

Modélisation de l'auto-inflammation de matériaux énergétiques : Vers une approche utilisant les automates cellulaires

P. Gillard

IUT de Bourges - Département GMP
PRISME EA 4229, Univ. Orléans, INSA-CVL, Bourges, France

May 27, 2019

Combinaisons des substances réactives

Reducteur	Oxydant	Produits	Commentaire
gaz	gaz	gaz + ϵ solid	bec Bunsen à la stoechiométrie
liquide	gaz	gaz + ϵ solid	injecteur de fuel liquide
liquide	liquide	gaz + ϵ solide	ergol liquide pour moteur fusée
solid	gaz	gaz and/ou solide	explosions de poussières
solide	solide	gaz and/ou solide	Matériaux En-ergétiques

Table : Combinaisons des substances réactives en combustion

Enthalpie de réaction des réducteurs

Parmi les poussières hautement réactives, la chaleur de combustion est très variée, comme illustré par le tableau suivant:

	Produits d'Oxydation	$kJ/mol O_2$	MJ/kg de métal
Mg	MgO	1240	51.01
Al	Al_2O_3	1100	30.58
Zn	Zno	700	10.71
Fe	Fe_2O_3	530	7.12
Amidon	O_2 et H_2O	470	

Tableau : Chaleur de combustion par mole d' O_2 et par kg de différentes substances métalliques ou organique

Potentiel énergétique de quelques métaux

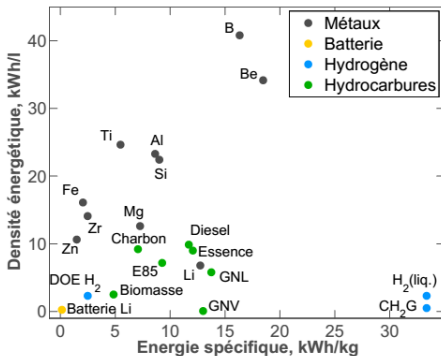


Figure: Comparaison du potentiel énergétique de quelques métaux en combustion

Réaction Pyrotechnique en 2 étapes

D'un point e vue global, la réaction pyrotechnique peut être décomposées en deux étapes :

- ✓ **la première étape est la décomposition de l'agent oxydant RO_x (Eq.1) :**



Réaction Pyrotechnique en 2 étapes

D'un point e vue global, la réaction pyrotechnique peut être décomposées en deux étapes :

- ✓ la première étape est la décomposition de l'agent oxydant RO_x (Eq.1) :



- ✓ la seconde est l'oxydation du métal M par l'oxygène provenant de la réaction réaction Eq.1 :



Réaction Pyrotechnique en 2 étapes

D'un point e vue global, la réaction pyrotechnique peut être décomposées en deux étapes :

- ✓ la première étape est la décomposition de l'agent oxydant RO_x (Eq.1) :



- ✓ la seconde est l'oxydation du métal M par l'oxygène provenant de la réaction réaction Eq.1 :



- ✓ Finalement, on obtient une réaction globale de bilan d'oxydo-reduction (Eq.3) :



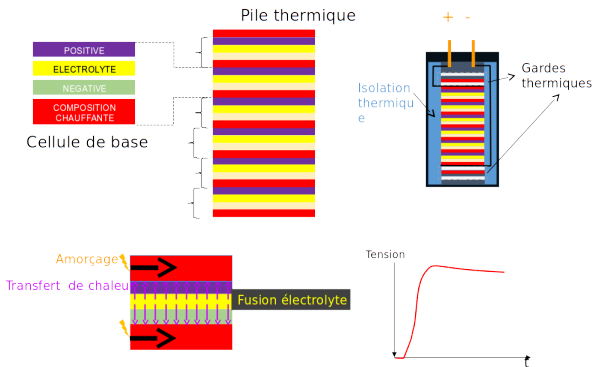


Figure: Principