule liquide

Les particules métalliques initiales résultent, tout d'abord, de l'atomisation puis du refroidissement de gouttes d'aluminium liquide, en atmosphère très pauvre en O_2 , afin d'éviter toute inflammation intempestive. Une fine couche d'oxyde se forme alors quasi-instantanément autour des particules dès que celles-ci se retrouvent en milieu oxydant, pendant le processus de fabrication. C'est pourquoi, les particules solides d'Al, incluses dans la matrice du liant PBHT entre les gros grains de PA, ne sont pas parfaitement sphériques et ont une granulométrie variable (Fig.2.1).

Après l'allumage du propergol et dès lors que le front de combustion atteint les particules solides d'aluminium, ces dernières ne fondent pas instantanément car elles sont généralement recouvertes d'une fine couche protectrice d'oxyde Al_2O_3 , de température de fusion très élevée ($T_{fus}^{\text{Al}_2\text{O}_3} = 2327 \text{ K}$). Elles se mélangent alors à la couche liquide de liant sans pour autant s'allumer, le milieu étant trop riche en combustible et de température trop faible ($T_s^{\text{liant}} \approx 1100 \text{ K}$). Elles vont alors se concentrer en poches, de part et d'autre du PA [61], puis fusionner progressivement pour former finalement une grosse goutte ou globule. La distribution de taille de ces globules dépend principalement :

1. du packing de particules composant le propergol

2. des propriétés de tension de surface du liant
3. des mécanismes de connexion entre les particules
4. de la formation des agglomérats puis de gouttes
5. de la prédisposition des gouttes à s'allumer à la surface du propergol

La description de ces différents processus s'appuie essentiellement sur les travaux de Price et al. [8, 62]. Elle doit ainsi nous permettre de mieux appréhender la nature des gouttes d'aluminium qui brûlent en milieu gazeux, ainsi que celle des oxydes qui en résultent.

3.2.1 Influence du packing

Les particules d'aluminium sont souvent injectées en remplacement des plus petits grains de PA et ont généralement une granulométrie allant de 5 à 200 μm , avec une majorité de particules de diamètre $d = 10\text{-}40 \mu\text{m}$. Un chargement élevé en aluminium élimine *de facto* les particules de PA les plus fines et favorise ainsi la formation des poches de combustible Al (Solide) + Liant (Liquide) entre les grosses particules de PA (Fig.3.2). Seules les frontières d'une poche sont en effet susceptibles de réagir avec l'oxydant issu du PA voisin. A l'inverse, une augmentation de la taille moyenne des particules d'alumi-

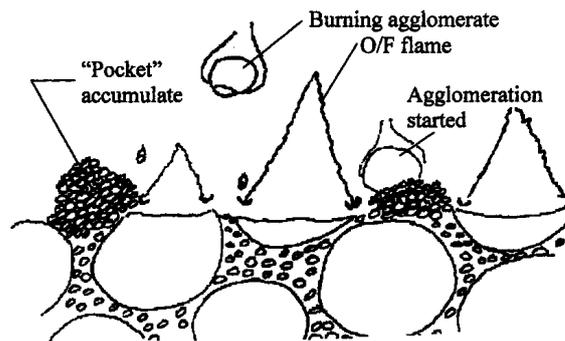


FIG. 3.2 – Accumulation des particules d'Al formant des "poches" de part et d'autre des particules de PA

nium (à 100 μm par exemple) accroît les distances entre chaque particule et limite par conséquent leur accumulation.

3.2.2 Effet des forces de tension superficielle

Au passage du front de combustion, les particules d'aluminium adhèrent à la matrice liquide de liant. Les tensions de surface entre l'aluminium et le liant mais aussi entre les particules elles-même vont gouverner la formation des poches. Cette accumulation dépend donc directement des propriétés du liant et des particules d'aluminium. Toutefois, aucune mesure n'a permis jusqu'à présent de quantifier les forces régissant ces mécanismes.

3.2.3 Connexion entre particules

Même si les processus de connexion entre particules d'aluminium demeurent complexes, deux mécanismes distincts ont été observés [8] : - soit la poche d'aluminium se détache sous forme de globule, dont on détaillera le processus de formation dans la partie suivante - soit elle se détache sous forme d'agglomérat ou groupe de particules (*sintering clusters*) dont la coalescence s'achève finalement en milieu gazeux. C'est généralement l'environnement local autour de la poche d'aluminium (milieu gazeux oxydant ou pas, proximité des flammes de PA et de diffusion primaire), qui contrôle les mécanismes d'interconnexion. Ainsi, sous des conditions d'allumage très défavorables, il arrive même que ces groupes de particules ne quittent pas la surface de propergol et se déposent sur les grains de PA.

3.2.4 Formation des globules

Un scénario possible décrivant la formation du globule à la surface du propergol, à partir d'une poche d'aluminium, est décrit par la Figure 3.3(a). S'enchaînent alors :

- Fissuration locale de la couche protectrice d'alumine d'une ou plusieurs gouttes ;
- Coalescence progressive des particules d'aluminium composant la poche ;
- Oxydation exothermique de certaines particules favorisant la fusion de l'agglomérat ;
- Formation d'un globule de forme finale quasi-sphérique sous l'effet des tensions superficielles.

Le globule alors formé est transporté dans le milieu gazeux et présente les mêmes caractéristiques de combustion qu'une goutte brûlant individuellement. On retrouve en effet la présence d'un lobe d'alumine Al_2O_3 en surface de goutte et la formation de fumées

d'oxyde dans le sillage du globule (Fig.3.3(b)).



FIG. 3.3 – (a) Schématisation du mécanisme de formation d'un globule [8] (b) Prise de vue de la combustion de gouttes d'Al au-dessus de la surface d'un propergol PA/PBHT/Al ($p = 0,6$ MPa) [9]

La distribution de tailles de ces globules dépend alors très fortement de la pression p du milieu gazeux. Tandis qu'à $p = 50$ atm, environ 2/3 des particules d'aluminium ne s'agglomèrent pas et brûlent individuellement en ambiance gaz de propergol [63], Parr et al. observent qu'à pression atmosphérique, la majorité des gouttes d'Al coalescent à la surface du propergol pour former des globules de plus grands diamètres [64]. Dans le même sens, des mesures quantitatives montrent que leur diamètre moyen d_{43} ¹ décroît rapidement avec p (Fig.3.4). Tout comme la structure de la flamme de propergol PA/PBHT, le mécanisme d'agglomération des gouttes d'aluminium semble dépendre fortement de la pression.

3.2.5 Prédiposition des gouttes à s'allumer à la surface du propergol

Bien que l'aluminium soit très réactif en milieu oxydant, l'allumage des gouttes est limité par la fine couche protectrice d'alumine qui représente, en général, 0.5% de la masse d'une goutte de diamètre $25 \mu\text{m}$. Dès que la température du milieu environnant atteint

¹diamètre de De Brouckere ou de Herdan, correspondant à la moyenne arithmétique d'une distribution volumique de gouttes

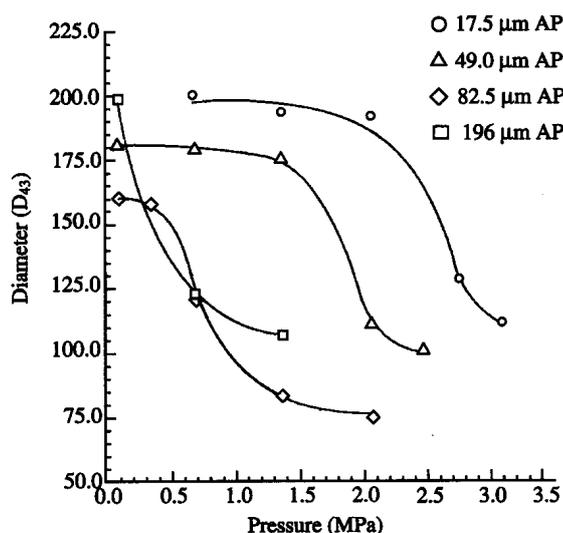


FIG. 3.4 – Influence de la pression sur la taille moyenne des globules, pour une granulométrie bimodale de particules de PA (taille des grains les plus fins indiquée en légende) [10]

$T_{fus}^{Al_2O_3} = 2327$ K, la pellicule d'oxyde est percée et la goutte s'allume quasi-instantanément [11]. Cependant, de telles conditions de température sont rarement atteintes en surface de propergol ($T_s^{liant} = 1100$ K). Seule une goutte individuelle se détachant en milieu oxydant (près d'une flamme de PA) ou à proximité d'une flamme de diffusion primaire (très énergétique) est à même de s'allumer non loin de la surface de propergol.

L'allumage des gouttes individuelles peut être favorisé, d'une part, par l'injection de particules initiales d'aluminium de gros diamètres ($d_{moyen} = 50-100$ μm). L'accumulation en poches s'en trouve alors réduite, les particules d'Al étant isolées entre les gros grains de PA. D'autre part, augmenter la concentration en fines particules de PA permet d'obtenir, en surface de propergol, une matrice combustible Al + Liant à laquelle s'ajoutent les grains oxydants de PA de petite taille. La zone réactive de la flamme de PA et/ou de la flamme de diffusion primaire est alors suffisamment proche de la particule d'Al pour que celle-ci s'allume avant de s'accumuler avec d'autres. Toutefois, cet effet dépend beaucoup de la pression, à laquelle la hauteur de la flamme de PA est inversement proportionnelle. En outre, les catalyseurs tels que Fe_2O_3 peuvent réduire l'accumulation de l'aluminium en diminuant la hauteur des flammes en phase gazeuse, ce qui tend à favoriser l'allumage des

gouttes [62].

Finalement, la compréhension détaillée des phénomènes d'accumulation et de formation des globules d'aluminium permet de mieux appréhender la nature et la distribution de taille des gouttes d'Al s'échappant de la surface de propergol. Il reste toutefois essentiel de bien comprendre les mécanismes de combustion d'une goutte d'aluminium, à l'origine de la production de particules d'alumine de différents diamètres.

3.3 Combustion des gouttes d'aluminium

Compte tenu des difficultés de mesure en ambiance gaz de propergol et de la complexité des mécanismes présentés précédemment, peu d'études traitent directement de la combustion des globules d'aluminium [65]. La plupart d'entre elles supposent la combustion d'un globule similaire à celle d'une goutte individuelle et se focalise sur la combustion d'une goutte isolée dans un environnement donné (gaz environnant et pression parfois variables) [66, 67, 68, 69, 70, 71, 72, 73]. Les phénomènes alors mis en jeu ont fait l'objet de nombreux travaux expérimentaux, auxquels ont été confrontés des modèles analytiques et numériques, développés afin de prédire au mieux la combustion d'une goutte d'aluminium et la formation des oxydes résiduels [74, 75, 76].

3.3.1 Phénoménologie

Comme il a été mentionné précédemment, l'aluminium est un métal très réactif. Il se couvre instantanément d'une couche d'oxyde Al_2O_3 lorsqu'il est au contact de gaz oxydants. Cette couche, dont l'épaisseur est relativement faible, de l'ordre de quelques nanomètres (5 à 10 nm) [63], présente l'avantage de protéger la particule contre toute oxydation supplémentaire, ce qui rend la particule stable dans les conditions ambiantes.

L'allumage de la goutte n'est pas instantané. On estime qu'une première phase est régie par l'échauffement de la particule (phase 1). Lorsque la température de la goutte atteint 933 K, l'aluminium se liquéfie, ce qui permet à la particule de prendre une forme sphérique sous l'effet des forces de tension superficielle (phase 2).

En raison de la dilatation thermique de la goutte (le coefficient de dilatation thermique

de l'aluminium est sept fois supérieur à celui de l'alumine), les contraintes mécaniques sont telles que la fine couche d'oxyde se craque, laissant à nu l'aluminium liquide. Cependant, à cause de la forte réactivité de l'aluminium, une nouvelle couche protectrice est instantanément formée, empêchant l'allumage. Cette réaction, très exothermique, participe à l'augmentation en température de la particule (phase 3).

Lorsque la température de goutte atteint la température de fusion de l'alumine $T_{fus}^{Al_2O_3}$, la pellicule protectrice se liquéfie à son tour (phase 4). Une étude de stabilité mécanique de cette couche liquide a été menée par Meinköhn dans le cas général de la combustion des métaux [77]. Les résultats montrent que, pour une goutte d'aluminium, la rupture du film liquide induit la rétractation de l'alumine en un lobe qui reste sur la surface de la goutte. En raison des tensions superficielles agissant sur la surface de la goutte et du fait que l'aluminium et l'alumine ne sont pas miscibles à l'état liquide, la particule acquiert une géométrie toute particulière (Fig.3.5). L'aluminium ainsi découvert se retrouve en contact

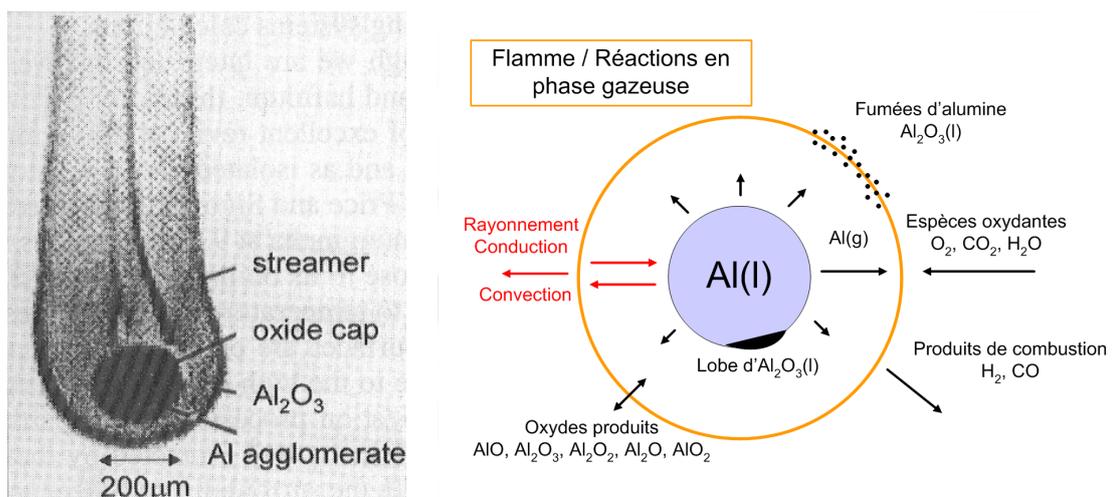


FIG. 3.5 – Combustion d'une goutte d'aluminium en ambiance gaz de propergol [11, 12]

avec les gaz oxydants et une flamme de diffusion se stabilise à une distance pouvant atteindre trois fois le rayon de la goutte [78]. En fait, la localisation de la flamme dépend beaucoup de l'environnement où évolue la goutte. On peut alors observer la formation de fines gouttelettes d'alumine dont la condensation dégage suffisamment d'énergie pour entretenir la combustion. Ces fines particules sont par la suite convectées par l'écoulement dans le sillage de la goutte.

Depuis le début des années 1960, différentes approches ont alors été proposées afin de

modéliser ces différents mécanismes le plus finement possible. Qu'elles soient analytiques ou numériques, elles reprennent pour la plupart la théorie de combustion des gouttes d'hydrocarbure et rendent compte de la forte influence de la pression et de la composition du milieu gazeux environnant.

3.3.2 Approches théoriques de la combustion d'une goutte d'Al

Les premières approches s'appuient essentiellement sur la combustion des gouttes d'hydrocarbure et l'adaptent aux particules d'aluminium. Basées sur une combustion de goutte en phase vapeur, elles négligent les réactions hétérogènes pouvant avoir lieu en surface. Ainsi, dans les années 1960, Brzutowski et Glassman proposent un modèle analytique modifié où le rayonnement de la flamme dû à la formation des fines gouttelettes d'alumine est pris en compte [79]. La diffusion des oxydes vers la surface est traitée et constitue une limite du modèle car la température dans la flamme est supposée être fixée par la température de dissociation de l'oxyde. Tout apport d'énergie supplémentaire est utilisé pour dissocier l'oxyde. Dans le même temps, Frayssac et Barrère développent, à l'ONERA, un modèle similaire [80]. Cependant la limitation majeure de ces deux approches réside dans la modélisation des propriétés de transport, les paramètres nécessaires à leur définition étant mal connus à l'époque. Quelques années plus tard, le modèle proposé par Kuehl intègre la formation de la phase condensée sur la surface grâce à une rétro-diffusion des produits gazeux de la zone de flamme vers la goutte [81]. La plupart des calculs présentés prennent en compte différentes pressions (de 0.01 à 10 MPa) dans un mélange gazeux Ar/O₂. Le temps de combustion en est sensiblement réduit, alors que le rapport (Rayon de flamme)/(Rayon de goutte) augmente. Grâce à cette modélisation, il obtient que le résidu final, formé par la condensation de l'oxyde sur la surface, est dépendant de la concentration en oxygène.

Parallèlement à la théorie de la flamme de diffusion, Bartlett et al. tentent d'expliquer la formation de sphères creuses d'alumine par une théorie d'oxydation de la goutte d'aluminium au travers du film liquide d'alumine [82]. De telles sphères sont observées au cours de la combustion de particules d'aluminium sur une flamme méthane-oxygène. Dans cette approche, les gaz de combustion chauffent la particule d'aluminium principalement

par conduction. Durant cette première phase, le rayonnement et les réactions de surface sont supposées négligeables. L'oxydation de la particule est alors lente car la diffusion des oxydants à travers la couche solide d'oxyde est très faible. Lorsque la température atteint la température de fusion de l'alumine, la diffusion des gaz oxydants devient plus importante, conduisant à un apport énergétique dû aux réactions de surface. L'évaporation de l'aluminium provoque en outre une sorte de soufflage de la couche liquide d'oxyde conduisant à la formation d'une bulle. L'ensemble du mécanisme est ainsi contrôlé par la diffusion de l'oxydant au travers de l'interface d'alumine. Une telle approche est aussi considérée par Brûlard pour qui, l'alumine produite est évacuée en petites gouttes afin d'assurer une épaisseur constante à la bulle [83]. Cependant, Bartlett et al. admettent que les paramètres régissant ce phénomène demeurent inconnus.

3.3.3 Approches semi-empiriques de la combustion d'une goutte isolée

La majorité des connaissances acquises jusqu'à présent sur la combustion d'une goutte d'aluminium a été obtenue expérimentalement, soit directement par allumage et combustion d'une particule isolée, soit à partir d'une feuille ou d'un fil d'aluminium de petit diamètre, dans une ambiance gazeuse donnée. L'allumage est alors tantôt effectué par chauffage laser dans le cas d'une goutte en suspension [78, 73, 84], tantôt par chauffage par arc électrique [70] ou par effet Joule [85], dans le cas d'une goutte se formant à partir d'un fil ou d'une plaque. De tels dispositifs expérimentaux permettent de mesurer les caractéristiques ci-dessous par visualisation directe et prélèvements *in situ* et mettent également en avant leur forte dépendance à la pression et à la nature du gaz environnant :

- évolution de la taille de goutte et de la zone de flamme dans le temps
- distribution de taille des particules d'oxydes produits
- évolution de la luminosité de la flamme dans le temps

De nombreuses études ont été directement menées en ambiance gaz de propergol et ont pour principal objectif de déterminer une loi de combustion de goutte dans un tel environnement. L'influence de chaque oxydant sur la combustion n'étant pas identique, des coefficients de pondération ont été attribués à chacun d'eux.

A la fin des années 1960, en raisonnant sur les énergies nécessaires pour former un atome d'oxygène par dissociation des molécules de CO_2 , CO et H_2O , Belyaev et al. pensent que seuls le dioxyde de carbone et l'eau jouent un rôle prépondérant dans l'oxydation de l'aluminium [86]. En faisant varier la composition des gaz initiaux, les auteurs définissent un paramètre représentatif de la somme des oxydants présents dans le milieu : $a = X\text{CO}_2 + X\text{H}_2\text{O}$. Ses valeurs varient entre 30% et 70%.

Une dizaine d'années plus tard, Hermsen étudie les effets de la combustion des agglomérats d'aluminium dans les moteurs à propergol solide [87]. Il développe ainsi une modélisation semi-empirique des temps de combustion. Il introduit notamment une évolution de la composition des gaz entre le début et la fin de la combustion d'une particule, ce qui est essentiel pour une interprétation des résultats en ambiance gaz de propergol. Cette évolution est caractérisée par le paramètre A_k et les effets radiatifs et convectifs, que l'on trouve dans un moteur, sont paramétrés par un facteur noté R_k . La corrélation permet de distinguer le cas d'une combustion en ambiance "laboratoire" d'une combustion dans un moteur. Hermsen adopte la formulation classique :

$$d^{1,8} = d_0^{1,8} - kt \quad \text{avec} \quad k = 3,3314 \cdot 10^{-5} A_k^{0,9} P^{0,27} R_k$$

La pression du milieu p est en psi, le diamètre de goutte d en in et le temps t en ms. L'ajustement de la valeur de R_k a été effectué sur de nombreux cas expérimentaux et la valeur 2,7 est recommandée. A_k est obtenu à partir de la valeur moyenne entre les compositions initiale et finale des gaz :

$$A_k = \frac{1}{2}(A_{k_{initial}} + A_{k_{final}}) \quad \text{où} \quad A_{k_{initial}} = 100 \left(\sum_i x_i + 3x_{\text{Al}_2\text{O}_3} \right)$$

$$A_{k_{final}} = 100 \left(\frac{1}{1 - x_{\text{Al}_2\text{O}_3}} \sum x_i \right)$$

x_i représente les fractions molaires des espèces : CO_2 , H_2O , O_2 , O et OH .

Toujours à partir de la corrélation d'Hermsen, Duterque et Hommel modifient les coefficients et proposent la loi d'évolution suivante [88] :

$$d^{1,8} = d_0^{1,8} - (486p^{0,15}x_{ox}^{0,9})t$$

Par la suite, Duterque propose une loi modifiée afin de prendre en compte la nature des oxydants [89]. Néanmoins, celle-ci ne satisfait pas aux résultats expérimentaux obtenus

jusqu'alors dans la littérature [86, 90]. Le rôle inhibiteur de l'acide chlorhydrique est alors mis en évidence puis intégré à la corrélation tel que : $x_{eff} = x_{O_2} + x_{H_2O} + 0,7x_{CO_2} - 1,5x_{HCl}$

Au début des années 2000, Melcher et al. étudient la combustion des particules d'aluminium en ambiance gaz de propergol, dans une enceinte fermée de pression variable (1,3 MPa à 2,2 MPa) [12]. Ce montage permet non seulement de quantifier l'influence de la pression sur la combustion mais également de visualiser par caméra rapide l'évolution du diamètre de la goutte. Par un traitement d'image (transformée inverse d'Abel), une loi de combustion de type $d^n = d_0^n - kt$ est ainsi établie. Le diamètre observé, ou diamètre de flamme, permet de revenir au diamètre de la goutte si celui-ci est pondéré par le rapport r/r_s . Les auteurs considèrent que ce rapport est constant durant la combustion de la goutte et que sa valeur est fixée à l'instant initial. Il peut cependant varier en fonction des conditions expérimentales (composition des gaz et pression). Les expressions du diamètre visible et du diamètre réel sont alors les suivantes :

$$\begin{aligned} d_{real} &= [k(t_c - t)]^{1/n} \\ d_{image} &= \frac{r}{r_s} [k(t_c - t)]^{1/n} \end{aligned}$$

La valeur moyenne de n est alors de 1,65 avec un écart type de 0,55. Le taux de combustion k dépend presque linéairement de la pression. Les propriétés diffusives et réactionnelles de H_2O et CO_2 apparaissent plus importantes que celles de l'oxygène.

Dans la continuité de l'étude précédente, les auteurs s'intéressent aux cas d'une seule particule et de globules formés à la surface du propergol [91]. Le modèle de poche de Cohen est vérifié et environ 15% des globules se fragmentent dans l'air, à faible pression. Pour des gouttes isolées, l'effet du nuage de gouttelettes d'oxyde, supposé constant dans l'étude précédente, est modélisé ici par $\frac{r}{r_s} = \alpha d_s^{-\beta}$ avec $\alpha = 53 \pm 18$ et $\beta = 0,55 \pm 0,10$. Pour les globules, la relation trouvée est alors définie par le jeu de paramètres : $\alpha = 32 \pm 14$ et $\beta = 0,47 \pm 0,10$. Les auteurs aboutissent alors à deux corrélations distinctes pour la goutte isolée et le globule, pour lesquelles l'effet de la pression sur le taux de combustion est peu significatif.

3.3.4 Approches numériques

L'objectif étant de prédire l'influence de l'aluminium sur les performances du moteur (impulsion spécifique, instabilités de combustion, etc), les premiers calculs numériques ont permis de déterminer d'une part la vitesse de combustion d'un propergol composite aluminisé [92], et d'autre part, la combustion des gouttes d'aluminium en ambiance gaz de propergol.

Les premières simulations numériques, dans une chambre de combustion de moteur, s'appuient alors principalement sur les travaux expérimentaux précédemment cités et rendent compte des effets des différents paramètres (pression, composition du milieu gazeux environnant) sur la combustion des gouttes. Par exemple, Sabnis présente une corrélation fondée sur l'étude d'Hermsen [87] où le coefficient R_k est pris égal à 2,5 [93]. Les effets de convection sont pris en compte et modélisés à partir du nombre de Sherwood Sh de l'écoulement, lui-même fonction des nombres de Nusselt Nu et de Reynolds Re_d (lié à la vitesse relative entre la goutte et l'écoulement).

Puis, dans le but de mieux cerner les phénomènes intervenant dans la combustion des gouttes d'aluminium, Brooks et Beckstead reprennent et modifient le modèle de Law [94] en considérant plusieurs oxydants, le rayonnement de la flamme, la diffusion et l'accumulation de l'oxyde à la surface [95]. Les temps de combustion alors obtenus semblent concorder avec les résultats expérimentaux issus de la littérature. Il est par ailleurs montré que la présence du lobe d'alumine augmente sensiblement le temps de combustion. Cela se traduit par une loi de combustion en $d^{1,5}$ et non en d^2 . Une pondération affecte en outre chaque oxydant telle que :

$$t_c = C \frac{d^{1,5}}{0,533x_{H_2O} + 0,135x_{CO_2} + x_{O_2}}$$

Widener et Beckstead adaptent ensuite le modèle de Brooks et al. en tenant compte de l'effet des différentes espèces gazeuses présentes [96, 97]. Ils supposent que N_2 , CO , CO_2 , O_2 ou HCl ont, en première approximation, les mêmes diffusivités et conductivités thermiques. Cependant, ils notent que la diffusion est accrue de 30% dans l'eau et multipliée par 3 dans l'hydrogène. Les effets des divers paramètres sont alors fournis par

l'exploitation de 1458 calculs, dont la synthèse donne la corrélation suivante :

$$t_c = 1138 \frac{d^{1,9}}{T^{1,57} p^{0,2} x_{eff}^{0,39} D_{rel}} \quad \text{avec} \quad x_{eff} = 0,58x_{H_2O} + 0,22x_{CO_2} + x_{O_2}$$

$D_{rel} = 1 + x_{H_2} \left(\frac{D_{ox,H_2}}{D_{ox,noH_2}} - 1 \right)$ est une constante traduisant la diffusivité de H_2 dans le cas considéré. Devant la difficulté que représente l'évaluation de $\left(\frac{D_{ox,H_2}}{D_{ox,noH_2}} \right)$ (diffusivité de l'oxydant dans l'hydrogène pur divisé par sa diffusivité dans les gaz du milieu), Widener et al. préconisent de prendre la valeur moyenne 3,7. Ce modèle demeure à ce jour celui prenant en compte le plus de paramètres.

Plus récemment, le développement croissant des moyens de calcul a amené certains auteurs à traiter la combustion d'une goutte d'aluminium isolée sur un domaine désormais bidimensionnel [3]. La modélisation des propriétés de transport de chaque espèce gazeuse présente dans le milieu est ainsi affinée et la résolution d'un mécanisme réactionnel multi-espèce est effectuée par un solveur cinétique [3]. Par ailleurs, les mécanismes chimiques proposés actuellement sont de plus en plus complets [76, 98] et régulièrement couplés aux modèles de combustion de goutte [11].

Certaines études reviennent désormais à la simulation numérique d'une combustion de propergol aluminisé. Basé sur des méthodes développées pour la combustion d'un propergol composite, le modèle 2D de Wang et al. permet de simuler le détachement puis l'allumage d'une particule d'aluminium isolée dans une ambiance gaz de propergol [99]. Il est ensuite adapté pour simuler la coalescence des particules d'aluminium en surface de propergol, en tenant compte des effets de tensions superficielles. Cette approche, quoique très gourmande en ressources informatiques, donne des résultats encourageants pour l'avenir.

Cependant, la combustion des gouttes d'aluminium demeurent encore très difficile à simuler numériquement, en partie à cause du principal oxyde qui en résulte, l'alumine, dont les mécanismes de formation sont très complexes.

3.4 Production d'oxydes d'aluminium

Comme il a été mentionné précédemment, la production des particules d'alumine Al_2O_3 a une grande influence sur la stabilité d'un propulseur à poudre mais aussi sur

l'usure de ses composants internes. L'alumine liquide peut, par exemple, s'accumuler en fond arrière de propulseur et nuire ainsi aux performances de l'engin [9].

Nombre d'études [100, 13, 101] ont donc été menées afin de déterminer la distribution de taille des particules d'alumine dans un moteur (Fig.3.6). En règle générale, dans des conditions de fonctionnement de propulseur, on observe une majorité de fumées d'alumine Al_2O_3 de diamètre $1 \mu\text{m}$ (fumées) et seulement quelques oxydes résiduels de plus gros diamètres (40-60 μm) [63]. Des phénomènes de collision et de fragmentation des gouttes

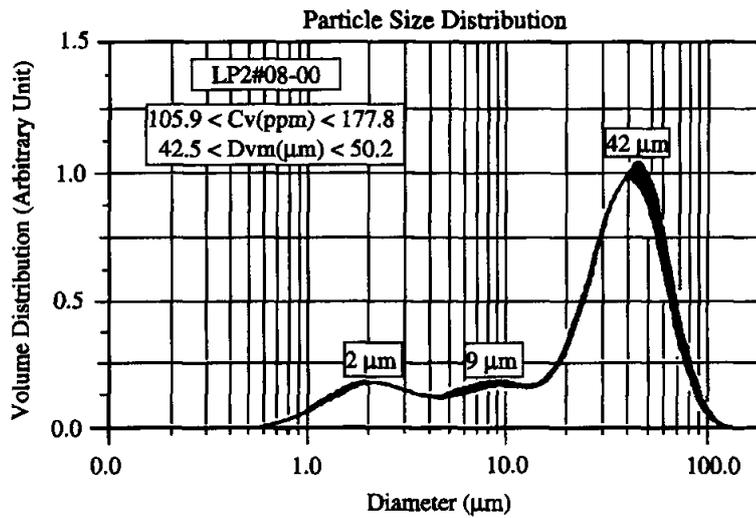


FIG. 3.6 – Exemple de distribution de taille de particule d'alumine mesurée dans un tuyère de propulseur [13]

d'alumine peuvent également se produire mais restent, encore aujourd'hui, difficiles à quantifier et à prédire [102, 9].

A pression atmosphérique, la combustion des gouttes d'aluminium est souvent incomplète car le diamètre moyen des gouttes est plus élevé et le temps de combustion plus grand. Par conséquent, les oxydes résiduels d'aluminium produits sont plus nombreux que les fumées microniques d'alumine et de plus gros diamètre [64].

En outre, Karasev et al. ont montré que des phénomènes de coalescence sont à l'origine de la production des particules microniques d'alumine [14]. Ils ont ainsi proposé un mécanisme de formation d'agrégats d'alumine, à partir de la combustion de goutte d'aluminium dans l'air à pression atmosphérique et décrit Figure 3.7 .

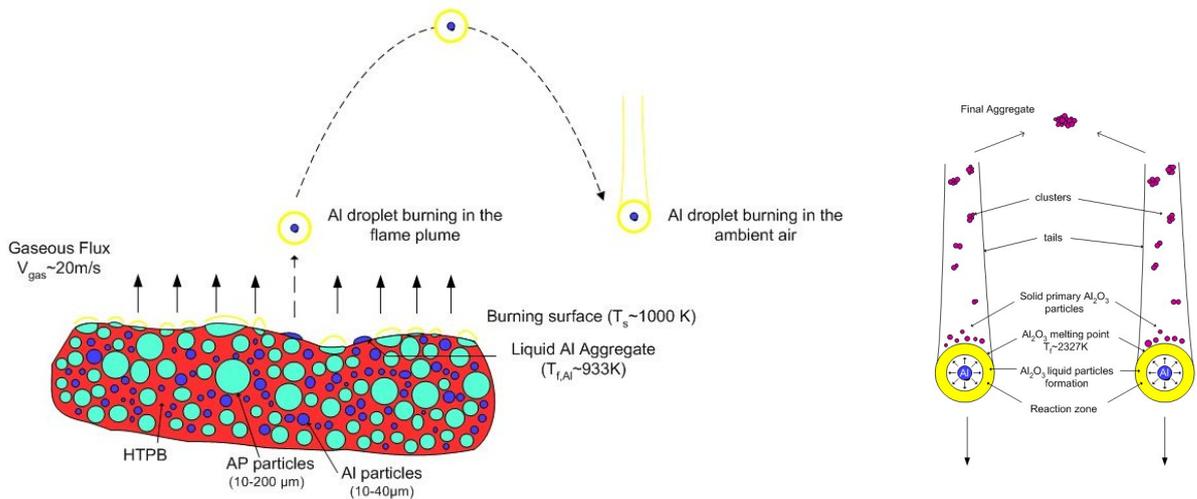


FIG. 3.7 – Production puis agglomération des particules d'alumine Al_2O_3 à $p = 1 \text{ atm}$ [14]

3.5 Conclusion : à pression atmosphérique

Les différentes études, présentées dans ce chapitre, ont permis d'observer la diversité et la complexité des phénomènes mis en jeu lors de la combustion des propergols aluminisés. Malgré les difficultés de mesure liées à la très grande hétérogénéité du milieu, elles ont montré la grande influence de la composition de l'ambiance gazeuse environnante et de la pression sur la formation et la combustion des gouttes d'aluminium.

La plupart des recherches sur la combustion des propergols aluminisés ont été effectuées dans des conditions classiques de fonctionnement de propulseur, sur une gamme de pression élevée. Cependant, dans le cadre de notre étude, les blocs de propergol solide brûlent dans l'air ambiant, à pression atmosphérique. Aussi, dans ces conditions, les mécanismes prépondérants sont les suivants :

1. La flamme de diffusion primaire, à cinétique finie, contrôle la pyrolyse du propergol PA/PBHT
2. Accumulation et agglomération des particules d'aluminium en surface de propergol sont favorisées [13]
3. La majorité des particules d'Al s'agglomèrent et forment des globules de diamètre moyen $d_{43} = 283 \mu\text{m}$ [64]

4. Production élevée d'oxydes résiduels de grands diamètres car la combustion des gouttes d'aluminium dans l'air est incomplète (mélange avec l'air ambiant)
 5. Mécanisme d'agglomération des particules d'alumine à l'origine des fumées micro-niques ($d = 1-1,5 \mu\text{m}$)
-

Deuxième partie

Étude expérimentale de la combustion d'un bloc de propergol PA/PBHT/Al à pression atmosphérique

Chapitre 4

Méthodes mises en oeuvre

La première partie a présenté les principaux phénomènes mis en jeu lors de la combustion de blocs de propergol solide aluminisé, à pression atmosphérique. Cependant, peu de données ont été publiées sur les feux de propergol solide chargé en aluminium. Aussi, cette partie est consacrée à la mise en oeuvre de deux bancs d'essais expérimentaux dans le but de compléter et d'affiner les données existantes.

Le premier chapitre présente en détail les deux dispositifs utilisés, ainsi que les méthodes de mesure employées. Les résultats obtenus pour chacun des bancs seront ensuite discutés dans un second chapitre.

4.1 Essais en champ libre

Cette campagne d'essais vise à obtenir la signature thermique d'un feu de propergol solide brûlant à pression atmosphérique, pour deux compositions distinctes, l'une hautement chargée en aluminium (PA/PBHT à 20% d'Al) et l'autre plus faiblement aluminisée (PA/PBHT à 4% d'Al). Il s'agit ainsi de mettre en évidence le rôle fondamental joué par les gouttelettes d'aluminium et les particules d'alumine sur le rayonnement de la flamme dans ces conditions de pression.

4.1.1 Dispositif expérimental

Un bloc de propergol solide et de forme parallélépipédique, fixé sur un support en acier, est allumé en plein air, à l'abri du vent. Sa vitesse de combustion est mesurée loca-

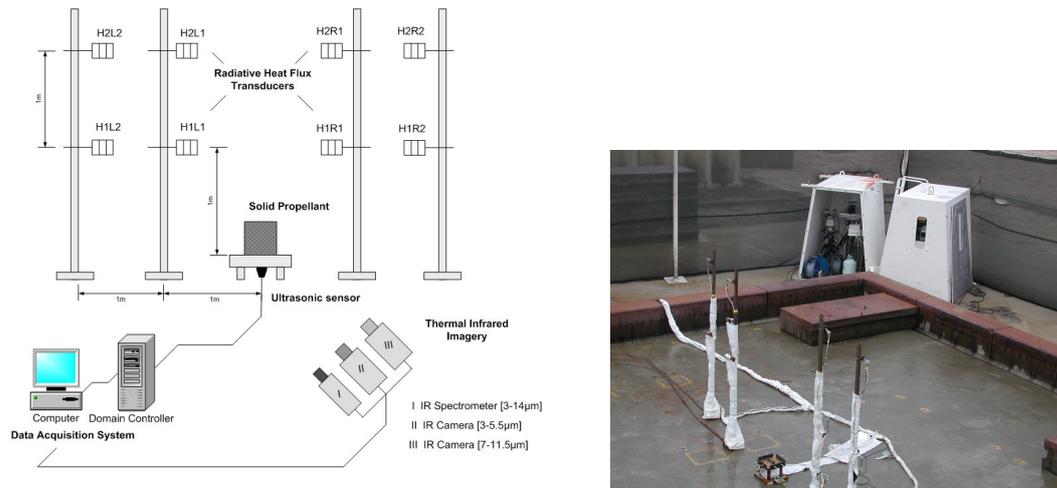


FIG. 4.1 – Montage expérimental des essais en champ libre (schéma et photo)

lement, pendant toute la durée du tir, par un capteur ultrasonore collé en fond de bloc. D'autre part, des visualisations du feu par caméras Infrarouge (IR) et Ultraviolet (UV) sont effectuées à distance du spécimen pyrotechnique (Fig.4.1). Un réseau de fluxmètres, répartis de part et d'autre du bloc et à différentes hauteurs, cartographie également le flux radiatif émis par la flamme. Enfin, ces mesures sont complétées par une visualisation globale du dispositif expérimental ainsi que par des photos décrivant l'ensemble de l'appareillage utilisé.

4.1.2 Spécimens pyrotechniques utilisés

Les compositions de propergol étudiées sont chacune fabriquées par la branche Matériaux Energétiques (SME) du groupe SNPE, et correspondent aux charges propulsives, soit des boosters d'Ariane V (Butalane), soit de propulseurs de missile (Butalite). Le Tableau 4.1 répertorie leurs principales caractéristiques. L'allumage du propergol est ici effectué

	%PA	%PBHT	%Al	d_{PA}	Dimensions (H*L*I)
Butalane	68	12	20	$200\mu\text{m} - 90\mu\text{m} - 10\mu\text{m}$	24cm*21cm*18cm
Butalite	82	14	4	$400\mu\text{m} - 200\mu\text{m} - 10\mu\text{m}$	24cm*21cm*18cm

TAB. 4.1 – Caractéristiques des deux compositions de propergol

à la surface du bloc par accumulation de poudre Mi9 répartie de façon homogène sur



FIG. 4.2 – Système de mesure ultrasonore

le matériau énergétique. La mise au point de ce système d'allumage a été réalisée lors d'essais préliminaires sur des blocs du même type.

4.1.3 Mesures ultrasonores

Un support métallique, d'une hauteur de 20 cm et fixé sur une dalle en béton, maintient le bloc de propergol au cours du tir (Fig.4.2). Il permet d'intégrer le système de mesure UltraSon (US), qui est composé :

- d'un capteur US Panametrics (émetteur-récepteur), délivrant, à une fréquence de 500 Hz, une onde acoustique qui se propage dans le bloc puis qui se réfléchit au niveau de la surface de combustion (Fig.4.3) ;
- d'un conditionneur qui permet de numériser le signal au plus près du capteur, à une fréquence de 10 MHz.

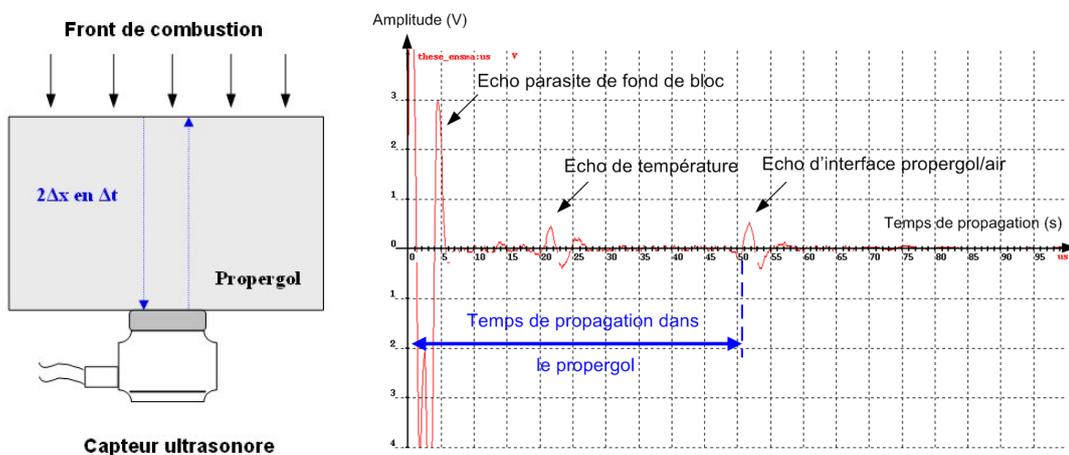


FIG. 4.3 – Principe de mesure et d'acquisition du système ultrasonore

La phase de collage du capteur est une opération importante et délicate à mettre en oeuvre qui relève d'un savoir-faire spécifique au CAEPE (Centre d'Achèvement et d'Essais de Propulseurs et Engins). Cette opération est réalisée à l'aide d'une valise de contrôle qui permet la visualisation de la mesure pendant le collage (voir Annexe A). L'acquisition s'effectue alors en deux étapes à l'aide de :

- un coffret intermédiaire qui assure le démultiplexage des ordres d'excitation venant de la baie d'acquisition vers le conditionneur et le multiplexage des données de mesure ;
- une baie d'acquisition qui assure l'envoi des ordres, l'enregistrement des données et l'archivage.



FIG. 4.4 – Système d'acquisition du signal US

L'acquisition est effectuée à une fréquence de 500 Hz pendant les 40^{èmes} secondes puis à 1 Hz jusqu'à la fin du tir (Fig.4.4). Le post traitement de chaque fenêtre d'acquisition permet de retrouver l'écho d'interface propergol/air, correspondant au retour de l'impulsion de 200 V envoyée par le capteur US. Plus précisément, la vue 2D (Fig.4.5(a)) correspond à la superposition de l'ensemble des fenêtres d'acquisition du signal présentées Fig.4.5(b). Elle montre bien le déplacement vers la gauche de l'écho de propergol, traduisant ainsi la régression du bloc. L'axe des abscisses correspond au temps de propagation de l'onde et celui des ordonnées au temps du tir, le code de couleur représentant l'amplitude du signal. Cette vue en deux ou trois dimensions, dite mesures brutes, est réalisée par un outil de dépouillement nommé SADIE et développé au sein du CAEPE.

Il s'agit, ensuite, de calculer, à chaque instant du tir, la célérité de l'onde ultrasonore caractéristique de la température et de l'état mécanique du matériau et qui est donnée

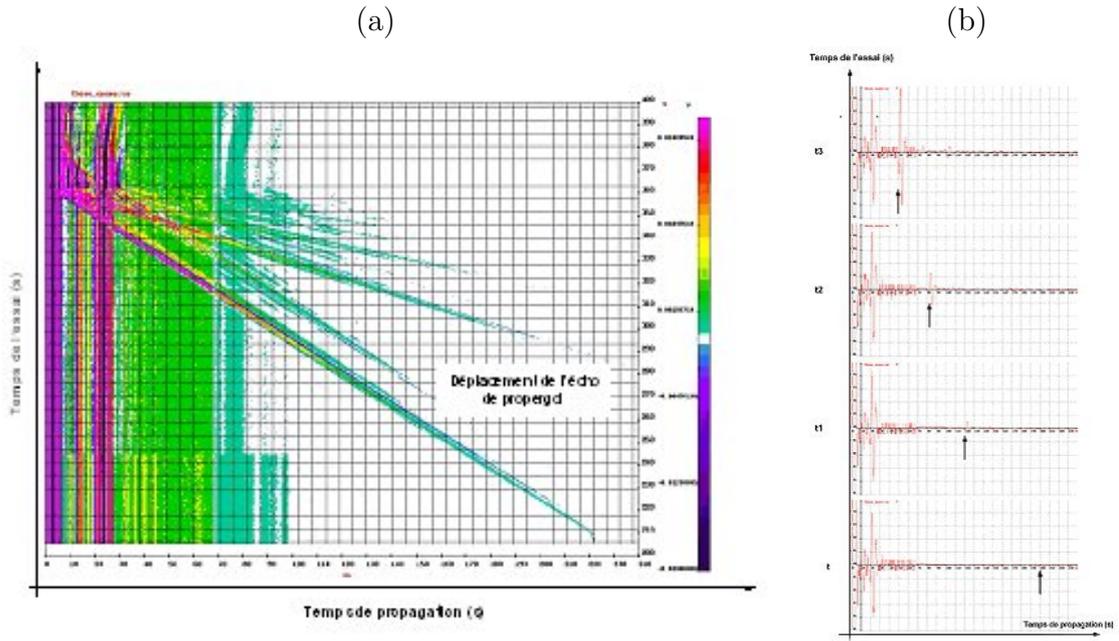


FIG. 4.5 – (a) Visualisation 2D du déplacement de l'écho de propellant vers la gauche (régression du bloc) au cours du tir ; (b) Visualisation de l'écho de propellant à chaque instant

par la loi suivante :

$$\frac{C_{ref}}{C} = (1 + K_T (T - T_{ref})) \cdot (1 - K_P (P - P_{ref})) \quad (4.1)$$

où les deux coefficients de sensibilité K_T et K_P sont déterminés empiriquement sur chaque nouveau matériau, notamment par l'ONERA. Une fois cette célérité connue, on obtient trivialement l'épaisseur de matériau correspondante puis, par dérivation temporelle, on peut remonter à la valeur locale de la vitesse de combustion qui sera supposée quasi-uniforme sur toute la surface. En effet, le bloc de propellant étant inhibé sur les côtés par un film polymère isolant, la régression du matériau énergétique s'effectue macroscopiquement selon une seule dimension.

$$E_p(t) = \frac{C_{T,p}(t) \cdot \tau(t)}{2} \quad (4.2)$$

$$r_b(t) = \frac{dE_p(t)}{dt} \quad (4.3)$$

où $\tau(t)$ correspond au temps de propagation de l'onde, $E_p(t)$ l'épaisseur du bloc et $C_{T,p}(t)$ la célérité de l'onde ultrasonore

4.1.4 Moyens de thermographie IR et UV

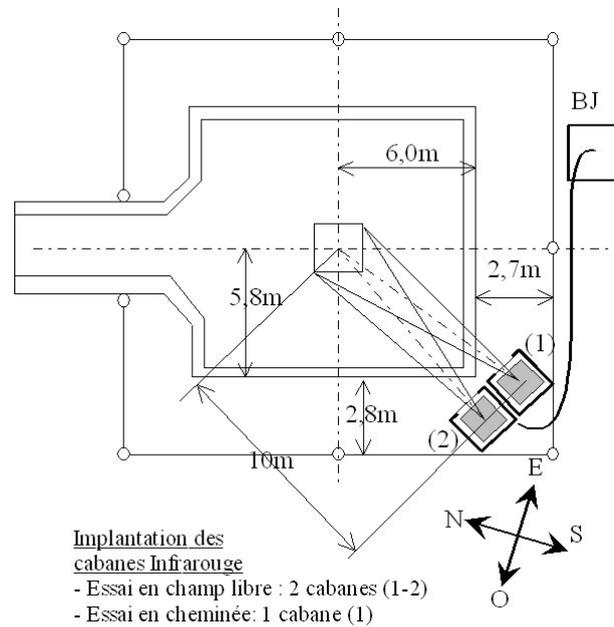


FIG. 4.6 – Implantation des moyens de mesures optroniques

Deux caméras InfraRouge AGA782 SWB (bande II) et AGA782 LWB (bande III), placées toutes deux dans un local protégé thermiquement et situé à 10 m du bloc, pointent l'ensemble du panache de la flamme (Fig.4.6 et 4.7). Elles cartographient les niveaux de luminance et/ou les champs de température dite de "surface", l'une effectuant les mesures en bande II [3-5.5 μm], l'autre en bande III [7-11.5 μm]. De même, une caméra UltraViolet (UV) Roper Scientific intensifiée, également située à 10 m de la source, enregistre la signature UV du feu, donnant ainsi accès au nombre de photons émis (knut) sur cette bande, avec une cadence d'acquisition de 12 images/sec. Enfin, la base de la flamme (25 cm au dessus de la surface initiale de propergol) est visée par un spectroradiomètre HGH - SPR314 qui mesure la luminance émise par la flamme sur une large bande spectrale [3 - 14 μm]. L'optique d'entrée est de type Cassegrain, le filtre est uniforme à 1,25% en ZnSe de 2,5 à 14,5 μm et la résolution spectrale est estimée à $\Delta\lambda = 1,5\%$.

Les systèmes de mesure IR (caméras, spectroradiomètre) ont été étalonnés sur une source étendue PYROX, de diamètre 110 mm et avec une émissivité de 0,99 (voir Annexe A). L'étalonnage de la caméra UV est effectué à l'aide d'une lampe UV au deutérium, sur une surface de 1 cm², à 50 cm de distance.

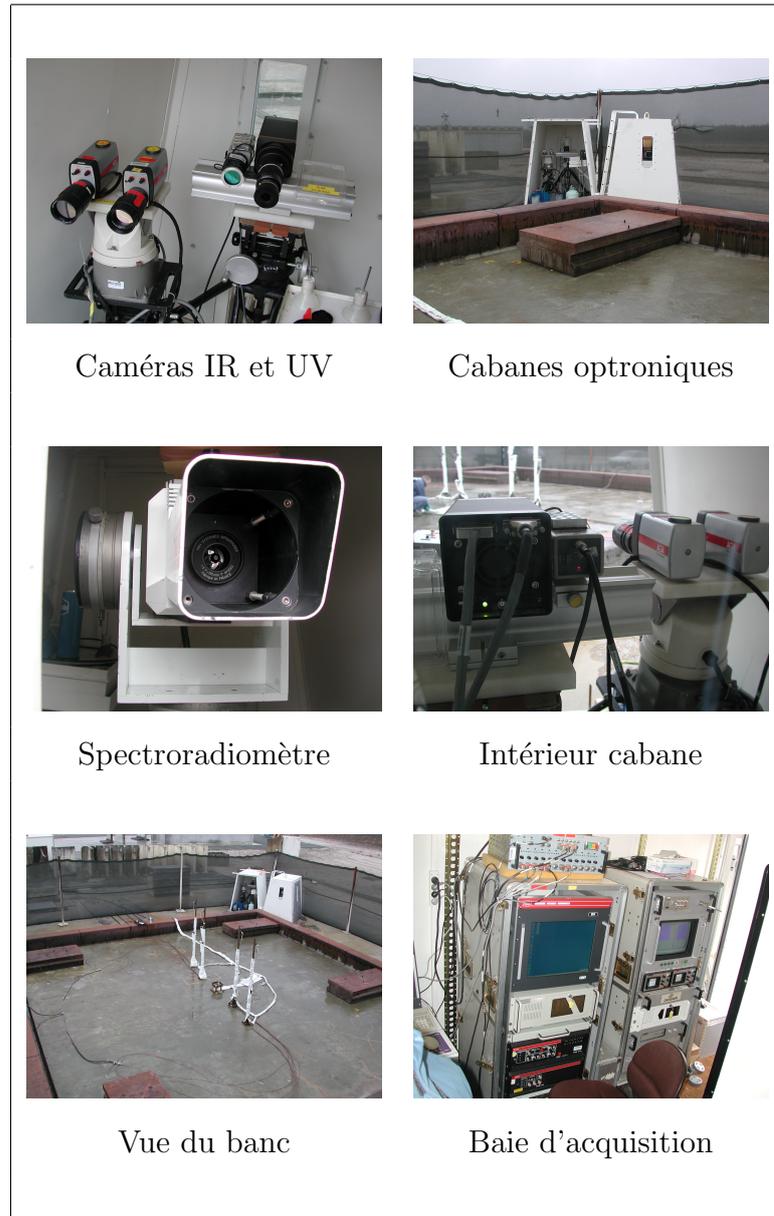


FIG. 4.7 – Moyens de mesures optroniques

4.1.5 Mesure du flux radiatif

Un réseau de huit fluxmètres Medtherm, de gamme 10-20 W/cm² (voir Annexe A pour le choix de cette gamme), est disposé de part et d'autre de la flamme, sur des supports métalliques, à une hauteur de 1 m et 2 m du sol et à une distance de 1 m et 2 m du bloc. Ces fluxmètres sont équipés d'une fenêtre saphir, ne mesurant ainsi que le flux radiatif incident. Deux autres fluxmètres, de gamme 1-2 W/cm², sont, quant à eux, à restriction de vue, limitant la mesure du flux radiatif incident à un cône d'angle 30° (Fig.4.8). Ces

derniers sont placés à 6 cm, pour le premier, et 1,26 m de la surface initiale du bloc, pour le second, pointant respectivement le cône primaire (zone chaude) et la zone de mélange avec l'air ambiant. Enfin, un système de refroidissement à circulation d'eau est utilisé

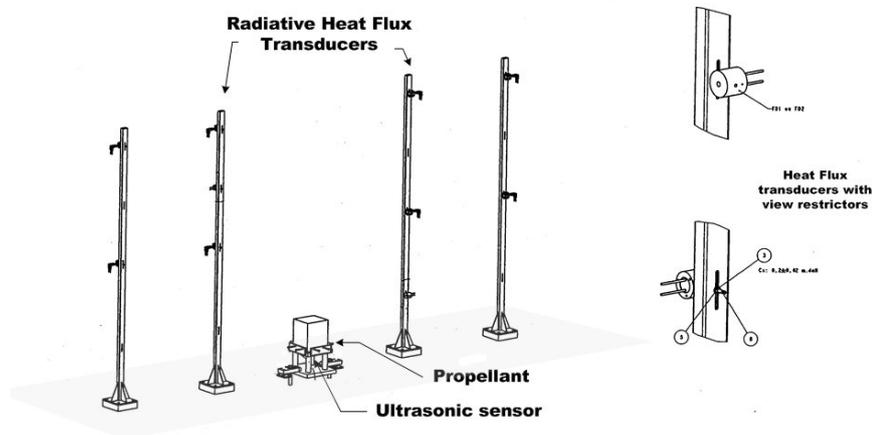


FIG. 4.8 – Implantation des fluxmètres

pour chaque fluxmètre afin de limiter leur montée en température. Il est à noter qu'une protection thermique (Refratex) enrobe l'ensemble des câbles d'acquisition des fluxmètres et du capteur US, ainsi que les supports métalliques.

4.2 Essais en cheminée

Cette deuxième série d'essais a pour objectif de caractériser thermiquement le coeur d'un feu de propergol solide composite PA/PBHT/Al par des mesures de température et d'émissivité monochromatique apparente, à trois hauteurs différentes et sur trois bandes spectrales de l'infrarouge. Les propriétés optiques d'un feu de propergol aluminisé et les niveaux de température atteints imposent d'opter pour une méthode de diagnostic optique non intrusif, telle que la pyrométrie.

4.2.1 Dispositif expérimental

La technique de mesure, présentée par la suite, a nécessité la conception d'une cheminée en graphite, servant de support aux pyromètres et dont la tenue aux hautes températures est assurée. Les trois buses la composant sont percées de deux trous chacune, qui font un

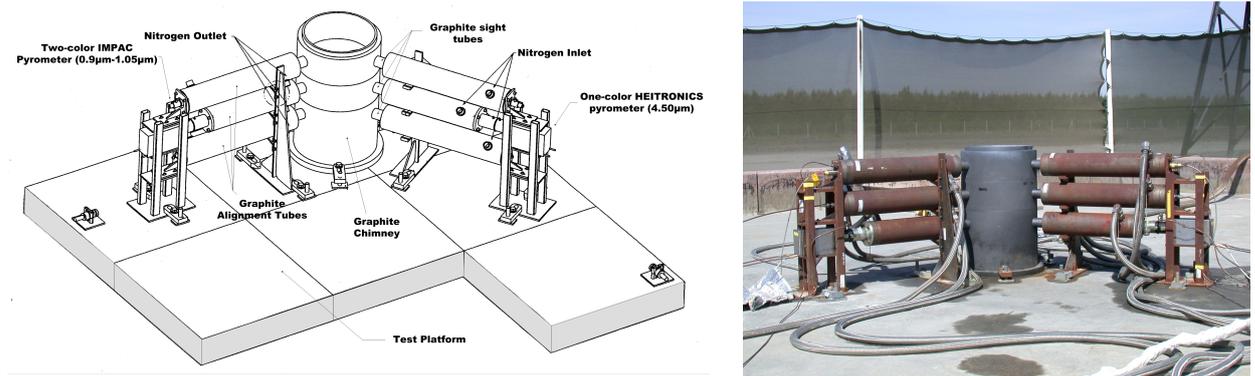


FIG. 4.9 – Montage expérimental des essais en cheminée

angle de 120° l'un avec l'autre (Fig.4.9), ce qui permet l'intégration de deux pyromètres pointant sur un même volume d'étude.

L'utilisation de tubes de vue permet, en outre, d'obtenir une mesure *in situ* de la luminance émise localement par la flamme, tout en évitant son atténuation jusqu'à la cellule du capteur pyrométrique. Ces tubes creux, également en graphite, sont insérés directement dans la flamme et leur forme biseautée limite leur obstruction par un dépôt d'alumine liquide (Fig.4.10). Les tubes d'alignement assurent quant à eux la transmission



FIG. 4.10 – Tubes de vue et d'alignement

de la luminance du tube de vue au pyromètre. De plus, ils sont non seulement refroidis par recirculation d'eau mais aussi purgés par injection continue d'azote.

4.2.2 Spécimens pyrotechniques utilisés

Tout comme pour la série d'essais en champ libre, deux compositions de propergol solide, dont les principales caractéristiques sont réportoriées Tab. 4.2, sont étudiées dans le cadre de cette campagne. Comme précédemment, l'allumage du propergol est effectué

au centre du bloc par accumulation de poudre Mi9.

	%PA	%PBHT	%Al	d_{PA}	Dimensions (H*L*I)
Butalane	68	12	20	$200\mu\text{m} - 90\mu\text{m} - 10\mu\text{m}$	24cm*21cm*18cm
Butalite	82	14	4	$400\mu\text{m} - 200\mu\text{m} - 10\mu\text{m}$	24cm*21cm*18cm

TAB. 4.2 – Caractéristiques des deux compositions de propergol

4.2.3 Mesures pyrométriques

Afin d'effectuer des mesures de température de flamme *in situ* et compte tenu des propriétés optiques et thermiques de la flamme, nous avons choisi la pyrométrie comme diagnostic optique IR non intrusif (Fig.4.11). Deux pyromètres monochromatiques Hei-

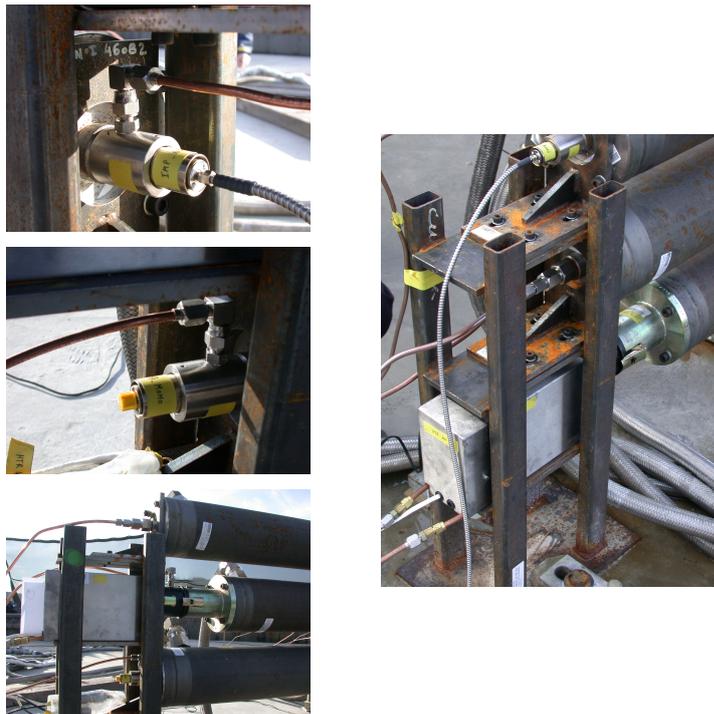


FIG. 4.11 – Implémentation des pyromètres

tronics KT19II, HTR-450 et HTR-466, respectivement centrés sur les longueurs d'onde $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$ et $\lambda = 4,66 \mu\text{m}$, sont utilisés pour mesurer la Température Equivalent Corps Noir du milieu en Bande II ou T_{ECNII} . Parallèlement, un pyromètre digital bichromatique Impac (IMP-BI), centré sur les longueurs d'onde $\lambda_1 = 0,90 \mu\text{m}$ et $\lambda_2 = 1,05 \mu\text{m}$, permet

de mesurer localement la température vraie du milieu T_{vraie} . En effet, la température vraie est ici directement accessible puisque l'hypothèse de considérer le milieu comme un corps gris se vérifie entre 600 nm et 1200 nm pour des propergols solides aluminisés [17]. Par ailleurs, un deuxième pyromètre Impac (IMP-MONO), cette fois utilisé en mode monochromatique et centré sur la longueur d'onde $\lambda = 0,90 \mu\text{m}$, mesure la Température Equivalent Corps Noir en Bande I, notée T_{ECNI} . Les deux classes de pyromètres, Heitronics et Impac, ont été étalonnées sur source étendue PYROX de diamètre 110 mm et d'émissivité 0,99 (voir Annexe B).

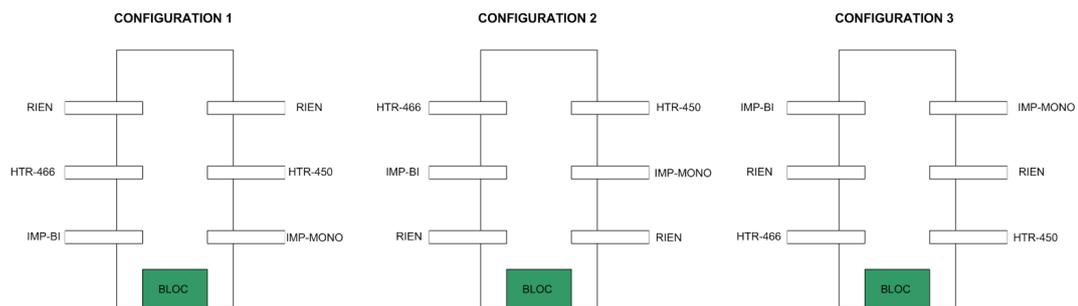


FIG. 4.12 – Déroulement des essais en cheminée : rotation des systèmes de mesure

Le nombre d'essais étant limités à neuf, les mesures de T_{ECNI} , T_{ECNII} et T_{vraie} , sont simultanées et effectuées à trois hauteurs différentes, en suivant le système de rotation décrit Figure 4.12.

4.2.4 Principe de mesure de l'émissivité spectrale

Le principe de mesure de l'émissivité spectrale de la flamme en Bande I (c'est-à-dire autour de $\lambda = 0,90 \mu\text{m}$) consiste à faire pointer deux pyromètres bichromatique et monochromatique sur le même volume d'étude (Fig.4.13). Deux mesures d'une même luminance sont alors effectuées mais, dans un cas, il s'agit de la luminance mesurée par le pyromètre monochromatique, sur une largeur de bande centrée en $\lambda = 0,90 \mu\text{m}$, à une Température Equivalent Corps Noir T_{ECNI} (température de luminance), et dans l'autre, il s'agit de la luminance mesurée par le pyromètre bichromatique, sur une largeur de bande centrée en $\lambda = 0,90 \mu\text{m}$, à la température T_2 . Cette température T_2 correspond ici à la température vraie du milieu T_{vraie} puisque celui-ci se comporte comme un corps gris

sur cette bande. Ainsi, on déduit trivialement de l'égalité des luminances mesurées :

$$\frac{C_1}{\lambda^5(e^{C_2/\lambda T_1} - 1)} = \frac{\epsilon C_1}{\lambda^5(e^{C_2/\lambda T_2} - 1)} \quad (4.4)$$

l'émissivité monochromatique apparente, locale :

$$\epsilon(\lambda, T_2) = \frac{e^{C_2/\lambda T_2} - 1}{e^{C_2/\lambda T_1} - 1} \quad (4.5)$$

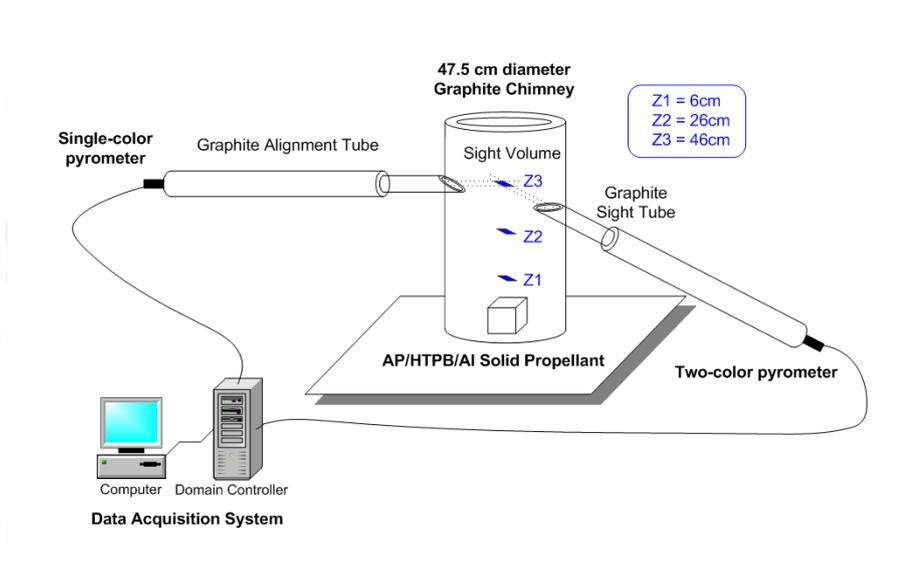


FIG. 4.13 – Principe des mesures *in situ* de température et émissivité locale dans un feu de propergol solide aluminisé PA/PBHT/Al

Pour déterminer le coefficient d'émission monochromatique de la flamme en Bande II (en $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$ et $\lambda = 4,66 \mu\text{m}$), nous supposons que la mesure de température par le pyromètre bichromatique Impac est reproductible, ce qui est le cas, à quelques degrés près. Ainsi, en utilisant la mesure de température vraie T_2 à chaque hauteur, on déduit également la valeur de l'émissivité monochromatique de la flamme pour les longueurs d'onde $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$ et $\lambda = 4,66 \mu\text{m}$.

Chapitre 5

Résultats et Discussion

La série d'essais en champ libre a d'abord permis d'établir la signature thermique d'un feu de propergol PA/PBHT/Al et de retrouver la structure à trois cônes proposée par E.W. Price (1979) [2]. Une comparaison des résultats entre les deux compositions, l'une hautement chargée en aluminium (Butalane) et l'autre moins (Butalite), a montré l'influence du chargement initial en particules d'aluminium sur la vitesse de combustion du propergol et sur les transferts radiatifs entre le feu et l'environnement. Les mesures *in situ*, effectuées lors des essais en cheminée, ont ensuite caractérisé thermiquement le coeur de la flamme et permis de remonter aux propriétés radiatives d'un feu de propergol de type Butalane, sur trois bandes spectrales distinctes, centrées respectivement en $\lambda = 0,90 \mu\text{m}$ (proche IR), $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$ et $\lambda = 4,66 \mu\text{m}$ (IR moyen).

L'ensemble des essais a eu lieu à pression atmosphérique, dans des conditions hygrométriques situées entre 35% et 80% et à une température ambiante de 10°C environ. Le vent était quasiment nul sur le banc d'essais, un filet protecteur étant tiré tout autour du montage expérimental.

5.1 Signature thermique IR d'un feu de propergol aluminisé

La signature thermique d'un feu de propergol, à pression atmosphérique, est effectuée par thermographie IR, pour les deux compositions précédemment citées. Les caméras

utilisées ici mesurent le champ de luminance émise par le feu au cours du tir, dans les bandes II [3-5,5 μm] et III [7-11,5 μm]. A partir des coefficients A, B et C, déterminés lors de l'étalonnage des caméras (Annexe A), on peut remonter, sur chaque bande spectrale, à l'évolution du champ de température équivalent corps noir du feu, T_{ECNII} sur la Bande II et T_{ECNIII} sur la Bande III. Celles-ci restent des températures dites de surface et ne nous donnent aucune indication sur la température au coeur de la flamme.

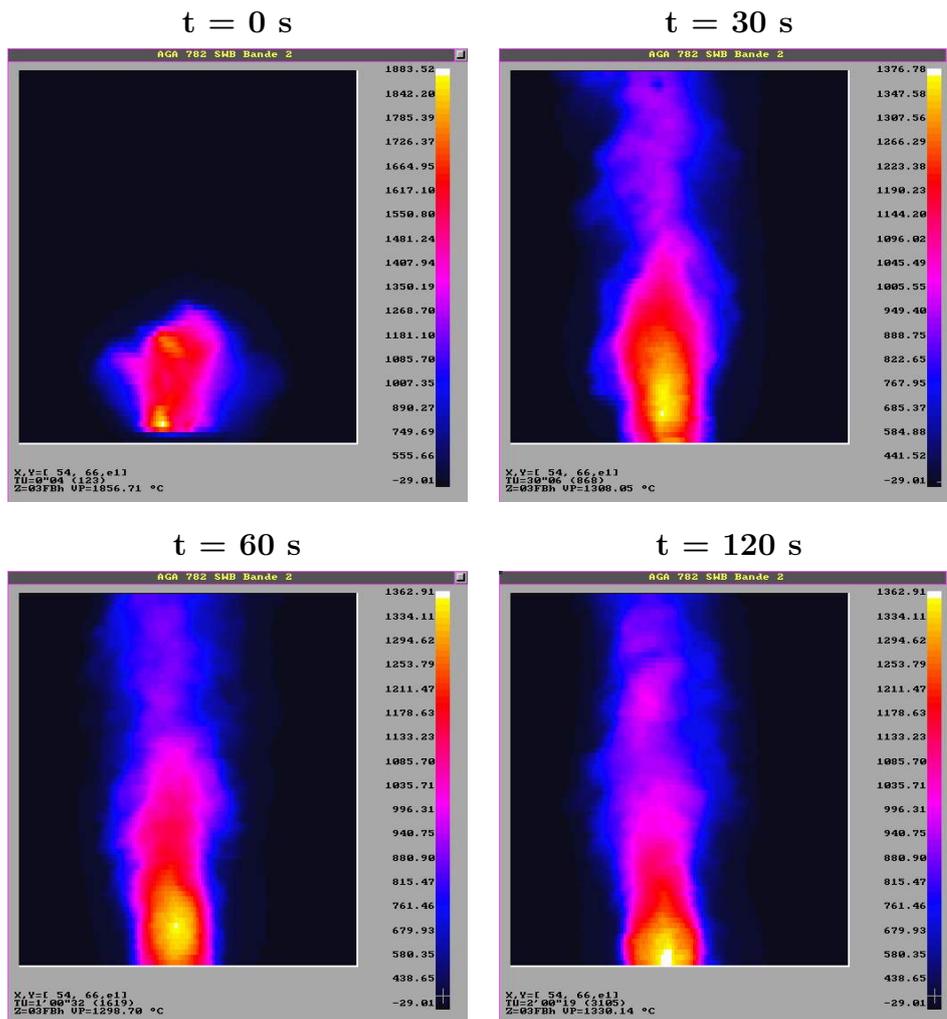


FIG. 5.1 – Visualisation par caméra IR d'un feu de propergol type Butalane (Bande II)

Dans le cas de la composition Butalane (Fig.5.1 et 5.2), une fois que le bloc de propergol est allumé ($t > 0$ s), on peut observer trois zones distinctes :

- une zone chaude (rouge-orangée) correspondant à la base du feu ($T_{ECNII} \approx 1350^{\circ}\text{C}$ et $T_{ECNIII} \approx 1450^{\circ}\text{C}$). C'est dans cette zone qu'a lieu la combustion du propergol,

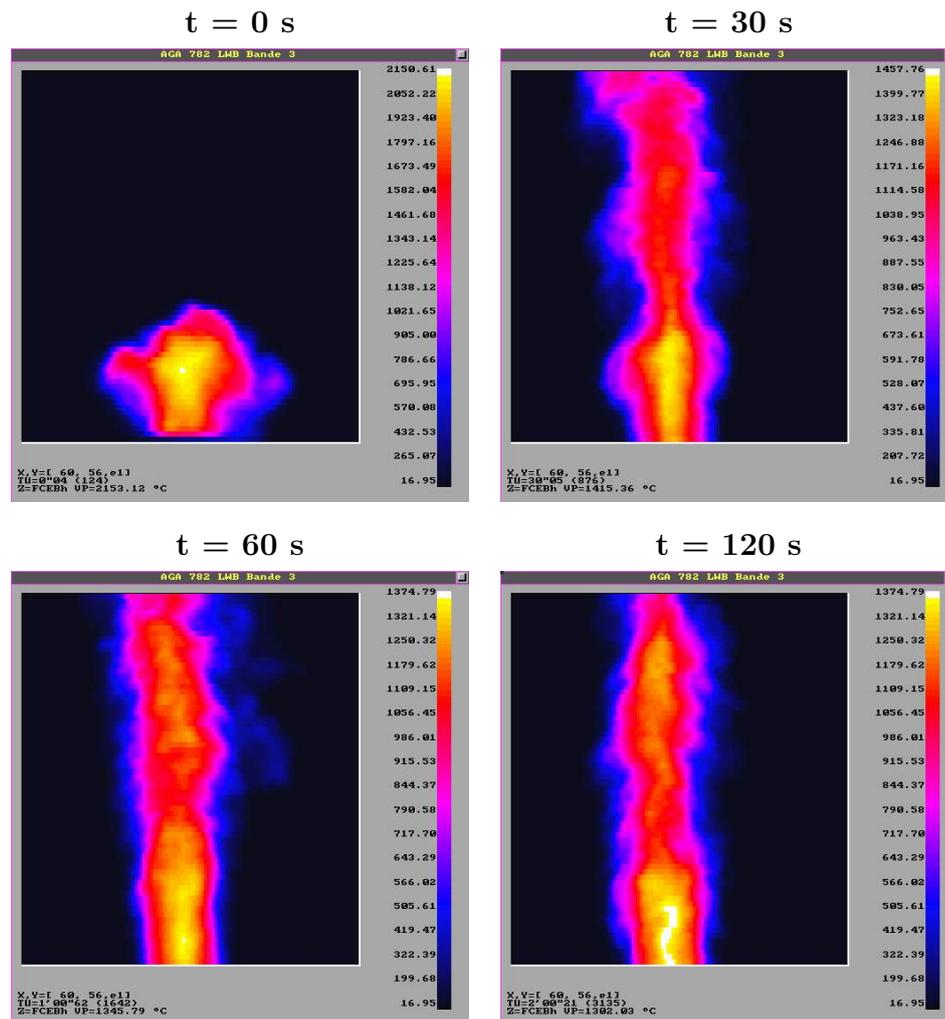


FIG. 5.2 – Visualisation par caméra IR d'un feu de propergol type Butalane (Bande III)

dont les réactions en phase gazeuse sont très exothermiques, et que débute l'oxydation des gouttelettes d'aluminium. L'écoulement réactif reste ici peu affecté par les effets aérothermiques de l'air environnant ;

- une zone intermédiaire de plus faibles températures (rouge-violette) car plus éloignée de la surface de combustion du propergol ($T_{ECNII} \approx 1200$ °C et $T_{ECNIII} \approx 1300$ °C), où les gouttelettes d'aluminium terminent de s'oxyder. Cette zone est un peu plus affectée par les effets aérothermiques de l'air environnant ;
- une zone de mélange avec l'air ambiant qui correspond au panache du feu (bleu-violette). La température chute ici rapidement ($T_{ECNII} \approx 950$ °C et $T_{ECNIII} \approx 1000$ °C) et l'image laisse apparaître des structures tourbillonnaires caractéristiques d'un

écoulement turbulent. Cette zone est également hautement chargée en particules d'alumine issues de l'oxydation des gouttes d'aluminium qui a lieu dans les deux zones précédentes. Aussi, ces particules étant plus fortement émissives en Bande III qu'en Bande II, il est cohérent de retrouver une température T_{ECN} plus élevée en Bande III qu'en Bande II.

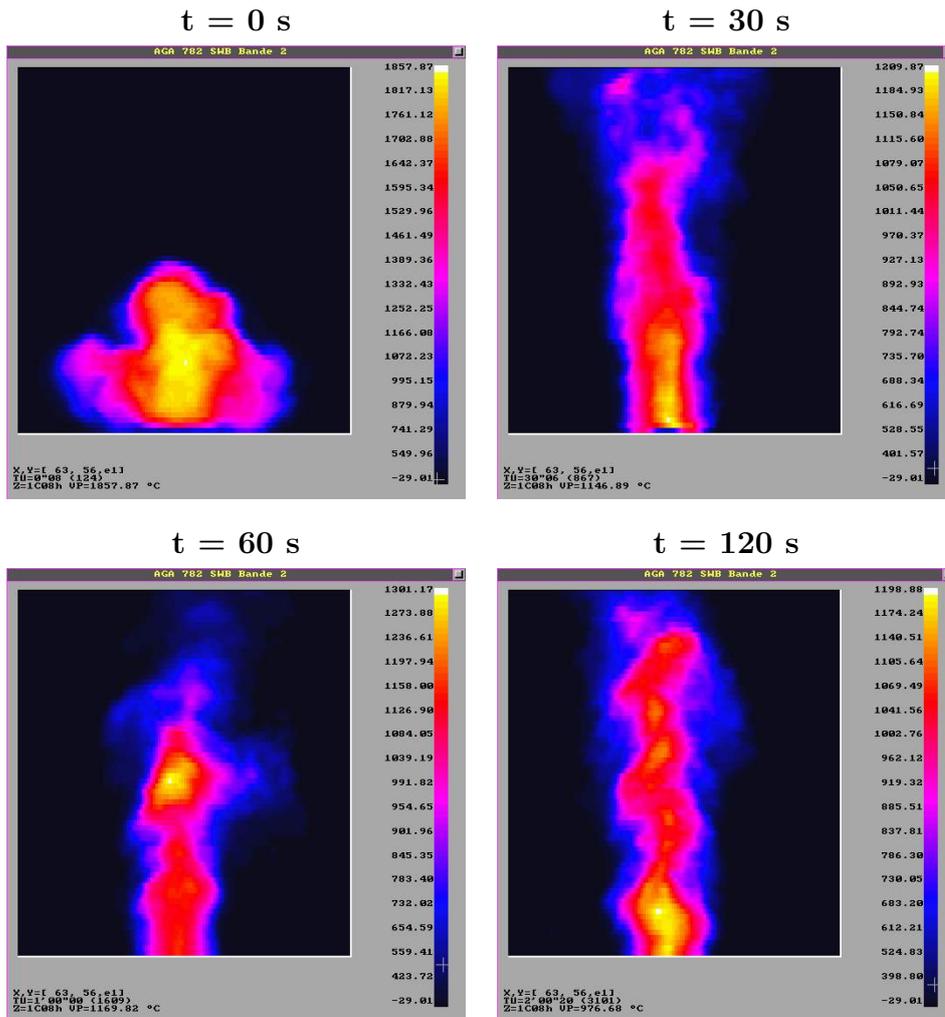


FIG. 5.3 – Visualisation par caméra IR d'un feu de propergol type Butalite (Bande II)

Dans le cas de la composition Butalite (Fig.5.3 et 5.4), les zones identifiées sont sensiblement les mêmes, avec néanmoins quelques différences remarquables :

- la zone la plus chaude (rouge-orangée) correspond à la base du feu où a également lieu la combustion des gouttelettes d'aluminium. Cependant, les niveaux de température atteints sont bien moins élevés que pour la Butalane ($T_{ECNII} \approx 1200 \text{ °C}$ et T_{ECNIII}

≈ 930 °C), en raison de la faible teneur du matériau en aluminium.

- la zone intermédiaire (rouge-violette) semble plus affectée aérothermiquement que dans le cas d'une Butalane. Les niveaux de température atteints sont également bien plus faibles ($T_{ECNII} \approx 1000$ °C et $T_{ECNIII} \approx 750$ °C);
- la zone de mélange avec l'air ambiant (bleu-violet) s'établit plus près de la surface de propergol et demeure une zone de forte turbulence.

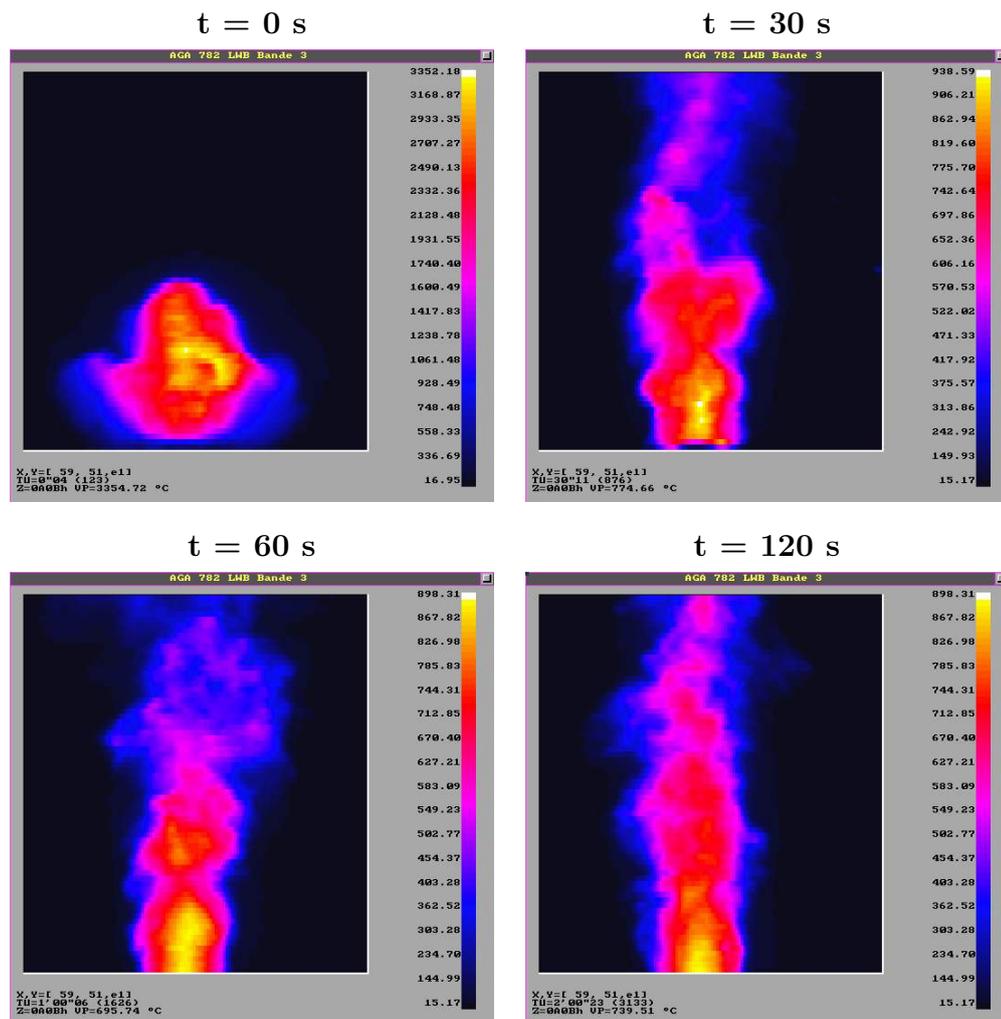


FIG. 5.4 – Visualisation par caméra IR d'un feu de propergol type Butalite (Bande III)

Dans les deux cas, nous retrouvons donc la structure à trois cônes d'un feu de propergol solide aluminisé, proposée par Price (1979). Ces observations restent qualitatives et il est difficile de conclure sur la taille ou la composition précise de chaque zone. Cependant, quelle que soit la zone considérée, les niveaux de température T_{ECN} les plus élevés sont

ici atteints en Bande II et non en Bande III, comme c'était le cas pour la Butalane. Le comportement radiatif des deux compositions semble être bien différent, point que nous montrons, plus en détail, dans le paragraphe suivant. Par ailleurs, une visualisation par caméra ultraviolet a été réalisée au cours de ces essais. Les résultats obtenus restent cependant qualitatifs et sont présentés en Annexe B.

5.1.1 Effet du chargement initial en Al sur le rayonnement du feu

Une comparaison des paramètres mesurés lors des essais en champ libre (Luminance, TECN, Flux radiatifs) a permis de montrer que le chargement initial du propergol en particules d'aluminium influe beaucoup sur le rayonnement du feu.

Ainsi, la luminance totale intégrée sur l'ensemble de l'écoulement, pour une composition de propergol à 4%Al, est inférieure d'un facteur 1,5 en Bande II, et d'un facteur 2 en Bande III, comparée à celle mesurée pour la composition Butalane, à 20%Al (Fig.5.5). Cet écart est d'ailleurs plus significatif en Bande III, où l'émission des particules d'alumine est très élevée ($\epsilon_{Al_2O_3} \approx 0,9$). Ceci souligne donc le rôle majeur joué par les gouttelettes d'aluminium puis par les particules d'alumine dans le rayonnement d'un feu de propergol aluminisé. De même, le spectre du feu de Butalite, mesuré à une hauteur de

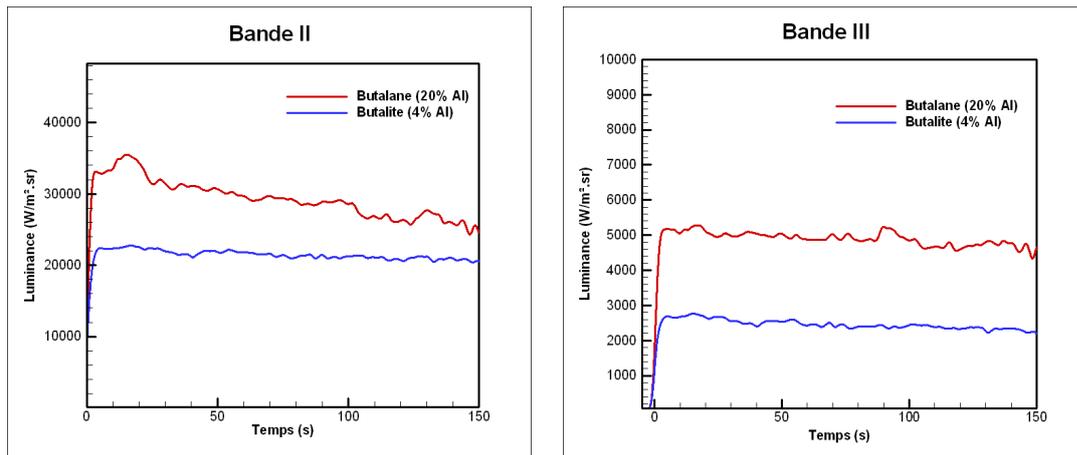


FIG. 5.5 – Comparaison des luminances totales émises par le feu de propergol en Bande II et en Bande III, entre les compositions Butalane et Butalite

25 cm au dessus du bloc de propergol sur la bande $[3-14 \mu\text{m}]$, montre que la plus grande

part de la luminance émise par cette flamme, peu chargée en gouttes $\text{Al}/\text{Al}_2\text{O}_3$, l'est en Bande II (Fig.5.6), et qu'un très faible pourcentage l'est en Bande III. Il met d'ailleurs en évidence les pics d'absorption des espèces CO_2 (autour de $4.25 \mu\text{m}$) et CO (autour de $4.65 \mu\text{m}$) qui sont majoritaires dans la composition des gaz, comme le montre un calcul à l'équilibre thermochimique d'une combustion d'un propergol solide aluminisé à 4%Al, à pression atmosphérique (Tab.5.1.1). Dans le cas de cette composition, la présence de

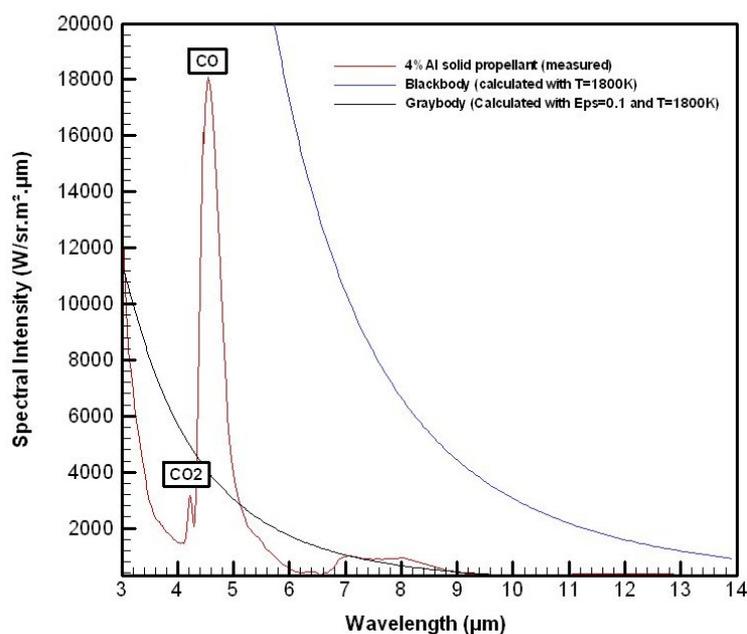


FIG. 5.6 – Spectre du feu de propergol Butalite sur la largeur de bande $[3-14 \mu\text{m}]$

ces espèces gazeuses contribue très fortement à augmenter la luminance du feu en Bande II et le faible chargement en gouttes $\text{Al}/\text{Al}_2\text{O}_3$ explique le faible rayonnement en Bande III. D'autre part, le comportement radiatif d'un feu de Butalite est loin d'être celui d'un corps noir ou même d'un corps gris, sur la bande spectrale $[3-14 \mu\text{m}]$.

Intéressons nous maintenant aux flux radiatifs mesurés en différents points autour du feu de propergol et comparons les valeurs obtenues pour les deux chargements en aluminium. D'après la figure 5.7, les transferts radiatifs d'un feu de propergol vers l'environnement sont bien plus importants lorsque le propergol solide PA/PBHT est initialement plus chargé en aluminium. Le flux radiatif mesuré, pour une composition à 20% d'Al,

	Butalite
Y_{H_2}	1,2%
Y_{CO}	21,3%
Y_{HCl}	22,7%
Y_{H_2O}	22,6%
$Y_{Al_2O_3(L)}$	7,4%
Y_{N_2}	9,7%
Y_{CO_2}	10,9%
Y_{O_2}	0,2%

TAB. 5.1 – Composition des gaz brûlés à l'équilibre thermochimique (espèces prépondérantes), après combustion adiabatique de la composition butalite ($p = 1 \text{ atm}$)

est près de trois fois celui obtenu pour un chargement à 4%, et ce quel que soit le point de mesure (Tab.5.2). L'influence de la composition est même ressentie à 2 m de distance du bloc et 2 m au-dessus de la surface du propergol. Là aussi, le chargement du feu en gouttes Al/Al₂O₃ semble être à l'origine de tels écarts.

AP / HTPB / 4% Al			
Left Side	Average Radiative Heat Flux (kW/m ²)		Right Side
H1L1	6.2	8.2	H1R1
H2L1	2.8	2.9	H2R1
H1L2	2.1	2.5	H1R2
H2L2	1.4	1.6	H2R2

AP / HTPB / 20% Al			
Left Side	Average Radiative Heat Flux (kW/m ²)		Right Side
H1L1	19.2	17.8	H1R1
H2L1	8.2	7.6	H2R1
H1L2	6.0	7.2	H1R2
H2L2	4.1	4.3	H2R2

TAB. 5.2 – Flux radiatifs moyens mesurés autour du spécimen pyrotechnique

En effet, comme nous l'avons observé, la zone du feu située jusqu'à 1 m de hauteur correspond aux cônes 1 et 2 de Price : c'est le lieu de la combustion des gouttes d'aluminium. Cette oxydation est très exothermique et augmente fortement la température du milieu

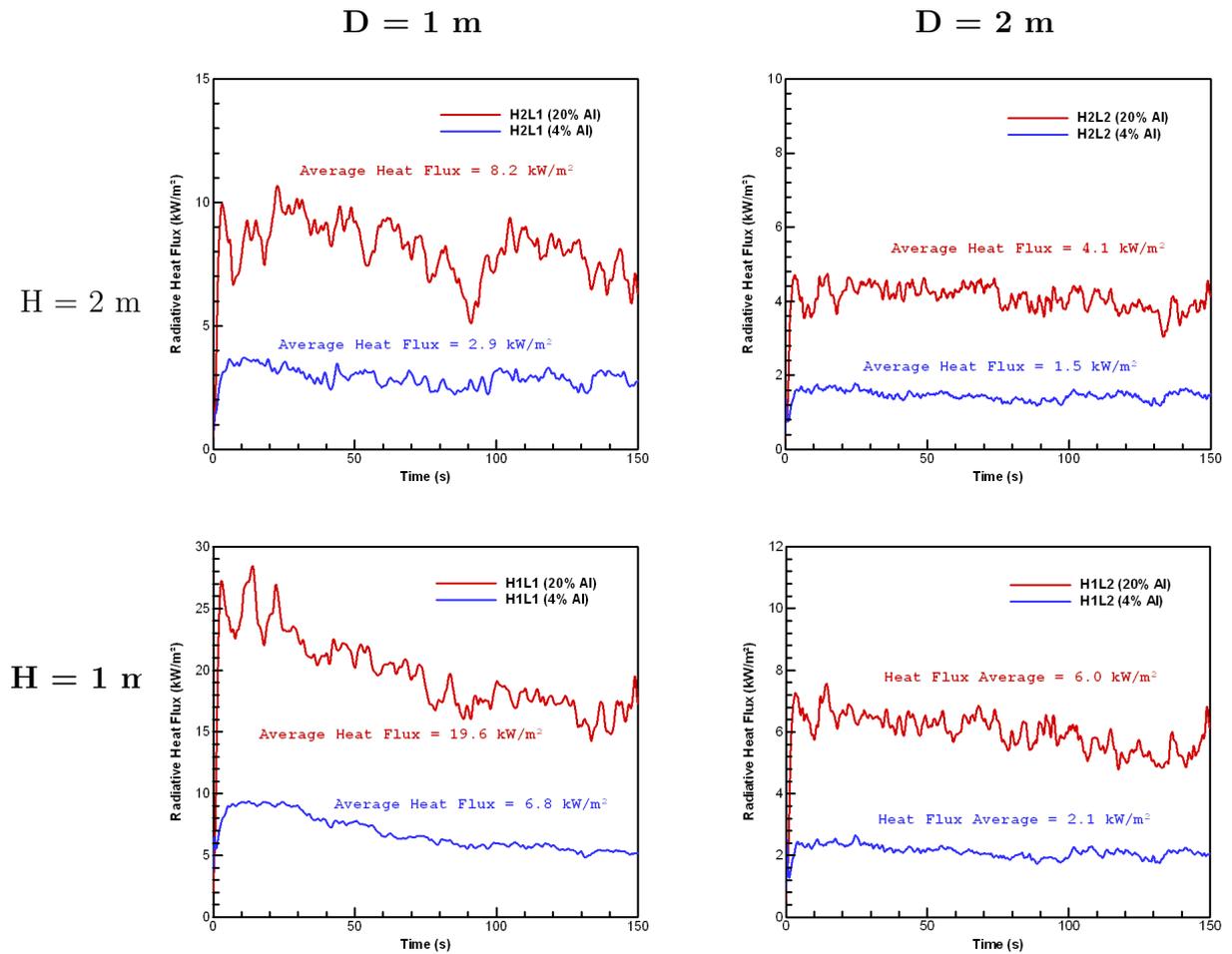


FIG. 5.7 – Influence du chargement initial en aluminium sur le flux radiatif mesuré ($p = 1 \text{ atm}$)

et par conséquent les transferts de chaleur vers l'environnement. C'est pourquoi, les flux radiatifs mesurés à cette hauteur sont très élevés, même à 1 m du bloc ($\bar{\varphi}_{rad}(\text{Butalane}) = 19,6 \text{ kW/m}^2$ en H1L1), et qu'ils le sont d'autant plus que le feu est fortement chargé en gouttes d'aluminium.

Plus haut, entre $H = 1 \text{ m}$ et $H = 2 \text{ m}$, la plupart des gouttes d'Al ont terminé de s'oxyder : nous sommes ici dans la zone de mélange avec l'air ambiant (cône 3). La température du milieu chute fortement et par voie de conséquence les transferts radiatifs vers l'environnement aussi ($\bar{\varphi}_{rad}(\text{Butalane}) = 8,2 \text{ kW/m}^2$ en H2L1). De plus, ce sont principalement des particules d'alumine, isolées ou sous forme d'agglomérats, qui composent alors le panache de la flamme, qui diffusent le rayonnement émis par le feu et qui se dispersent tout

autour du bloc de propergol. Donc, là aussi, il est cohérent de mesurer un flux radiatif plus élevé lorsque le panache du feu est plus chargé en particules d'alumine, c'est-à-dire pour une composition de propergol initialement plus aluminisée.

D'autre part, bien que l'écart entre les mesures à gauche et à droite du bloc ne soient pas très important, il est difficile de considérer la combustion d'un bloc de propergol solide aluminisé comme étant symétrique thermiquement (Fig.5.8). Ceci est certes dû au caractère aléatoire de l'agglomération et de la dispersion des gouttes d'aluminium mais aussi à la difficulté de maintenir des conditions expérimentales parfaites (vent nul et rôle de l'inhibiteur maintenu sur tout le tir). Notons que cette disymétrie est d'autant plus marquée que la teneur en aluminium est petite. Dans ce cas, la vitesse d'éjection des gaz brûlés dans l'air ambiant est plus faible et la zone de mélange gaz de propergol-air plus rapidement atteinte (zone chaude moins étirée). Le panache turbulent en résultant est par conséquent plus sensible aux effets aérodynamiques extérieurs, tel que le vent.

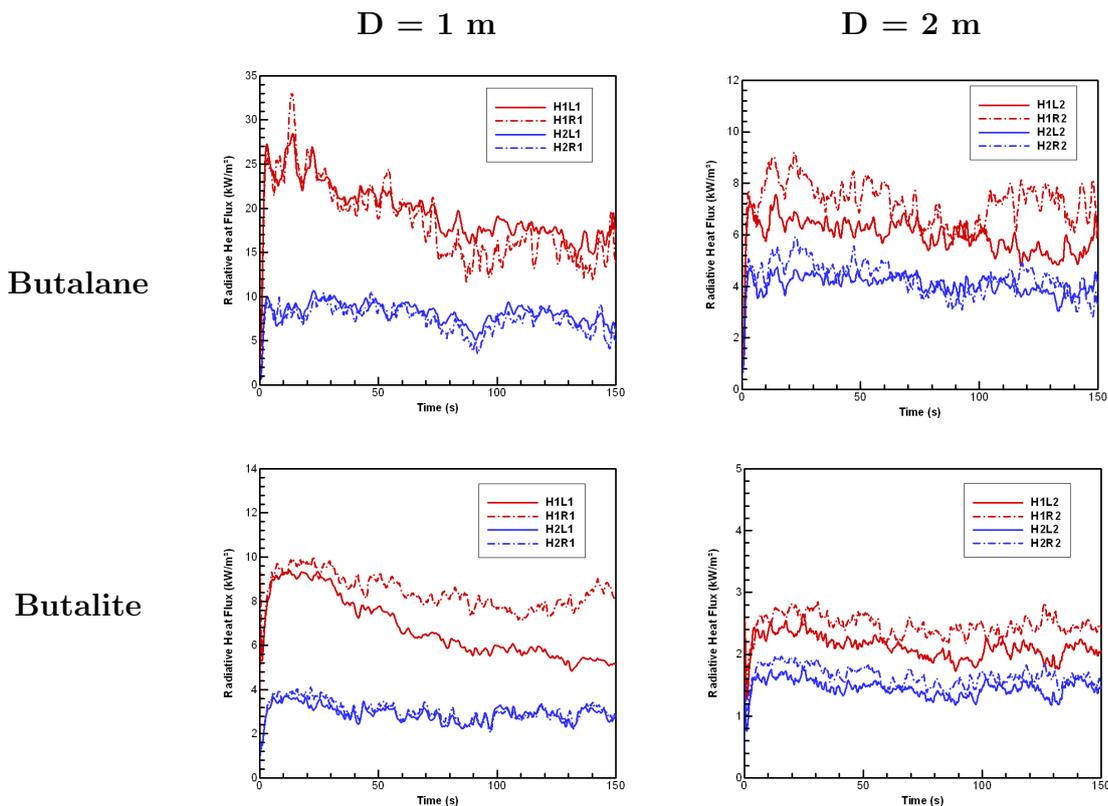


FIG. 5.8 – Comparaison ”Gauche-Droite” de l'évolution du flux radiatif au cours des tirs pour chaque composition

Finalement, le chargement initial en aluminium du propergol a une grande influence sur les transferts radiatifs vers l'environnement. Toutefois, comme il est montré ci-après, son effet sur la vitesse de combustion du propergol est également remarquable.

5.1.2 Effet du chargement initial en Al sur la vitesse de combustion du propergol

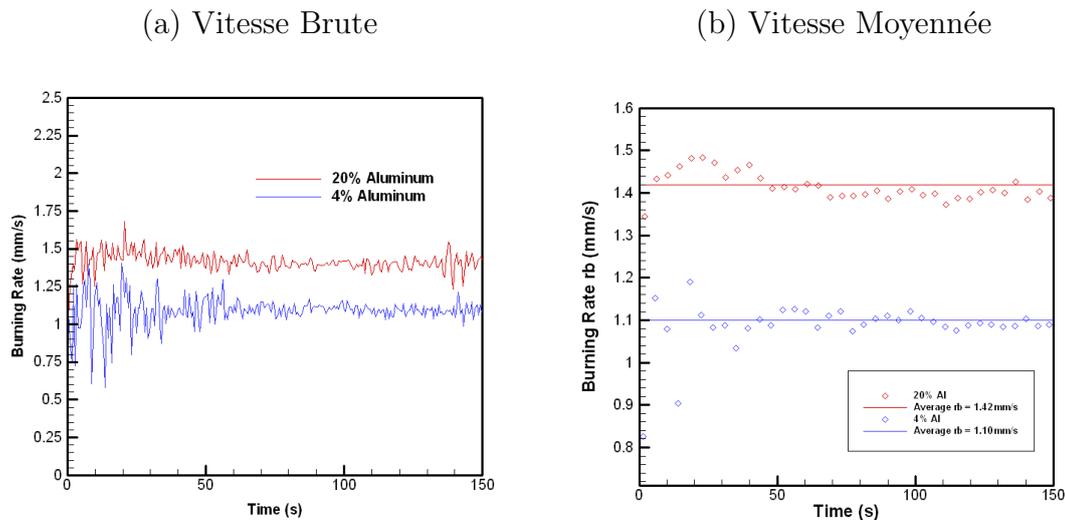


FIG. 5.9 – Evolution temporelle des vitesses de combustion brute (a) et moyennée (b), pour les compositions Butalane et Butalite

Comme précisé dans le chapitre précédent, nous déduisons l'évolution temporelle de l'épaisseur de propergol à partir du signal ultrasonore mesuré puis, par dérivation, nous obtenons la vitesse de combustion locale du bloc (Fig.5.9(a)). Malgré un signal ultrasonore plus bruité en début de tir, en raison de la plus grande profondeur à pénétrer, et une incertitude sur la vitesse de combustion estimée à 4%, on observe un régime quasi-stationnaire de combustion du propergol composite PA/PBHT/Al, à partir de $t = 50$ s. La vitesse moyenne est de 1,42 mm/s pour la Butalane et de 1,10 mm/s pour la Butalite (Fig.5.9(b)). Par comparaison avec Diaz et al. (1993), qui avaient mesuré une vitesse de $1,34 \text{ mm/s} \pm 0,05 \text{ mm/s}$ pour un propergol à 16% d'aluminium, ces valeurs sont typiques d'une combustion de propergol composite à pression atmosphérique. Elles demeurent ainsi très faibles par rapport aux vitesses déterminées à des pressions de fonctionnement de pro-

pulseur [10-100 atm], qui sont de l'ordre de 1 à 10 cm/s.

D'autre part, à pression atmosphérique, il semble que, globalement, plus le propergol solide PA/PBHT est initialement chargé en aluminium, plus sa vitesse de combustion est élevée. La chaleur libérée par la combustion des gouttes d'aluminium contribue à augmenter la température du milieu gazeux et le flux de chaleur incident qui pilote la régression du propergol. Un calcul de température adiabatique de flamme, à pression atmosphérique, où les produits de combustion sont considérés à l'équilibre thermochimique, donne ainsi :

- $T_f^{ad} = 3182$ K pour une Butalane à 20% d'Al
- $T_f^{ad} = 2731$ K pour une Butalite à 4% d'Al

Cependant, la plupart des gouttes d'aluminium brûlent assez loin de la surface de propergol à pression atmosphérique et l'impact de l'énergie libérée par leur oxydation sur la régression du bloc reste difficile à quantifier.

Finalement les paramètres mesurés jusqu'à présent (vitesse de combustion, flux radiatifs, luminance) nous renseignent sur la régression du propergol et sur l'environnement thermique du feu, sans pour autant préciser le comportement interne de celui-ci. C'est pourquoi, des mesures *in situ*, effectuées lors des essais en cheminée, sont nécessaires afin d'ajouter des données quantitatives correspondant aux différentes zones observées. D'autre part, la comparaison entre les deux chargements en aluminium a révélé la grande influence des gouttes Al/Al₂O₃ sur le rayonnement du feu vers l'environnement. La détermination du comportement émissif du feu de Butalane en $\lambda = 0,9 \mu\text{m}$ (Bande I), $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$ et $\lambda = 4,66 \mu\text{m}$ (Bande II) nous permet ci-après de confirmer cette tendance.

5.2 Mesures au coeur d'un feu de propergol aluminisé

Pour les trois configurations d'essai en cheminée, on obtient les signaux de mesure suivants :

- Température Equivalent Corps Noir T_{ECN09} mesurée par le pyromètre monochromatique IMPAC, à $\lambda = 0,9 \mu\text{m}$ (courbe noire)

- Température vraie T_{vraie} mesurée par le pyromètre bichromatique IMPAC, centré en $\lambda_1 = 0,9 \mu\text{m}$ et $\lambda_2 = 1,05 \mu\text{m}$ (courbe bleue)
- Température Equivalent Corps Noir T_{ECN450} mesurée par le pyromètre monochromatique HEITRONICS, à $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$ (courbe rouge)
- Température Equivalent Corps Noir T_{ECN466} mesurée par le pyromètre monochromatique HEITRONICS, à $\lambda = 4,66 \mu\text{m}$ (courbe verte)

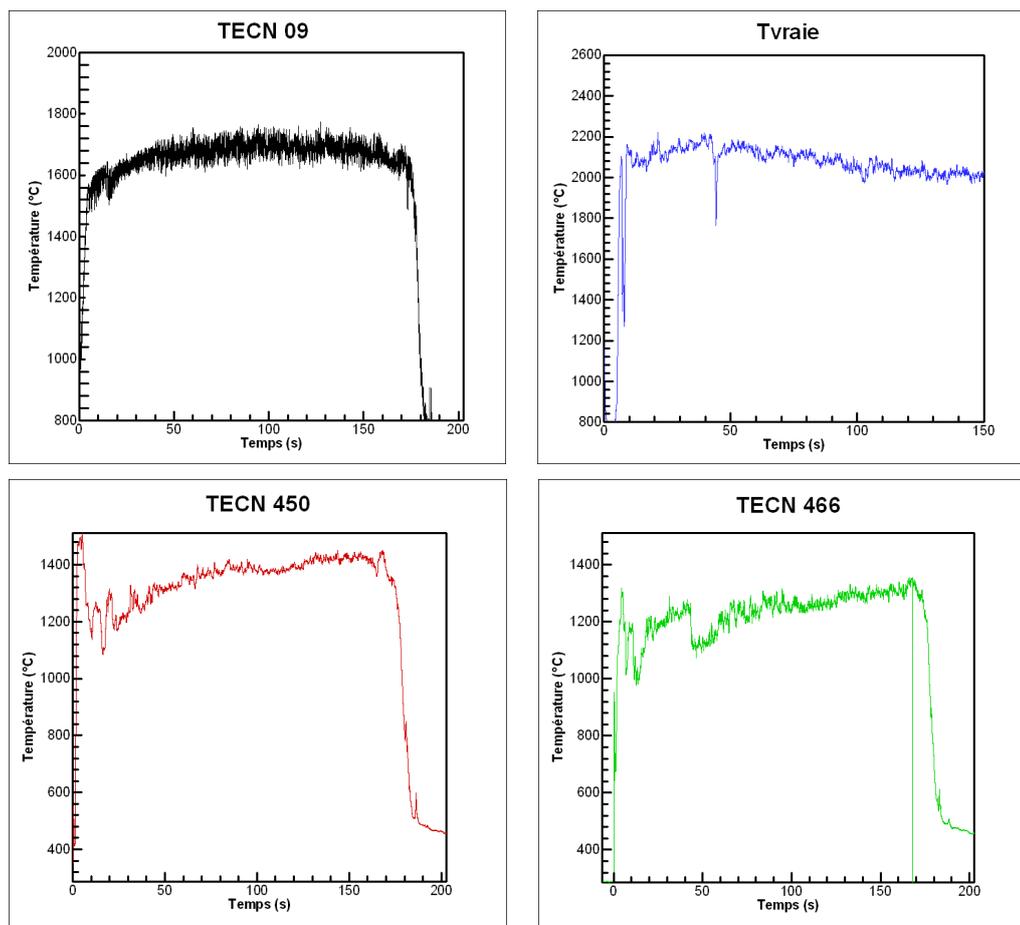


FIG. 5.10 – Mesures de température brutes en configuration 1, pour un feu de Butalane

Par exemple, la Figure 5.10 présente les signaux bruts mesurés lors de l'essai cheminée en Configuration 1, pour la composition Butalane. Le temps $t = 0$ s correspond à l'allumage du bloc de propergol. On peut remarquer la bonne stabilité des mesures issues des quatre pyromètres pendant la quasi-totalité du tir, exceptées lors des dix premières secondes, où apparaissent des sauts et chutes brutales de température, suite à l'allumage violent du propergol. Notons également, sur les signaux mesurés par les pyromètres HEITRONICS,

un décrochage de T_{ECN466} très significatif aux alentours de $t = 50$ s, peut-être dû à l'obstruction partielle du tube de vue pendant quelques secondes (Fig.5.11). De même, en configurations 2 et 3, les 50ères secondes de tir ne donnent pas des mesures très exploitables. Par conséquent, les signaux de mesure ne seront analysés qu'à partir de $t = 50$ s pour la suite de l'étude et l'ensemble des capteurs.

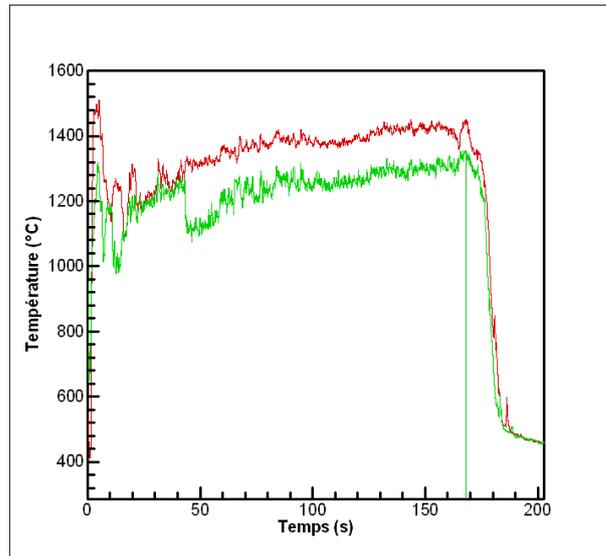


FIG. 5.11 – Comparaison des signaux $TECN450(t)$ et $TECN466(t)$: Décrochage brutale de $TECN466$ à $t = 50$ s

Entre $t = 50$ s et $t = 170$ s, la température vraie T_{vraie} , mesurée par le pyromètre bichromatique IMPAC, baisse sensiblement de 2200°C à 2000°C . Cette tendance est principalement due à la régression de la surface de combustion du bloc : la zone de réactions gazeuses (zone de hautes températures et très proche de la surface de pyrolyse) s'éloigne ainsi progressivement du volume de mesure. D'autre part, la température équivalente corps noir T_{ECN09} est d'environ 1650°C , restant relativement stable tout au long du tir. Ces deux mesures nous permettront par la suite de déduire la valeur de l'émissivité monochromatique de la flamme, en $\lambda = 0,9 \mu\text{m}$.

A l'inverse, les températures mesurées par les pyromètres HEITRONICS en bande II, T_{ECN450} et T_{ECN466} , ont tendance à augmenter au cours du tir, respectivement de 1200°C à 1400°C , et de 1100°C à 1300°C . Alors que le bloc de propergol se consume, les deux pyromètres, situés à $H_2 = 26$ cm, pointent, en effet, une zone de plus en plus chargée en gouttes $\text{Al}/\text{Al}_2\text{O}_3$, qui sont très émissives en $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$.

5.2.1 Températures *in situ* mesurées par pyrométrie

L'évolution temporelle des températures mesurées par pyrométrie à trois hauteurs différentes au-dessus de la surface de propergol est présentée Figure 5.12, dans le cas d'un feu de Butalane.

En $H_1 = 6$ cm, la température vraie du milieu T_{vraie} décroît régulièrement au cours du tir, de 2200°C à environ 2000°C , alors qu'*a contrario*, les températures T_{ECN450} et T_{ECN466} augmentent de $150\text{-}200^\circ\text{C}$, entre $t = 50$ s et $t = 125$ s. Ces tendances sont principalement dues à la régression du bloc de propergol Butalane qui modifie la composition du milieu dans le volume de mesure. La surface de combustion du propergol, lieu de réactions en phase gazeuse très exothermiques, s'éloigne peu à peu et les plus petites gouttes d'aluminium commencent à terminer de s'oxyder avant la hauteur H_1 . Ainsi, le volume de mesure à cette hauteur en fin de tir est certainement composé de particules d'alumine et de monoxyde de carbone CO, espèces liquides et gazeuses principalement produites par la combustion des gouttes d'aluminium, et très émissives en $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$.

En $H_2 = 26$ cm, on retrouve les mêmes tendances puisque T_{vraie} diminue progressivement de 2000°C à 1750°C , tandis que T_{ECN450} et T_{ECN466} passent respectivement de 1300°C à 1400°C et de 1100°C à 1250°C . Là aussi, les particules d'alumine sont de plus en plus présentes dans le volume de mesure car certaines gouttes d'Al ont terminé de s'oxyder.

En $H_3 = 46$ cm, l'écoulement étant un peu plus perturbé en sortie de cheminée, les signaux sont moins stables et oscillent autour d'une valeur moyenne. Ainsi, la température vraie T_{vraie} oscille autour de 1850°C de $t = 50$ s jusqu'à $t = 125$ s, alors que les signaux T_{ECN450} et T_{ECN466} varient respectivement autour de 1250°C et 1100°C .

Afin de nous affranchir de la régression du bloc pendant le tir et donc du changement de composition dans le volume de mesure, la suite de l'analyse est effectuée dans l'intervalle de temps [60 - 70 s], sur lequel les variations de température restent faibles. Nous pouvons alors distinguer deux zones sur cet intervalle de temps (Fig.5.13).

La première correspond à la hauteur de mesure H_1 , dont la hauteur réelle associée \tilde{H}_1 varie de 14,5 cm à 15,9 cm entre $t = 60$ s et $t = 70$ s. Sur cet intervalle de temps, la

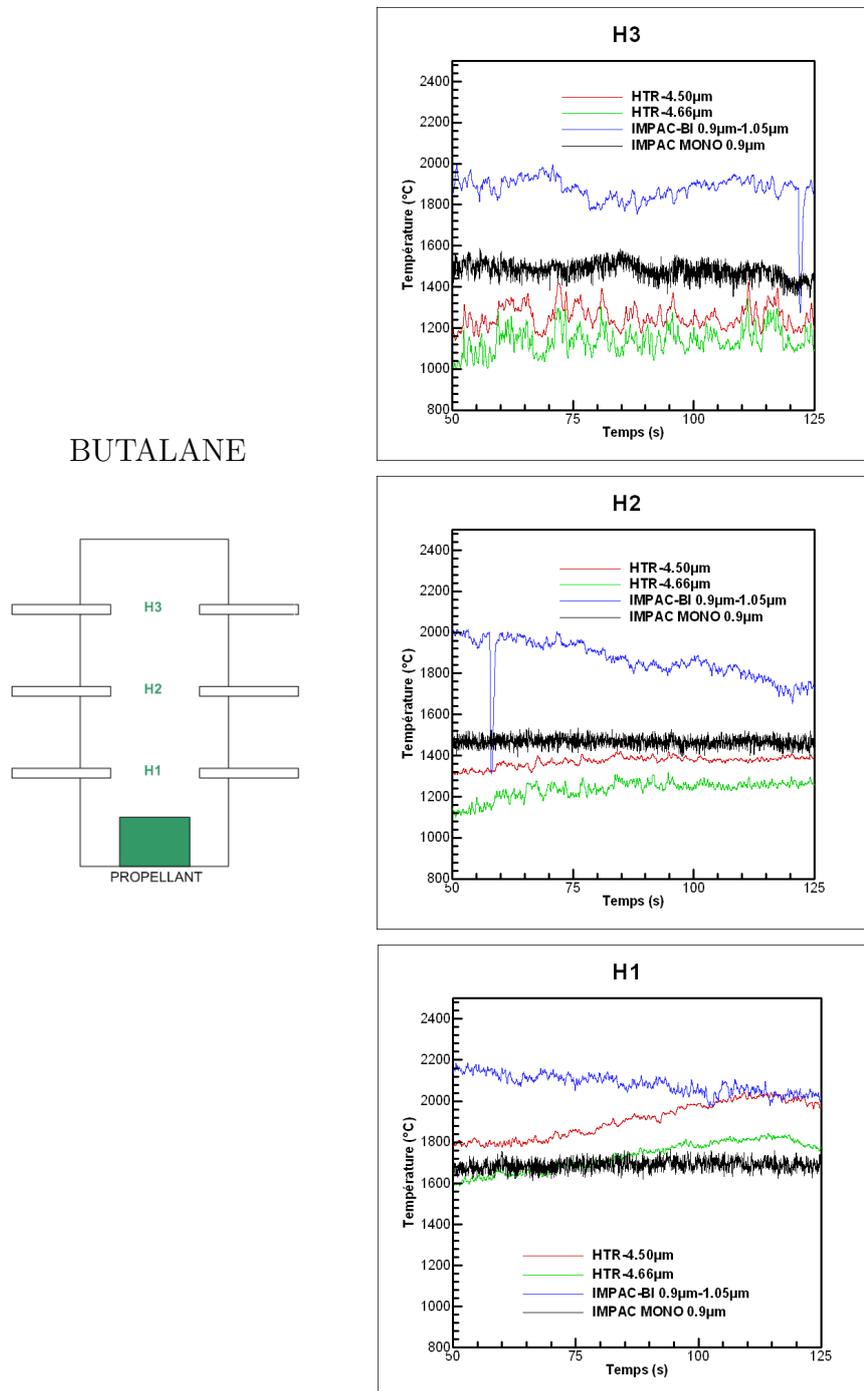


FIG. 5.12 – Evolution temporelle des températures mesurées par pyrométrie en $H_1 = 6$ cm, $H_2 = 26$ cm et $H_3 = 46$ cm, pour un feu de propergol type Butalane

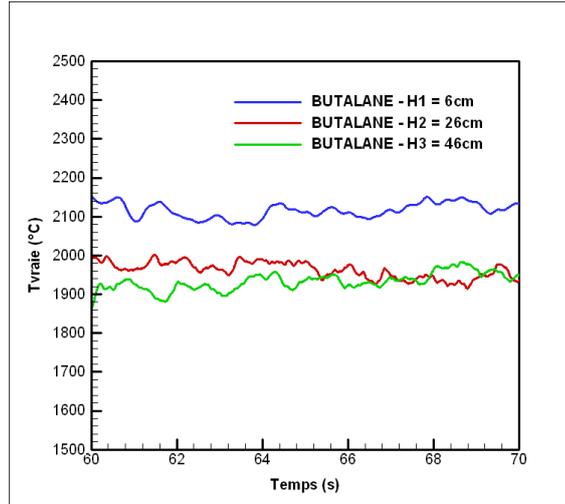


FIG. 5.13 – Température vraie T_{vraie} au coeur d'un feu de Butalane en fonction de la hauteur H ($H_1 = 6$ cm, $H_2 = 26$ cm, $H_3 = 46$ cm)

température vraie moyenne reste élevée ($\bar{T}_{vraie} = 2116 \pm 7^\circ\text{C}$) dans cette zone qui est la plus proche de la surface de combustion et qui est également le lieu de la combustion des gouttelettes d'aluminium. Celle-ci pourrait donc correspondre à la fin du cône primaire de Price.

La seconde zone correspond aux hauteurs H_2 et H_3 , où la température vraie moyenne est sensiblement plus faible ($\bar{T}_{vraie}(H_2) = 1962 \pm 7^\circ\text{C}$ et $\bar{T}_{vraie}(H_3) = 1933 \pm 7^\circ\text{C}$). Les hauteurs réelles associées \tilde{H}_2 et \tilde{H}_3 varient respectivement de 34,5 cm à 35,9 cm et de 54,5 cm à 55,9 cm sur l'intervalle [60 - 70 s]. Les volumes de mesure se situent beaucoup plus loin de la surface du bloc et voient principalement un milieu multiphasique composé d'un mélange de gaz de combustion de propergol, de gouttes d'aluminium en fin de combustion et de particules d'alumine. Ces deux hauteurs pourraient donc faire partie du cône secondaire de Price.

Enfin, les températures vraies mesurées ici sont légèrement plus faibles que celles issues de la littérature [2, 17] (Fig.5.14). Toutefois, étant donné que les compositions sont différentes les unes des autres (chargement en aluminium et liant différents), une telle comparaison reste purement qualitative.

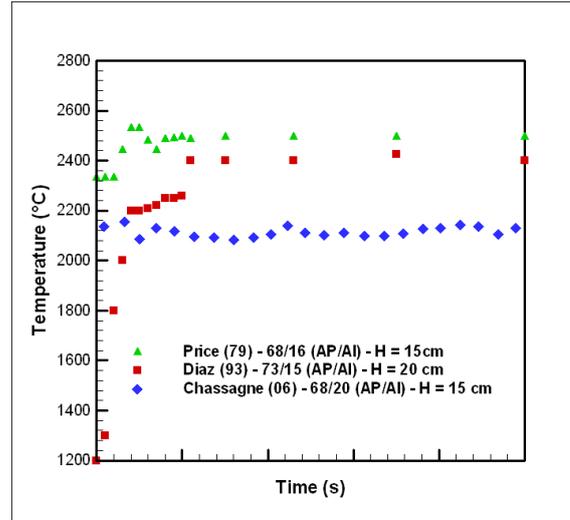


FIG. 5.14 – Comparaison de la température vraie du milieu T_{vraie} d'un feu de Butalane, mesurée en H_1 sur l'intervalle de temps [60 - 70 s], avec les mesures issues de la littérature

5.2.2 Influence des gouttes Al/Al_2O_3 sur les propriétés radiatives d'un feu de Butalane

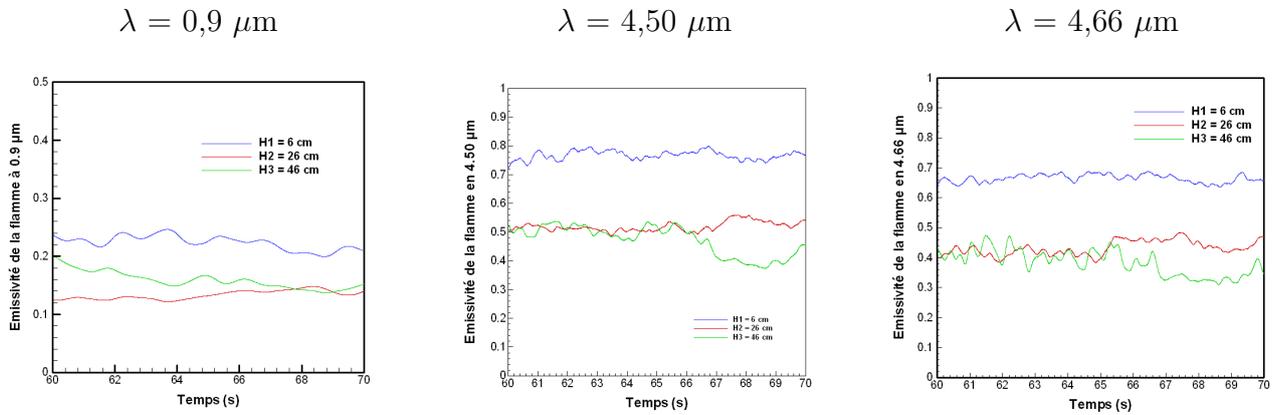


FIG. 5.15 – Evolution au cours du temps de l'émissivité monochromatique locale du milieu à $\lambda = 0,9 \mu\text{m}$, $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$ et $\lambda = 4,66 \mu\text{m}$ (Butalane, 1 atm)

A partir des mesures de température précédentes, on déduit l'émissivité monochromatique d'un feu de propergol Butalane en bandes I et II et on met ainsi en évidence la différence de comportement radiatif du milieu dans ces deux domaines du spectre (Fig.5.15). Autour de $\lambda = 0,9 \mu\text{m}$ (bande I), l'émissivité monochromatique de la flamme est au maximum égale à $0,22 \pm 0,011$ et ce quelle que soit la hauteur à laquelle on effec-

tue la mesure : la température n'a qu'une faible influence sur l'émissivité de la flamme. *A contrario*, en Bande II, l'émissivité est toujours supérieure à 0,4 et la base de la flamme demeure bien plus émissive que les zones supérieures ($\epsilon(\lambda, T) \approx 0,70$ en H_1 contre environ 0,50 en H_2 et H_3). Sur ces longueurs d'onde, l'influence de la température sur les propriétés radiatives du feu est bien plus marquée, comme le souligne la Figure 5.16. Par

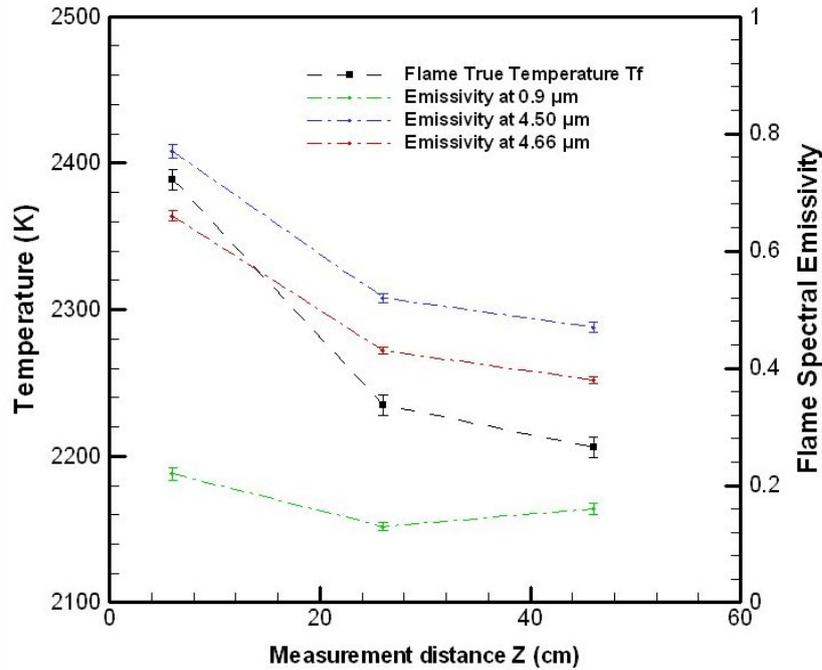


FIG. 5.16 – Emissivités monochromatiques locales du milieu (valeurs moyennées sur [60 - 70 s])

comparaison directe avec les données sur les propriétés émissives des particules d'alumine, collectées par Sarou Kanian et al. [15] pour trois valeurs de température, sur la bande spectrale [1,8 - 9 μm], le feu de Butalane (20%Al) semble suivre le comportement émissif des particules d'alumine dans l'infrarouge (Fig.5.17). En effet, le saut d'émissivité monochromatique de 0,1 à 0,9 que l'on a vérifié pour la flamme de Butalane autour de 4-5 μm, est caractéristique du comportement radiatif des particules d'alumine, par ailleurs très présentes dans ce type de feu. En outre, la base de la flamme, lieu de l'oxydation des gouttelettes d'aluminium, est une zone de très hautes températures où les particules d'alumine formées se retrouvent sous la forme liquide ($T_{vraie}(H_1) = 2116 \pm 7^\circ\text{C}$ et $T_{fus}^{Al_2O_3}$

= 2054°C). Celles-ci vont alors se refroidir et se solidifier au cours de leur transport dans les zones supérieures du panache (hauteurs H_2 et H_3).

Il est à noter que les valeurs d'émissivité en $\lambda = 4,66 \mu\text{m}$ sont inférieures à celles en $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$, ce qui pourrait être lié à l'absorption de certaines espèces gazeuses telles que CO (ou même CO_2) à cette longueur d'onde.

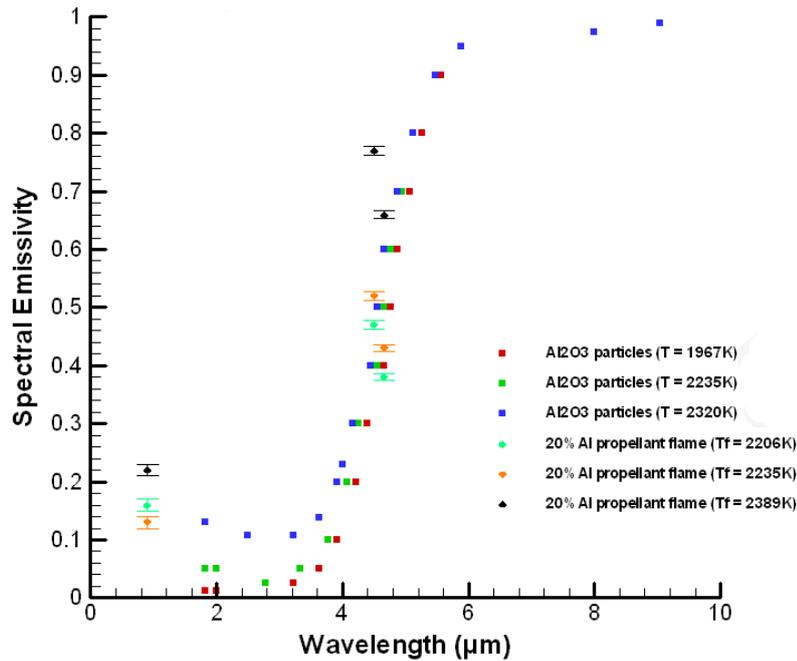


FIG. 5.17 – Comparaison du spectre d'émissivité monochromatique d'un feu de Butalane avec celui de l'alumine solide Al_2O_3 [15]

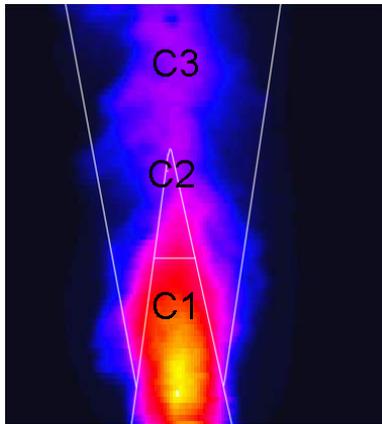
5.2.3 Essais sur Butalite

Les mêmes tests sont effectués sur la composition de propergol faiblement aluminisé, dite Butalite, et utilisent les mêmes systèmes de mesure. Cependant, tandis que la flamme de Butalane se comporte comme un corps gris autour de $\lambda = 0,9 \mu\text{m}$, il n'en est rien pour la flamme de Butalite, beaucoup moins chargée en aluminium. Par conséquent, il n'est pas possible de mesurer directement, par pyrométrie bichromatique, la température vraie du milieu. Aussi, nous nous limitons à des mesures de Température Equivalent Corps Noir

mais qui restent trop qualitatives pour faire l'objet d'une comparaison rigoureuse avec les températures obtenues avec la composition Butalane (voir Annexe C).

5.3 Conclusion sur les essais

A travers ces deux campagnes d'essais, que ce soit par des mesures autour ou au coeur de la flamme, nous avons confirmé le modèle proposé par Price (1979) qui subdivise la structure d'un feu de propergol solide aluminisé en trois cônes distincts. L'utilisation de



Feu de Butalane PA/PBHT/20%Al ($p = 1 \text{ atm}$)

Cône C_1

Lieu des réactions en phase gazeuse entre les produits issus de la vaporisation du PA et du PBHT

Zone de très hautes températures ($T_{vraie} \geq 2100\text{-}2400^\circ\text{C}$), peu affectée thermiquement par l'air ambiant

Lieu d'oxydation des gouttes d'aluminium

$$\epsilon(\lambda=0.9\mu\text{m}) \approx 0.22$$

$$\epsilon(\lambda=4.50\mu\text{m}) \approx 0.77$$

$$\epsilon(\lambda=4.66\mu\text{m}) \approx 0.66$$

Cône C_2

Fin de la combustion des gouttes d'Al

Production et agglomération des particules d'alumine

$$T_{vraie} \approx 1950\text{-}2100^\circ\text{C}$$

$$\epsilon(\lambda=0.9\mu\text{m}) \approx 0.15$$

$$\epsilon(\lambda=4.50\mu\text{m}) \approx 0.5$$

$$\epsilon(\lambda=4.66\mu\text{m}) \approx 0.4$$

Cône C_3

Zone de mélange avec l'air ambiant caractérisée par des structures tourbillonnaires

Dispersion des particules solides d'alumine

Chute de la température du milieu $T_{vraie} \leq 1950^\circ\text{C}$

TAB. 5.3 – Synthèse proposée pour caractériser un feu de propergol de type Butalane ($p = 1\text{atm}$)

méthodes de diagnostic optique adaptées, telles que la pyrométrie et la spectrométrie, a ensuite permis de compléter les données expérimentales existantes, notamment pour la composition de propergol de type Butalane (Tab.5.3). De plus, en testant deux charge-ments de propergol en aluminium, nous avons pu mettre en évidence la part prépondérante jouée par les gouttes d'aluminium et les particules d'alumine dans les transferts radiatifs du feu vers l'extérieur et vers la surface du bloc.

Par ailleurs, les mesures *in situ* ont montré que l'émission infrarouge du feu de pro-pergol fortement aluminisé (Butalane) est contrôlée par les particules d'alumine. Un tel comportement met au second plan le rayonnement gazeux qui se limite aux espèces prépondérantes présentes dans la flamme, telles que CO et CO₂. Toutefois, dès lors que la concentration en gouttes d'aluminium est plus faible (exemple de la Butalite), le mélange gazeux joue de nouveau un rôle non négligeable dans les transferts radiatifs.

Enfin, les paramètres mesurés en différents points, tels que la température vraie T_{vraie} et le flux radiatif φ_{rad} vont nous servir de données de référence pour la validation d'un code de calcul numérique capable de prédire l'impact thermique de la combustion d'un propergol de type Butalane.

Troisième partie

Simulation numérique d'un feu de propergol solide aluminisé

Chapitre 6

Description générale du code de calcul FDS

Devant les coûts que représente la mise en oeuvre d'essais expérimentaux tels que ceux présentés dans la partie précédente et compte tenu de l'échelle et de la complexité des phénomènes mis en jeu, l'informatique demeure, de nos jours, un outil essentiel pour mener une étude de sécurité pyrotechnique. Si, par le passé, l'utilisation de coefficients de sécurité majorants, par l'ingénieur sécurisation, était la règle, il semble désormais possible de prédire numériquement la propagation d'un incendie et ce même à grande échelle.

Le développement croissant des moyens de calcul, des techniques numériques ainsi que des capacités de stockage permettent de mener des simulations sur des domaines physiques de plus en plus grands et couplant plusieurs phénomènes. C'est pourquoi, l'objet de cette partie est de présenter la méthode employée au cours de cette étude, pour simuler un feu de propergol solide aluminisé, à pression atmosphérique.

Nous présenterons, tout d'abord, le code de calcul FDS qui sert de base à la modélisation numérique et préciserons les motivations qui nous ont poussés à opter pour cet outil. Puis nous détaillerons les modifications que nous avons apportées afin de rendre compte de la spécificité de la combustion d'un bloc de propergol solide aluminisé. Enfin, nous mènerons une étude paramétrique sur un cas de référence et conclurons sur la validité d'un tel modèle.

6.1 Motivations du choix de cet outil de simulation

L'objectif principal de la présente étude est de simuler les effets thermiques d'un feu de propergol solide aluminisé. Aussi, étant données la diversité et la complexité des phénomènes mis en jeu, notre stratégie est de travailler sur un code de calcul existant, nommé FDS (Fire Dynamics Simulator) [19] et de le modifier afin de prendre en compte les principaux phénomènes mis en jeu lors de ce type d'incendie. Par opposition aux modèles de zones, trop simplifiés pour rendre compte de la nature hétérogène des feux de propergol, ce code aérothermique 3D, multi-espèces, résout numériquement les équations de Navier-Stokes (NS) pour des écoulements à faible nombre de Mach ($M \leq 1$) et représentatifs des feux à grande échelle. Il permet ainsi de calculer les champs de température, de pression et de vitesse sur des domaines suffisamment larges pour correspondre au cadre de notre étude.

Il intègre en outre un modèle de combustion en phase gazeuse, de type fraction de mélange, et un modèle de pyrolyse de matériaux solides, tous deux susceptibles de nous intéresser dans la modélisation de la combustion d'un propergol solide. Les transferts de chaleur, par conduction, convection et rayonnement, sont également calculés, ce qui permet de prédire l'environnement thermique d'un incendie. Enfin, un modèle lagrangien de goutte est inclus dans la phase continue et devrait nous permettre, après modifications, de prendre en compte la combustion diphasique des gouttes d'aluminium, phénomène prépondérant dans un feu de propergol aluminisé, à pression atmosphérique.

Dans ce chapitre, nous nous limiterons à la présentation des modèles aérodynamiques (approche de type LES) et thermiques (méthode de type Volumes Finis pour le calcul des transferts radiatifs).

6.2 Equations générales

6.2.1 Hypothèses générales

Ce code de calcul se base sur les hypothèses suivantes :

- Ecoulement à faible nombre de Mach : $M \leq 1$
 - Ecoulement instationnaire
-

– Mélange gazeux idéal, multi-espèce

6.2.2 Equation d'état

En considérant un mélange gazeux idéal, l'équation d'état associée s'écrit :

$$p = \rho \frac{R}{M_g} T \quad (6.1)$$

ρ et T sont la masse volumique et la température du milieu calculées localement, tandis que R et M_g sont respectivement la constante universelle des gaz parfaits et la masse molaire du mélange gazeux. Cette dernière peut s'écrire, pour un mélange de N espèces gazeuses, sous la forme :

$$M_g = \left(\sum_{i=1}^N (Y_i/M_i) \right)^{-1}$$

Pour des raisons que nous expliciterons section 6.5, le terme de pression p se décompose comme suit :

$$p = p_0 - \rho_\infty g z + \tilde{p}$$

où p_0 correspond à une pression moyenne, initialement égale à la pression atmosphérique, tandis que $-\rho_\infty g z$ et \tilde{p} sont respectivement les termes de pression hydrostatique et de perturbation.

Dans le cadre de notre étude, les termes de pression hydrostatique $-\rho_\infty g z$ et de perturbation \tilde{p} restent négligeables devant la pression atmosphérique p_0 , la hauteur du domaine de calcul étant bien inférieure au km et le feu se propageant à l'air libre. Par conséquent, nous considérerons, par la suite, la pression absolue p égale à la pression atmosphérique p_0 . L'équation d'état 6.1 devient alors :

$$p_0 = \rho \frac{R}{M_g} T \quad (6.2)$$

6.2.3 Equation de continuité

Elle s'écrit, pour un écoulement instationnaire, dans un repère orthonormé $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \vec{v}) = 0 \quad (6.3)$$

$\vec{v} = (u, v, w)$ et ρ sont respectivement le champ de vitesse de l'écoulement et la masse volumique du mélange gazeux.

6.2.4 Equation de conservation d'espèce

L'équation de conservation de l'espèce i ($i = 1 \dots N$) s'écrit :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho Y_i) + \text{div} (\rho Y_i \vec{v}) = \text{div} (\rho D_i \vec{\text{grad}} Y_i) + \dot{m}_i''' \quad (6.4)$$

Y_i symbolise la fraction massique de l'espèce i , D_i son coefficient de diffusion moléculaire (m^2/s) et \dot{m}_i''' son taux de production volumique ($\text{kg}/\text{m}^3/\text{s}$).

6.2.5 Equation bilan de quantité de mouvement

$$\rho \left(\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + \vec{\text{grad}} \frac{\|\vec{v}\|^2}{2} + r \vec{\text{ot}} \vec{v} \wedge \vec{v} \right) + \vec{\text{grad}} p = \rho \vec{g} + \vec{f} + \vec{\text{div}} \bar{\tau} \quad (6.5)$$

p correspond à la pression locale de l'écoulement, tandis que \vec{g} et \vec{f} sont respectivement la gravité terrestre et les forces volumiques extérieures qui s'appliquent à l'écoulement. $\bar{\tau}$ est le tenseur des contraintes de viscosité, défini tel que :

$$\bar{\tau} = 2\mu \bar{\bar{D}} - \frac{2}{3}\mu (\text{div} \vec{v}) \bar{\bar{I}}$$

où μ est la viscosité dynamique du mélange, $\bar{\bar{I}}$ la matrice identité et $\bar{\bar{D}}$ le tenseur des taux de déformation défini comme suit :

$$\bar{\bar{D}} = \frac{1}{2} \left[\vec{\text{grad}} \vec{v} + (\vec{\text{grad}} \vec{v})^T \right] = \begin{pmatrix} \frac{\partial u}{\partial x} & \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right) & \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x} \right) \\ \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right) & \frac{\partial v}{\partial y} & \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial y} \right) \\ \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x} \right) & \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial y} \right) & \frac{\partial w}{\partial z} \end{pmatrix}$$

le champ de vitesse \vec{v} étant défini par ses composantes (u, v, w) .

L'équation de quantité de mouvement 6.5 est cependant modifiée afin de simplifier la résolution numérique du système. En introduisant la fonction \mathcal{H} définie telle que :

$$\mathcal{H} = \frac{\|\vec{v}\|^2}{2} + \frac{\tilde{p}}{\rho_\infty}$$

on obtient, après simplifications, l'équation :

$$\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + r \vec{\text{ot}} \vec{v} \wedge \vec{v} + \vec{\text{grad}} \mathcal{H} + \left(\frac{1}{\rho} - \frac{1}{\rho_\infty} \right) \vec{\text{grad}} \tilde{p} = \frac{1}{\rho} [(\rho - \rho_\infty) \vec{g} + \vec{f} + \vec{\text{div}} \bar{\tau}] \quad (6.6)$$

Soit en appliquant l'opérateur divergence :

$$\Delta \mathcal{H} = -\frac{\partial \text{div}(\vec{v})}{\partial t} - \text{div} \vec{F} \quad (6.7)$$

$$\begin{aligned} \text{avec } \vec{F} &= r \vec{\omega} t \vec{v} \wedge \vec{v} + \left(\frac{1}{\rho} - \frac{1}{\rho_\infty}\right) \text{grad} \tilde{p} - \frac{1}{\rho} [(\rho - \rho_\infty) \vec{g} + \vec{f} + \text{div} \vec{\tau}] \\ \Delta(\cdot) &= \text{div}(\text{grad}(\cdot)) \quad (\text{Opérateur Laplacien}) \end{aligned}$$

Notons que la perturbation de pression \tilde{p} résulte de la décomposition de la pression expliquée précédemment :

$$p = p_0 - \rho_\infty g z + \tilde{p}$$

Ainsi, dans l'équation 6.7, la perturbation de pression \tilde{p} , incluse dans le terme de droite (dans \vec{F}), est négligée si l'on ne considère pas les effets de flottabilité, tandis que celle du terme de gauche est toujours calculée. L'intérêt ici de décomposer le terme de pression n'est pas tant de calculer les effets de celle-ci sur l'écoulement que de simplifier l'équation de quantité de mouvement en une équation aux dérivées partielles, de type elliptique, à coefficients constants (de type équation de Poisson). Elle peut ainsi être résolue directement par méthode spectrale.

6.2.6 Equation de conservation d'énergie

L'équation bilan d'enthalpie h s'écrit :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho h) + \text{div} (\rho h \vec{v}) = \frac{Dp}{Dt} - \text{div} (\vec{q}_r) + \text{div} (k \text{grad} T) + \sum_i \text{div} (h_i \rho D_i \text{grad} Y_i) - \Phi \quad (6.8)$$

T et k sont respectivement la température et la conductivité thermique du mélange, \vec{q}_r , le flux radiatif net échangé, alors que la dérivée particulaire de la pression s'écrit :

$$\frac{Dp}{Dt} = \frac{\partial p}{\partial t} + \vec{v} \cdot \text{grad} p$$

Φ représente la dissipation d'énergie cinétique, égale à :

$$\Phi = \bar{\tau} : \text{grad} \vec{v}$$

L'écoulement étant dominé par les grandes structures, nous la supposons négligeable devant les autres termes de l'équation, notamment devant le terme de flux radiatif net échangé avec l'extérieur.

L'équation de conservation d'énergie 6.8 n'est pas directement résolue mais également transformée afin d'obtenir explicitement le terme $div\vec{v}$ en fonction des termes sources \dot{m}_i''' et ainsi simplifier la résolution numérique du système. Pour ce faire, on explicite la capacité calorifique massique c_p et l'enthalpie massique h du mélange gazeux qui, par définition, s'écrivent :

$$c_p = \sum_i c_{p,i} Y_i \quad \text{où } c_{p,i}(T) : \text{ capacité calorifique massique de l'espèce } i \quad (6.9)$$

$$h = \sum_i h_i Y_i \quad \text{où } h_i : \text{ enthalpie massique de l'espèce } i \quad (6.10)$$

$$\text{avec} \quad h_i = h_i^0 + \int_{T_0}^T c_{p,i}(T') dT'$$

$$h_i^0 : \text{ enthalpie de formation de l'espèce } i \text{ à } T_0$$

Puis, en utilisant l'équation de conservation des espèces et, après simplification des calculs, on obtient explicitement le terme $div\vec{v}$ sous la forme :

$$\begin{aligned} div\vec{v} = & \frac{1}{\rho c_p T} \left[div(k \vec{grad}T) + div \left(\sum_i \left(\int c_{p,i} dT \cdot \rho D_i \vec{grad} Y_i \right) \right) - div(\vec{q}_r) \right] + \\ & \frac{M}{\rho} \sum_i div(\rho D_i \vec{grad} \left(\frac{Y_i}{M_i} \right)) - \frac{1}{\rho c_p T} \sum_i \left(\int c_{p,i} dT \cdot div(\rho D_i \vec{grad} Y_i) \right) + \\ & \frac{1}{\rho} \sum_i \left(\frac{M}{M_i} - \frac{h_i}{c_p T} \right) \dot{m}_i''' + \left(\frac{1}{\rho c_p T} - \frac{1}{p_0} \right) \frac{dp_0}{dt} \end{aligned} \quad (6.11)$$

En supposant que les capacités calorifiques des espèces $c_{p,i}$ varient peu en fonction de la température et que le rapport $\gamma_i = c_{p,i}/c_{v,i}$ reste constant pour les espèces considérées, la deuxième ligne du terme de droite disparaît et l'équation précédente devient :

$$\begin{aligned} div\vec{v} = & \frac{1}{\rho c_p T} \left[div(k \vec{grad}T) + div \left(\sum_i \left(\int c_{p,i} dT \cdot \rho D_i \vec{grad} Y_i \right) \right) - div(\vec{q}_r) + \dot{q}''' \right] \\ & + \left(\frac{1}{\rho c_p T} - \frac{1}{p_0} \right) \frac{dp_0}{dt} \end{aligned} \quad (6.12)$$

Le terme source \dot{q}''' (J/m³/s) correspond à l'énergie libérée par unité de volume et dépend directement du terme de production (ou de consommation) des espèces lors de la combustion :

$$\dot{q}''' = - \sum_i h_i^0 \dot{m}_i'''$$

Dans le cas d'un feu en champ libre, le terme d'évolution de pression est nul et le calcul de $div\vec{v}$ ne dépend alors que des transferts de chaleur et de masse, et de la production

d'énergie liée à la réaction chimique :

$$\operatorname{div} \vec{v} = \frac{1}{\rho c_p T} \left[\operatorname{div}(k \vec{\operatorname{grad}} T) + \operatorname{div} \left(\sum_i \left(\int c_{p,i} dT \cdot \rho D_i \vec{\operatorname{grad}} Y_i \right) \right) - \operatorname{div}(\vec{q}_r) + \dot{q}''' \right] \quad (6.13)$$

6.2.7 Bilan : système d'équations à résoudre

Finalement, compte tenu des hypothèses faites précédemment, les équations à résoudre sont les suivantes :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho \vec{v}) &= 0 \\ \frac{\partial}{\partial t}(\rho Y_i) + \operatorname{div}(\rho Y_i \vec{v}) &= \operatorname{div}(\rho D_i \vec{\operatorname{grad}} Y_i) + \dot{m}_i''' \\ \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + r \vec{\operatorname{rot}} \vec{v} \wedge \vec{v} + \vec{\operatorname{grad}} \mathcal{H} + \left(\frac{1}{\rho} - \frac{1}{\rho_\infty} \right) \vec{\operatorname{grad}} \tilde{p} &= \frac{1}{\rho} [(\rho - \rho_\infty) \vec{g} + \vec{f} + \dot{d}iv \vec{\tau}] \\ \operatorname{div} \vec{v} &= \frac{1}{\rho c_p T} \left[\operatorname{div}(k \vec{\operatorname{grad}} T) + \operatorname{div} \left(\sum_i \left(\int c_{p,i} dT \cdot \rho D_i \vec{\operatorname{grad}} Y_i \right) \right) - \operatorname{div}(\vec{q}_r) + \dot{q}''' \right] \\ p_0 &= \rho \frac{R}{M_g} T \end{aligned}$$

On retrouve bien les termes sources dans les équations de la divergence et de conservation d'espèces. Ceux-ci seront explicités par la suite. Par ailleurs, la résolution spatiale du système est effectuée par une méthode aux différences finies, du 2nd ordre, tandis qu'un schéma explicite du 2nd ordre, de type prédicteur-correcteur, est utilisé pour la résolution temporelle.

6.2.8 Conditions limites (CL)

CL pour \mathcal{H}

Pour des frontières libres, le terme lié à la pression \mathcal{H} dépend du sens de l'écoulement :

$$\begin{aligned} \mathcal{H} &= |\vec{v}|^2/2 \quad \text{si l'écoulement est sortant } (\tilde{p} = 0) \\ \mathcal{H} &= 0 \quad \text{si l'écoulement est entrant} \end{aligned}$$

La condition limite pour un mur solide ou une ouverture est à flux nul ou à écoulement forcé. Elle se définit par :

$$\frac{\partial \mathcal{H}}{\partial n} = -F_n - \frac{\partial u_n}{\partial t} \quad (6.14)$$

avec F_n , composante de \vec{F} normale au mur ou à l'ouverture, et $\frac{\partial u_n}{\partial t}$, dérivée temporelle de la composante normale de la vitesse, prescrite lors d'une condition limite à écoulement forcé.

CL thermiques

Plusieurs conditions limites thermiques peuvent être spécifiées pour un mur solide. La première est de considérer le mur adiabatique. Dans ce cas, il n'y a pas de gradient de température entre le mur et l'écoulement gazeux, donc pas de flux de chaleur. La deuxième est de directement prescrire une évolution temporelle de la température du mur.

Le troisième type de CL thermique consiste à calculer la température d'un mur, d'épaisseur δ , à partir des transferts de chaleur par convection et rayonnement entre ledit mur et l'environnement gazeux :

$$T_w^{n+1} = T_w^n + \delta t_s \frac{\dot{q}_{c,w}'' + \dot{q}_{r,w}''}{\rho_s c_{p,s} \delta} \quad (6.15)$$

où T_w est la température du mur, δt_s le pas de temps d'actualisation des CL thermiques, ρ_s , $c_{p,s}$ et δ les masse volumique, capacité calorifique et épaisseur du mur solide. Le flux convectif \dot{q}_c'' est donné par la relation semi-empirique suivante :

$$\dot{q}_{c,w}'' = C |T_{gaz} - T_w|^{1/3} (T_{gaz} - T_w)$$

La constante empirique C est égale à 1,31 pour les surfaces verticales et 1,52 pour les horizontales. Le flux radiatif sera explicité dans le paragraphe 6.4.

Enfin, la quatrième CL thermique calcule non seulement la température de surface du mur T_w mais considère également que la température n'est pas uniforme à l'intérieur du solide. L'équation de la chaleur est alors résolue dans une dimension de l'espace (selon la direction normale à la surface du solide). L'approche de cette dernière CL thermique sera précisée et complétée dans le chapitre suivant.

CL pour Y_i

Là aussi, différentes conditions limites sont possibles pour un mur solide. S'il n'y pas de transfert de masse entre l'écoulement et la frontière, la condition est à flux nul. Un deuxième cas est de prescrire directement la fraction massique ou le débit massique de

l'espèce i . Enfin, une troisième possibilité est de tenir compte de la pyrolyse du matériau solide.

6.3 Modélisation des propriétés de transport

Pour des simulations aux grandes échelles, la taille du domaine de calcul est telle que la résolution du maillage n'est pas suffisamment fine pour capter tous les processus de mélange, notamment ceux ayant lieu aux plus petites échelles de l'écoulement. Ainsi, plutôt que de calculer la viscosité du fluide à partir de la cinétique des gaz, donc à partir des propriétés du fluide (ce qui augmenterait considérablement le temps de calcul final), la viscosité est ici modélisée en utilisant l'approche de Smagorinsky [103].

Cette dernière, développée au début des années 1960, dans le cadre de modélisations météorologiques, intègre un modèle de sous-maille pour représenter les effets de la viscosité des petites structures de l'écoulement, les plus grandes étant calculées explicitement. La viscosité "turbulente" modélisée μ_t dépend alors directement d'une constante empirique C_s , dite de Smagorinsky, du carré de la longueur caractéristique du filtre de coupure Δ , et de la fonction de dissipation de l'énergie cinétique Φ , à la puissance 1/2.

$$\mu_t = \rho(C_s\Delta)^2 (\Phi)^{1/2} \quad (6.16)$$

avec $\Phi = \mu_t \left(2\bar{\bar{D}} - \frac{2}{3}(\text{div}\vec{v})^2 \right)$ Il est à noter que, dans le cadre de cette étude, la longueur de coupure Δ est de l'ordre de la taille d'une maille du domaine de calcul.

Par ailleurs, en supposant constants les nombres de Prandtl Pr et de Schmidt Sc , pour un scénario d'incendie donné, les coefficients de diffusion thermique k et moléculaire $(\rho D)_i$ sont directement liés à la viscosité turbulente :

$$k = \frac{\mu_t C_p}{Pr} \quad \text{et} \quad (\rho D)_i = \frac{\mu_t}{Sc} \quad \text{pour chaque espèce } i \quad (6.17)$$

On définit ainsi les propriétés de transport de l'écoulement par un jeu de paramètres globaux, à partir de la viscosité modélisée. Pour la plupart des simulations de feux aux grandes échelles, où les couches limites ne sont pas résolues, le modèle de Smagorinsky avec le jeu de paramètres $(C_s, Pr, Sc)=(0.2, 0.5, 0.5)$ donnent des résultats assez satisfaisants, même si la constante C_s reste le paramètre le plus sensible [104].

6.4 Modèle de rayonnement

Lors d'un incendie, le rayonnement des espèces mises en jeu joue un rôle essentiel dans les transferts de chaleur vers l'extérieur et ainsi dans la propagation du feu. Il est donc primordial de prendre en compte les transferts radiatifs induits par les espèces gazeuses et/ou les particules (de suies par exemple) présentes dans l'écoulement et de prédire leur impact sur l'environnement (flux radiatif incident sur les parois environnantes, etc). Dans le cas d'un milieu semi-transparent, l'Equation de Transfert Radiatif (ETR), pour un volume élémentaire δV , s'écrit :

$$\vec{s} \cdot \vec{grad}(I_\lambda(\vec{x}, \vec{s})) = \underbrace{-[\kappa(\vec{x}, \lambda) + \sigma(\vec{x}, \lambda)]I_\lambda(\vec{x}, \vec{s})}_{(I)} + \underbrace{\kappa(\vec{x}, \lambda)I_{b,d}(\vec{x}, \lambda)}_{(II)} + \underbrace{\frac{\sigma(\vec{x}, \lambda)}{4\pi} \int_{4\pi} \Phi(\vec{s}, \vec{s}')I_\lambda(\vec{x}, \vec{s}') d\Omega'}_{(III)} \quad (6.18)$$

avec :

- $I_\lambda(\vec{x}, \vec{s})$: Luminance émise par le milieu à la longueur d'onde λ , dans la direction \vec{x}
- $\kappa(\vec{x}, \lambda)$: Coefficient d'absorption monochromatique du milieu au point \vec{x}
- $\sigma(\vec{x}, \lambda)$: Coefficient de diffusion du milieu au point \vec{x}
- $I_{b,d}(\vec{x}, \lambda)$: Luminance émise par un corps noir à la longueur d'onde λ , dans la direction \vec{x} (donnée par la loi de Planck)
- $\Phi(\vec{s}, \vec{s}')$: Fonction de phase associée à la diffusion dans la direction \vec{s} depuis un angle solide $d\Omega'$ centré autour d'une direction \vec{s}'

Le bilan des transferts radiatifs peut donc s'analyser en distinguant les trois termes du second membre :

- (I) : Terme négatif qui traduit la perte d'énergie radiative, depuis la direction \vec{s} , par absorption dans le milieu et par diffusion dans d'autres directions. La somme de ces deux coefficients définit le terme d'extinction : $\beta(\vec{x}, \lambda) = \kappa(\vec{x}, \lambda) + \sigma(\vec{x}, \lambda)$
- (II) : Terme d'émission, proportionnel à la luminance monochromatique du corps noir de température $T(\vec{x})$. Cette luminance est donnée par la loi de Planck.
- (III) : Terme positif de diffusion qui traduit le gain d'énergie radiative issue de certaines directions \vec{u}' , ou de l'ensemble des autres directions de l'espace, et diffusée dans cette direction particulière \vec{u} . Ce gain est explicité à l'aide d'une fonction de phase $\Phi(\vec{s}, \vec{s}')$ qui traduit la probabilité pour qu'une luminance issue de la direction

\vec{u}' soit diffusée dans la direction \vec{u} .

Cependant, dans le cas des feux d'hydrocarbures, les espèces gazeuses prépondérantes sont le dioxyde de carbone CO_2 , l'eau H_2O , le monoxyde de carbone CO , et les combustibles tels que le méthane ou l'éthylène. Seules les particules de suies, issues d'une combustion incomplète et dont le spectre d'absorption est continu, sont présentes dans le milieu. C'est pourquoi, la diffusion du milieu est négligée devant les termes d'absorption, ce qui a pour effet de simplifier la résolution numérique de l'équation.

6.4.1 Cas particulier d'un milieu gazeux non-diffusant

L'ETR devient dans ce cas :

$$\vec{s} \cdot \vec{grad}(I_\lambda(\vec{x}, \vec{s})) = \kappa(\vec{x}, \lambda)[I_{b,d}(\vec{x}, \lambda) - I_\lambda(\vec{x}, \vec{s})] \quad (6.19)$$

La résolution est alors effectuée de façon approchée en divisant la spectre en un nombre fini de bandes, représentatives de l'émission des espèces gazeuses principales présentes dans une flamme (CO_2 , H_2O , CO , etc). L'équation de transfert radiatif est alors résolue séparément dans chaque bande et peut se mettre sous la forme :

$$\vec{s} \cdot \vec{grad}(I_n(\vec{x}, \vec{s})) = \kappa_n(\vec{x}, \lambda)[I_{b,n}(\vec{x}) - I_n(\vec{x}, \vec{s})] \quad n = 1 \dots N \quad (6.20)$$

La luminance I_n est alors intégrée sur chaque bande n , κ_n étant le coefficient d'absorption moyen du milieu sur la bande n et le terme source $I_{b,n}$ correspondant à la fraction du rayonnement corps noir sur cette bande :

$$I_{b,n} = F_n(\lambda_{min}, \lambda_{max}) \frac{\sigma T^4}{\pi}$$

La luminance totale est alors égale à la somme des intensités calculées sur chacune des bandes :

$$I(\vec{x}, \vec{s}) = \sum_{n=1}^N I_n(\vec{x}, \vec{s}) \quad (6.21)$$

Le calcul du coefficient d'absorption moyen κ_n est effectué par le modèle RADCAL [105], à partir du coefficient d'absorption local de chaque espèce prépondérante (CO_2 , H_2O , CO , O_2 , N_2 , HCl) tabulée sur chaque bande spectrale ou modélisé.

Une série de tests numériques effectuée par la NIST a montré qu'un découpage en six ou neuf bandes ($N = 6$ ou $N = 9$) suffit à donner une bonne prédiction du rayonnement gazeux, dans le cas où le combustible est du méthane CH_4 [19]. Cependant, la résolution de l'ETR reste très coûteuse numériquement et, dans le cas de feux d'hydrocarbures classiques, la production importante de suies permet de considérer le milieu gazeux comme un corps gris et ainsi de traiter l'ETR sur une seule bande spectrale ($N = 1$). En effet, les suies, issues d'une combustion incomplète d'hydrocarbures ont un spectre d'émission continu et contrôlent, dans la plupart des cas, le rayonnement du feu. Toutefois, dans le cas d'une flamme optiquement mince où la quantité de suies est faible devant celle du dioxyde de carbone CO_2 ou de l'eau H_2O , une telle hypothèse peut amener à surestimer fortement le rayonnement émis. Enfin, dans le cas d'une faible résolution spatiale du maillage, le terme source I_b peut être traité différemment, selon que l'on se trouve dans la flamme ou en dehors :

$$\kappa I_b = \begin{cases} \kappa \sigma T^4 / \pi & \text{Hors de la flamme} \\ \xi_r \dot{q}''' / 4\pi & \text{Dans la flamme} \end{cases} \quad (6.22)$$

\dot{q}''' correspond au flux de chaleur émis par la flamme et ξ_r à la fraction locale d'énergie émise. A proximité de la flamme, la température est souvent sous-estimée par rapport à une température de flamme de diffusion classique, et ce en raison de la faible résolution spatiale du domaine de calcul. Le terme source est alors modélisé localement en tant que fraction d'énergie volumique émise par la flamme. *A contrario*, loin de la zone de flamme, l'erreur sur la température est moindre et l'expression classique de I_b peut s'appliquer.

6.4.2 Méthode numérique

L'ETR est résolue en utilisant une méthode numérique similaire à celle des volumes finis (FVM). Ainsi, l'espace est divisé en un nombre fini d'angles solides, et la forme discrète de l'équation 6.20, pour chaque maille élémentaire V_{ijk} et dans un angle solide donné Ω^l , s'écrit :

$$\int_{\Omega^l} \int_{V_{ijk}} \vec{s} \cdot \vec{grad} I_n(\vec{x}, \vec{s}) dV d\Omega = \int_{\Omega^l} \int_{V_{ijk}} \kappa_n(\vec{x}, \lambda) [I_{b,n}(\vec{x}) - I_n(\vec{x}, \vec{s})] dV d\Omega \quad (n = 1 \dots N) \quad (6.23)$$

Le terme de gauche est alors remplacé par une intégrale de surface (théorème de la divergence) et, supposant la luminance constante sur les faces d'une même cellule, l'intégrale de surface peut être approchée par une somme discrète sur l'ensemble des faces de cellule. De plus, en supposant que la luminance $I_n(\vec{x}, \vec{s})$ est constante à l'intérieur du volume V_{ijk} et dans l'angle solide $d\Omega^l$, l'équation 6.23 devient :

$$\sum_{m=1}^6 A_m I_m^l \int_{\Omega^l} (\vec{s} \cdot \vec{n}_m) d\Omega^l = \kappa_{ijk} [I_{b,ijk} - I_{ijk}^l] V_{ijk} \delta\Omega^l \quad (6.24)$$

avec :

- I_{ijk}^l la luminance dans la direction l
- I_m^l la luminance émise par la face m
- $I_{b,ijk}$ la luminance du corps noir dans la cellule ijk
- $\delta\Omega^l$ l'angle solide lié à la direction l
- V_{ijk} le volume de la cellule ijk
- A_m la surface de la face m de la cellule
- \vec{n}_m le vecteur normal à la face m

Notons que si la luminance est supposée constante à l'intérieur de l'angle solide $\delta\Omega^l$, sa direction couvre exactement l'angle solide $\delta\Omega^l$. En coordonnées cartésiennes, le vecteur normal \vec{n}_m correspond aux vecteurs de base du système de coordonnées. Ainsi, les intégrales sur l'angle solide Ω^l ne dépendent pas des coordonnées physiques mais seulement des directions. Si l'espace physique est balayé dans la direction \vec{s}^l , la luminance I_{ijk}^l peut être directement calculée à partir d'une simple équation algébrique. Les luminances aux frontières du domaine sont par ailleurs résolues par un schéma implicite d'ordre 1.

La discrétisation spatiale utilisée pour la résolution de l'ETR est la même que pour celle des équations de conservation de l'écoulement. Cependant le système de coordonnées est sphérique et se définit par le triplet (r, θ, ϕ) . L'angle polaire θ est alors divisé en N_θ bandes (N_θ entier) et chaque θ -bande est ensuite divisée en $N_\phi(\theta)$ parties dans la direction azimutale ϕ . $N_\phi(\theta)$ doit être divisible par 4 et les nombres N_θ et $N_\phi(\theta)$ sont choisis afin de donner un nombre total d'angles N_Ω , aussi proche que possible de la valeur spécifiée

en entrée.

$$N_{\Omega} = \sum_{i=1}^{N_{\theta}} N_{\phi}(\theta_i)$$

La distribution des angles est basée sur une règle empirique afin de produire des angles solides élémentaires égaux à $\delta\Omega^l = 4\pi/N_{\Omega}$. Ainsi, le nombre de θ -bandes, arrondi à l'entier le plus près, est donné par la formule :

$$N_{\theta} = 1,17N_{\Omega}^{1/2,26}$$

Le nombre de ϕ -angles sur chaque bande est alors :

$$N_{\phi}(\theta) = \max(4; 0,5 N_{\Omega}[\cos(\theta^-) - \cos(\theta^+)])$$

arrondi à l'entier le plus près qui est divisible par 4. θ^- et θ^+ sont respectivement les bornes inférieure et supérieure de la bande θ .

Pour un maillage rectiligne, les intégrales sur l'angle solide Ω^l peuvent se calculer analytiquement et l'équation 6.24 s'écrit sous la forme :

$$a_{ijk}^l I_{ijk}^l = a_x^l I_{xu}^l + a_y^l I_{yu}^l + a_z^l I_{zu}^l + b_{ijk}^l \quad (6.25)$$

où les termes a_{ijk}^l , a_x^l , a_y^l , a_z^l et b_{ijk}^l sont explicités dans le tableau 6.1. La méthode numérique utilisée pour résoudre l'équation 6.25 est un schéma explicite (*explicit marching sequence*) où la direction de marche dépend de la direction de propagation de la luminance.

6.4.3 Conditions limites

La condition limite sur un mur solide est donnée par :

$$I_w^l = \epsilon_w \frac{\sigma T_w^4}{\pi} + \frac{1 - \epsilon_w}{\pi} \sum_{D_w^l < 0} I_w^l |D_w^l| \quad (6.26)$$

où

$$D_w^l = \int_{\Omega^l} (\vec{s} \cdot \vec{n}_w) d\Omega$$

Seules les directions "incidentes" ($D_w^l < 0$) sont prises en compte dans le calcul de la luminance réfléchie.

$$\begin{aligned}
a_{ijk}^l &= A_x |D_x^l| + A_y |D_y^l| + A_z |D_z^l| + \kappa_{ijk} V_{ijk} \delta\Omega^l \\
a_x^l &= A_x |D_x^l| \\
a_y^l &= A_y |D_y^l| \\
a_z^l &= A_z |D_z^l| \\
b_{ijk}^l &= \kappa_{ijk} I_{b,ijk} V_{ijk} \delta\Omega^l \\
\delta\Omega^l &= \int_{\Omega^l} d\Omega = \int_{\delta\phi} \int_{\delta\theta} \sin\theta \, d\theta \, d\phi \\
D_x^l &= \int_{\Omega^l} (\vec{s} \cdot \vec{i}) \, d\Omega \\
&= \int_{\delta\phi} \int_{\delta\theta} (\vec{s} \cdot \vec{i}) \sin\theta \, d\theta \, d\phi \\
&= \int_{\delta\phi} \int_{\delta\theta} \cos\phi \sin\theta \sin\theta \, d\theta \, d\phi \\
&= \frac{1}{2} (\sin\phi^+ - \sin\phi^-) [\Delta\theta - (\cos\theta^+ \sin\theta^+ - \cos\theta^- \sin\theta^-)] \\
D_y^l &= \int_{\Omega^l} (\vec{s} \cdot \vec{j}) \, d\Omega \\
&= \int_{\delta\phi} \int_{\delta\theta} (\vec{s} \cdot \vec{j}) \sin\theta \, d\theta \, d\phi \\
&= \int_{\delta\phi} \int_{\delta\theta} \sin\Phi \sin\theta \sin\theta \, d\theta \, d\phi \\
&= \frac{1}{2} (\cos\phi^- - \cos\phi^+) [\Delta\theta - (\cos\theta^+ \sin\theta^+ - \cos\theta^- \sin\theta^-)] \\
D_z^l &= \int_{\Omega^l} (\vec{s} \cdot \vec{k}) \, d\Omega \\
&= \int_{\delta\phi} \int_{\delta\theta} (\vec{s} \cdot \vec{k}) \sin\theta \, d\theta \, d\phi \\
&= \int_{\delta\phi} \int_{\delta\theta} \cos\theta \sin\theta \, d\theta \, d\phi \\
&= \frac{1}{2} \Delta\phi [(\sin\theta^+)^2 - (\sin\theta^-)^2]
\end{aligned}$$

TAB. 6.1 – Calcul des intégrales sur l'angle solide Ω^l utiles à la résolution de l'ETR

Le flux radiatif sur le mur s'écrit alors :

$$q_w = \sum_{l=1}^{N_\Omega} I_w^l \int_{\Omega^l} (\vec{s} \cdot \vec{n}_w) d\Omega = \sum_{l=1}^{N_\Omega} I_w^l D_n^l \quad (6.27)$$

où les coefficients D_n^l sont égaux à $\pm D_x^l \pm D_y^l \pm D_z^l$.

Les frontières ouvertes sont considérées comme des murs noirs, dont la luminance incidente est égale à celle d'un corps noir, à température ambiante.

6.5 Conclusion

La présentation succincte de l'outil de simulation FDS nous a permis de voir les potentialités de ce code de calcul dans la perspective de modéliser un feu de propergol solide aluminisé. Tout d'abord, l'hypothèse d'un écoulement à faible nombre de Mach correspond bien au cadre d'une combustion de propergol à pression atmosphérique. De plus, le calcul des transferts de chaleur vers l'extérieur devrait nous permettre de quantifier l'impact thermique de ce type de feu. Enfin, l'injection et le suivi de gouttes par méthode lagrangienne, que nous allons préciser dans le chapitre suivant, peuvent être adaptés aux gouttes d'aluminium dont la combustion est prépondérante dans notre cas.

Cependant, pour l'ensemble des phénomènes modélisés, de nombreuses hypothèses ont été faites, certaines étant valables pour les seuls feux d'hydrocarbures. Il s'agira donc de bien définir les hypothèses applicables à notre cadre d'étude et, pour celles qui ne le sont pas, modifier les modèles existants afin de prendre en compte la spécificité d'un feu de propergol.

Chapitre 7

Modélisation de la combustion d'un bloc de propergol solide aluminisé

A travers ce chapitre, nous présentons les différentes modifications apportées au code de calcul FDS afin de simuler une combustion de bloc de propergol aluminisé à pression atmosphérique. Un modèle 1D de transfert thermique est d'abord établi afin de prédire le délai d'allumage d'un propergol composite. Puis, une fois le matériau allumé, nous définissons une condition limite *Flamme de Propergol*, représentative de la combustion d'un propergol composite PA/PBHT, au niveau microscopique. La phase condensée, composée de gouttelettes d'aluminium liquide, est également prise en compte par un modèle lagrangien de suivi de particules. A pression atmosphérique, l'oxydation de ces gouttes d'Al étant un phénomène majeur, un modèle de combustion est également implémenté. De même, comme nous l'avons observé lors des essais expérimentaux, le rayonnement des gouttes Al/Al₂O₃ est prépondérant, surtout pour des compositions du propergol hautement chargées en aluminium. C'est pourquoi, les propriétés optiques des particules d'alumine liquide sont calculées par la théorie de Mie et utilisées pour la prédiction du rayonnement du milieu polyphasique qu'est un feu de propergol solide aluminisé.

7.1 Allumage et combustion du propergol solide

7.1.1 Modèle d'allumage du propergol

Dans tout le paragraphe, seules les variations selon \bar{z} , c'est-à-dire selon la profondeur du bloc, seront considérées (Fig.7.1). La discrétisation puis la résolution d'un problème de transfert de chaleur instationnaire permettra de déterminer les délai et température d'allumage du propergol solide composite. Les paramètres numériques de ce modèle monodimensionnel, codé en Fortran 90, seront spécifiés ultérieurement.

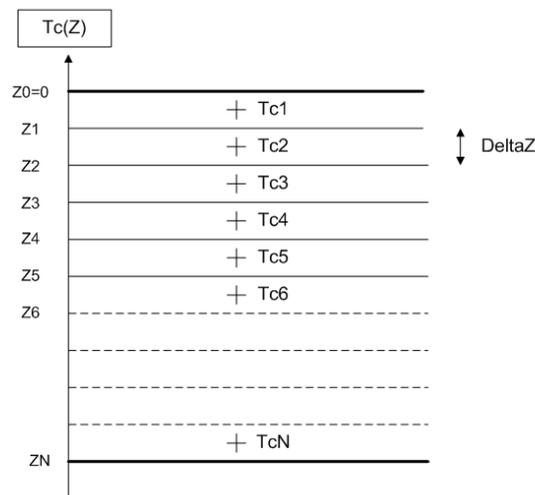


FIG. 7.1 – Discrétisation spatiale 1D du bloc de propergol

Mise en équation du problème

L'équation de base à résoudre est une équation d'advection-diffusion monodimensionnelle et instationnaire (7.1). La dépendance au temps de la température permet de prédire le délai d'allumage du matériau. Le caractère monodimensionnel des transferts de chaleur est représentatif des essais au cours desquels les blocs de propergol sont inhibés sur les côtés. Enfin, cette équation tient compte non seulement des transferts conductifs dans le solide mais également des transferts convectifs qui, une fois le propergol allumé, seront non négligeables en raison de la régression du propergol.

$$\rho_p c_{p,p} \left(\frac{\partial T_c}{\partial t} + r_b \frac{\partial T_c}{\partial z} \right) = k_p \frac{\partial^2 T_c}{\partial z^2} \quad (7.1)$$

où ρ_p , $c_{p,p}$ et k_p sont respectivement les masse volumique, capacité et conductivité thermiques globales du propergol et r_b (m/s) sa vitesse de pyrolyse. En prenant des propriétés physico-chimiques moyennes, correspondant à un propergol composite de type PA/PBHT, le matériau est supposé homogène.

Conditions aux bords du problème

Les conditions aux limites sont les suivantes :

$$CL1 : T_c(-\infty, t) = T_0 \quad (7.2)$$

$$CL2 : \underbrace{\dot{q}_{r,w}'' + \dot{q}_{c,w}''}_{\dot{q}_{inc}'' \text{ (Flux incident)}} = \dot{q}_{pyro}'' - k_p \left(\frac{\partial T_c}{\partial z} \right)_{z=0} + \epsilon_s \sigma T_s^4 \quad (7.3)$$

T_0 , $\dot{q}_{r,w}''$ (W/m²), $\dot{q}_{c,w}''$ (W/m²) et \dot{q}_{pyro}'' (W/m²) correspondent respectivement à la température du bloc à $t = 0$, aux flux radiatif et conductif incidents, et au flux pompé par la réaction de pyrolyse. Le terme $\epsilon_s \sigma T_s^4$ représente le flux émis par la surface du bloc.

Conditions initiales

Les conditions initiales sont définies telles que :

$$\forall z \in] - \infty, 0] \quad T_c(z, 0) = T_0 \quad \text{et} \quad \dot{q}_{inc}''(0) = 0 \quad (7.4)$$

Loi de pyrolyse

La loi de pyrolyse s'écrit comme suit :

$$\dot{q}_{pyro}'' = \dot{m}_p'' \cdot Q_c \quad (7.5)$$

$$\text{où :} \quad \dot{m}_p'' = \rho_p A p^n e^{-\frac{E_a}{RT_s}} \quad (7.6)$$

Q_c : énergie libérée par la réaction de pyrolyse, par unité de masse de propergol consommée (en kJ/kg)

ρ_p : densité du propergol (kg/m³)

A : facteur préexponentiel (m/s)

p : pression en Pa ($n = 0$)

E_a : énergie d'activation de la réaction

$T_s(t) = T_c(0, t)$

Méthode numérique

La discrétisation de l'équation 7.1 est effectuée en implémentant un schéma d'ordre 2 en temps et en espace, de type Crank-Nicholson, $\forall n \geq 1$:

$$\frac{T_j^{n+1} - T_j^{n-1}}{\Delta t} + r_b^n \frac{T_{j+1}^n - T_{j-1}^n}{2\Delta z} = a_p \left[\frac{1}{2} \frac{T_{j+1}^{n-1} - 2T_j^{n-1} + T_{j-1}^{n-1}}{\Delta z^2} + \frac{1}{2} \frac{T_{j+1}^{n+1} - 2T_j^{n+1} + T_{j-1}^{n+1}}{\Delta z^2} \right]$$

- Δt : pas de temps (constant)
- Δz : pas d'espace (constant)
- $a_p = k_p / \rho_p c_{p,p}$: diffusivité du solide en m^2/s
- r_b : vitesse de combustion du propergol (m/s)
- $T_j^n \equiv T_{c_j}^n$: température du propergol solide dans la tranche j, à l'instant n.

Remarques :

- la température de surface T_s^n sera prise égale à T_1^n
- T_0^n n'a pas de sens physique mais sera utilisé comme intermédiaire de calcul
- le pas d'espace est constant et $z_i = i\Delta z, \forall i \in [0; N]$

Ce schéma est consistant et stable, au regard du critère de Von Neumann, lequel impose la condition sur les pas de temps et d'espace suivante :

$$\frac{\Delta t \cdot a_p}{\Delta z^2} \leq \frac{1}{4}$$

La condition CL1 sur la dernière tranche du bloc de propergol ($i = N$) s'écrit simplement :

$$T_N^n = T_0 \quad \forall n \geq 0$$

On choisira par la suite une valeur de N cohérente avec cette condition.

La condition aux limites CL2 s'écrit sous la forme discrétisée :

$$k_p \frac{T_0^{n+1} - T_1^{n+1}}{\Delta z} = \dot{q}_{inc}'' - \dot{q}_{pyro}'' - \underbrace{-\epsilon_s \sigma ((T_1^{n+1})^4 - (T_1^n)^4)}_{\text{Flux radiatif émis par le bloc entre t et t}+\Delta t} \quad (7.7)$$

Ecrire la contribution radiative du bloc sous la forme d'un flux net entre les instants t et t+ Δt permet de linéariser et ainsi simplifier le terme en T^4 . Ainsi, après linéarisation, la condition aux limites CL2 devient :

$$k_p \frac{T_0^{n+1} - T_1^{n+1}}{\Delta z} = \dot{q}_{inc}'' - \dot{q}_{pyro}'' - 4\epsilon_s \sigma (T_1^n)^3 (T_1^{n+1} - T_1^n) \quad (7.8)$$

Choix des paramètres de calcul

Les paramètres de calcul, tels que les pas de temps et d'espace par exemple, ne peuvent être fixés indépendamment les uns des autres, sous peine de rendre notre modèle instable. Par conséquent nous déterminerons, dans l'ordre, l'épaisseur du bloc à modéliser, le pas d'espace puis le pas de temps.

Choix de l'épaisseur du bloc δ

La solution stationnaire de notre problème de transferts thermiques dans le bloc est de la forme :

$$\frac{T - T_0}{T_s - T_0} = e^{-z \frac{r_b}{a_p}} \quad (7.9)$$

avec T_0 et T_s respectivement la température initiale du bloc et la température de surface. Calculons l'épaisseur e_{cond} à partir de laquelle $T - T_0$ est égale à 10^{-4} de sa valeur à la surface $T_s - T_0$. Elle se déduit de l'équation 7.9 comme suit :

$$e_{cond} = \frac{a_p}{r_b} \ln(10^4) \quad (7.10)$$

En prenant des valeurs caractéristiques d'un propergol composite de type PA/PBHT [106], c'est-à-dire $a_p = 8,0E-8$ m²/s et $r_b = 2,0E-3$ m/s (à $p = 1$ atm), on obtient une épaisseur de conduction de :

$$e_{cond} = 348 \mu\text{m}$$

Si $T_s = 650\text{K}$ (de l'ordre de la température d'allumage) et $T_0 = 298\text{K}$, on aura donc, en $x = 348 \mu\text{m}$, $T - T_0 \approx 0,04$ K, soit $T \approx T_0$. Le transfert de chaleur dans le bloc se fait avant tout en surface et le choix de calculer les variations de température sur une faible épaisseur paraît pertinent. Ainsi, afin de remplir la condition aux bords CL1 ($T_N^n = T_0$) et de maintenir un temps de calcul acceptable, nous faisons le choix d'une épaisseur de bloc δ de :

$$\delta = 2 \text{ cm}$$

Choix du pas d'espace

Il s'agit, dans cette partie, d'évaluer l'épaisseur de réaction afin de choisir un pas d'espace suffisamment fin pour donner une bonne prédiction des transferts thermiques dans le bloc.

La vitesse de pyrolyse du propergol r_b (m/s) est définie par :

$$r_b = A e^{-\frac{E_a}{RT_s}} \quad (7.11)$$

L'épaisseur e_p pour laquelle la vitesse de pyrolyse est égale à 10^{-2} de sa valeur à la surface peut s'écrire sous la forme :

$$e_p = -\frac{a_p}{r_b} \ln \left(1 - \frac{\Delta}{T_s - T_0} \right) \quad (7.12)$$

$$\text{avec } \Delta T = T_s - T_e = T_s \left(\frac{1}{1 + \frac{E_a}{RT_s \ln 100}} \right) \quad (7.13)$$

T_e étant la température du bloc en $z = e_p$, T_s la température à la surface du bloc et E_a l'énergie d'activation de la réaction de pyrolyse. Pour $T_s = 650\text{K}$, $T_0 = 298\text{K}$, $a_p = 8,0\text{E-}8 \text{ m}^2/\text{s}$, $r_b = 2,0\text{E-}3 \text{ m/s}$, $E_a = 9,614\text{E+}4 \text{ J/mol}$, $R = 8,314 \text{ J/mol/K}$, l'épaisseur de réaction e_p est de l'ordre de :

$$e_p = 19 \mu\text{m}$$

La pyrolyse est prépondérante sur les couches superficielles du bloc de propergol. Le choix d'un pas d'espace supérieur à e_p permet de considérer la réaction de pyrolyse comme une réaction de surface. La vitesse de combustion correspond alors bien à celle calculée à la surface du bloc. On choisit ainsi :

$$\Delta z_{min} = 19 \mu\text{m}$$

Par conséquent, si l'épaisseur δ du bloc de propergol est de 2 cm, le nombre de tranches N doit être inférieur à :

$$N \leq N_{max} = \frac{\delta}{\Delta z_{min}} \approx 1000$$

Par exemple, $N = 300$ semble être un bon compromis entre un temps de calcul raisonnable et une discrétisation acceptable. On choisit donc un pas d'espace

$$\Delta z = 66,7 \mu\text{m}$$

Choix du pas de temps Δt

Il faut maintenant tenir compte du critère de stabilité pour déterminer le pas de temps. La condition de notre schéma 7.1.1 nous impose une borne supérieure sur le pas de temps :

$$\Delta t \leq \frac{1}{4} \frac{\Delta x^2}{a_p}$$

Par exemple, si $\delta = 2$ cm, $\Delta z = \Delta z_{min} = 19$ μm , on obtient, pour $a_p = 8.0\text{E}+8$ m²/s : $\Delta t \leq 14$ ms.

Paramètres de calcul

Dans la suite de notre étude, nous fixons les paramètres de calcul comme présentés Tab.7.1.

Épaisseur du bloc δ (m)	0,02
Nombre de tranches N	300
Pas de temps Δt (s)	6,0E-5

TAB. 7.1 – Paramètres de calcul

D'autre part les propriétés physico-chimiques du matériau sont celles d'un propergol composite de type PA/PBHT (Tab.7.2). Les valeurs caractéristiques de la réaction de pyrolyse (A , E_a et Q_c) sont celles déterminées par Lengellé [106]. Notons qu'elles ne tiennent pas compte du pourcentage d'aluminium contenu dans le propergol.

Diffusivité thermique a_p (m ² /s)	8,0E-8
Masse volumique ρ_p (kg/m ³)	1700
Conductivité thermique k_p (W/m/K)	0,17
Emissivité de la surface de pyrolyse ϵ_s	1
Q_c (kJ/kg)	178,56
E_a (kJ/mol)	96.14
A (cm/s)	1,93E+7

TAB. 7.2 – Propriétés physico-chimiques du propergol

Résultats

En imposant un flux incident constant $\dot{q}_{inc}'' = \dot{q}_0'' = cte$ sur la surface de propergol, on calcule le temps à partir duquel la pyrolyse du matériau devient prépondérante, c'est-à-dire :

$$\dot{q}_{pyro}'' \geq \dot{q}_{inc}''$$

On définit ce temps comme le délai d'allumage du propergol t_{all} (ms). Celui-ci est représenté, pour un propergol de type PA/PBHT, en fonction du flux incident et comparé aux données expérimentales issues de la littérature [107] (Fig.7.2).

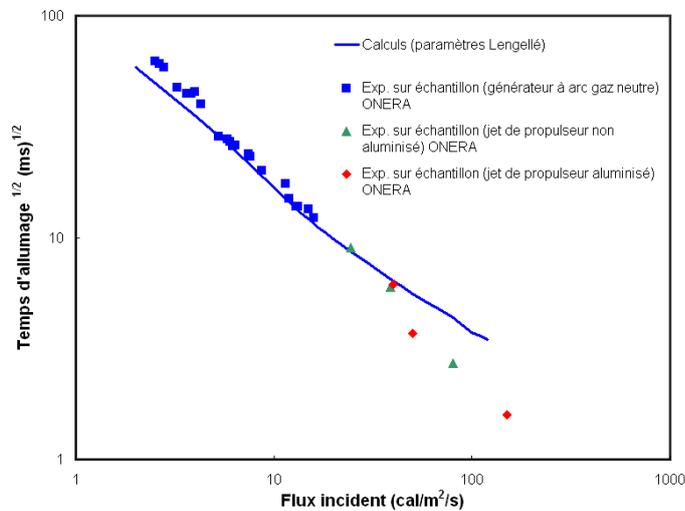


FIG. 7.2 – Délai d'allumage t_{all} en fonction du flux incident \dot{q}_0'' ($p = 1 \text{ atm}$)

Vitesse de pyrolyse à l'allumage $v_{c,all}$ (mm/s)	2,1
Température d'allumage T_{all} (K)	630
Délai d'allumage t_{all} (ms)	141

TAB. 7.3 – Caractéristiques de la pyrolyse du propergol à l'allumage

Pour des flux incidents inférieurs à $20 \text{ cal/cm}^2/\text{s}$, le modèle présenté est en très bonne adéquation avec l'expérience, l'erreur relative se situant entre 5 et 10%. Pour des flux incidents plus élevés, la nature des données expérimentales (expériences sur échantillon en conditions de jet de propulseur) introduit des erreurs plus significatives. En effet, dans ces conditions expérimentales-ci, on atteint des pressions très supérieures à 1 atm. Or, le

modèle décrit dans cette étude, ne tient pas compte des effets de pression. D'autre part, le tableau 7.3 répertorie les caractéristiques de la pyrolyse d'un propergol de type PA/PBHT, pour un flux incident de $15 \text{ cal/cm}^2/\text{s}$ ($= 62 \text{ W/cm}^2$), à pression atmosphérique. La nature isolante du propergol solide composite est confirmée : les transferts conductifs se font principalement en surface, la température atteignant 298 K autour de $400 \mu\text{m}$.

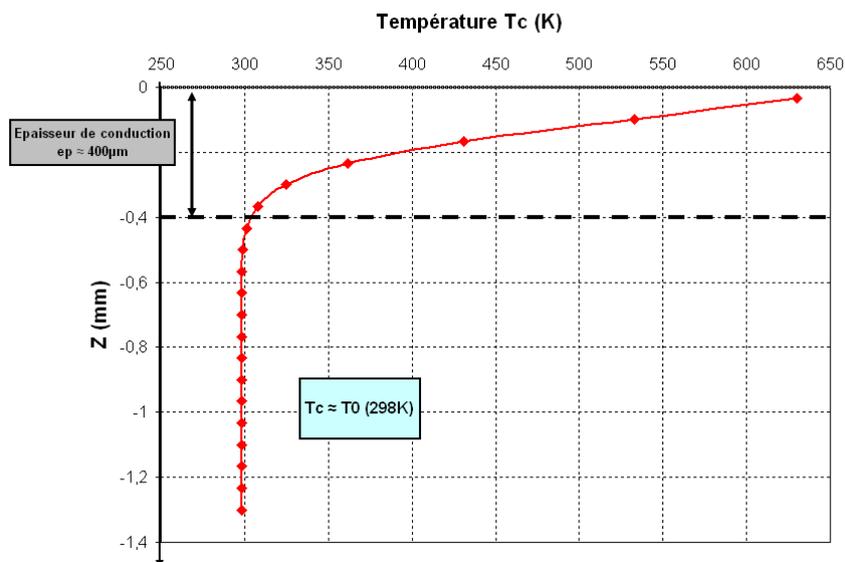


FIG. 7.3 – Profil de température dans le bloc de propergol à l'allumage ($q_0 = 15 \text{ cal/cm}^2/\text{s}$)

A l'aide de ce modèle instationnaire et 1D, nous avons pu caractériser l'allumage d'un propergol solide PA/PBHT, à pression atmosphérique, pour un jeu de paramètres donné. La vitesse de pyrolyse et la température de surface à l'allumage ont été calculées mais nous n'avons pas encore tenu compte des réactions en phase gazeuse, point que nous allons aborder dans le paragraphe suivant.

7.1.2 Composition du mélange de gaz brûlés à l'équilibre thermochimique

Une autre approche de la modélisation de la combustion de propergol solide, que celles présentées dans la partie 1, chapitre 2, est de se focaliser sur les réactions chimiques mises en jeu et ainsi déduire la composition précise des produits de combustion, dans des conditions données. Un calcul 0D à l'équilibre thermochimique [108], par minimisation de

l'énergie libre de Gibbs du système, remplit cet objectif en donnant, pour une composition de propergol solide d'entrée :

- la composition des gaz brûlés à l'équilibre thermochimique
- la température adiabatique de flamme T_f^{ad}

	Composition	$D_{PA}^1 - D_{PA}^2 - D_{PA}^3$ (μm)
Butalane	68%PA - 12%PBHT - 20%Al	200 - 90 - 10
Butalite	84%PA - 14%PBHT - 4%Al	400 - 200 - 10

TAB. 7.4 – Composition des propergols solides aluminisés étudiés

Le calcul est effectué à pression constante, en considérant un mélange de gaz parfaits et la combustion adiabatique. Cette approche purement chimique ne rend pas compte de la structure de la flamme, mais permet de caractériser le mélange final issu de la combustion du propergol, à l'équilibre et dans des conditions idéales.

Dans le cas d'une combustion adiabatique d'un propergol solide de type PA/PBHT/Al, à pression atmosphérique, le mélange à l'équilibre obtenu contient des espèces gazeuses auxquelles peut s'ajouter une phase condensée, contenant de l'alumine liquide Al_2O_3 . Ainsi, pour les compositions de propergol solide étudiées dans le cadre de ces travaux (Tab.7.4), on obtient des résultats bien différents selon le pourcentage en aluminium (Tab.7.5). On retrouve logiquement une température adiabatique de flamme et une fraction d'alumine liquide plus élevées dans le cas d'une composition initialement plus riche en particules d'aluminium. L'oxydation de l'aluminium plus importante dans le cas de la Butalane conduit alors à une consommation de CO_2 et de H_2O plus forte. Notons également la prépondérance, à pression atmosphérique, du monoxyde de carbone CO et de l'acide chlorhydrique HCl, quelle que soit la composition considérée.

7.1.3 Définition de la CL *Flamme de propergol* pour le modèle macroscopique

D'après les modèles globaux et 1D présentés dans le chapitre 2, la hauteur de flamme x_f pour une combustion de propergol composite PA/PBHT, à pression atmosphérique, est de l'ordre de 100 μm , ce qui est très petit devant la hauteur caractéristique d'un feu

	Butalane	Butalite
$T_f^{ad}(K)$	3087	2732
Y_{H_2}	2,2%	1,2%
Y_{CO}	23,2%	21,3%
Y_{HCl}	14,8%	22,7%
Y_{H_2O}	6,3%	22,6%
$Y_{Al_2O_3}(L)$	33,9%	7,4%
Y_{N_2}	8,1%	9,7%
Y_{CO_2}	1,6%	10,9%
Y_{O_2}	0,04%	0,2%

TAB. 7.5 – Composition des gaz brûlés à l'équilibre thermochimique (espèces prépondérantes), après combustion adiabatique des compositions butalane et butalite ($p = 1 \text{ atm}$)

de propergol ($H = 2\text{-}3 \text{ m}$). L'objectif de notre étude étant de prédire l'impact thermique de l'ensemble du feu de propergol, les dimensions du domaine de calcul que nous allons considérer par la suite sont de l'ordre du mètre. Afin d'éviter des temps de calcul prohibitifs, nous sommes contraints de choisir une taille de maille de l'ordre du centimètre, ce qui reste très grand devant la hauteur de flamme d'une combustion de propergol composite ($x_f \ll \Delta z$).

Nous faisons donc le choix de définir une condition limite *Flamme de propergol*, représentative de la combustion d'un propergol solide composite de type PA/PBHT/Al, à partir d'un calcul à l'équilibre thermochimique. Toutefois, à pression atmosphérique, le temps de combustion des gouttes d'aluminium $\tau_{c,Al}$ est plus grand ou du même ordre de grandeur que leur temps de convection dans l'écoulement gazeux $\tau_{conv,Al}$:

$$\tau_{c,Al} > \tau_{conv,Al} \quad \text{à } p = 1 \text{ atm} \quad (7.14)$$

Comme nous l'a montré le chapitre 3, la combustion des gouttes ne se fait pas en surface mais à quelques centimètres, voire à un mètre de la surface de propergol. C'est pourquoi, nous ne faisons pas un calcul à l'équilibre thermochimique pour une composition aluminisée mais pour une composition PA/PBHT non aluminisée. La prise en compte de l'aluminium est effectuée en injectant dans l'écoulement gazeux des gouttes d'aluminium

dont le débit dépend directement du pourcentage initial de la composition considérée (Butalane ou Butalite).

La température de la surface reste constante, égale à la température adiabatique de flamme, et la composition du mélange gazeux est celle des produits de combustion à l'équilibre :

$$T_w = T_f^{ad} = \text{cte} \quad (7.15)$$

$$Y_{w,i} = Y_i^{eq} = \text{cte} \quad (7.16)$$

où T_w et $Y_{w,i}$ sont respectivement les température et fraction massique définies à la surface du bloc de propergol.

La vitesse d'éjection des produits de combustion est égale, par conservation du débit massique, à :

$$V_g = \frac{\rho_p v_c^{exp}}{\rho_g} = \text{cte} \quad (7.17)$$

ρ_p et ρ_g correspondent respectivement aux masses volumiques du propergol solide (donnée) et des gaz brûlés (calculée), tandis que v_c^{exp} est la vitesse de combustion stationnaire mesurée expérimentalement dans la section page 87.

La condition limite flamme de propergol, pour un propergol composite de type Butalane ou Butalite, est alors définie dans les Tableaux 7.6(a) et 7.6(b).

7.2 Injection et combustion des gouttes d'aluminium

La mise en évidence de la combustion des gouttes d'aluminium à pression atmosphérique, même loin de la surface de propergol, nous incite à tenir compte de ce phénomène dans la modélisation d'un feu de propergol aluminisé. Ainsi, un modèle lagrangien de suivi de gouttes nous permet de calculer la trajectoire de chaque gouttelette dans le mélange gazeux issu de la combustion du propergol solide et défini le paragraphe précédent. Le couplage entre les phases liquide et gazeuse sera précisé, ainsi que la loi de combustion modélisant l'oxydation des gouttes d'Al.

Mélange gazeux	(a)	Butalane ou Butalite
P(atm)		1
T(K)		2455
ρ_g (kg/m ³)		1,15e-1
μ_g (Pois)		7,55e-4
k_g (cal/cm/s/K)		6,45e-4
Pr		0,53
Y_{H_2}		1,47%
Y_{CO}		26,26%
Y_{HCl}		24,9%
Y_{H_2O}		23,8%
Y_{N_2}		9,9%
Y_{CO_2}		12,5%
Total Espèces		98,8%

(b)	Butalane	Butalite
ρ_p (kg/m ³)	1807	1701
%Al en masse	18	4
v_c^{exp} (mm/s)	1,41	1,09
V_g (m/s)	23,2	16,6
\dot{m}_g'' (kg/m ² /s)	2,31	1,78
S_{pyro} (m ²)	0,0378	0,0378
$\dot{m}_{Al,l}$ (kg/s)	1,75E-02	2,80E-03

TAB. 7.6 – Définition de la CL *Flamme de popergol* (a) Propriétés et composition du mélange gazeux à l'équilibre thermo-chimique, communes aux deux compositions Butalane et Butalite; (b) Spécificités liées au chargement initial en aluminium et à la vitesse de combustion mesurée expérimentalement v_c^{exp}

7.2.1 Hypothèses

Il s'agit de présenter les outils théoriques permettant de prédire l'évolution instationnaire des gouttes d'aluminium dans un écoulement gazeux. La position et la vitesse de chaque goutte sont calculées, ainsi que leurs paramètres caractéristiques. Cependant, nous considérons qu'elles n'occupent pas l'espace physique du domaine. Nous supposons également la température uniforme dans toute la goutte et négligeons les mouvements internes à celle-ci. Enfin, la fine pellicule d'oxyde d'aluminium sera négligée en première approximation et l'on supposera la goutte d'aluminium homogène et sphérique.

7.2.2 Modèle d'injection de gouttes

Avant de calculer la trajectoire de chaque particule liquide, leur taille et leur vitesse initiales sont prédites de façon aléatoire. Une combinaison des distributions Log-normal (numérique) et Rosin-Ramler (volumique) décrit la fonction cumulative volumique d'aluminium (Fig.7.4.a) transportée par les gouttes de diamètre d :

$$F(d) = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^d \frac{1}{\sigma d'} \exp\left(-\frac{[\ln(d'/d_m)]^2}{2\sigma^2}\right) dd' & \text{si } d \leq d_m \\ 1 - \exp\left[-0,693 \left(\frac{d}{d_m}\right)^\gamma\right] & \text{si } d > d_m \end{cases} \quad (7.18)$$

où d_m correspond au diamètre moyen de la goutte, γ et σ sont des paramètres arbitraires liés par la relation $\sigma = 1,15/\gamma$, assurant ainsi la continuité entre les deux distributions. Nous pouvons noter la forte variation de la fonction cumulative combinée au diamètre moyen d_m (Fig.7.4.b).

On définit, à partir de la fonction cumulative combinée, une distribution numérique de taille, équivalente à une fonction de densité de probabilité (PDF), telle que :

$$f_n(d) = \frac{F'(d)}{d^3} / \int_0^\infty \frac{F'(d')}{d'^3} dd' \quad (7.19)$$

Chaque diamètre de goutte d , pour lequel elle est définie, est alors choisi aléatoirement en égalisant la fonction cumulative numérique associée à la fonction PDF et une variable aléatoire U prise entre 0 et 1 :

$$U(d) = \int_0^d f_n(d') dd' \quad (7.20)$$

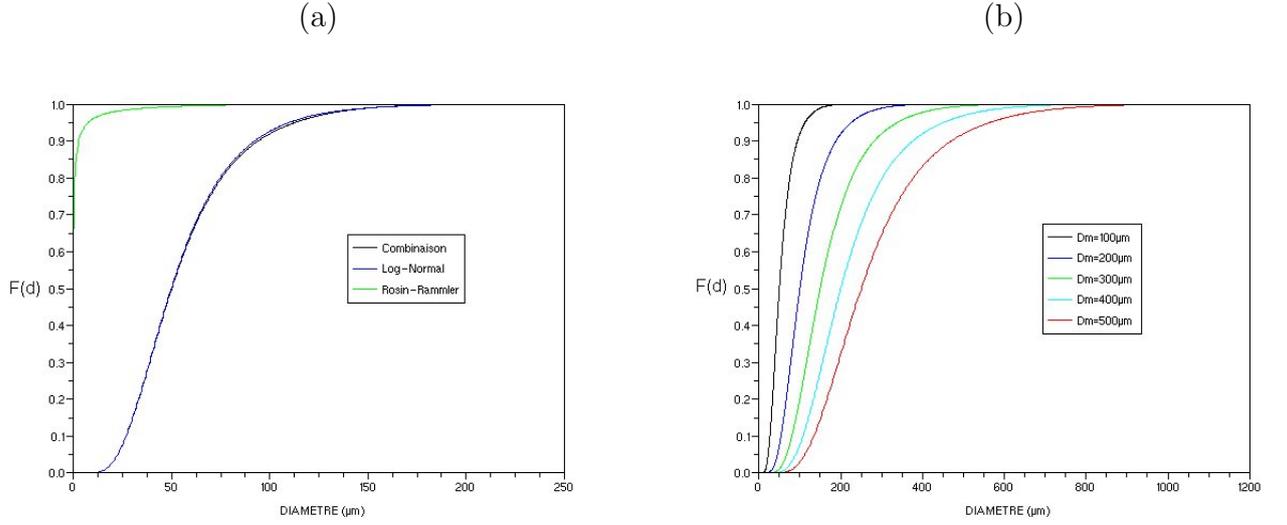


FIG. 7.4 – (a) Comparaison des Fonctions Cumulatives Numérique (log-normale), Volumique (Rosin-Rammler) et Combinée (log-normale/Rosin-Rammler) pour $d_m = 100 \mu\text{m}$; (b) Sensibilité de la Fonction Cumulative combinée au diamètre moyen d_m

Cependant, afin de limiter le temps de calcul, seul un échantillon de gouttes sera effectivement suivi. Supposons, par exemple, le débit massique de gouttelettes égal à \dot{m}_{Al} . Seul un nombre fini de gouttes N est injecté à chaque intervalle de temps δt , N étant inférieur au nombre réel de gouttes correspondant au débit \dot{m}_{Al} . Un facteur de pondération C est alors calculé afin d'assurer la conservation de masse et est défini tel que :

$$\dot{m}_{Al}\delta t = C \sum_{i=1}^N \frac{4}{3}\pi\rho_{Al} \left(\frac{d_i}{2}\right)^3 \quad (7.21)$$

N nombres U_i , associés à chaque goutte, sont ensuite choisis aléatoirement entre 0 et 1, et N diamètres d_i sont déduits de la distribution de taille précédente. Il est important de noter que les transferts de masse et d'énergie, associés à chaque goutte et présentés dans le paragraphe suivant, seront multipliés par le facteur de pondération C .

7.2.3 Calcul de la trajectoire d'une goutte

Si on néglige les pertes de quantité de mouvement liées à l'évaporation de la goutte, le principe fondamental de la dynamique appliqué à une goutte individuelle donne :

$$\frac{d}{dt}(m_d\vec{u}_d) = \underbrace{m_d\vec{g}}_{\text{Force de gravité}} - \underbrace{\frac{1}{2}\rho_g C_D \pi r_d^2 (\vec{u}_d - \vec{u}) |\vec{u}_d - \vec{u}|}_{\text{Force de traînée}} \quad (7.22)$$

\vec{u}_d : champ de vitesse de la goutte

\vec{u} : vitesse de l'écoulement

m_d : masse de la goutte

r_d : rayon de la goutte

ρ_g : masse volumique du mélange gazeux environnant

Le coefficient de traînée C_D est alors défini comme étant fonction d'un Nombre de Reynolds Re_d , lié à la goutte :

$$C_D = \begin{cases} 24/Re_d & \text{si } Re_d < 1 \\ 24(1 + 0,15Re_d^{0,687})/Re_d & \text{si } 1 < Re_d < 1000 \\ 0,44 & \text{si } 1000 < Re_d \end{cases} \quad (7.23)$$

avec :

$$Re_d = \frac{\rho_g |\vec{u}_d - \vec{u}| 2r_d}{\mu} \quad \text{où } \mu : \text{viscosité dynamique du gaz ambiant} \quad (7.24)$$

On déduit alors trivialement la position de chaque goutte individuelle à chaque instant :

$$\frac{d\vec{x}_d}{dt} = \vec{u}_d$$

7.2.4 Termes sources liés à la phase condensée

Dans le cadre de cette étude, on ne tient compte que de la force de traînée exercée par les gouttelettes sur le gaz ambiant. Ainsi, le terme \vec{f} , qui doit être ajouté **dans l'équation de conservation de quantité de mouvement**, s'écrit :

$$\vec{f} = \frac{1}{\delta V} \sum_i \left(\frac{1}{2} \rho_g C_{D,i} \pi r_{d,i}^2 (\vec{u}_{d,i} - \vec{u}) |\vec{u}_{d,i} - \vec{u}| \right) \quad (7.25)$$

Il correspond exactement à la force induite par l'ensemble des gouttes sur un volume de maille de fluide $\delta V = \delta x \delta y \delta z$. $C_{D,i}$ correspond au coefficient de traînée lié à la goutte i , $r_{d,i}$ au rayon de la goutte i , $\vec{u}_{d,i}$ à sa vitesse et ρ_g à la masse volumique du gaz ambiant.

De même, les échanges de masse et d'énergie, entre les gouttes d'aluminium et le mélange gazeux, impliquent l'ajout de deux nouveaux termes à l'expression de l'**équation**

de la divergence (déduite des équations de conservation de l'énergie et des espèces) :

$$\dot{e} = \frac{R}{\gamma p_0} \left(\rho_g \sum_i (Y_i/M_i) \frac{\partial T}{\partial t} \right) \quad \text{Terme d'échange d'énergie} \quad (7.26)$$

$$\dot{m} = \frac{R}{\gamma p_0} \left(\frac{T}{M_{Al}} \dot{m}_{Al}''' \right) \quad \text{Terme d'échange de matière} \quad (7.27)$$

Le premier terme traduit le pompage d'énergie induit par l'évaporation des gouttes d'aluminium tandis que le second introduit la production d'aluminium gazeux \dot{m}_{Al}''' . Cette dernière est également prise en compte **dans les équations de continuité et de conservation d'espèce**. La masse volumique et la fraction massique d'aluminium gazeux sont actualisées, dans chaque maille élémentaire :

$$\tilde{\rho}_{ijk}^n = \rho_{ijk}^n + \frac{\Delta m_{Al}}{\delta V} \quad (7.28)$$

$$\tilde{Y}_{Al}^n = \frac{\Delta m_{Al} + m_{g,tot} Y_{Al}^n}{\Delta m_{Al} + m_{g,tot}} \quad (7.29)$$

Δm_{Al} représente la masse d'aluminium gazeux produite par l'évaporation des gouttes situées dans le volume de maille δV . $m_{g,tot}$ est la masse totale de gaz présente dans ce même volume élémentaire.

7.2.5 Bilan de matière et d'énergie sur une goutte

Bilan de matière : loi d'évaporation

La surface d'une goutte d'aluminium décroît dans le temps mais avec une hypothèse de quasi-stationnarité. Nous supposons ainsi que sa vitesse de régression est très faible devant la vitesse de l'écoulement. La perte de masse qui en résulte s'écrit alors :

$$\frac{dm_{Al}}{dt} = -\dot{\omega}_v \quad (7.30)$$

$$\dot{\omega}_v = \pi \rho_g D_g Sh d_{Al,l} \ln(1 + B_m) \quad (7.31)$$

$\dot{\omega}_v$ représente le taux d'évaporation de la goutte et le nombre de Sherwood est défini par :

$$Sh = 2 + 0,6 Re^{\frac{1}{2}} Sc^{\frac{1}{3}}$$

$d_{Al,l}$, ρ_g et D_g sont respectivement le diamètre de la goutte d'aluminium, la masse volumique et le coefficient de diffusion du mélange gazeux ambiant.

D'autre part, le nombre de transfert de masse B_m (ou paramètre de Spalding) dépend de la fraction massique d'aluminium saturé (en liquide) $Y_{Al,sat}$ qui est déterminée à partir de la relation de Clausius-Clapeyron, en supposant donc être loin du point critique :

$$B_m = \frac{Y_{Al,g} - Y_{Al,sat}}{Y_{Al,sat} - 1} \quad (7.32)$$

$$\text{où } Y_{Al,sat} = \left[\left(1 - \frac{M}{M_{Al}} \right) + \frac{1}{X_{Al,sat}} \frac{M}{M_{Al}} \right]^{-1} \quad (7.33)$$

$$X_{Al,sat} = \exp \left[\frac{h_v M_{Al}}{R} \left(\frac{1}{T_b} - \frac{1}{T_{d,Al}} \right) \right] \quad (7.34)$$

$X_{Al,sat}$ correspond à la fraction molaire d'aluminium saturant. M_{Al} et M sont respectivement les masses molaires de l'aluminium et du mélange gazeux environnant. De plus, h_v , T_b et $T_{d,Al}$ définissent les chaleur et température d'évaporation de l'aluminium, et la température de la goutte d'aluminium considérée. Enfin la fraction massique d'aluminium gazeux $Y_{Al,g}$ est calculée à partir de l'équation de conservation associée à cette espèce.

Lorsque la température de la goutte $T_{d,Al}$ est supérieure à la température d'évaporation de l'aluminium T_{vap}^{Al} et que la pression molaire d'aluminium gazeux $p_{Al} = X_{Al,g} \cdot p$ est supérieure à la pression de vapeur saturante $p_{Al,sat} = X_{Al,sat} \cdot p$, il y a évaporation de la goutte. Le taux d'évaporation $\dot{\omega}_v$ est alors calculé explicitement en fonction des paramètres pris au pas de temps précédent et l'on déduit la masse d'aluminium évaporée Δm_{Al} et le nouveau diamètre de goutte.

Bilan d'énergie

Le transfert d'énergie entre la goutte et le milieu ambiant est calculé à partir du bilan d'énergie suivant :

$$m_{Al} c_{p,Al} \frac{dT_{d,Al}}{dt} = A_d h_d (T_g - T_{d,Al}) - \frac{dm_{Al}}{dt} h_v \quad (7.35)$$

$c_{p,Al}$: chaleur spécifique de l'aluminium liquide

A_d : surface d'échange de la goutte d'Al

h_d : coefficient d'échange convectif de la goutte donné par :

$$h_d = \frac{Nu k_g}{d_{Al,l}} \quad \text{et} \quad Nu = 2 + 0,6 Re^{\frac{1}{2}} Pr^{\frac{1}{3}} \quad (7.36)$$

Nu : nombre de Nusselt

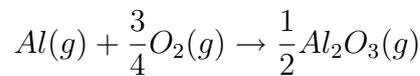
k_g : conductivité thermique du mélange gazeux ambiant

Pr : Nombre de Prandtl

d_{Al} : diamètre d'une goutte d'aluminium

7.2.6 Modèle de combustion en phase gazeuse

Le modèle de combustion en phase gazeuse est basé sur une réaction chimique à une étape entre le combustible, ici l'aluminium gazeux, et l'oxygène du mélange ambiant :



Les hypothèses sur lesquelles est établi ce modèle sont les suivantes :

- une seule étape réactionnelle
- réaction supposée infiniment rapide
- réaction contrôlée par la diffusion des espèces
- régime laminaire
- flamme infiniment mince

On définit alors la fraction de mélange $Z(\mathbf{x},t)$, scalaire passif qui permet de décrire le taux de mélange entre l'oxydant ($Z = 0$) et le fuel ($Z = 1$), tel que :

$$Z = \frac{sY_F - (Y_{O_x} - Y_{O_x}^\infty)}{sY_F^I + Y_{O_x}^\infty} \quad \text{avec} \quad s = \frac{\nu_{O_x}M_{O_x}}{\nu_F M_F} \quad (7.37)$$

M_F et M_{O_x} étant les masses molaires du combustible et de l'oxydant (ici $F \equiv Al$ et $O_x \equiv O_2$).

Lorsque la réaction est à la stoechiométrie, les espèces réactantes se consomment si rapidement qu'elles ne coexistent pas ($Y_F = Y_{O_x} = 0$) et l'on a :

$$Z = Z_f \quad \text{et} \quad Z_f = \frac{Y_{O_x}^\infty}{sY_F^I + Y_{O_x}^\infty} \quad (7.38)$$

Ayant supposé la flamme infiniment mince, on dit, par définition, qu'elle se trouve aux points où $Z = Z_f$. On peut également expliciter les fractions massiques d'oxydant et de

combustible via les relations :

$$Y_{O_x}(Z) = \begin{cases} Y_{O_x}^\infty(1 - Z/Z_f) & \text{si } Z \leq Z_f \\ 0 & \text{si } Z > Z_f \end{cases} \quad (7.39)$$

$$Y_F(Z) = \begin{cases} 0 & \text{si } Z \leq Z_f \\ (Y_{O_x}^\infty/s)(Z/Z_f - 1) & \text{si } Z > Z_f \end{cases} \quad (7.40)$$

Ainsi, pour une combustion de gouttes d'aluminium dans l'air, les fractions massiques de Al(g), Al₂O₃(g), O₂ et N₂ peuvent être tabulées en fonction de la fraction de mélange Z en suivant les relations précédentes (Fig.7.5).

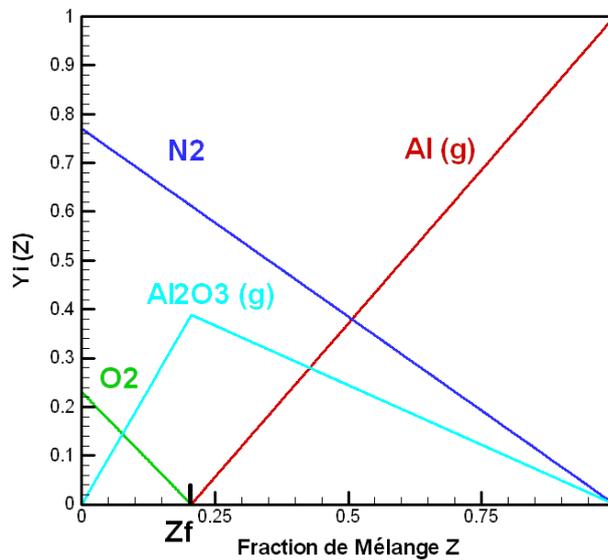


FIG. 7.5 – Fractions massiques $Y_i(z)$ vs Fraction de mélange Z pour une combustion de gouttes d'aluminium dans l'air

Par ailleurs, l'équation de transport de Z s'écrit :

$$\rho \frac{DZ}{Dt} = \text{div} \left(\rho D_g \vec{g} \text{rad} Z \right) \quad (7.41)$$

A partir de celle-ci et en utilisant l'équation de conservation de l'espèce oxydante suivante :

$$\rho \frac{DY_{O_x}}{Dt} = \text{div} \left(\rho D_g \vec{g} \text{rad} Y_{O_x} \right) + \dot{m}_{O_x}''' \quad (7.42)$$

on peut remonter à l'expression du taux de consommation d'oxydant :

$$\dot{m}_{O_x}''' = \text{div} \left(\rho D_{O_x} \frac{dY_{O_x}}{dZ} \vec{g} \text{rad} Z \right) - \rho \frac{dY_{O_x}}{dZ} \text{div} \left(\rho D_g \vec{g} \text{rad} Z \right) \quad (7.43)$$

Une telle expression n'est pas facile à résoudre en raison de la discontinuité de $\frac{dY_{Ox}}{dZ}$ en $Z = Z_f$. De plus, ayant fait l'hypothèse d'une flamme infiniment mince, on préfère considérer le taux de consommation d'oxygène par unité de surface de flamme \dot{m}''_{Ox} définie telle que :

$$\dot{m}''_{Ox} = \left(\frac{dY_{Ox}}{dZ} \right)_{Z < Z_f} \rho D \text{grad} Z \cdot \vec{n} \quad (7.44)$$

où \vec{n} est la normale à la flamme. On déduit alors, d'après la relation de Huggett [109], le taux de chaleur dégagée par unité de surface de flamme \dot{q}'' :

$$\dot{q}'' = \Delta H_{ox} \cdot \dot{m}''_{Ox} \quad (7.45)$$

avec ΔH_{ox} : Chaleur dégagée par unité de masse d'oxygène consommée (kJ/kg).

L'algorithme numérique détermine, tout d'abord, la position de la flamme ($Z = Z_f$) puis calcule le taux de chaleur dégagée par unité de surface et distribue, enfin, cette énergie sur l'ensemble des cellules coupées par la flamme.

Après avoir précisé le modèle de combustion des gouttes d'aluminium, nous présentons ci-après comment les propriétés radiatives des particules d'alumine ont été implémentées et prises en compte dans la modélisation d'un feu de propergol.

7.3 Propriétés radiatives des gouttes Al/Al₂O₃

Les parties 1 et 2 ont non seulement souligné la nature polyphasique d'un feu de propergol mais aussi la grande importance du rayonnement des gouttes Al/Al₂O₃ dans les transferts de chaleur vers l'extérieur. D'après les phénomènes décrits dans l'état de l'art, nous pouvons faire les hypothèses suivantes :

- les particules sont liquides, ce qui permet de les supposer sphériques, dans une bonne approximation, par l'action de la tension superficielle (si les forces d'accélération sont négligeables devant les forces de tension superficielle)
- les particules, constituées d'aluminium oxydé et d'impuretés (dépôt de carbone, aluminium non complètement oxydé, traces de métaux, etc), seront supposées de composition homogène. On se limitera à un modèle d'indice complexe homogène.

D'autre part, comme nous l'avons vu p.52, les gouttes d'aluminium éjectées dans les gaz de propergol se recouvrent quasi-instantanément d'une fine pellicule d'alumine solide avant de s'allumer et de brûler. De même, celles dont la combustion est incomplète sont à l'origine de la dispersion d'oxydes résiduels, sous forme de sphères creuses d'alumine solide, dans le panache du feu. Aussi, cela justifie de supposer que les gouttes d'aluminium injectées dans le milieu gazeux ont les propriétés radiatives des particules solides d'alumine.

7.3.1 Etude des indices

La caractérisation des propriétés radiatives (absorption et diffusion) de la phase condensée, supposée homogène au sein d'une particule, repose sur les valeurs des parties réelle n et imaginaire k de l'indice complexe. Des lois analytiques ont été formulées, à partir de résultats expérimentaux, pour des particules liquides d'alumine.

Au début des années 1980, Dombrovsky a proposé des formules pour n et k [110]. Il a notamment utilisé les données de l'indice de réfraction complexe issues de Dombrovsky et Ivenskih [111] ainsi que les résultats expérimentaux de Bakhir et al. [112] effectués à une température de 2950 K sur un intervalle de longueur d'onde [1,6 μm ; 8 μm]. Les expressions proposées sont les suivantes :

$$\begin{aligned} n(\lambda, T) &= \left[1 + \lambda^2 \left(\frac{1,024}{\lambda^2 - 0,00376} + \frac{1,058}{\lambda^2 - 0,01225} + \frac{5,281}{\lambda^2 - 321,4} \right) \right]^{0,5} \\ &\quad \cdot [1 + 0,0202(\bar{T} - 0,473)] \\ k(\lambda, T) &= 0,002(0,06\lambda^2 + 0,7\lambda + 1)\exp[1,847(\bar{T} - 2,95)] \\ \text{avec } \bar{T} &= \frac{T}{1000} \end{aligned}$$

où λ est exprimée en μm et T en K.

Parry et Brewster (1991) ont ensuite établi une relation entre parties réelles de l'indice de l'alumine pour les phases liquide et solide [113], à partir des densités ρ_{l,Al_2O_3} et ρ_{s,Al_2O_3} de ces deux phases :

$$\frac{n - 1}{n_{s,Al_2O_3} - 1} = \left(\frac{\rho_{l,Al_2O_3}}{\rho_{s,Al_2O_3}} \right) \left(1 - \frac{T - T_m}{2684} \right) \quad (7.46)$$

avec $3,93 \text{ g.m}^{-3}$ et $\rho_{s,Al_2O_3} = 3,93 \text{ g.m}^{-3}$ à 2300K et $T_m = 2320\text{K}$.

Pour la partie réelle de la phase solide n_s , ils considèrent en outre une dispersion spectrale donnée dans le Tableau 7.7. Ils utilisent alors la formule de Reed [114] pour modéliser

λ (μm)	n_s
0,5	1,83
1	1,81
2	1,80
3	1,77
4	1,74
5	1,69

TAB. 7.7 – Dépendance spectrale de la partie réelle de l'indice optique de l'alumine solide $n_s(\lambda)$, à $T = 2300$ K

i	A_i	B_i
1	1,023798	0,00377588
2	1,058264	0,0122544
3	5,280792	321,3616

TAB. 7.8 – Valeurs des coefficients de tabulation A_i et B_i

la partie complexe de l'indice optique de l'alumine liquide sur le domaine spectral $[1,7 \mu\text{m}; 4,5 \mu\text{m}]$:

$$k = 3,7 \cdot 10^{-4} T^{1,5} \lambda^{10(-13500/T)} \quad (7.47)$$

Edwards et Babikian [115] puis Edwards et Bobco [116] ont également utilisé des formules de dépendances spectrale et thermique pour l'indice complexe de l'alumine liquide. Pour la partie réelle n , ils ont considéré les résultats d'interpolation donnés dans les années 1960 par Malitson [117] et issus de Sutton et Stavroudis [118] :

$$n^2(\lambda) - 1 = \frac{A_1 \lambda^2}{\lambda^2 - B_1} + \frac{A_2 \lambda^2}{\lambda^2 - B_2} + \frac{A_3 \lambda^2}{\lambda^2 - B_3} \quad (7.48)$$

Les valeurs des coefficients d'interpolation utilisées sont répertoriées dans le Tableau 7.8. Pour la partie imaginaire k , ils utilisent la formule de Van de Hulst [119] donnant l'indice d'extinction χ d'une particule diphasique en fonction de la fraction volumique f_m de la partie liquide :

$$\begin{aligned} \chi^2(\lambda, T) &= \frac{\epsilon}{2} \left[\left(1 + \frac{\lambda^2}{\lambda_g^2} \right)^{0,5} - 1 \right] \\ \lambda_\sigma(T) &= \lambda_0 \{ 1 - [(2/\epsilon)\eta(T) - 1]^2 \}^{0,5} \\ \eta(T) &= 3,56 \cdot 10^{-3} (1 - f_m) \exp \left[\frac{(T - T_m)}{2900} \right] + 1,41 \cdot 10^{-3} f_m \exp \left[\frac{(T - T_m)}{492} \right] \end{aligned}$$

avec $\lambda_0 = 1,77 \mu\text{m}$ et $\epsilon = 8,5$.

T et T_m désignent respectivement la température de la particule et la température du point de fusion. Les domaines de validité en température et en longueur d'onde sont respectivement $[2600 \text{ K}; 2900 \text{ K}]$ et $[0,6 \mu\text{m}; 10 \mu\text{m}]$.

Puis en 1993, Anfimov et al. ont, quant à eux, proposé un modèle semi-empirique pour la partie imaginaire k [120], basé sur les quatre mécanismes à l'origine de l'absorption du rayonnement par les particules dans les différentes parties du domaine spectral :

$$k = k_0 + k_1 + k_2 + k_3 \quad (7.49)$$

avec

$$k_0 = 7,93 \cdot 10^4 \lambda \exp \left[-\frac{6,07 \cdot 10^{-3}}{T} \left(\frac{10^4}{\lambda} - 1333^2 \right) \right] \left[1 - \exp \left(-\frac{1,917 \cdot 10^3}{T} \right) \right] \quad (7.50)$$

$$k_1 = 10^{-2} \frac{\lambda}{n} \exp \left(-\frac{7,2 \cdot 10^3}{T \lambda_g} \right) \quad (7.51)$$

$$k_2 = 2,1 \cdot 10^{-6} \lambda \left(\frac{1}{\lambda} - \frac{1}{\lambda_g} \right)^2 T^2 + 1,5 \cdot 10^{-2} \frac{\lambda_g}{2} \quad \text{si } \lambda \leq \frac{\lambda_g}{2} \quad (7.52)$$

$$k_3 = 1,5 \cdot 10^{-2} \lambda \exp \left(-\frac{2,8 \cdot 10^3}{T} \left(\frac{2}{\lambda_g} - \frac{1}{\lambda} \right) \right) \quad \text{si } \lambda > \frac{\lambda_g}{2} \quad (7.53)$$

$$\frac{1}{\lambda_g} = 0,6916 \left(\frac{1,289 \cdot 10^4}{T} - 3,233 \right) \quad (7.54)$$

où k_0 modélise l'absorption par le réseau cristallin (alumine solide), k_1 l'absorption par les électrons libres, k_2 l'absorption dans la bande électronique fondamentale et k_3 l'absorption dans le proche UV et le visible résultant du couplage entre les phonons et la bande électronique fondamentale.

Les modèles présentés donnent une grande dispersion de résultats principalement sur la partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe des particules. Cependant, l'expression du modèle de Dombrovsky semble être plus cohérente pour modéliser l'évolution de la partie réelle de l'indice de réfraction complexe car il considère l'ensemble des phénomènes d'absorption observé dans un large domaine spectral. C'est pourquoi, nous choisissons, dans la suite de l'étude, le modèle de Dombrovsky pour prendre en compte les dépendances spectrale et thermique des propriétés optiques des particules d'alumine liquide.

7.3.2 Modélisation des propriétés radiatives des particules

Les propriétés radiatives des particules d'alumine (coefficients d'absorption et de diffusion) sont ici modélisées par la théorie de Mie. Nous rappellerons, dans un premier temps, les grandeurs essentielles calculées par cette théorie exacte (efficacités d'extinction et de diffusion, fonction de phase) puis leur sensibilité à l'indice de réfraction sera étudiée.

Généralités sur la théorie de Mie

Le formalisme de la théorie de Mie pour des particules sphériques est détaillé dans de nombreux ouvrages [119, 121]. Il s'agit de résoudre, dans l'hypothèse de champ lointain, les équations de Maxwell pour une onde plane monochromatique en incidence sur une particule sphérique dont les propriétés optiques diffèrent du milieu environnant. On ne s'intéressera ici qu'à introduire les grandeurs de base qui serviront pour notre étude et le sens physique qui s'y rattache. Les phénomènes de diffusion et d'absorption sont, dans cette approche, produits par les interactions d'ondes électromagnétiques avec la matière. Deux paramètres importants sont à prendre en compte pour sa modélisation :

- le rapport \hat{m} des indices du milieu diffusant et du milieu de propagation n_m :

$$\hat{m} = \frac{n + ik}{n_m}$$

- le paramètre de taille x défini par :

$$x = \frac{2\pi n_m r}{\lambda}$$

où r est le rayon de la particule et λ la longueur d'onde du rayonnement dans le milieu.

Si $x \gg 1$ et $x|\hat{m} - 1| \gg 1$, les phénomènes de diffusion peuvent être traités dans le cadre de l'optique géométrique.

Si $x \ll 1$ et $x|\hat{m} - 1| \ll 1$, on peut traiter l'absorption et la diffusion dans le cadre de l'approximation de Rayleigh (petites particules).

Entre ces deux domaines, la diffusion est traitée à partir de la théorie générale de Mie.

La diffusion que nous traiterons sera supposée indépendante : les particules diffusent indépendamment les unes des autres et leurs sections efficaces sont additives dans la limite

du milieu mince. On peut s'assurer d'une telle hypothèse à partir des diagrammes des régimes de diffusion dépendante et indépendante de Tien et Drolen établis en fonction de deux critères : le paramètre de taille et la fraction volumique de particules dans le milieu [122].

Sections efficaces et efficacités

Pour des particules quelconques, la section efficace de diffusion C_{sc} (respectivement d'absorption C_a) est, par définition, la surface qui, éclairée avec un flux surfacique incident φ_i , recevrait un flux égal au flux diffusé Φ_{sc} (respectivement absorbé Φ_a) :

$$\Phi_{sc} = C_{sc}\varphi_i$$

La section efficace d'extinction se définit à partir des sections efficaces de diffusion et d'absorption C_{sc} et C_a :

$$C_{ext} = C_{sc} + C_a$$

Pour des sphères homogènes d'indice isotrope, la théorie de Mie permet de calculer les sections efficaces d'extinction C_{ext} et de diffusion C_{sc} à l'aide de coefficients a_n et b_n (coefficients des séries de Mie), issus d'une décomposition du champ diffusé \vec{E}_S en une série infinie d'harmoniques sphériques [121] :

$$C_{ext} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \operatorname{Re} \{a_n + b_n\} \quad (7.55)$$

$$C_{sc} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad (7.56)$$

$$S_1(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \Pi_n(\theta) + b_n \Lambda_{n=1}(\theta)) \quad (7.57)$$

$$S_2(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \Lambda_n(\theta) + b_n \Pi_n(\theta)) \quad (7.58)$$

Bohren et Huffmann (1983) donnent la démonstration complète de ces formules avec l'expression mathématique des coefficients a_n et b_n et des fonctions $\Pi_n(\theta)$ et $\Lambda_n(\theta)$ [121]. Ces formules analytiques sont ici programmées à partir de récurrences ascendante et descendante.

Les efficacités d'absorption, de diffusion et d'extinction sont alors des grandeurs adimensionnées, rapports des sections efficaces correspondantes à la surface apparente de la particule dans la direction du rayonnement incident. Dans le cas de particules sphériques de rayon r , elles valent :

$$Q_{sc} = \frac{C_{sc}}{\pi r^2} \quad (7.59)$$

$$Q_a = \frac{C_a}{\pi r^2} \quad (7.60)$$

$$Q_{ext} = \frac{C_{ext}}{\pi r^2} \quad (7.61)$$

Fonction de phase et paramètre d'asymétrie

La quantité C_{sc} ne fournit des informations que sur la puissance diffusée dans toutes les directions de l'espace. Soit $d\Phi_{sc}$ le flux diffusé dans un angle solide élémentaire $d\Omega$ autour d'une direction donnée θ . On peut poser formellement :

$$d\Phi_{sc} = \left(\frac{dC_{sc}}{d\Omega} \right) \varphi_i d\Omega \quad (7.62)$$

On peut montrer que $dC_{sc}/d\Omega$, appelé section efficace différentielle de diffusion, a les dimensions d'une surface par unité d'angle solide et a pour expression :

$$\frac{dC_{sc}}{d\Omega}(\theta) = R^2 \frac{I_{sc}(\theta)}{I_i} \quad (7.63)$$

R représente la distance au centre diffusant ($R \gg 1$ en champ lointain). I_i et I_{sc} représentent respectivement le flux incident surfacique (ou amplitude du vecteur de Poynting) et le flux surfacique diffusé par unité d'angle solide. On appelle alors fonction de phase, la section efficace différentielle normalisée par la section efficace de diffusion :

$$p = \frac{1}{C_{sc}} \frac{dC_{sc}}{d\Omega}(\theta) \quad (7.64)$$

Cette fonction est normalisée :

$$\int_{4\pi} p d\Omega = 1 \quad (7.65)$$

La fonction de phase dépend de l'angle de diffusion, de la longueur d'onde ainsi que du rayon de la particule considérée. Elle dépend également, par l'intermédiaire de l'indice de réfraction, de la température considérée.

Le paramètre d'asymétrie, quant à lui, caractérise le degré d'anisotropie de la diffusion : il s'agit de la valeur moyenne du cosinus directeur de l'angle de diffusion pondéré par la fonction de phase :

$$g = \int_{4\pi} \cos(\theta) p(\Omega) d\Omega \quad (7.66)$$

Soit, dans le cas d'une diffusion à symétrie azimutale, comme c'est le cas pour des sphères :

$$g = 2\pi \int_{-1}^1 \mu p(\mu) d\mu \quad (7.67)$$

où μ désigne $\cos\theta$. Cette valeur est utilisée pour la formulation analytique de certaines fonctions de phase très particulières.

Etude des efficacités

L'étude des efficacités a été conduite, dans ce travail, pour des particules liquides de $0,5 \mu\text{m}$ et $40 \mu\text{m}$ de rayon en utilisant les relations formulées par Dombrovsky pour la dépendance des propriétés optiques des particules à la longueur d'onde et à la température. Les résultats de cette étude sont illustrés par les figures 7.6 et 7.7 sur lesquelles est également représenté le paramètre d'asymétrie. Pour chaque rayon, on représente les efficacités et le paramètre d'asymétrie en fonction du paramètre de taille $x = 2\pi r/\lambda$ avec une longueur d'onde λ comprise entre $0,5$ et $8 \mu\text{m}$, domaine de validité du modèle de Dombrovsky.

Pour un rayon de $0,5 \mu\text{m}$, les efficacités représentées montrent deux types de structures, classiques en diffusion de Mie : une structure d'interférence avec *maxima* et *minima* et une structure fine en ondelette très irrégulière (dénommée "ripple structure"). Les premières structures sont dues aux interférences entre la lumière incidente et la lumière diffusée vers l'avant. Quant aux structures fines, elles sont associées à des modes de surface résonants se traduisant par une minimisation des dénominateurs des coefficients a_n et b_n dans les expressions 7.55 et 7.56.

Pour les particules de $40 \mu\text{m}$, on retrouve, pour l'efficacité d'extinction, la limite classique de 2 aux grands paramètres de taille. Les structures d'interférence sont plus atténuées du fait des longueurs d'onde considérées [$0,5 \mu\text{m}$; $8 \mu\text{m}$] et de l'ordre élevé d'interférence. La dynamique du spectre des efficacités est par conséquent plus faible pour les parti-

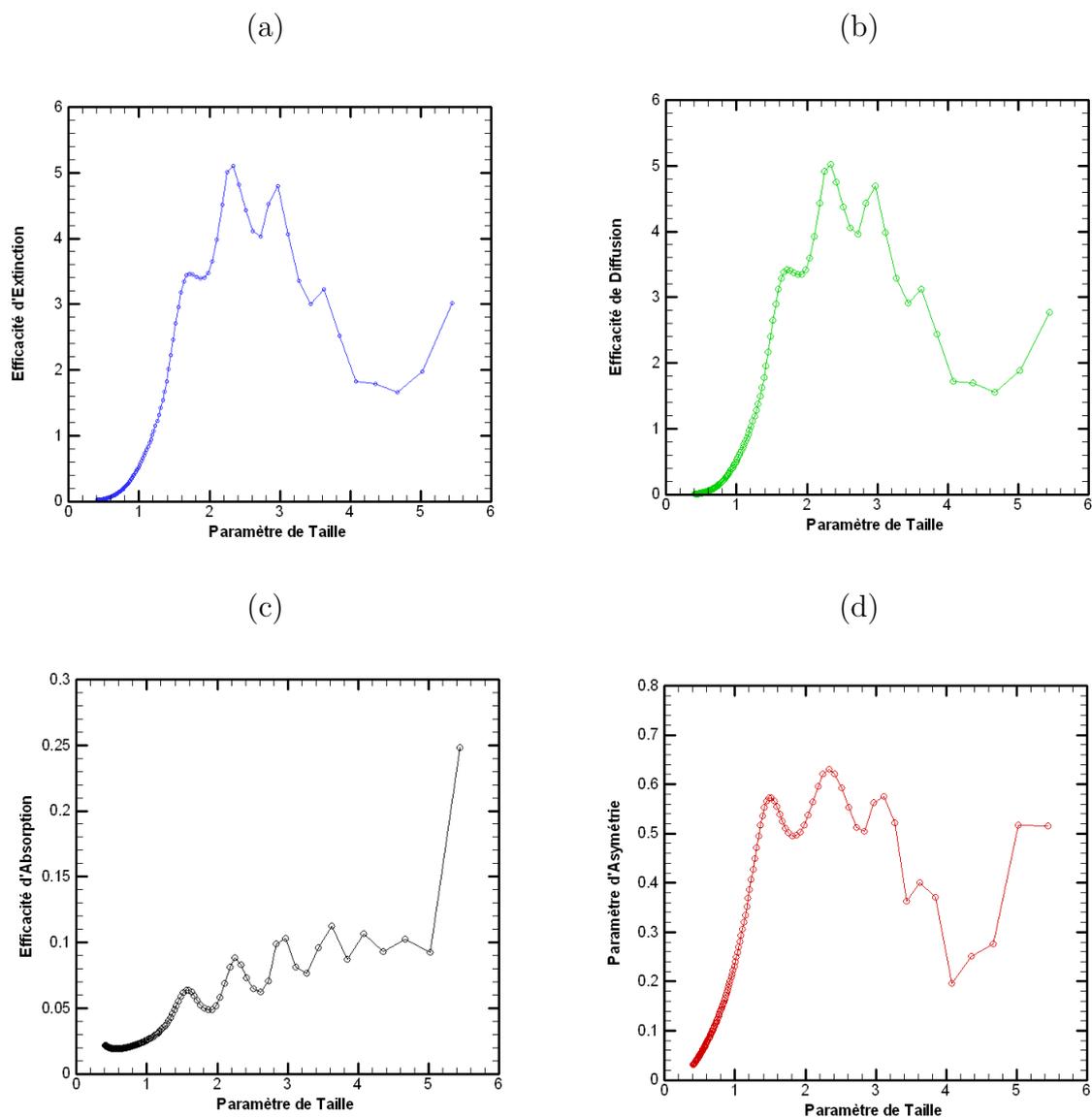


FIG. 7.6 – Efficacités d’extinction (a), de diffusion (b), d’absorption (c) et paramètre d’asymétrie (d) pour une particule d’alumine de rayon $r = 0,5 \mu\text{m}$ ($T = 3000 \text{ K}$)

cules de $40 \mu\text{m}$ de rayon que pour les particules de $0,5 \mu\text{m}$ de rayon. Cette dynamique est également présente pour le paramètre d’asymétrie qui est pratiquement toujours supérieur à $0,90$ pour les particules de $40 \mu\text{m}$ de rayon, alors que, pour les particules de $0,5 \mu\text{m}$, g varie de $0,2$ à $0,7$. Les particules de grand paramètre de taille sont donc caractérisés par une forte diffusion vers l’avant. On constate également que l’efficacité d’absorption, dans le cas $r = 0,5 \mu\text{m}$, est quasiment dix fois plus faible que celle dans le cas $r = 40 \mu\text{m}$. Le calcul simple du facteur d’atténuation A d’une onde électromagnétique transmise par la

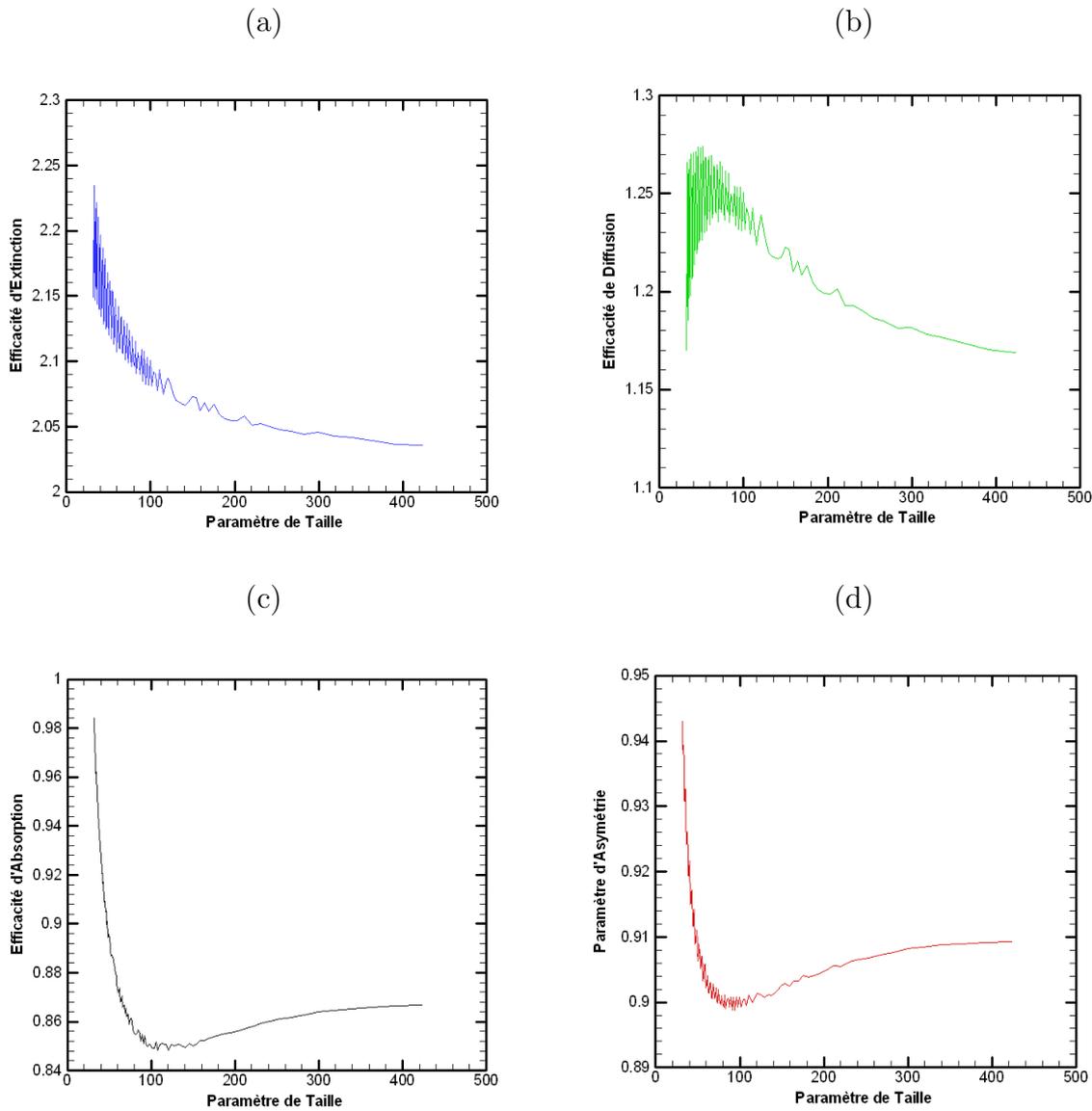


FIG. 7.7 – Efficacités d’extinction (a), de diffusion (b), d’absorption (c) et paramètre d’asymétrie (d) pour une particule d’alumine de rayon $r = 40 \mu\text{m}$ ($T = 3000 \text{ K}$)

particule permet de comprendre cet écart : sur l’intervalle de longueur d’onde $[0,5 \mu\text{m} ; 8 \mu\text{m}]$, avec un indice optique issu des données de Dombrovsky, le facteur A varie de 0,98 à 0,99 pour $r = 0,5 \mu\text{m}$, et de 0,22 à 0,53 pour $r = 40 \mu\text{m}$. L’efficacité d’absorption des particules de $0,5 \mu\text{m}$ de rayon est ainsi très inférieure à celle des particules de $40 \mu\text{m}$ de rayon.

Cette comparaison succincte met en évidence les différences de comportement radiatif entre les particules de différents diamètres. Cependant, plusieurs tailles de particules sont

observées dans l'écoulement gazeux. La partie suivante précise justement quelles classes de taille sont considérées dans le calcul du rayonnement des particules. Plus généralement elle présente la méthode utilisée pour prendre en compte la diffusion du milieu dans les transferts de chaleur du feu vers l'extérieur.

7.4 Rayonnement des gouttes Al/Al₂O₃

Dans FDS, pour calculer les transferts radiatifs induits par les gouttelettes d'Al/Al₂O₃, l'émission et l'absorption de la phase gazeuse sont temporairement négligées et l'équation de transfert radiatif devient :

$$\vec{s} \cdot \vec{grad}(I_\lambda(\vec{x}, \vec{s})) = \quad (7.68)$$

$$- [\kappa_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda) + \sigma_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda)] I_\lambda(\vec{x}, \vec{s}) + \kappa_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda) I_{b,d}(\vec{x}, \lambda) + \frac{\sigma_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda)}{4\pi} \int_{4\pi} \Phi(\vec{s}, \vec{s}') I_\lambda(\vec{x}, \vec{s}') d\Omega'$$

avec :

- $I_\lambda(\vec{x}, \vec{s})$: Luminance émise par le milieu à la longueur d'onde λ , dans la direction \vec{x}
- $\kappa_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda)$: Coefficient d'absorption monochromatique des particules au point \vec{x}
- $\sigma_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda)$: Coefficient de diffusion des particules au point \vec{x}
- $I_{b,d}(\vec{x}, \lambda)$: Luminance émise par un corps noir à la longueur d'onde λ , dans la direction \vec{x} (donnée par la loi de Planck)
- $\Phi(\vec{s}, \vec{s}')$: Fonction de phase associée à la diffusion dans la direction \vec{s} depuis un angle solide $d\Omega'$ centré autour d'une direction \vec{s}'

Les coefficients d'absorption et de diffusion locaux sont calculés à partir de la densité de nombre locale des gouttes $N(x)$ et de leur diamètre moyen d_m :

$$\begin{cases} \kappa_{Al_2O_3}(x, \lambda) = N(x) \int_0^\infty f(r, d_m(x)) C_a(r, \lambda) dr \\ \sigma_{Al_2O_3}(x, \lambda) = N(x) \int_0^\infty f(r, d_m(x)) C_{sc}(r, \lambda) dr \end{cases}$$

où r est le rayon de la goutte et C_a et C_{sc} sont respectivement les sections efficaces d'absorption et de diffusion des gouttelettes d'alumine, calculées par la théorie de Mie. La densité de nombre des gouttes est supposée avoir la même forme que la distribution de taille définie au paragraphe 7.2, et le même diamètre moyen.

En outre, le calcul du terme de diffusion de l'ETR est extrêmement coûteux en temps CPU. C'est pourquoi, il a été ici simplifié en décomposant l'angle solide 4π en deux termes : l'angle solide $\delta\Omega^l$ et l'angle "ambient" $4\pi - \delta\Omega^l$. Par compatibilité avec le solveur FVM, $\delta\Omega^l$ est pris égal à l'angle de contrôle donné par la discrétisation spatiale. A l'intérieur de l'angle solide $\delta\Omega^l$, la luminance est égale à $I_\lambda(\vec{x}, \vec{s})$ et, ailleurs, elle est approximée par :

$$U^*(\vec{x}, \lambda) = \frac{U(\vec{x}, \lambda) - \delta\Omega^l I_\lambda(\vec{x}, \vec{s})}{\Omega^*} \quad (7.69)$$

où $U(\vec{x}, \lambda)$ est la luminance intégrée sur l'espace. Le terme de diffusion de l'ETR peut alors s'écrire comme suit :

$$\frac{\sigma_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda)}{4\pi} \int_{4\pi} \Phi(\vec{s}, \vec{s}') I_\lambda(\vec{x}, \vec{s}') d\Omega' = \sigma_{Al_2O_3} [\xi_f I_\lambda(\vec{x}, \vec{s}) + (1 - \xi_f) U^*(\vec{x}, \lambda)] \quad (7.70)$$

où $\xi_f = \xi_f(r, \lambda)$ correspond à la fraction de luminance totale diffusée de l'angle solide $\delta\Omega^l$ vers lui-même. En redéfinissant la section efficace de diffusion :

$$\bar{\sigma}_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda) = \frac{4\pi N(x)}{4\pi - \delta\Omega^l} \int_0^\infty (1 - \xi_f) C_s(r, \lambda) dr \quad (7.71)$$

l'équation de transfert radiatif devient :

$$\begin{aligned} \vec{s} \cdot \vec{grad}(I_\lambda(\vec{x}, \vec{s})) = & \quad (7.72) \\ - [\kappa_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda) + \bar{\sigma}_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda)] I_\lambda(\vec{x}, \vec{s}) + \kappa_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda) I_{b,d}(\vec{x}, \lambda) + \frac{\bar{\sigma}_{Al_2O_3}(\vec{x}, \lambda)}{4\pi} U(\vec{x}, \lambda) \end{aligned}$$

Cette équation est, de la même façon qu'en milieu non diffusant, intégrée sur tout le spectre d'émission et résolue sur chaque bande spectrale n telle que :

$$\begin{aligned} \vec{s} \cdot \vec{grad}(I_n(\vec{x}, \vec{s})) = & \quad (7.73) \\ - [\kappa_{Al_2O_3,n}(\vec{x}, \lambda) + \bar{\sigma}_{Al_2O_3,n}(\vec{x}, \lambda)] I_\lambda(\vec{x}, \vec{s}) + \kappa_{Al_2O_3,n}(\vec{x}, \lambda) I_{b,d,n}(\vec{x}, \lambda) + \frac{\bar{\sigma}_{Al_2O_3,n}(\vec{x}, \lambda)}{4\pi} U_n(\vec{x}, \lambda) \end{aligned}$$

où le terme source est calculé à partir de la température moyenne de la goutte à l'intérieur de la cellule. Les coefficients d'absorption et de diffusion $\kappa_{Al_2O_3}$ et $\bar{\sigma}_{Al_2O_3}$ sont calculés sur chaque bande spectrale pour une seule et unique température. Cette constante, dite température de rayonnement T_{rad} , est représentative de la température de flamme associée à ces gouttelettes et est fixée à 3000 K.

7.5 Conclusion

Ce chapitre a présenté la stratégie numérique employée dans cette étude afin de modéliser un feu de propergol aluminisé.

Tout d'abord, un modèle 1D de transferts thermiques nous a permis de prédire le délai d'allumage d'un bloc de propergol aluminisé.

Puis, étant donné la taille des domaines de calcul considérés dans cette étude, une condition limite *Flamme de propergol*, représentative de la combustion d'un propergol solide PA/PBHT à l'équilibre thermochimique, a été définie à la surface du bloc. La température de surface du bloc est ainsi égale à la température adiabatique de flamme, calculée à la pression atmosphérique, et le débit des gaz brûlés est directement calculé à partir de la vitesse de combustion du propergol, mesurée lors des essais.

Le propergol solide considéré ici étant chargé en aluminium, des gouttes d'aluminium liquide sont injectées dans les gaz brûlés de propergol. Leur débit massique dépend alors directement du chargement en particules d'aluminium du propergol étudié. Les transports de masse et d'énergie sont également calculés et imposent d'ajouter des termes sources dans les équations associées à la phase continue. D'autre part, un modèle de combustion de type fraction de mélange permet de prédire la réaction entre l'aluminium gazeux, issu de l'évaporation des gouttes, et l'oxygène présent dans les gaz de propergol.

Enfin, le rayonnement des gouttes est pris en compte en calculant, régulièrement, l'ETR pour un milieu diffusant. Le modèle de Dombrovsky [110] est implémenté et permet de calculer les propriétés radiatives des particules d'alumine solide pour une température donnée T_{rad} , prise égale à 3000 K. Ainsi, on suppose que les gouttes d'aluminium ont des propriétés radiatives voisines de celles-ci.

Tous les modèles présentés ici intègrent beaucoup de paramètres dont l'influence sur le résultat final n'est pas forcément la même. L'objectif du prochain chapitre sera donc de hiérarchiser les principaux et d'étudier, sur un cas référence, la sensibilité du modèle global à chacun d'entre eux.

Chapitre 8

Résultats et discussion

Dans ce chapitre, il s'agit, tout d'abord, d'étudier la sensibilité du modèle global aux principaux paramètres, caractéristiques d'une simulation de feu de propergol aluminisé. Certains sont directement liés à la définition du domaine de calcul (taille d'une maille), d'autres dépendent de la composition de propergol aluminisé considérée (débit d'éjection des gaz de propergol \dot{m}_g'' et débit de gouttes d'aluminium \dot{m}_{Al}) ou définissent directement le comportement thermique des gouttes (température initiale $T_{gouttes}^0$).

Dans un deuxième temps, nous proposerons un jeu de paramètres pour lequel les résultats numériques sont relativement en bon accord avec ceux issus des essais expérimentaux.

Enfin, nous soulignerons les limites de ce code et les améliorations à apporter pour obtenir un outil plus prédictif.

8.1 Etude paramétrique sur une configuration test

8.1.1 Définition de la configuration test CF1

Dans cette section, nous considérons la configuration test CF1 qui définit un domaine de calcul de géométrie très simple et dont les dimensions sont répertoriées Tab.8.1. Le choix d'un domaine de taille limitée nous permet d'affiner le maillage sans être pénalisé par un temps CPU trop long. De plus, le choix de conditions limites à flux nul de part et d'autre du bloc de propergol reste encore justifié (Fig.8.1).

Le propergol est représenté par un solide, d'épaisseur nulle dont les faces latérales

sont inertes et la face supérieure définie par la condition limite *Flamme de propergol*. Les

Dimensions	
X (m)	1.8
Y (m)	1.8
Z (m)	3.0
Taille d'une maille	
Δx (cm)	4.0
Δy (cm)	4.0
Δz (cm)	3.0
Nombre de mailles	45×45×100
Type de maillage	Structuré et uniforme

TAB. 8.1 – Définition du domaine de calcul CF1 pour un maillage initial M_0

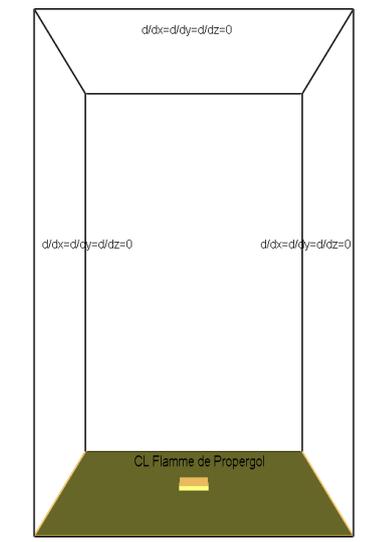


FIG. 8.1 – Visualisation du domaine de calcul

principales simplifications effectuées, dans le cadre de ces simulations, sont les suivantes :

1. Définition d'une CL *Flamme de propergol* représentative d'une combustion de propergol PA/PBHT
2. Injection de gouttes d'aluminium dont la distribution de taille est de type Rosin-Rammler/Log normal

3. Pas d'agglomération des gouttelettes à la surface du propergol puis dans l'écoulement gazeux
4. La température d'évaporation des gouttes d'aluminium T_{vap}^{Al} est supposée égale à la température de fusion de l'alumine $T_{fus}^{Al_2O_3}$ (Tab.8.2). Comme précisé dans la partie 1, les gouttes d'Al s'allument dès que la fine pellicule d'alumine recouvrant la goutte se liquéfie.

La sensibilité du modèle global aux paramètres suivants est alors étudiée :

- Taille de maille Δx_i
- Débit du gaz équivalent \dot{m}_g''
- Débit des gouttes \dot{m}_{Al}
- Température initiale des gouttes $T_{gouttes}^0$

CL Flamme de propergol et Propriétés des gouttes d'Al_{liq}	
T_w (°C)	2182
Débit du gaz équivalent \dot{m}_g'' (kg/m ² /s)	2,31
Pr	0,26
Le	1
Chaleur d'évaporation $h_{v,Al}$ (kJ/kg)	10500
Masse volumique $\rho_{Al,l}$ (kg/m ³)	1550
T_{fus}^{Al} (°C)	660
T_{vap}^{Al} (°C)	2054
T_{rad} (°C)	3000
Diamètre moyen des gouttes d_m (μm)	100
Chaleur spécifique $c_{p,Al}$ (kJ/K/kg)	1,09
Débit des gouttes \dot{m}_{Al} (kg/s)	1
Température initiale T_{Al}^0 (°C)	2182

TAB. 8.2 – Valeurs par défaut de la CL *Flamme de propergol* et des propriétés des gouttes d'Al

Nous faisons varier l'un de ces cinq paramètres, les autres étant maintenus constants par ailleurs (valeurs par défaut), et étudions leur influence sur l'environnement thermique du feu de propergol aluminisé dans le plan $Y = 0,9$ m et en plusieurs points dans et en

dehors de la flamme (Fig.8.2). Les calculs sont menés sur un processeur de type XEON, de fréquence 2.4 GHz et de 2 Go de RAM, et le temps CPU est en moyenne de 36 heures.

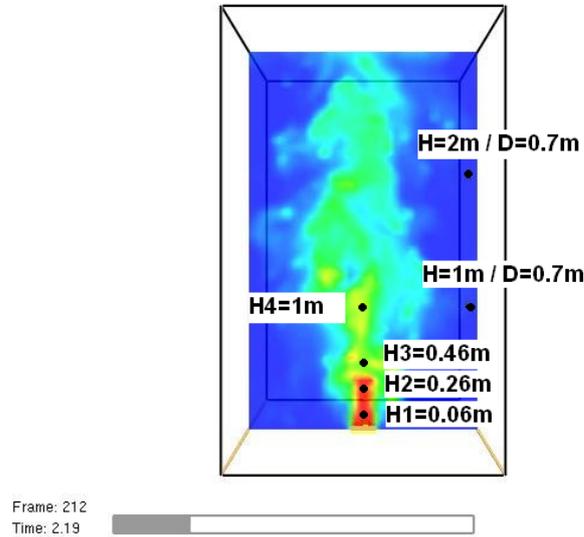


FIG. 8.2 – Points considérés pour le post-traitement des grandeurs caractéristiques de l’environnement thermique du feu de propergol

Il est à noter que deux paramètres caractéristiques de l’injection et du rayonnement des gouttes ne sont pas pris en compte ici, à savoir la température T_{rad} et le diamètre moyen des gouttes d_m . Des calculs préliminaires, faisant varier T_{rad} de 1500 à 3000 °C et d_m de 100 à 300 μm , ont en effet montré que leur influence sur le résultat final était négligeable. Par conséquent, ces deux paramètres resteront fixés à leur valeur par défaut : $T_{rad} = 3000$ °C et $d_m = 100$ μm (Tab.8.2).

8.1.2 Sensibilité au débit de gouttes \dot{m}_{Al}

Le débit de goutte est un paramètre directement lié à la composition initiale du propergol considéré. Comme nous l’avons observé lors des essais expérimentaux, le fait d’augmenter le chargement initial du propergol en aluminium induit une hausse importante des transferts de chaleur vers l’extérieur. L’évolution du flux radiatif échangé à 1 et 2 m au-dessus de la surface de propergol, pour différents débits de gouttes, confirme numériquement cette tendance (Fig.8.3). L’environnement thermique calculé autour du

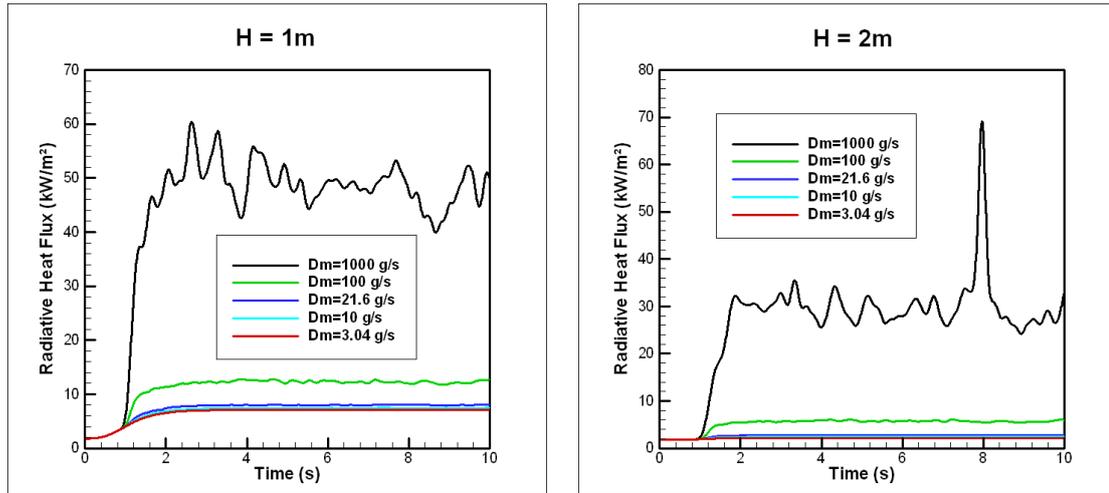


FIG. 8.3 – Influence du débit de gouttes \dot{m}_{Al} sur le flux radiatif émis par le feu de propergol en $H = 1$ m et $H = 2$ m ($T_{gouttes}^0 = 2182$ °C ; $\dot{m}_g'' = 2,31$ kg/m²/s)

feu de propergol, pour un débit de goutte de 1 kg/s, demeure bien plus sévère. La diffusion des gouttes d'oxyde d'aluminium dispersées dans le panache joue très certainement un rôle important sur cette augmentation significative des transferts radiatifs vers l'extérieur. Plus le débit de goutte est élevé, plus l'écoulement réactif est perturbé et plus la dispersion des gouttes d'Al/Al₂O₃ est efficace. Cependant la température chute également plus rapidement pour un débit de 1 kg/s (Fig.8.4). La naissance de grosses structures tourbillonnaires favorise le mélange avec l'air ambiant (Fig.8.5).

Autre paramètre lié à la composition initiale de propergol, le débit des gaz brûlés de combustion, représentés par un gaz équivalent, est également un paramètre qui peut influencer sur la structure de l'écoulement diphasique.

8.1.3 Sensibilité au débit de gaz équivalent \dot{m}_g''

Le débit de gaz équivalent \dot{m}_g'' , qui varie de 1,15 à 2,31 kg/m²/s, a vraisemblablement une influence sur la combustion des gouttes d'aluminium. Celles-ci ont un temps de séjour plus long dans l'écoulement oxydant et leur évaporation en est favorisée. L'énergie libérée ensuite par la réaction d'oxydation de l'aluminium gazeux est à l'origine de tourbillons créés peu après la surface de propergol. L'écoulement est donc d'autant plus perturbé que le débit de gaz équivalent est faible (Fig.8.6).

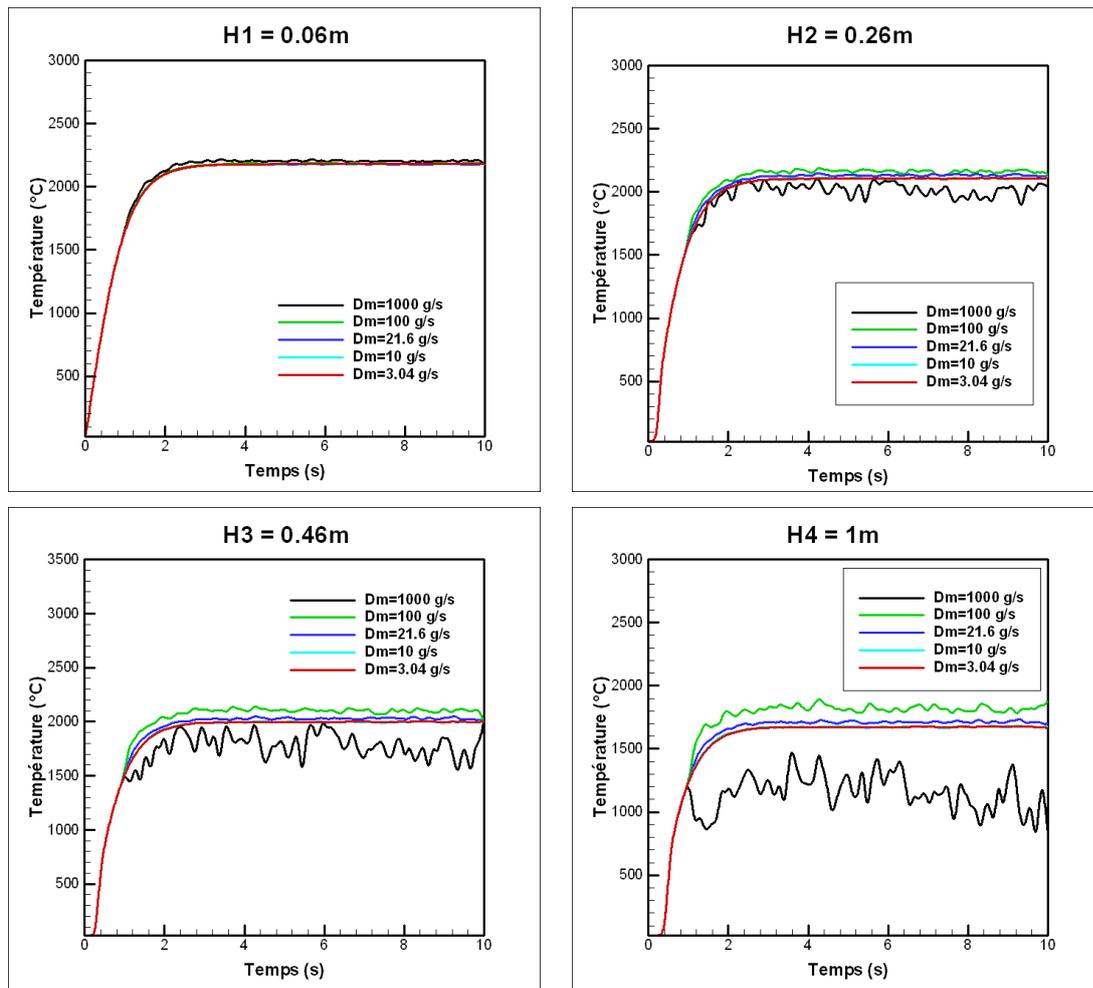


FIG. 8.4 – Influence du débit de gouttes \dot{m}_{Al} sur la température de l'écoulement ($T_{gouttes}^0 = 2182 \text{ °C}$; $\dot{m}_g'' = 2,31 \text{ kg/m}^2/\text{s}$)

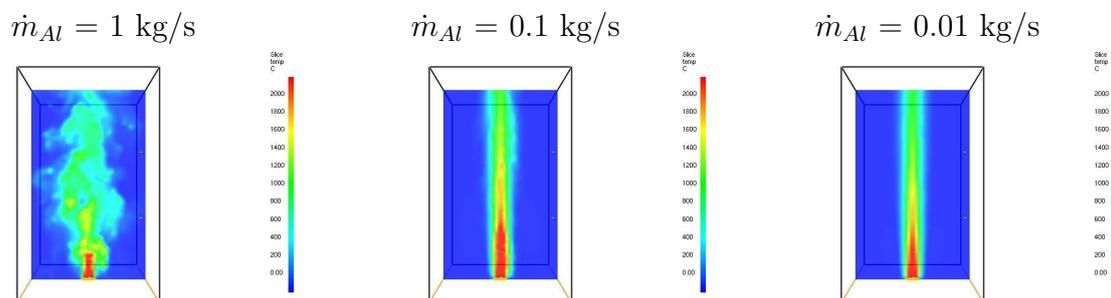


FIG. 8.5 – Influence du débit de gouttes \dot{m}_{Al} sur la structure de l'écoulement ($T_{gouttes}^0 = 2182 \text{ °C}$; $\dot{m}_g'' = 2,31 \text{ kg/m}^2/\text{s}$; $t = 5 \text{ s}$)

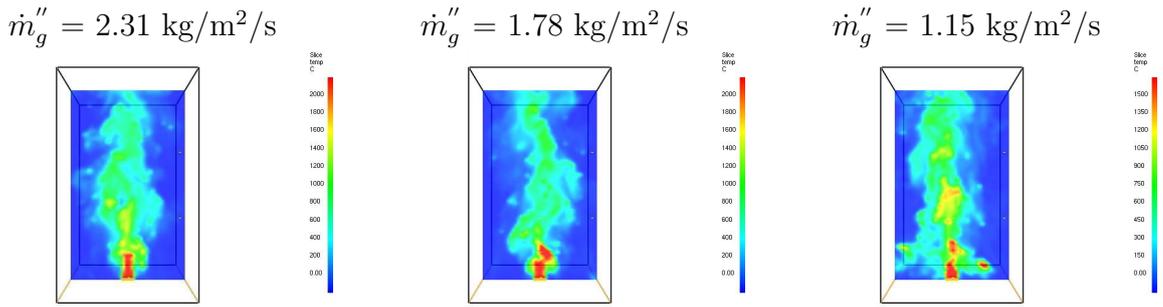


FIG. 8.6 – Influence du débit de gaz équivalent \dot{m}_g'' sur la structure de l'écoulement ($T_{gouttes}^0 = 2182 \text{ °C}$; $\dot{m}_{Al} = 1 \text{ kg/s}$; $t = 5 \text{ s}$)

Par conséquent, la zone de mélange entre le panache et l'air ambiant est bien plus grande pour des débits de gaz faibles et la température chute plus rapidement (Fig.8.7). Toutefois, les transferts radiatifs vers l'extérieur sont sensiblement indifférents à la vitesse des gaz de combustion. Seuls quelques pics, traduisant la combustion locale de gouttes individuelles, dispersées plus loin du panache, sont observés.

8.1.4 Sensibilité à la température initiale des gouttes $T_{gouttes}^0$

Si l'on suppose la température initiale des gouttes d'aluminium égale à la température adiabatique de flamme de propergol 2182 °C , le temps de chauffage des gouttes est donc nul et celles-ci s'évaporent dès leur injection dans le domaine. Dans ce cas, toutes les gouttes se vaporisent avant $0,50 \text{ m}$ au-dessus de la surface de propergol (Fig.8.8). Diminuer $T_{gouttes}^0$ a alors pour conséquence directe d'augmenter le temps de chauffage de la goutte. On trouve alors de l'aluminium gazeux en quantité non négligeable jusqu'à 1 m de hauteur (Fig.8.9), ce qui est plus représentatif de la réalité d'une combustion de gouttes d'Al à pression atmosphérique.

L'augmentation de la température initiale de gouttes $T_{gouttes}^0$ conduit plus rapidement à l'évaporation puis à la combustion des gouttes d'aluminium, dont la libération d'énergie modifie également la structure de l'écoulement. La naissance de structures tourbillonnaires est donc plus précoce à $T_{gouttes}^0 = 2182 \text{ °C}$ qu'à $T_{gouttes}^0 = 2000 \text{ °C}$ (Fig.8.10). Le mélange avec l'air ambiant est ainsi favorisé pour des valeurs de $T_{gouttes}^0$ élevées. Dans ce cas, la température décroît plus vite lorsqu'on s'élève dans le panache (Fig.8.11).

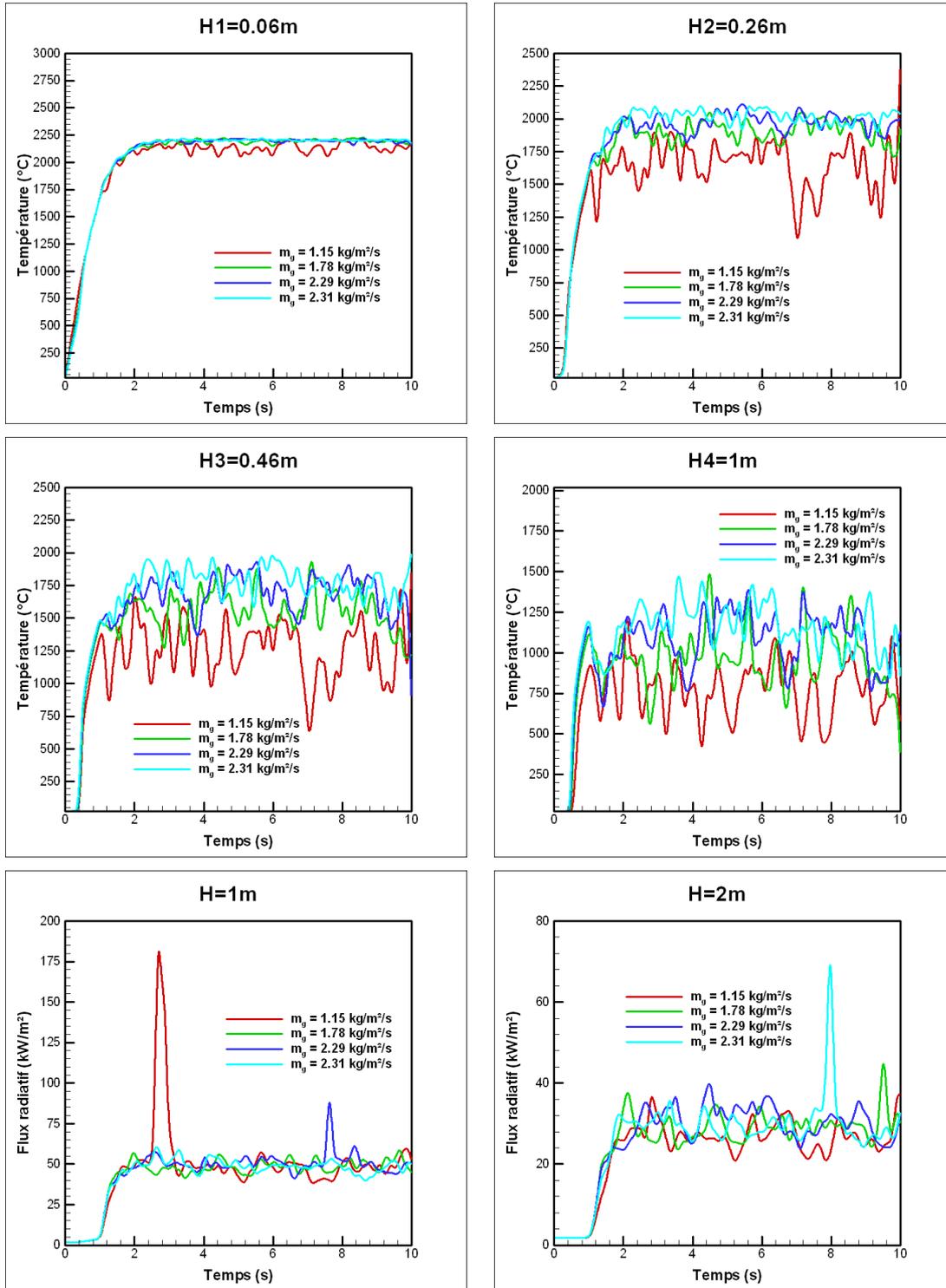


FIG. 8.7 – Influence du débit de gaz équivalent \dot{m}_g'' sur l'environnement thermique du feu ($T_{gouttes}^0 = 2182 \text{ °C}$; $\dot{m}_{Al} = 1 \text{ kg/s}$)

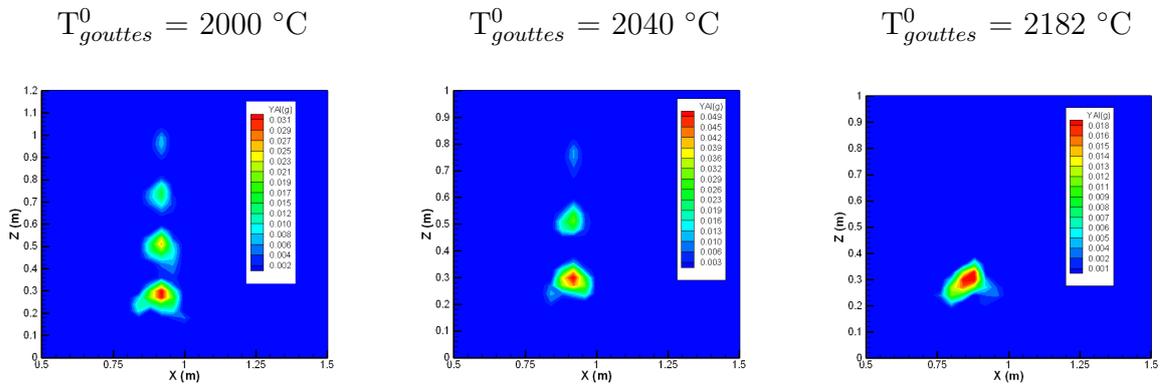


FIG. 8.8 – Influence de la température initiale des gouttes $T_{gouttes}^0$ sur l'évaporation des gouttes d'Al ($\dot{m}_g'' = 2,31 \text{ kg/s}$; $\dot{m}_{Al} = 1 \text{ kg/s}$; $t = 5 \text{ s}$)

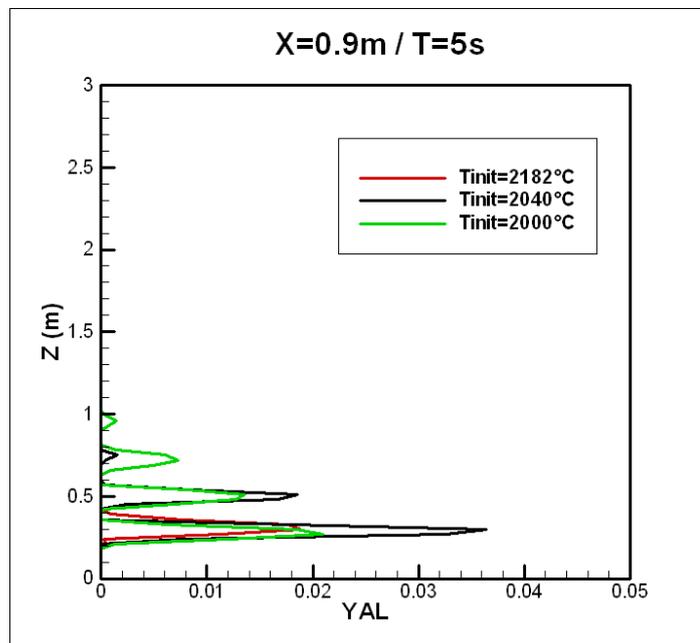


FIG. 8.9 – Influence de la température initiale des gouttes $T_{gouttes}^0$ sur la production d'aluminium gazeux ($\dot{m}_g'' = 2,31 \text{ kg/m}^2/\text{s}$; $\dot{m}_{Al} = 1 \text{ kg/s}$; $t = 5 \text{ s}$)

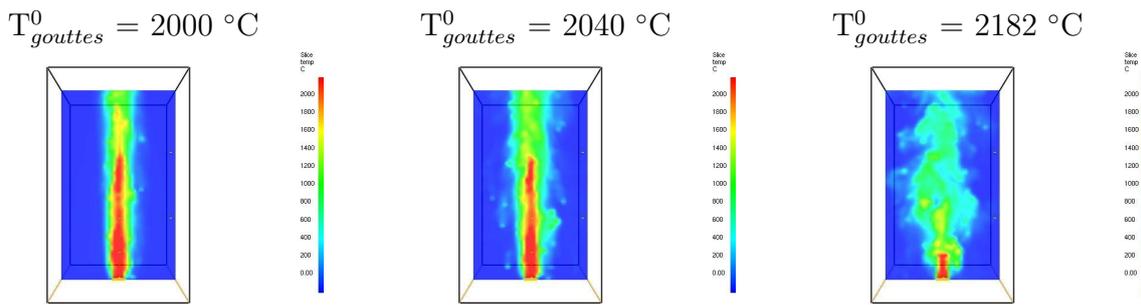


FIG. 8.10 – Influence de la température initiale $T_{gouttes}^0$ sur la structure de l'écoulement ($\dot{m}_g'' = 2.31 \text{ kg/m}^2/\text{s}$; $\dot{m}_{Al} = 1 \text{ kg/s}$; $t = 5 \text{ s}$)

8.1.5 Sensibilité au maillage

Le modèle est enfin sûrement dépendant de la taille de maille considérée. Par défaut, nous avons choisi un maillage uniforme et structuré (M_0) que nous allons comparer à deux autres maillages (M_1 et M_2), cette fois non uniformes, selon \vec{x} et \vec{y} pour le premier, et selon \vec{z} pour le second (Tab.8.3 et Fig.8.12). D'autre part, nous comparons les résultats obtenus pour la configuration CF1, avec ceux issus d'un calcul effectué sur un domaine beaucoup plus large, dont le maillage est équivalent à M_0 . Cette deuxième configuration sera nommée CF2.

	M0	M1	M2	M3
Δx (cm)	4.0	<4.0 ¹	4.0	4.0
Δy (cm)	4.0	<4.0 ²	4.0	4.0
Δz (cm)	3.0	3.0	<3.0 ³	3.0
X (m)	1.8	1.8	1.8	5.0
Y (m)	1.8	1.8	1.8	5.0
Z (m)	3.0	3.0	3.0	3.0
Nombre de mailles	45×45×100	45×45×100	45×45×100	125×125×100
Type de maillage	Uniforme	Non uniforme	Non uniforme	Uniforme

TAB. 8.3 – Définition des maillages testés au cours de l'étude

L'écart entre les températures calculées pour M_0 et M_1 reste très faible, tout au long du calcul, quelle que soit la hauteur considérée. Le fait de raffiner le maillage selon \vec{x} et \vec{y} , dans la zone de flamme, (au-dessus de la surface de propergol) ne modifie donc guère les

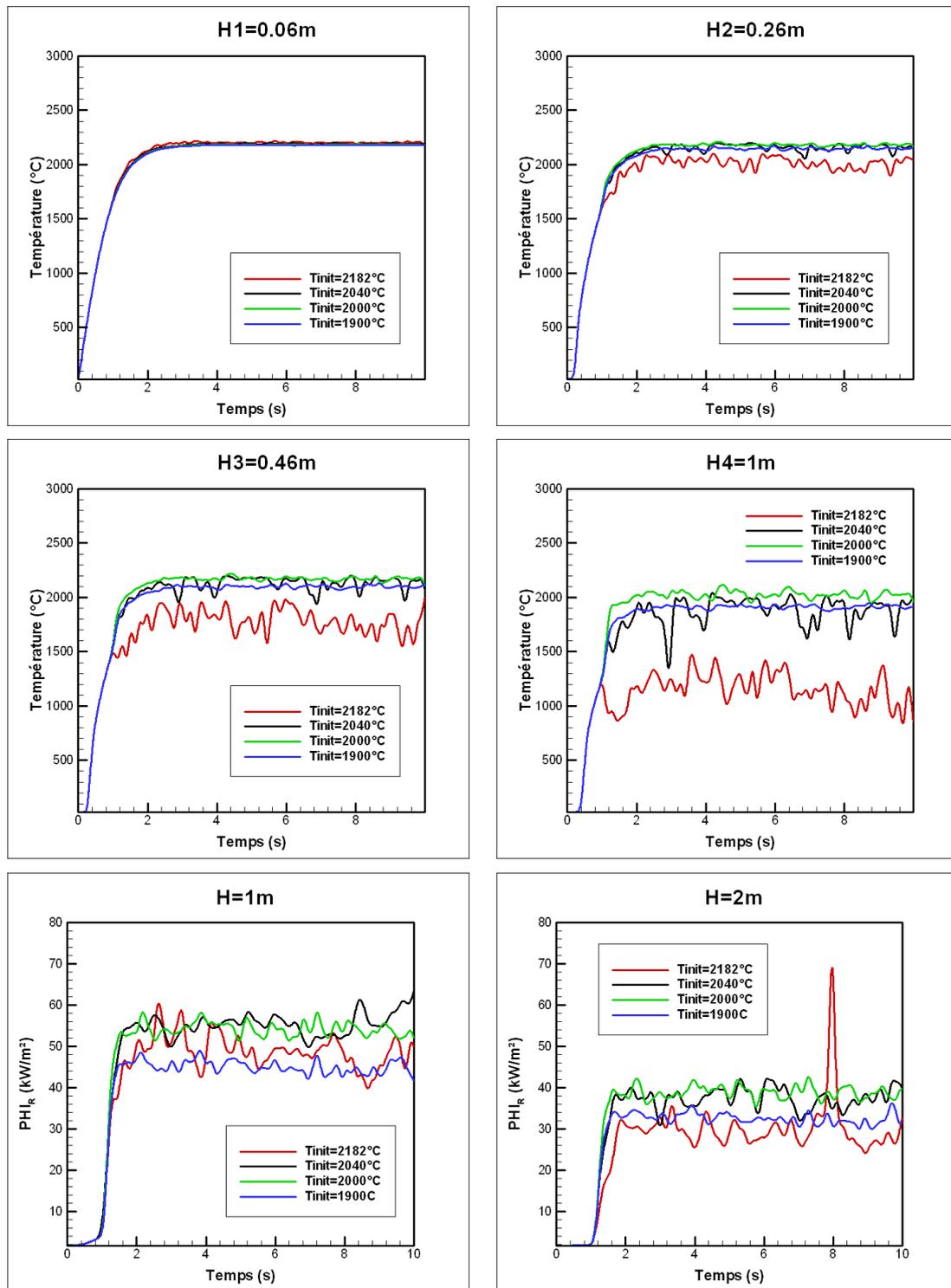


FIG. 8.11 – Influence de la température initiale des gouttes $T_{gouttes}^0$ sur l'environnement thermique du feu ($\dot{m}_g'' = 2.31 \text{ kg/m}^2/\text{s}$; $\dot{m}_{Al} = 1 \text{ kg/s}$)

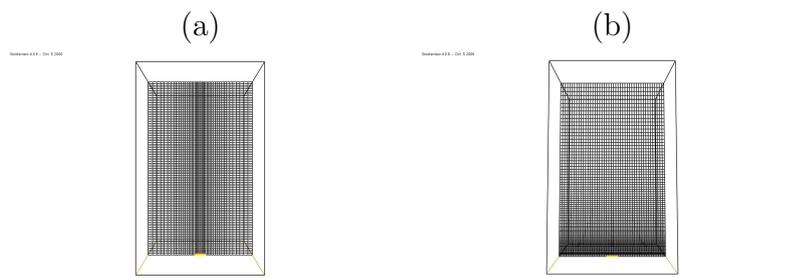


FIG. 8.12 – Visualisation des maillages non uniformes M1 (a) et M2 (b)

résultats (Fig. 8.13). Par contre, le maillage M_2 ne permet pas d’atteindre la convergence du modèle. Dès l’injection des gouttes, autour d’une seconde après l’allumage du bloc, le calcul diverge. Un maillage non uniforme selon \bar{z} , resserré dans la zone de flamme, semble être incompatible avec l’injection de gouttes dans la phase continue. De même, un autre calcul, non présenté dans ce mémoire, ne converge pas alors que la taille de maille Δz est de 1,5 cm, soit deux fois plus petite que celle de M_0 .

Pour la suite de l’étude, nous faisons donc le choix d’une taille de maille Δz de 3 cm. Celle-ci est suffisamment petite pour éviter une trop grande dispersion du calcul entre une maille et ses voisines, mais pas trop non plus afin de faire converger le modèle.

Par ailleurs, la comparaison entre M_0 et M_3 souligne l’influence non négligeable des dimensions du domaine sur le calcul de l’environnement thermique du feu de propergol aluminisé. En effet, alors que la résolution du maillage est la même, le flux radiatif échangé est bien moins élevé dans la configuration CF2. Dans ce cas, les frontières à flux nul, définies tout autour du feu, sont mieux adaptées puisqu’elles sont fixées plus loin de la source. De plus, l’écoulement est moins turbulent et les températures dans le feu sont par conséquent plus lisses et plus élevées.

8.1.6 Conclusion

En conclusion, cette étude de sensibilité a permis de voir comment réagit le modèle aux principaux paramètres intégrés lors de son développement. Elle a aussi montré l’influence non négligeable du domaine sur les résultats du calcul. Aussi, afin de pouvoir directement comparer les résultats calculés à ceux mesurés pendant les essais expérimentaux, nous décidons de travailler sur la configuration CF2, qui définit un domaine physique plus

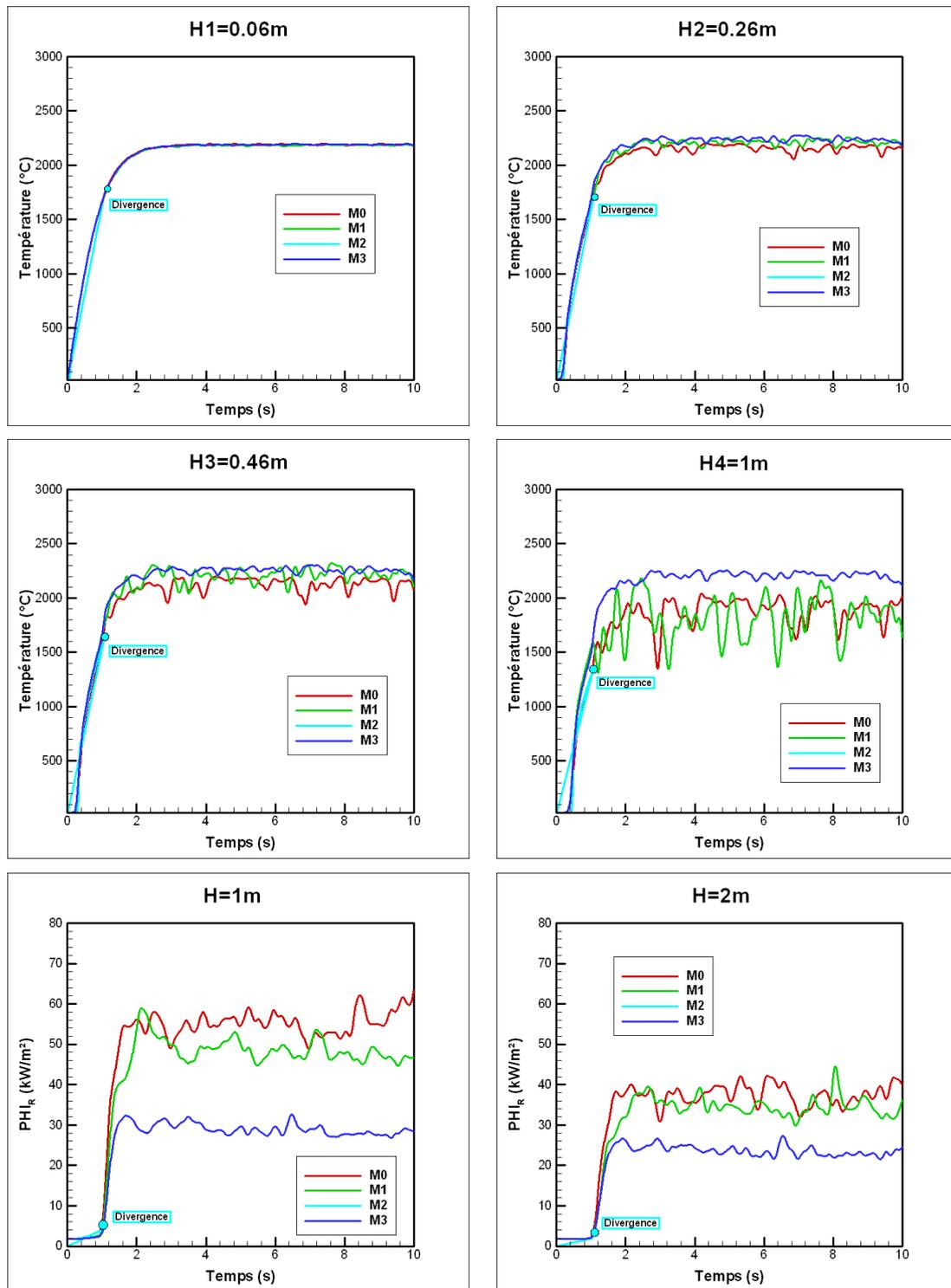


FIG. 8.13 – Influence du maillage sur l’environnement thermique du feu ($T_{gouttes}^0 = 2040$ °C; $\dot{m}_g'' = 2.31$ kg/m²/s; $\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s)

grand. Ainsi, la cartographie de flux radiatif effectuée lors des essais en champ libre, pour les compositions Butalane et Butalite, contient les données références auxquelles nous allons confronter les résultats de calcul. De plus, les mesures pyrométriques de température vraie seront également des données comparatives intéressantes et utiles pour la validation éventuelle de ce modèle.

8.2 Comparaison avec les résultats expérimentaux

8.2.1 Définition de la configuration des tests CF2

Nous considérons ici la configuration test CF2 définie par un domaine physique plus grand et dont les dimensions sont répertoriées Tab.8.4. Le maillage M_3 intégrant la

Dimensions	
X (m)	5.0
Y (m)	5.0
Z (m)	3.0
Taille d'une maille	
Δx (cm)	4.0
Δy (cm)	4.0
Δz (cm)	3.0
Nombre de mailles	125×125×100
Type de maillage	Structuré et uniforme

TAB. 8.4 – Définition du domaine de calcul CF2 / Maillage M_3

même taille de maille que M_0 , le temps CPU est par conséquent beaucoup plus long, allant jusqu'à près de 200 heures en moyenne, pour un temps physique de 10 s. Les frontières sont définies de la même façon qu'en configuration CF1 et le bloc de propergol est toujours représenté par un obstacle, d'épaisseur nulle, dont les faces latérales sont inertes et la face supérieure définie par la condition limite *Flamme de propergol* (Fig.8.14). On repère également les points (en jaune) où les évolutions du flux radiatif échangé et de la température du milieu seront calculées puis comparées aux mesures issues des essais.

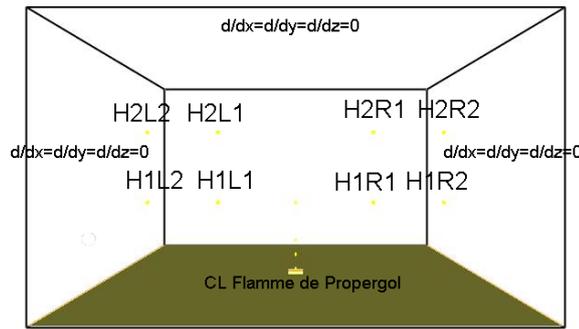


FIG. 8.14 – Domaine de calcul en configuration CF2 et points de mesures de l’environnement thermique du feu

8.2.2 Comparaison pour une Butalane

L’étude paramétrique précédente a montré que les débits de gouttes d’aluminium \dot{m}_{Al} et de gaz de propergol \dot{m}_g'' influent beaucoup sur le résultat final, notamment sur la structure de l’écoulement. Ces deux paramètres dépendent directement de la composition du propergol considérée et peuvent donc être utilisés comme données d’entrée. A partir des caractéristiques, que l’on a calculées ou mesurées pour les compositions Butalane et Butalite, leurs valeurs sont répertoriées dans le Tableau 8.5. D’autre part, afin de calculer

	Butalane	Butalite
\dot{m}_g'' (kg/m ² /s)	2.31	1.78
\dot{m}_{Al} (kg/s)	2.16E-2	3.04E-3

TAB. 8.5 – Débits associés à la composition de propergol considérée

la combustion des gouttes d’aluminium dans les premiers centimètres au-dessus de la surface de propergol, nous fixons la température initiale des gouttes $T_{gouttes}^0$ à 2182°C.

Butalane (20%Al / $\dot{m}_{Al} = 2.16E-2$ kg/s)

Tout d’abord, une comparaison directe avec les résultats expérimentaux montre que les niveaux de température calculés sont très voisins de ceux mesurés expérimentalement (Fig.8.15). La définition de la condition limite *Flamme de propergol*, pour représenter la combustion d’un propergol PA/PBHT en surface de bloc, donne des résultats en

température plutôt cohérents. Toutefois, le modèle proposé sous-estime fortement le flux

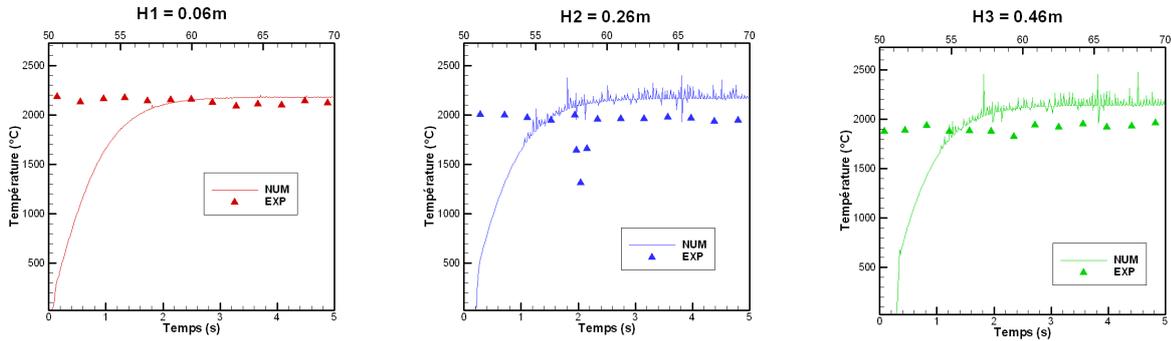


FIG. 8.15 – Comparaison des températures calculées et mesurées en trois hauteurs H_1 , H_2 et H_3 , au coeur du feu de Butalane

radiatif échangé avec l'environnement (Fig.8.16). La valeur du débit de gouttes considéré est pourtant calculé à partir de la composition du propergol et de la vitesse de combustion mesurée lors des essais. Il prend donc en compte les caractéristiques de la Butalane et s'approche des valeurs trouvées dans la littérature, pour des propergols similaires [64].

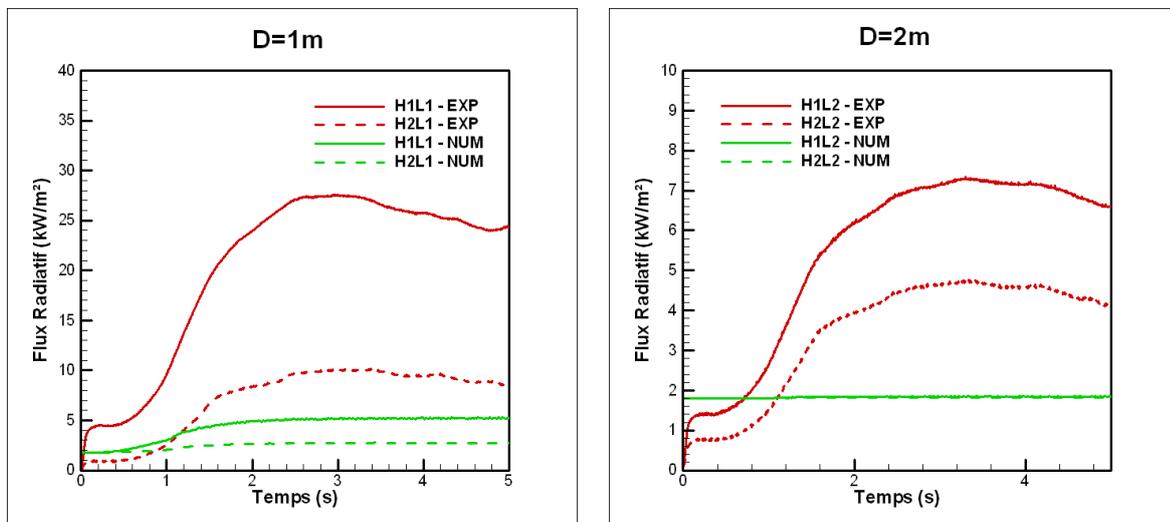


FIG. 8.16 – Comparaison des flux radiatifs calculés et mesurés à $D = 1$ m et $D = 2$ m autour du feu de Butalane ($\dot{m}_{Al} = 2.16E-2$ kg/s)

En fait, l'énergie libérée par la combustion de gouttes n'est pas suffisamment élevée car la flamme ne peut s'établir qu'en quelques points. Trop peu d'aluminium gazeux s'évapore dans chaque volume de maille pour réagir avec l'oxygène ambiant. Par conséquent, la structure de l'écoulement reste très peu perturbée et les gouttes ne se dispersent pas

de part et d'autre du bloc (Fig.8.17). La température et les flux radiatifs échangés avec l'extérieur chutent alors dramatiquement lorsqu'on s'éloigne de la source.

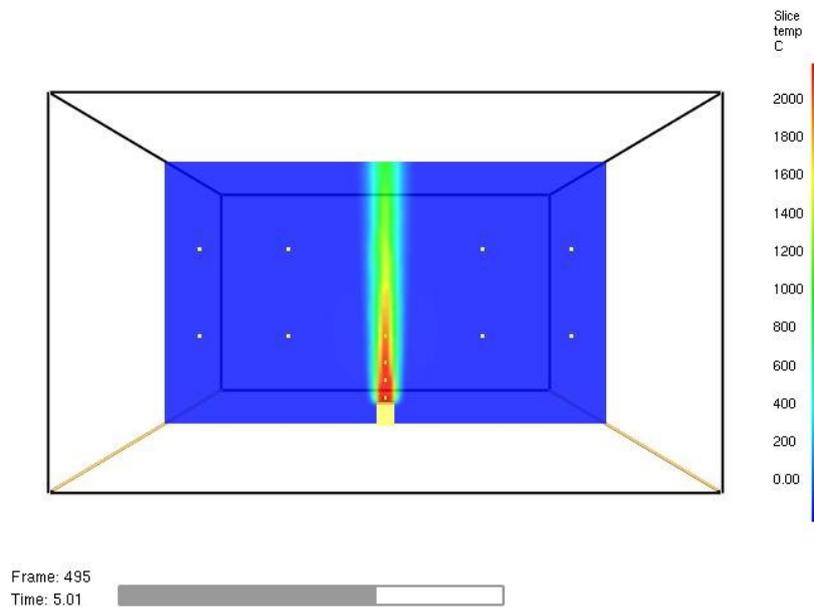


FIG. 8.17 – Structure de l'écoulement d'un feu de Butalane modélisé avec $\dot{m}_{Al} = 2.16E-2$ kg/s

Une solution, pour résoudre ce problème numérique, serait alors de diminuer la taille de maille mais cela nous donnerait des temps de calcul prohibitifs. Une autre approche, plus pragmatique, serait de se servir du débit de gouttes d'aluminium comme paramètre de recalage. Il n'aurait alors plus aucun sens physique mais permettrait d'obtenir des valeurs en flux et température plus cohérentes. Plusieurs valeurs de \dot{m}_{Al} ont été testées et nous présentons, dans le paragraphe suivant, les résultats obtenus pour une valeur de débit de gouttes, pour laquelle l'accord avec l'expérience est plutôt bon.

Butalane (20%Al / $\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s)

En usant de cet artifice de calcul, nous retrouvons cette-fois des valeurs de flux beaucoup plus cohérentes et de l'ordre de celles mesurées expérimentalement (Fig.8.18). Dans ce cas, la prédiction du flux radiatif échangé est bonne, particulièrement à $H = 1$ m du feu, et ce même à 2 m de distance de la surface de propergol. La température au coeur du feu est aussi correctement prédite et l'on retrouve les effets de la perturbation de l'écoulement sur les valeurs calculées en H_2 et H_3 (Fig.8.19). La combustion puis la

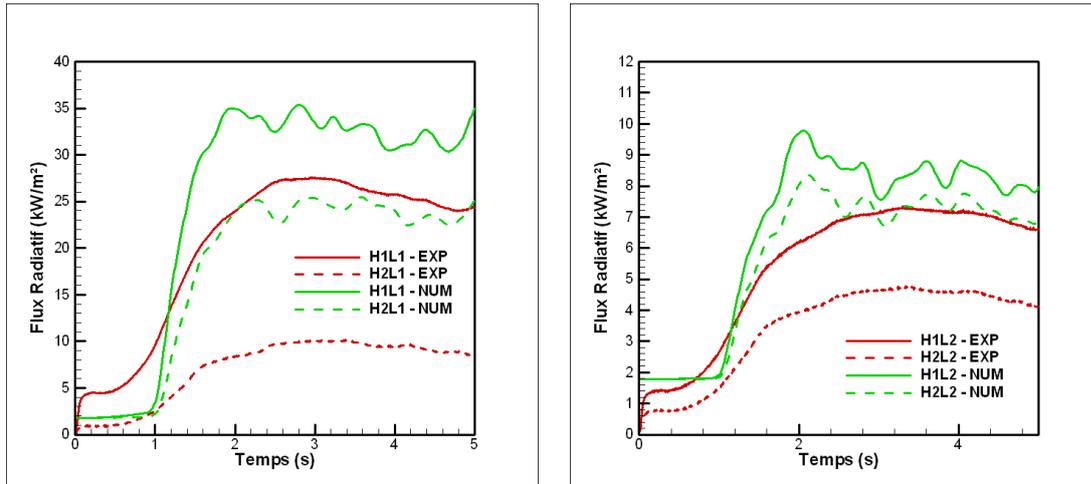


FIG. 8.18 – Comparaison des flux radiatifs calculés et mesurés à $D = 1$ m et $D = 2$ m autour du feu de Butalane ($\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s)

dispersion des gouttes dans le panache est ici bien plus efficace. La chaleur dégagée par le feu est de plus d'un ordre de grandeur supérieure à celle libérée dans le cas précédent (10^4 kW/m³ contre moins de 10^3 kW/m³). Par conséquent, l'écoulement est bien plus perturbé et les transferts de chaleur vers l'environnement sont favorisés (Fig.8.20), à tel point que le modèle a tendance à surestimer les flux radiatifs à 2 m au-dessus de la surface de propergol.

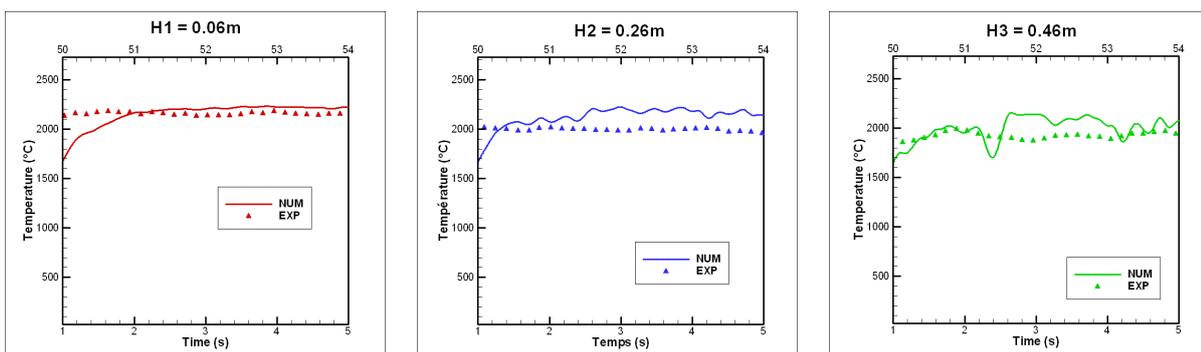


FIG. 8.19 – Comparaison des températures calculées et mesurées en trois hauteurs H_1 , H_2 et H_3 , au coeur du feu de Butalane ($\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s)

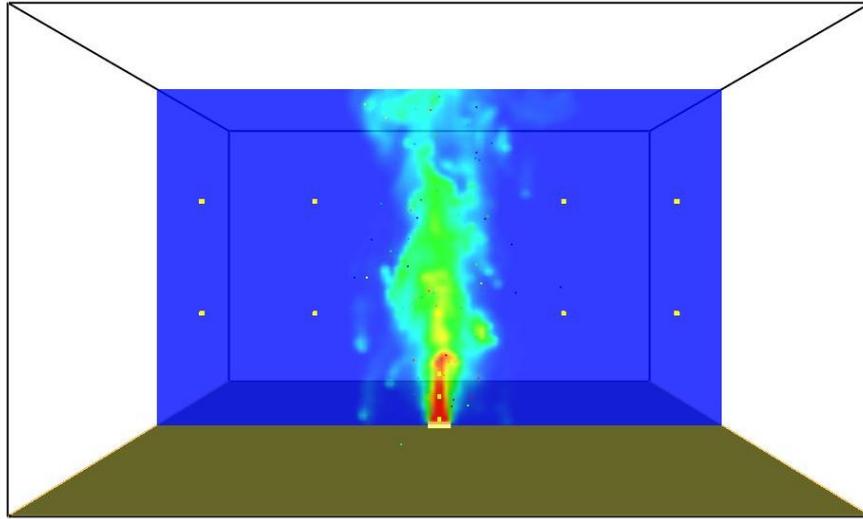


FIG. 8.20 – Structure de l'écoulement d'un feu de Butalane modélisé avec $\dot{m}_{Al} = 1$ kg/s

8.2.3 Conclusions

Finalement, si l'on considère le débit de gouttes d'aluminium comme un paramètre de calcul et non comme une donnée du problème, on obtient des résultats, certes quelque peu majorants, mais très voisins des données expérimentales. Ainsi, le jeu de paramètre optimal à utiliser pour simuler les effets thermiques d'un feu de propergol est présenté Tableau 8.6. Néanmoins, l'utilisation de cet artifice de calcul met en évidence les limites

Débit du gaz équivalent \dot{m}_g'' (kg/m ² /s)	2,31
Débit des gouttes \dot{m}_{Al} (kg/s)	1
Température initiale T_{Al}^0 (°C)	2182
Maillage	M ₀

TAB. 8.6 – Jeu de paramètre optimal pour modéliser un feu de Butalane

de ce modèle, limites que nous précisons ci-après.

8.3 Limites du modèle

Beaucoup de paramètres ont été introduits dans ce modèle afin de prendre en compte un maximum de phénomènes. Finalement, ceci s'avère être pénalisant puisqu'il est difficile

de mettre en évidence la sensibilité de tous les paramètres introduits.

D'autre part, chaque modèle pris séparément se base sur des hypothèses, parfois très fortes, qui ne sont valables que dans des cas limités. Par exemple, le modèle de combustion de goutte suppose un régime de flamme laminaire, purement gazeuse, et introduit la fraction de mélange Z comme nouvelle variable. Cela nécessite alors de considérer des tailles de maille suffisamment petites pour qu'il y ait réaction entre l'aluminium gazeux et l'oxygène. De plus, un tel modèle de combustion nous impose de travailler avec un gaz équivalent et non avec une composition détaillée de gaz de propergol. Par conséquent, le rayonnement des gaz est calculé de façon approchée. Le rôle des espèces telles que CO , CO_2 ou même HCl dans les transferts radiatifs est ainsi fortement sous-estimé.

Enfin, compte tenu des dimensions du domaine étudié et de la nature du feu de propergol, l'intégration d'un modèle de turbulence de type LES, couplé à un modèle de combustion diphasique, pourrait également être envisagée.

Conclusions et Perspectives

La première partie, consacrée notamment à la combustion du propergol PA/PBHT/Al au niveau microscopique, nous a permis de mieux définir les hypothèses nécessaires au cadre de ce mémoire. A pression atmosphérique, la combustion des gouttes d'aluminium se produit jusqu'à près d'un mètre au-dessus de la surface de propergol (pour les plus grosses) et ne se limite pas à la surface, comme ce peut être le cas à pression plus élevée. Ainsi, nous avons pris en compte la combustion des gouttes d'aluminium dans la modélisation. L'agglomération de celles-ci en surface de propergol est également favorisée, ce qui a pour effet de modifier la distribution de taille des gouttes éjectées. Nous avons donc choisi un diamètre moyen de goutte égal à $200\ \mu\text{m}$, du même ordre de grandeur que celui observé récemment par Parr et al. [64]. Avant de brûler, les gouttes d'aluminium sont recouvertes d'une fine pellicule d'alumine solide, ce qui nous a conduit à prendre les mêmes propriétés radiatives pour les gouttes d'Al liquide que pour les particules d' Al_2O_3 solide. De même, l'allumage des gouttes d'Al ayant lieu dès que la pellicule d' Al_2O_3 se liquéfie, la température d'évaporation des gouttes a été prise égale à la température de fusion de l'alumine.

Cette première partie a également présenté les précédents travaux menés sur les feux de propergol aluminisé, pour finalement montrer que peu de données ont été, jusqu'à présent, publiées sur le sujet. C'est pourquoi, l'étude expérimentale a été menée, dans le but de fournir des données supplémentaires sur le rayonnement d'un feu de propergol. La comparaison entre deux compositions, l'une hautement chargée en aluminium, l'autre plus faiblement, a montré le rôle prépondérant que les gouttes d'Al/ Al_2O_3 jouent sur les transferts de chaleur entre le feu et l'environnement. D'autre part, les mesures de

température vraie et de flux radiatif nous ont ensuite servi de données comparatives pour le développement d'un modèle numérique.

En effet, l'objectif final de cette étude est de simuler les effets thermiques d'un feu de propergol à pression atmosphérique. Pour ce faire, il a été nécessaire de modifier un code existant de simulation d'incendie afin de prendre en compte les phénomènes physiques évoqués en parties 1 et 2, moyennant certaines hypothèses. Les propriétés optiques des particules d'alumine ont été tabulées en fonction de la longueur d'onde en utilisant le modèle de Dombrovsky [110], ce qui a permis de calculer le rayonnement des gouttelettes. La combustion de l'aluminium gazeux produit par l'évaporation des gouttes a également été implémentée. Puis, compte tenu de la taille du domaine à considérer, on a supposé que la combustion du propergol a lieu à la surface du bloc et ainsi on a défini une condition limite *Flamme de propergol*. On a alors tenu compte du chargement du propergol en aluminium par l'injection des gouttes d'Al dans le milieu gazeux.

Une étude de sensibilité a permis de dégager les paramètres les plus influents sur les résultats du modèle. Le débit de goutte d'aluminium, qui dépend initialement de la composition du propergol, a une très grande influence sur l'environnement thermique du feu. En effet, pour des débits élevés, les flux radiatifs échangés avec l'extérieur sont de l'ordre de ceux mesurés expérimentalement. Par contre, dès que le débit correspond à celui calculé pour un chargement réel (Butalane, Butalite), la chaleur dégagée par la combustion de gouttes devient très faible et les transferts de chaleur vers l'environnement chutent. Etant donnée la faible résolution du maillage par rapport à la taille des gouttes, l'aluminium gazeux, produit par l'évaporation des gouttes, est tellement dilué dans chaque volume élémentaire qu'il ne réagit pas avec l'oxygène. Une solution est alors de considérer le débit de gouttes comme un paramètre utilisé pour recalibrer le modèle. Cet artifice de calcul nous amène à opter, dans le cas d'un feu de Butalane, pour le jeu de paramètre suivant :

- Débit du gaz équivalent : $\dot{m}_g'' = 2,31 \text{ kg/m}^2/\text{s}$
- Débit des gouttes : $\dot{m}_{Al} = 1 \text{ kg/s}$
- Température initiale des gouttes : $T_0^{Al} = 2182 \text{ °C}$

Les résultats obtenus sont certes quelque peu majorants sur le flux radiatif échangé, ils n'en restent pas moins prometteurs, compte tenu des simplifications effectuées. Plusieurs pistes sont alors envisageables pour améliorer le modèle. Tout d'abord, il semble primordial de calculer plus finement le rayonnement des gaz de propergol, jusque-là assimilés à un gaz équivalent. Le rayonnement des espèces telles que CO, CO₂ et HCl doit être calculé car il est loin d'être négligeable dans le cas d'un propergol solide faiblement aluminisé (Butalite).

D'autre part, la combustion de goutte est calculée à partir d'un modèle de fraction de mélange et reste trop dépendante de la résolution du maillage. Une solution envisageable serait d'implémenter directement une loi de combustion de goutte en d^2 comme celles présentées dans la partie 1. Une autre consisterait à modéliser la combustion diphasique dans un écoulement turbulent, en couplant, cette fois-ci, les phénomènes de combustion et de turbulence. Une équation de variance de sous-maille pourrait ainsi être ajoutée, de même qu'un modèle de sous-maille plus performant.

D'autres aspects pourraient également être sources d'amélioration (modèle 1D de pyrolyse ou de combustion de propergol par exemple). Cependant, l'objectif principal est d'appliquer ce modèle de feu de propergol aluminisé à la simulation d'un scénario de défaillance type. Il sera donc nécessaire de hiérarchiser les modifications à apporter par ordre de priorité afin de ne pas être trop pénalisé par le temps de calcul.

En conclusion, le déroulement du scénario référence, dans un bâtiment d'assemblage, peut alors être simulé en utilisant le code FDS dans sa version initiale, pour la première étape, puis en version modifiée pour la dernière :

1. Incendie accidentel se propageant dans le bâtiment d'assemblage (Feu classique) (FDS version initiale)
2. Environnement thermique calculé autour du propulseur \Rightarrow Donnée d'entrée (en flux) pour le calcul des transferts thermiques à l'intérieur du propulseur (\Rightarrow instant de l'événement pyrotechnique t_{pyro})
3. Eclatement pneumatique du propulseur à partir de $t_{pyro} \Rightarrow$ Fragmentation du pro-

pergol en plusieurs blocs dispersés dans le bâtiment

4. Effets thermiques de la combustion des blocs dispersés de propergol solide aluminisé (Feu de de propergol) (FDS version modifiée)

ANNEXE A

Préparation des Essais Champ Libre

Détermination de la gamme des fluxmètres

Afin de choisir les fluxmètres dont les plages de fonctionnement sont les mieux adaptées, nous allons estimer le flux radiatif reçu par lesdits capteurs. Nous décrivons la flamme comme deux zones cylindriques de températures et d'émissivités différentes puis nous calculons les facteurs de forme entre chaque cylindre et la surface élémentaire de mesure.

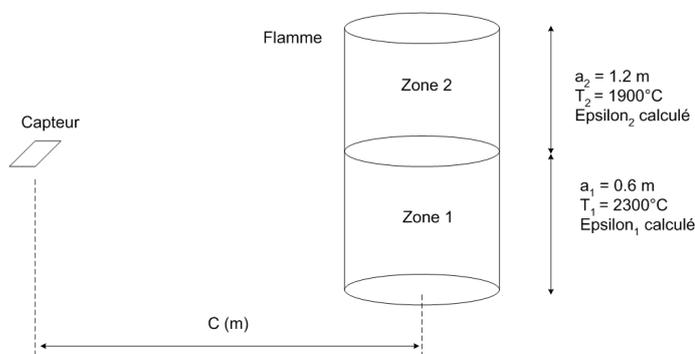


FIG. 21 – Représentation schématique de la flamme de propergol

Schématisation de la flamme de propergol et de son panache à 1 atm

La zone 1, ou zone chaude, fait 60 cm de hauteur et a une température moyenne de 2300°C, tandis que la zone 2, ou zone de mélange avec l'air ambiant, a une hauteur estimée à 1,2 m et une température moyenne de 1900°C (Fig.21). Notons que ces estimations sont effectuées à partir d'essais menés par le CAEPE et par le Lawrence Livermore National

Laboratory [17]. Enfin, nous simplifions le spectre d'émission monochromatique de la flamme en deux parties distinctes :

- pour $\lambda \in [0 ; 1]$ l'émissivité de la flamme $\epsilon = 0,1$
- pour $\lambda \in [1 ; 8]$ l'émissivité de la flamme $\epsilon = 0,8$

Ainsi, nous pouvons déduire les émissivités totales de chaque zone en partant de la définition suivante :

$$\epsilon(T_1) = \frac{\int_0^\infty \epsilon_{\lambda, T_1} L_{\lambda, T_1}^0 d\lambda}{\int_0^\infty L_{\lambda, T_1}^0 d\lambda} = \frac{\int_0^{\lambda_1} \epsilon_{\lambda, T_1} L_{\lambda, T_1}^0 d\lambda + \int_{\lambda_1}^\infty \epsilon_{\lambda, T_1} L_{\lambda, T_1}^0 d\lambda}{\int_0^\infty L_{\lambda, T_1}^0 d\lambda} \quad (1)$$

soit, d'après la Fig.22 :

$$\epsilon(T_1) = 0,1 \cdot F_{0-\lambda_1 T_1} + 0,8 \cdot (1 - F_{0-\lambda_1 T_1}) \quad (2)$$

$F_{0-\lambda_1 T_1}$ est la fraction spectrale d'émission d'un corps noir entre 0 et $\lambda_1 = 1 \mu\text{m}$ et est obtenue à partir des tables.

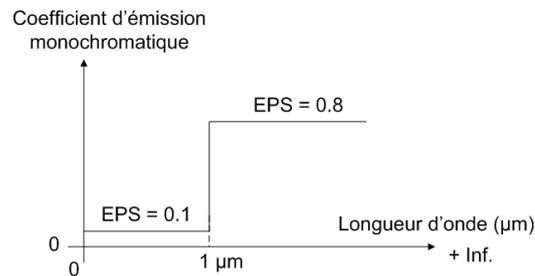


FIG. 22 – Facteur d'émission monochromatique de la flamme

De même, on obtient à la température T_2 :

$$\epsilon(T_2) = 0,1 \cdot F_{0-\lambda_1 T_2} + 0,8 \cdot (1 - F_{0-\lambda_1 T_2}) \quad (3)$$

Après calculs, les émissivités totales de chaque zone sont les suivantes : $\epsilon_1 = 0,67$ et $\epsilon_2 = 0,73$. On peut alors estimer le flux rayonné par la flamme et reçu par le capteur :

$$Q_{\text{flamme} \rightarrow \text{capteur}} = Q_{Z_1 \rightarrow \text{capteur}} + Q_{Z_2 \rightarrow \text{capteur}} \quad (4)$$

$$= F_{1C} S_1 \epsilon_1 \sigma T_1^4 + F_{2C} S_2 \epsilon_2 \sigma T_2^4 \quad (5)$$

ou encore, ayant $S_i F_{ij} = S_j F_{ji}$

$$Q_{flamme \rightarrow capteur} = F_{C1} S_C \epsilon_1 \sigma T_1^4 + F_{C2} S_C \epsilon_2 \sigma T_2^4 \quad (6)$$

$$\frac{Q_{flamme \rightarrow capteur}}{S_C} = F_{C1} \epsilon_1 \sigma T_1^4 + F_{C2} \epsilon_2 \sigma T_2^4 \quad (W/cm^2) \quad (7)$$

où F_{C1} et F_{C2} sont les facteurs de forme traduisant la fraction de flux rayonné par le capteur vers chaque cylindre.

Calcul des facteurs de forme F_{Ci}

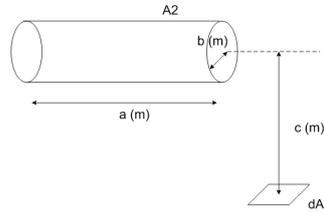


FIG. 23 – Configuration académique utilisée pour le calcul des facteurs de forme

D'après la configuration décrite Fig.23, le facteur de forme entre la surface élémentaire $dA1$ et le cylindre $A2$ s'écrit :

$$F_{dA1-A2} = \frac{1}{Y\pi} \tan^{-1} \left(\frac{X}{\sqrt{Y^2 - 1}} \right) + \frac{X}{\pi} \left\{ \frac{A - 2Y}{Y\sqrt{AB}} \tan^{-1} \left[\sqrt{\frac{A(Y-1)}{B(Y+1)}} \right] - \frac{1}{Y} \tan^{-1} \left[\sqrt{\frac{Y-1}{Y+1}} \right] \right\} \quad (8)$$

avec $X = a/b$ $Y = c/b$ $A = (1+Y)^2 + X^2$ $B = (1-Y)^2 + X^2$ a , b et c étant respectivement la longueur, le rayon du cylindre et la distance entre la surface élémentaire et le cylindre.

Le calcul des facteurs de forme entre les deux zones cylindriques et le capteur est effectué pour différentes distances flamme-capteur et répertorié dans le Tableau 7.

Estimation du flux rayonné par la source chaude

A partir des calculs précédents, on peut déduire le flux radiatif reçu par le capteur, à

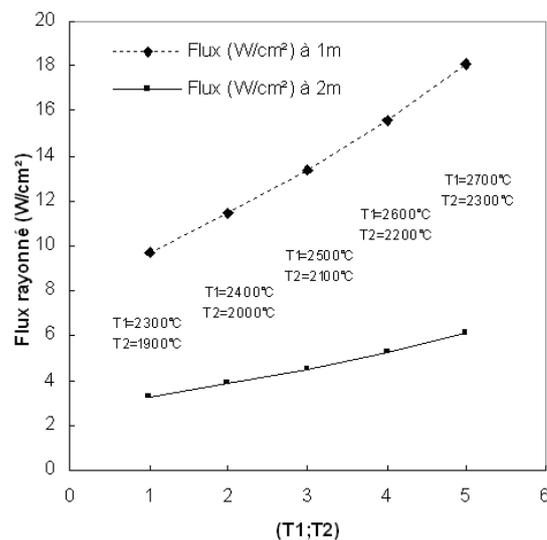
c (m)	0,2	1	2	3	5
Zone 1	0,270	0,033	0,010	0,005	0,002
Zone 2	0,271	0,046	0,017	0,009	0,003

TAB. 7 – Facteurs de forme Flamme-Capteur

c (m)	0,2	1	2	3	5
Flux radiatif zone 1 (W/cm ²)	45,3	5,46	1,68	0,78	0,29
Flux radiatif zone 2 (W/cm ²)	25,1	4,24	1,60	0,81	0,32
Flux radiatif total (W/cm ²)	70,4	9,70	3,28	1,59	0,61

TAB. 8 – Flux radiatif reçu par le capteur pour $[T_1, T_2] = [2300^\circ\text{C}, 1900^\circ\text{C}]$

différentes distances de la source chaude (Tab.8). Ainsi, le flux radiatif maximum reçu par le capteur, dans le cadre de nos essais (mesures à 1 et 2 m), s'élève à **9,70 W/cm²**. En outre, la Figure 24 nous montre l'influence des températures de zone sur les valeurs de flux rayonné. En surestimant ce couple de température, on atteint une valeur maximale de **18 W/cm²**. Pour ces huit fluxmètres, **une gamme 10-20 W/cm²** (niveau attendu/niveau maximum) paraît donc appropriée.

FIG. 24 – Variations du flux rayonné en fonction des températures de zone T_1 et T_2

D'autre part, il nous faut tenir compte de l'utilisation de réducteur de vue dans le cas de deux fluxmètres. Le niveau de sortie électrique sera alors considérablement réduit.

Ainsi, pour un flux maximum attendu de $9,70 \text{ W/cm}^2$, avec un réducteur de vue de 30° (sensibilité réduite à 6,6%) et un niveau de sortie souhaité à 8 mV, le flux minimum, à 1 m, attendu sera de l'ordre de :

$$F_{min} = (9,70/8) \cdot (8 \cdot 0,066) = 0,64 \text{ W/cm}^2 \quad (9)$$

Faisant le choix d'un réducteur de vue de 30° , dans le but de pointer plus précisément sur deux zones de la flamme, on devra opter pour une gamme 1-2 W/cm^2 pour ces deux fluxmètres. Enfin, les fluxmètres d'angle de vue de 30° seront disposés à 1 m à côté du bloc de propergol et à 0,30 m et 1,50 m de hauteur afin de mesurer le flux radiatif issu de chaque zone de flamme.

Collage du capteur Ultrasonore

Le mode opératoire de collage du capteur US peut se décrire de la façon suivante. Dans un premier temps, il s'agit de préparer les surfaces de collage, c'est à dire de nettoyer et de mettre la structure métallique ou composite à nue.

Puis, la phase de repérage, effectuée à l'aide de la valise de contrôle, du capteur et de gel couplant, doit permettre de trouver le meilleur écho de mesure (enregistrement 1). Dans notre cas (collage sur un bloc de propergol composite), cette étape est immédiate, ce qui est loin d'être le cas lors du collage de ce type de capteur sur des propulseurs.

Une troisième étape, dite de présentation avant collage, consiste à présenter l'ensemble capteur + cale avec du gel couplant sur la position de collage. Elle permet d'optimiser la valeur du gain afin d'avoir un signal utile à 80% de la dynamique (enregistrement 2) et de figer la position de l'outillage mécanique.

Une fois ces trois étapes passées, le collage du capteur s'effectue comme suit :

- nettoyage de la surface de collage
- application de la colle sur la surface active du capteur et sur la surface de collage préparée (temps de séchage demandé : 20 min)
- collage de l'ensemble (cale + capteur) en verrouillant l'outillage mécanique
- polymérisation à 20°C pendant 48 heures
- après polymérisation, enregistrement 3 avec possibilité éventuelle de réadapter le gain.

L'ensemble spécimen + capteur collé est amené au banc puis l'enregistrement 4 est réalisé, avec, également, possibilité de réadapter le gain (Fig.25). Enfin, un plan récapitulatif des relevés curvilignes du positionnement de chaque capteur notamment sera inséré dans le cahier de banc. Un plan sans cote sera fourni à l'équipe d'essai intervenante.

Il est à noter qu'avant chaque essai, la vérification du bon fonctionnement de l'ensemble du système d'acquisition (conditionneur + baies) lié au capteur ultrasonore est réalisée sur un matériau test, autre que le spécimen pyrotechnique étudié, dont on connaît les propriétés physico-chimiques.

Étalonnage des Caméras IR

Les deux caméras IR, AGA 782 Bande II et Bande III, ont été étalonnées sur une source étendue PYROX, de diamètre 110 mm et avec une émissivité de 0,99, équivalente à un corps noir. Les résultats de l'étalonnage en température (Fig.26) et en luminance (Fig.27) sont présentés ci-dessous et décrivent une loi de variation polynomiale d'ordre 2 de la température (ou de la luminance) en fonction du signal mesuré en Volt. Pour chaque caméra et pour chaque étalonnage, les coefficients A, B, C ont été déterminés.

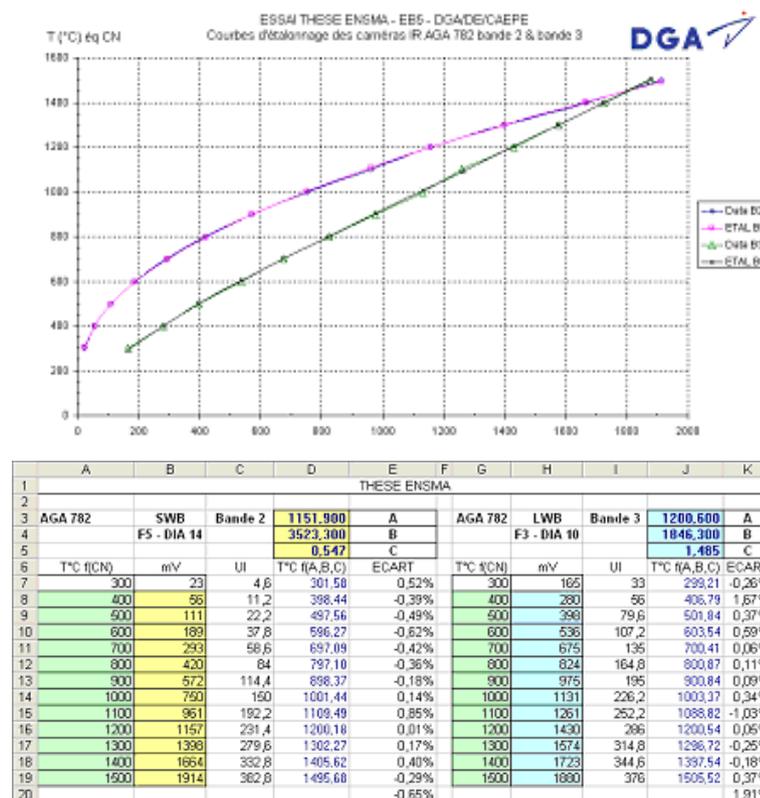


FIG. 26 – Etalonnage en température des caméras IR (bandes II et III)

La conversion du signal mesuré brut en Volt en Température Equivalent Corps Noir se fait comme suit :

1. Conversion niveau Volt \triangleright UI (Unité Isothermique)

$$- UI = \frac{V \cdot UIa}{\epsilon \cdot \tau_{atmosph}}$$

$$- UIa (Cte) = f(\text{caméra}) = 200$$

– avec $\epsilon=1$ et $\tau_{atmosph}=1$

2. Conversion UI ▷ Température (°C) avec coefficients en A,B,C

$$- T_{ECN} = \frac{B}{\ln\left(\frac{1+A/UI}{C}\right)} - 273,15 \quad (°C)$$

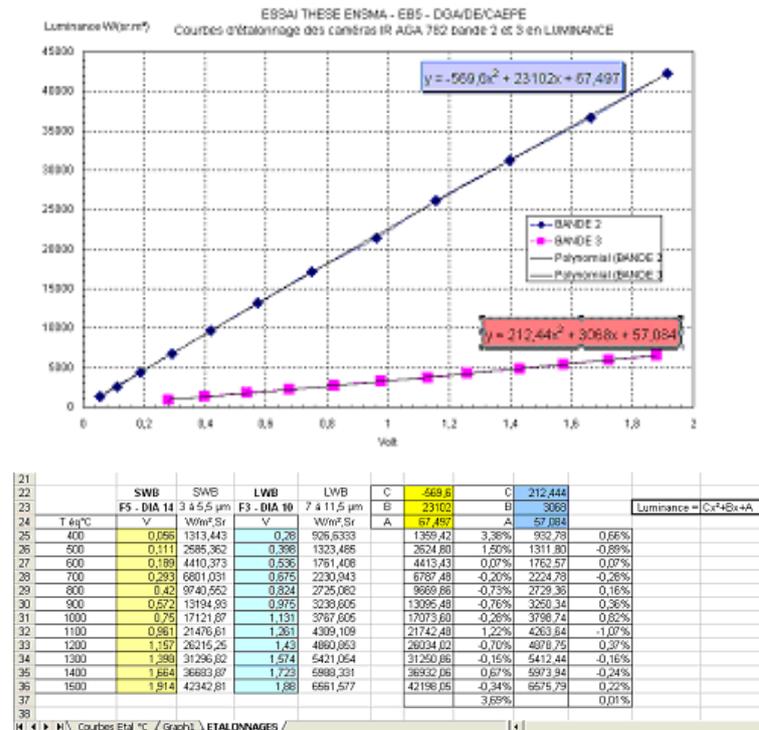


FIG. 27 – Etalonnage en luminance des caméras IR (bandes II et III)

La luminance se déduit directement par l'équation polynomiale du second ordre suivante :

$$\text{Luminance (W/(sr.m}^2\text{))} = Cx^2 + Bx + A$$

où A, B, C sont déterminés lors de l'étalonnage (Fig.27).

/

ANNEXE B

Signature UV d'une Flamme de PA/PBHT/Al à 1 atm

La visualisation par caméra ultraviolet nous renseigne sur les niveaux de quantité de photons émis par la flamme de propergol sur ce domaine spectral. Les trois principaux phénomènes physico-chimiques à l'origine de cette émission dans une flamme de propergol aluminisé sont les suivants :

- la chimiluminescence du radical OH, qui correspond à la désactivation du radical OH de l'état OH ($A^2\Sigma^+$) (ou OH*) vers l'état fondamental OH ($X^2\Pi$)
- la chimiluminescence issue de la recombinaison radiative de CO et de O, appelée "émission de flamme bleue de CO + O "
- l'absorption et la diffusion non négligeables des particules d'alumine dans ce domaine spectral

Tout d'abord, quelle que soit la composition étudiée, il est à noter que les niveaux d'émission maximale sont proches de la surface de combustion, lieu privilégié des réactions gazeuses entre les produits issus de la vaporisation du liant PBHT et ceux issus de la vaporisation du perchlorate d'ammonium PA. Celles-ci peuvent conduire à la production du radical OH*, à travers notamment la réaction ci-dessous, comme le soulignent Zeegers et Alkemade [123], lors d'une étude sur la flamme d'acétylène à pression atmosphérique :



Les recombinaisons CO + O, ainsi que l'absorption et la diffusion des particules d'alumine, pourraient également expliquer l'émission encore présente plus haut dans le panache.

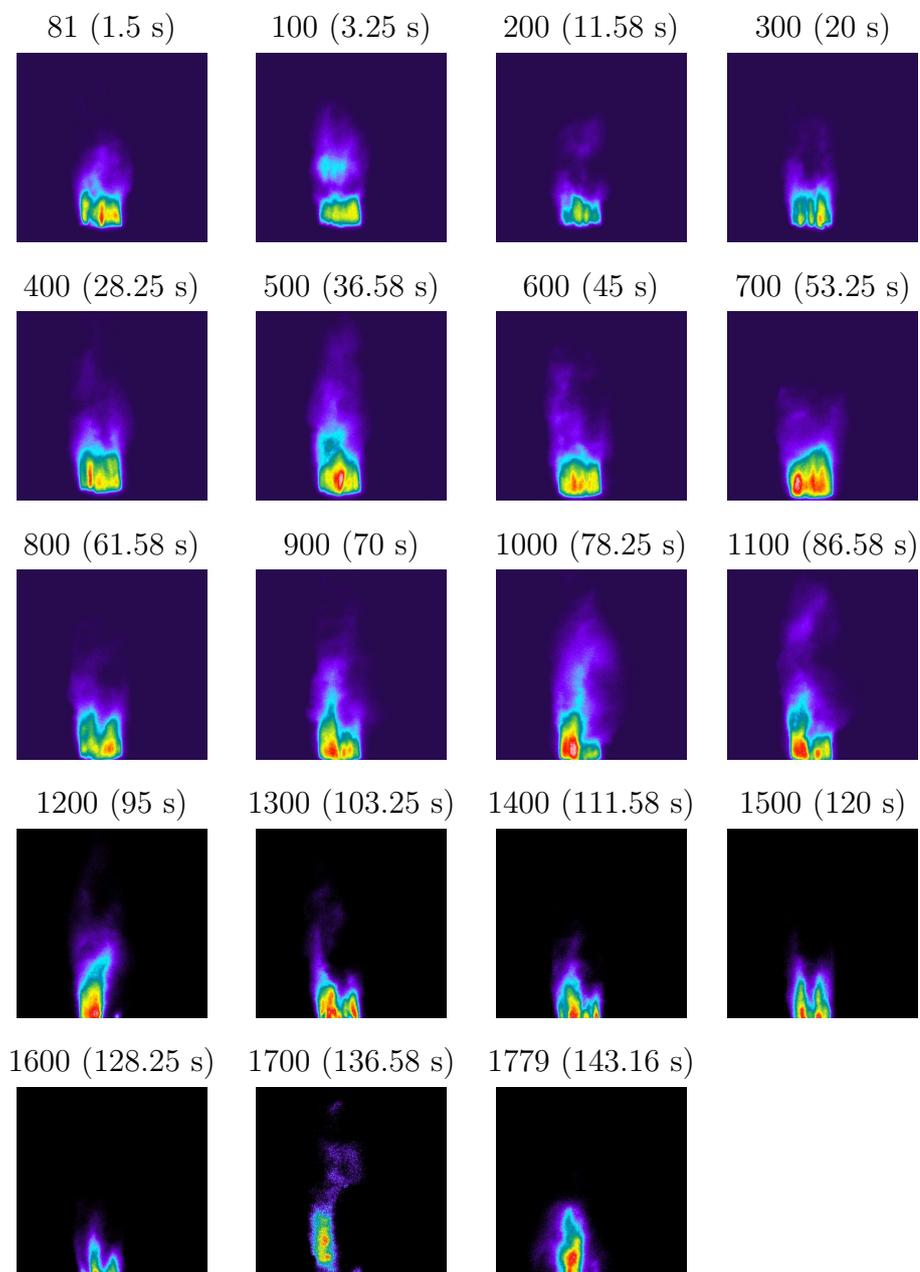


FIG. 28 – Niveaux de quantité de photons émis [n° d'image (temps)] dans la flamme de propergol type Butalane

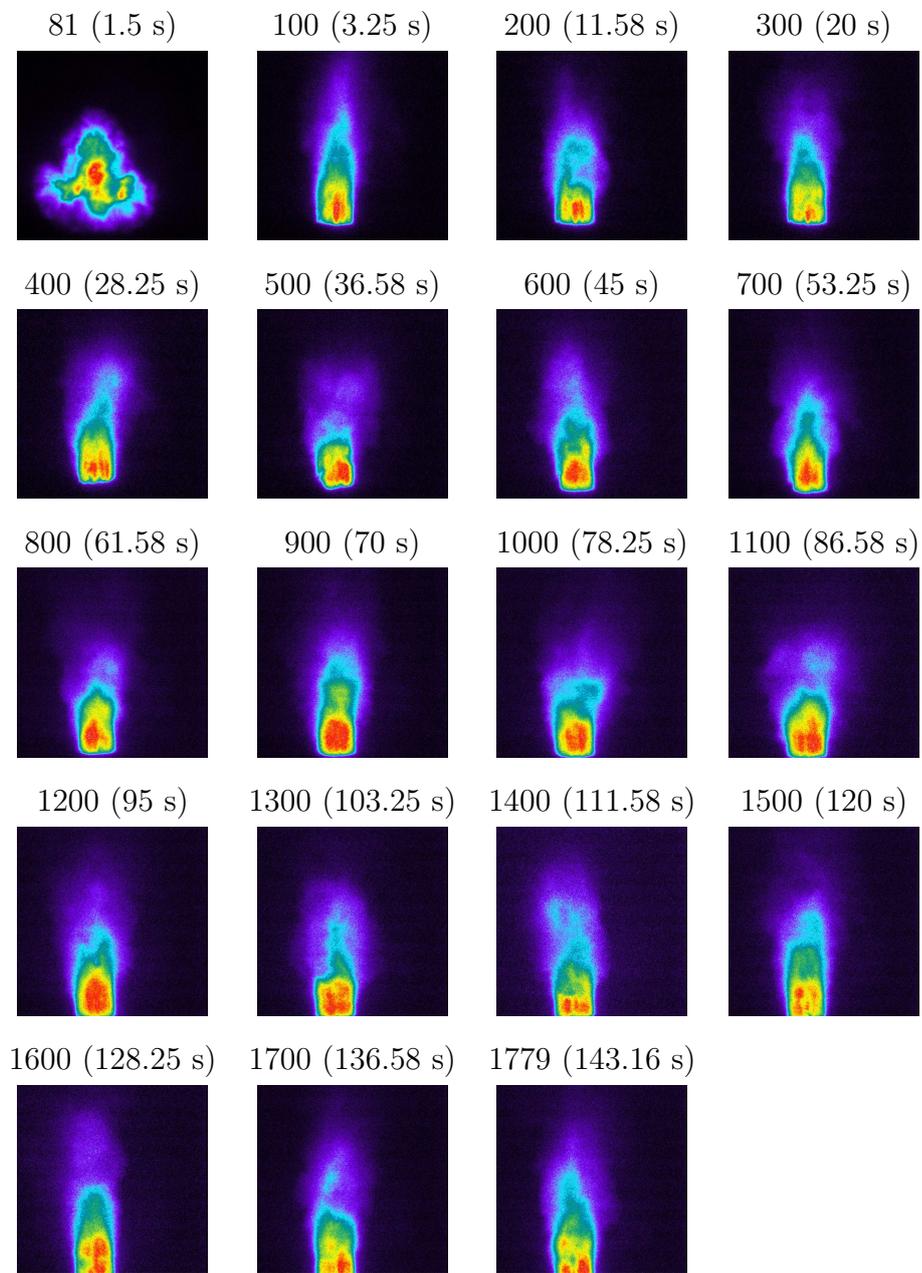


FIG. 29 – Niveaux de quantité de photons émis [n° d'image (temps)] dans la flamme de propergol type Butalite

/

ANNEXE C

Mesures de température au coeur d'un feu de Butalite

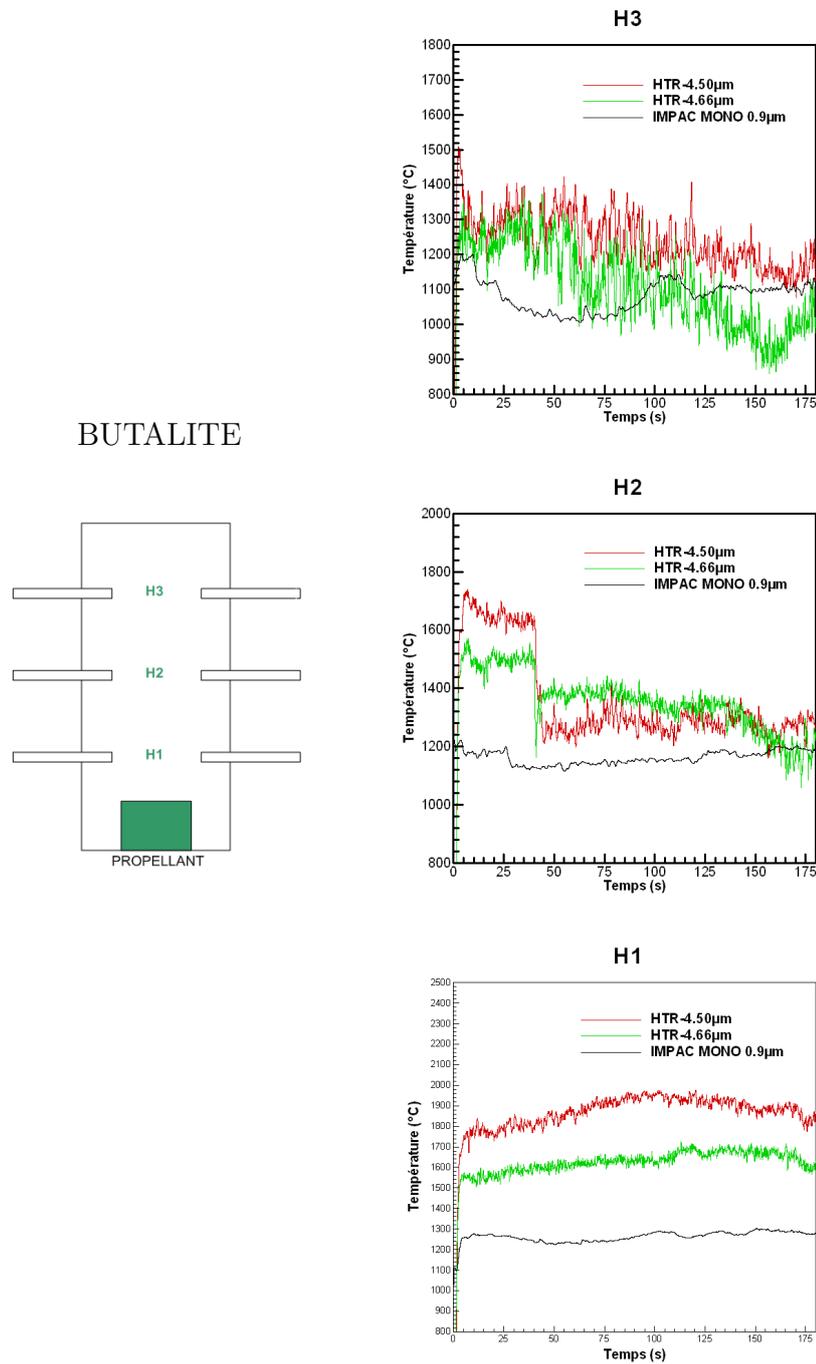


FIG. 30 – Evolution temporelle des températures mesurées par pyrométrie en $H_1 = 6$ cm, $H_2 = 26$ cm et $H_3 = 46$ cm, pour un feu de propergol type Butalite

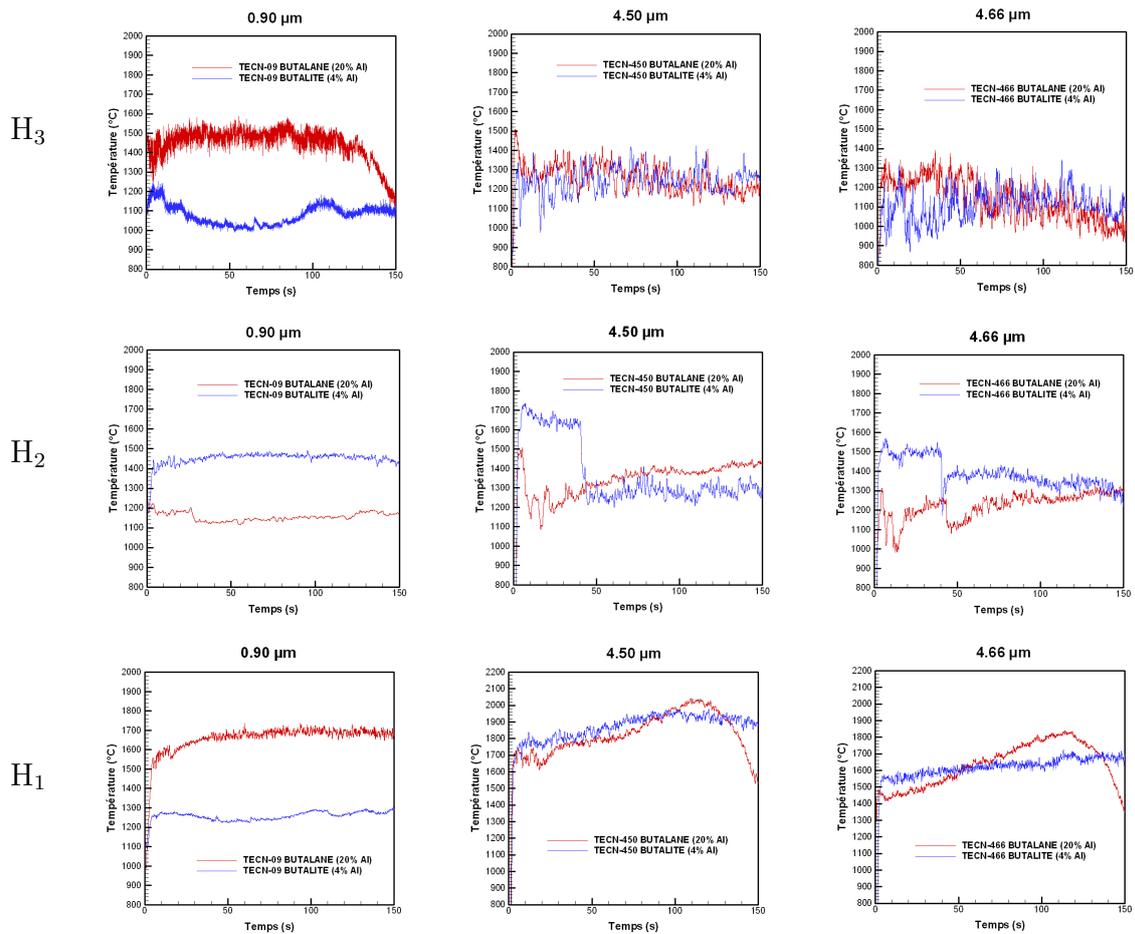


FIG. 31 – Comparaison des Températures ECN brutes en $\lambda = 0,90 \mu\text{m}$, $\lambda = 4,50 \mu\text{m}$, $\lambda = 4,66 \mu\text{m}$, à chaque hauteur de mesure, entre les compositions Butalane et Butalite

Bibliographie

- [1] Drysdale D. *An Introduction to Fire Dynamics*. 1998. [xxi](#), [8](#)
 - [2] Price E.W. The fire environment of a solid rocket propellant burning in air. Technical report, 1979. [xxi](#), [xxvii](#), [3](#), [11](#), [12](#), [14](#), [77](#), [93](#)
 - [3] O. Orlandi. *Modélisation et Simulation numérique de la combustion d'une goutte isolée d'aluminium*. PhD thesis, Université d'Orléans, 2002. [xxi](#), [19](#), [59](#)
 - [4] Lengellé G. Duterque J. and Trubert J.F. Physico-chemical mechanisms of solid propellant combustion. In *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*, volume 185, pages 287–334, 2000. [xxi](#), [2](#), [19](#), [21](#), [31](#), [32](#)
 - [5] Beckstead M.W. Derr R.L. and Price C.F. Model of composite solid-propellant combustion based on multiple flames. *AIAA Journal*, 8(12) :2200–2207, 1970. [xxi](#), [2](#), [21](#), [22](#), [25](#), [33](#)
 - [6] Beckstead M.W. Solid propellant combustion mechanisms and flame structure. *Pure and Applied Chemistry*, 65(2) :297–307, 1993. [xxi](#), [22](#), [23](#), [24](#)
 - [7] Beckstead M.W. Overview of combustion mechanisms and flame structures for advanced solid propellants. In *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*, volume 185, pages 267–285, 2000. [xxi](#), [2](#), [22](#), [36](#)
 - [8] Price E.W. Combustion of metalized propellants. In *Fundamentals of Solid Propellant Combustion*, volume 90, pages 478–513, 1984. [xxii](#), [2](#), [45](#), [48](#), [49](#), [50](#)
 - [9] Dupays J. Fabignon Y. Villedieu P. and Lavergne G. Some aspects of two-phase flows in solid-propellant rocket motors. In *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*, volume 185, pages 859–883, 2000. [xxii](#), [50](#), [60](#)
 - [10] Sambamurthi J.K. Price E.W. and Sigman R.K. Aluminium agglomeration in solid-propellant combustion. *AIAA Journal*, 22(8) :1132–1138, 1984. [xxii](#), [51](#)
-

-
- [11] Bucher P. Ernst L. Dryer F.L. Yetter R.A. Parr T.P. and Hanson-Parr D.M. Detailed studies on the flame structure of aluminum particle combustion. In *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*, volume 185, pages 689–722, 2000. [xxii](#), [51](#), [53](#), [59](#)
- [12] Melcher J.C. Burton R.L. and Krier H. Combustion of aluminum particles in solid rocket motor flows. In *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*, volume 185, pages 723–747, 2000. [xxii](#), [53](#), [57](#)
- [13] Scippa S. Pascal P. and Zanier F. Ariane 5-mps-chamber pressure oscillations full scale firings / results and analysis and further studies. In *AIAA Paper 94-3068*, 1994. [xxii](#), [60](#), [61](#)
- [14] Karasev V.V. Onishuk A.A. Glotov O.G. Baklanov A.M. Maryasov A.G. Zarko V.E. Panfilov V.N. Levykin A.I. and Sabelfeld K.K. Formation of charged aggregates of al_2o_3 nanoparticles by combustion of aluminum droplets in air. *Combustion and Flame*, 138 :40–54, 2004. [xxii](#), [60](#), [61](#)
- [15] F. Millot V. Sarou-Kanian, J.C. Rifflet. Ir radiative properties of solid and liquid alumina : Effects of temperature and gaseous environment. *International Journal of Thermophysics*, 26(4) :1263–1275, 2005. [xxiv](#), [95](#), [96](#)
- [16] Markstein G.H. Radiative properties of plastic fires. In *17th Symposium (International) on Combustion*, pages 1053–1062, 1979. [xxvii](#), [9](#)
- [17] Diaz J.C. Thermal environment of a solid rocket propellant fire in ambient atmospheric conditions. Technical report, 1993. [xxvii](#), [3](#), [12](#), [14](#), [75](#), [93](#), [176](#)
- [18] Giroud F. Porterie B., Larini M. and Loraud J.C. Solid propellant fire in an enclosure fitted with a ceiling safety vent. *International Journal Heat Mass Transfer*, 39(3) :575–601, 1996. [3](#), [15](#)
- [19] Mac Grattan K. Fire dynamics simulator (v4) technical reference guide. Technical report, 2004. [4](#), [102](#), [112](#)
- [20] McCaffrey B.J. Purely buoyant diffusion flames ; some experimental results. Technical report, 1979. [9](#)
-

-
- [21] Eisenreich N. Eckl W. Determination of the temperature in a solid propellant flame by analysis of emission spectra. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 17 :202–206, 1992. [13](#)
- [22] Feng C. Johnson R.B. and Fehribach J. On the validity and techniques of temperature measurement and emissivity measurements. *SPIE, Thermosense X*, 934 :202–206, 1988. [13](#)
- [23] Williams F.W. Tatem P.A. White D.A., Beyler C.L. Modeling missile propellant fires in shipboard compartments. *Fire Safety Journal*, 34(4) :321–341, 2000. [15](#)
- [24] Guirao C. and Williams F.A. A model for ammonium perchlorate deflagration between 20 and 100 atm. *AIAA Journal*, 12(7) :1345–1356, 1971. [20](#)
- [25] Beckstead M.W. Derr R.L. and Price C.F. The combustion of solid monopropellants and composite propellants. In *13th Symposium on Combustion*, pages 1047–1056, 1971. [20](#)
- [26] Price C.F. T.L.Boggs and R.L.Derr. The steady state combustion behavior of ammonium perchlorate and hmx. *AIAA Paper*, 1979. [20](#)
- [27] Godon J.C. Model of ammonium perchlorate self-degradation. *La recherche aérospatiale*, (2) :43–50, 1982. [20](#)
- [28] Korobeinichev O.P. Flame structure of solid propellants. In *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*, volume 185, pages 335–354, 2000. [21](#)
- [29] Parr T. and Hanson-Parr D. Optical diagnostics of solid propellant. In *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*, volume 185, pages 381–411, 2000. [22](#), [38](#)
- [30] Cohen N.S. Review of composite propellant burn rate modeling. *AIAA Journal*, 18(3) :277–293, 1980. [25](#)
- [31] Cohen N.S. and Strand L.D. An improved model for the combustion of ap composite propellants. *AIAA Paper*, 1981. [25](#)
- [32] Ramohalli K.N.R. Steady state burning of composite propellants. In *Fundamentals of solid-propellant combustion*, volume 90, pages 409–417, 1984. [25](#)
-

- [33] Williams F.A. Quasi steady gas flame theory in unsteady burning of a homogeneous solid propellant. *AIAA Journal*, 11(9) :1328–1330, 1973. 27
- [34] Novozhilov B.V. Burning of a powder under harmonically varying pressure. *Journal of Appl. Mech. Tech. Phys.*, (6) :103–106, 1965. 37
- [35] Denison M.R. and Baum E. A simplified model of unstable burning in solid propellants. *ARS Journal*, 31(8) :1112–1122, 1961. 37
- [36] Ward M.J. Son S.F. and Brewster M.Q. Role of gas- and condensed-phase kinetics in burning rate control of energetic solid. *Combustion Theory and Modeling*, 2 :293–312, 1998. 37
- [37] Loner P.S. and Brewster M.Q. On the oscillatory laser-augmented combustion of hmx. In *27th International symposium on combustion*, pages 2309–2318, 1998. 37
- [38] Brewster M.Q. Solid propellant combustion response : quasi-steady (qshod) theory development and theory. In *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*, volume 185, pages 607–637, 2000. 37
- [39] Jackson T.L. Massa L. and Brewster M.Q. Unsteady combustion modelling of energetic solids, revisited. *Combustion Theory and Modelling*, 8 :513–532, 2004. 37
- [40] Murphy J.J. and Krier H. Linear pressure coupled frequency response of heterogeneous solid propellants. In *27th International symposium on combustion*, pages 2343–2350, 1998. 38
- [41] Rasmussen B. Frederick R.A.Jr. and Lengellé G. Pressure-coupled frequency response models of solid propellants. In *34th JANNAF Combustion Meeting*, volume 2, pages 2343–2350, 1997. 38
- [42] Knott G.M. and Brewster M.Q. Modeling the combustion of propellant sandwiches. *Combustion Science and Tehnology*, (8), 2002. 38
- [43] Massa L. Jackson T.L. Buckmaster J. and Campbell M. The three dimensional combustion of heterogeneous propellants. In *JANNAF Combustion Subcommittee Meeting*, pages 625–636, 2002. 38
-

-
- [44] Hegab A. Jackson T.L. Buckmaster J. and Stewart D.S. Nonsteady burning of periodic sandwich propellants with complete coupling between the solid and gas phases. *Combustion and Flame*, 125 :1055–1070, 2001. [38](#), [39](#)
- [45] Panyam R.R. Price E.W. and Chakravarthy S.R. Combustion at the interface of a laminate system of solid oxidizer and solid fuel. *Combustion and Flame*, 136 :1–15, 2004. [38](#)
- [46] Fitzgerald R.P. and Brewster M.Q. Flame and burning surface structure of ap/htpb laminate propellants. In *JANNAF Combustion Subcommittee Meeting*, pages 107–118, 2002. [38](#)
- [47] Jackson T.L. and Buckmaster J. Heterogeneous propellant combustion. *AIAA Journal*, 39(4) :678–686, 2001. [38](#)
- [48] Knott G.M. Jackson T.L. and Buckmaster J. Random packing of heterogeneous propellants. *AIAA Journal*, 39(4) :678–686, 2001. [38](#)
- [49] Massa L. Jackson T.L. and Short M. Numerical simulation of three-dimensional heterogeneous solid propellants. *Combustion Theory and Modelling*, 7 :579–602, 2003. [40](#), [41](#)
- [50] Wang X. Jackson T.L. and Massa L. Numerical simulation of heterogeneous propellant combustion by a level set method. *Combustion Theory and Modelling*, (8) :227–254, 2004. [41](#)
- [51] Wang X. and Jackson T.L. The numerical simulation of two-dimensional aluminized composite solid propellant combustion. *Combustion Theory and Modelling*, 9 :171–197, 2005. [42](#)
- [52] Summary report on solution of the combustion instability incurred in the development of the te260 rocket motor. Technical report, 1960. [45](#)
- [53] Waesche R.H.W. Mechanisms and methods of suppression of combustion instability by metallic additives. *Journal of propulsion and power*, 15(6) :919–922, 1999. [45](#), [46](#)
- [54] Lou R.L. Suppression of unstable burning in solid propellants. Technical report, 1957. [45](#), [46](#)
-

- [55] Price E.W. Review of experimental research on combustion instability of solid propellants in solid propellant rocket research. *AIAA Progress Series*, 1 :558–559, 1960. [45](#), [46](#)
- [56] Price E.W. Combustion of aluminum in solid propellant flames. In *Solid Rocket Motor Technology*, volume 259, pages 14–1–14–15, 1979. [45](#)
- [57] Prentice J.L. Boggs T.L. Price E.W., Kraeutle K.J. and Sigman R.K. Behavior of aluminum in solid propellant combustion. Technical report, 1980. [45](#)
- [58] Frolov Yu. Logachev V.S. Krototkov A.I. Pokhil P.F., Belyayef A.F. *Combustion of Powdered Materials in Active Media*. 1972. [45](#)
- [59] Cesco N. *Écoulement diphasique à l'intérieur des propulseurs à poudre*. PhD thesis, Université de Toulouse, 1997. [45](#)
- [60] D.W. Netzer D. Laredo. The dominant effect of alumina on nearfield plume radiation. *Journal of Quantitative Spectroscopy Radiative Transfer*, 50(5) :511–530, 1993. [46](#)
- [61] Cohen N.S. A pocket model for agglomeration in composite propellants. *AIAA Journal*, 21(5) :720–725, 1983. [47](#)
- [62] Price E.W. and Sigman R.K. Combustion of aluminized solid propellants. In *Solid propellant chemistry, combustion, and motor interior ballistics*, volume 185, pages 663–689, 2000. [48](#), [52](#)
- [63] Duterque J. Hilbert R. and Lengellé G. Agglomération et combustion de l'aluminium dans les propergols solides. Technical report, 1999. [50](#), [52](#), [60](#)
- [64] Parr T.P. and Hanson-Parr D.M. Ap/htpb/al propellant flame structure at 1 atm. Technical report, 2006. [50](#), [60](#), [61](#), [166](#), [171](#)
- [65] Price E.W. Sigman R.K. Sambamurthi J.K. and Park C.J. Behavior of aluminum in solid propellant combustion. Technical report, 1982. [52](#)
- [66] Christensen H.C. Knipe R.H. and Gordon A.S. Survey of aluminum particle combustion. *Pyrodynamics*, 3 :91–119, 1965. [52](#)
- [67] Macek A. Fundamentals of combustion of single aluminum and beryllium particles. In *11th Symposium (International) on Combustion*, pages 203–214, 1967. [52](#)
-

- [68] Olsen S.E. and Beckstead M.W. Burn time measurements of single aluminum particles in steam and carbon dioxide. *Journal of Propulsion and Power*, 12(4) :662–671, 1996. [52](#)
- [69] Prentice J.L. Combustion of single aluminum droplets in various oxidizing gases including co₂ and water vapor. In *10th JANNAF Combustion Meeting*, volume 3, pages 279–296, 1973. [52](#)
- [70] Dreizin E.L. Experimental study of stages in aluminum particle combustion in air. *Combustion and Flame*, 105(4) :541–556, 1996. [52](#), [55](#)
- [71] Prentice J.L. and Nelson L.S. Differences between the combustion of aluminum droplets in air and in an oxygen-argon mixture. *Journal of the Electrochemical Society*, 115 :809–812, 1968. [52](#)
- [72] Bucher P. Yetter R.A. Dryer F.L. Vicenzi E.P. Parr T.P. and Hanson-Parr D.M. Condensed-phase species distributions about al particles reacting in various oxidizers. *Combustion and Flame*, 117(4/5) :351–361, 1999. [52](#)
- [73] Marion M. Chauvreau L. and Gökalp I. Studies of the ignition and burning process of levitated aluminum particles. *Combustion Science and Technology*, 115(4–6) :369–390, 1996. [52](#), [55](#)
- [74] King M.K. Modeling of single particle aluminum combustion in co₂-n₂ atmospheres. In *27th Symposium (International) on Combustion*, pages 1317–1328, 1998. [52](#)
- [75] Bucher P. Yetter R.A. Dryer F.L. Parr T.P. and Hanson-Parr D.M. Plif species and radiometric temperature measurements of aluminum particle combustion in o₂, co₂ and n₂o oxidizers, and comparison with model calculations. In *27th Symposium (International) on Combustion*, pages 2421–2430, 1998. [52](#)
- [76] Liang Y. and Beckstead M.W. Numerical simulation of unsteady single aluminum particle combustion in air. *AIAA Paper 98-3825*, 1998. [52](#), [59](#)
- [77] Meinköhn D. Metal combustion modelling. In *ODAS 2000, ONERA/DLR Aerospace Symposium*, 2000. [53](#)
-

- [78] Wilson R.P. and Williams F.A. Experimental study of the combustion of single aluminum particles in O_2/Ar . In *13th Symposium (International) on Combustion*, pages 833–845, 1971. 53, 55
- [79] Brzustowski T.A. and Glassman I. Vapor phase diffusion flames in the combustion of magnesium and aluminum : I. analytical developments. In *Heterogeneous Combustion*, volume 15, pages 75–115, 1964. 54
- [80] Frayssac J. and Barrère S. Contribution à l'étude de la combustion des particules métalliques. Technical report, 1961. 54
- [81] Kuehl D.K. and Zwillenberg M. Prediction of burning times of metal particles. In *ICRPG/AIAA 3rd Solid Propulsion Conference*, 1968. 54
- [82] Bartlett R.W. Ong Jr.J.N. Fassel Jr.W.M. and Papp C.A. Estimating aluminum particle combustion kinetics. *Combustion and Flame*, 7 :227–237, 1963. 54
- [83] Brulard J. Contribution à l'étude de la combustion des particules d'aluminium. *La Recherche Aéronautique*, (118) :25–49, 1967. 55
- [84] Nelson L.S. Combustion of metal droplets ignited by flash heating. In *11th Symposium (International) on Combustion*, pages 409–416, 1966. 55
- [85] Merzhanov A.G. Grigorjev Yu.M. and Gal'chenko Yu.A. Aluminum ignition. *Combustion and Flame*, 29 :1–14, 1977. 55
- [86] Belyaev A.F. Frolov Yu.V. and Korotkov A.I. Combustion and ignition of particles of finely dispersed aluminum. *Fizika Goreniya i Vzryva*, 4(3) :323–329, 1968. 56, 57
- [87] Hermsen R.W. Aluminum combustion efficiency in solid rocket motors. In *19th AIAA Aerospace Sciences Meeting*, 1981. 56, 58
- [88] Duterque J. and Hommel J. Etude de l'agglomération et de la combustion des particules d'aluminium dans les propergols solides. *La Recherche Aéronautique*, (4) :1–24, 1993. 56
- [89] Duterque J. Cahier des charges du montage d'étude de la combustion de l'aluminium en ambiance gaz de propergol. Technical report, 1998. 56
-

-
- [90] Davis A. Solid propellant : The combustion of particles of metal ingredients. *Combustion and Flame*, 7 :359–367, 1963. 57
- [91] Melcher J.C. Krier H. and Burton R.L. Burning aluminum particles inside a laboratory-scale solid rocket motor. In *37th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Conference and Exhibit*, 2001. 57
- [92] Renie J.P. and Osborn J.R. Combustion modeling of aluminized propellants. In *AIAA Paper 79-1131*, 1979. 58
- [93] Sabnis J. de Jong F. and Gibelin H. A two-phase distributed combustion model for metalized solid propellants. In *28th JANNAF Combustion Subcommittee*, volume 2, pages 243–255, 1991. 58
- [94] Law C.K. A simplified theoretical model for the vapor phase combustion of metal. *Combustion Science and Technology*, 7 :197–212, 1973. 58
- [95] Brokks K.P. and Beckstead M.W. The dynamics of aluminum combustion. In *30th JANNAF Combustion Subcommittee*, 1993. 58
- [96] Widener J.F. and Beckstead M.W. Aluminum combustion modeling in solid propellant combustion products. In *34th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit, Los Angeles*, 1998. 58
- [97] Widener J.F. and Beckstead M.W. Aluminum combustion modeling in solid propellant environments. In *35th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference and Exhibit, Los Angeles*, 1999. 58
- [98] Yuasa S. Zhu Y. and Sogo S. Ignition and combustion of aluminum in oxygen/nitrogen mixture streams. *Combustion and Flame*, (108) :387–396, 1997. 59
- [99] Wang X. and Jackson T.L. The numerical simulation of two-dimensional aluminized composite solid propellant combustion. *Combustion Theory and Modelling*, 9 :171–197, 2005. 59
- [100] Kraeutle K.J. Mathes H.B. and Derr R.L. The role of particulate damping in the control of combustion instability by aluminum combustion. *Solid Rocket Motor Technology*, 259 :15/1–15/4, 1979. 60
-

-
- [101] Salita M. Deficiencies and requirements in modeling slag generation in solid rocket motors. *Journal of Propulsion and Power*, 11(1) :10–23, 1995. [60](#)
- [102] Hylkema J. *Modélisation cinétique et simulation numérique des brouillards denses de gouttelettes - Application aux propulseurs à poudre*. PhD thesis, ENSAE / Université de Toulouse, 1999. [60](#)
- [103] J. Smagorinsky. General circulation experiments with the primitive equations. *Monthly weather review*, 91(3) :99–164, 1963. [109](#)
- [104] Zhang W. Hamer A. Klassen M. Carpenter D. and Roby R. Turbulence statistics in a fire room model by large eddy simulation. *Fire Safety Journal*, 37 :721–752, 2002. [109](#)
- [105] Grosshandler W. A narrow band model for radiation calculations in an combustion environment. Technical report, 1993. [111](#)
- [106] Lengellé G. Thermal degradation kinetics and surface pyrolysis of vinyl polymers. *AIAA Journal*, 8(11) :1989–1998, 1970. [121](#), [123](#)
- [107] Lengellé G. Bizot A. Duterque J. and Amiot J.C. Ignition of solid propellants. *La Recherche Aérospatiale*, 2, 1991. [124](#)
- [108] Bourasseau B. Présentation du code coppelia. Technical report, 1989. [125](#)
- [109] Huggett C. Estimation of rate of heat release by means of oxygen consumption measurements. *Fire and Materials*, 4 :61–65, 1980. [137](#)
- [110] Dombrovsky L. Possibility of determining the dispersed composition of a two-phase flow from small-angle light scattering. *High Temperature (Teplofiz. Vys. Temp.)*, 20 :472–479, 1982. [138](#), [149](#), [172](#)
- [111] Dombrovsky L. and Ivenskih. Radiation from a homogeneous plane-parallel layer of spherical particles. *Teplofiz. Vys. Temp.*, 4 :818. [138](#)
- [112] Bakhir L. Levashenko G. and Tamanovitch V. Refinement of the imaginary part of the complex refractive index of liquid aluminum oxide. *J. of Applied Spectroscopy*, 26 :378–383, 1977. [138](#)
- [113] Parry D. and Brewster M. Optical constants of al₂o₃ smoke in properllant flames. *J. of Thermophysics*, 5 :142–149, 1991. [138](#)
-

-
- [114] Reed B. Optical properties for liquid Al_2O_3 . Technical report, 1988. [138](#)
- [115] Edwards D. and Babikian D. Radiation from a nongray scattering emitting, and absorbing solid rocket motor plume. *J. of Thermophysics*, 4 :446–453, 1990. [139](#)
- [116] Edwards D. and Bobco R. Effect of particle size distribution on the radiosity of solid propellant rocket motor plumes. *AIAA Journal*, 83 :169–188, 1982. [139](#)
- [117] Malitson I. Refraction and dispersion of synthetic sapphire. *J. Opt. Soc. Am.*, 52 :1377–1379, 1962. [139](#)
- [118] Sutton L. and Stavroudis O. Fitting refractive index data by least squares. *J. Opt. Soc. Am.*, 51 :901–905, 1961. [139](#)
- [119] Van de Hulst H. *Light scattering by small particles*. 1981. [139](#), [141](#)
- [120] Anfimov N. Karabadjak G. Khmelinin B. Plastinin Y. and Rodionov A. Analysis of mechanisms and nature of radiation from aluminum oxide in different phase states in solid rocket exhaust plumes. *AIAA Paper*, 1993. [140](#)
- [121] Bohren C. and Huffman D. *Absorption and scattering of light by small particles*. 1983. [141](#), [142](#)
- [122] Tien C. and Drolen B. Thermal radiation in particulate media with dependent and independent scattering. In *Annual Review in Numerical Fluid Mechanics and Heat Transfer*, volume 1, 1987. [142](#)
- [123] Alkemade C.Th.J. Zeegers P.J.Th. Chemiluminescence of OH radical and K atom by radical recombination in flames. In *Tenth Symposium (International) on Combustion*, pages 33–40, 1965. [185](#)
-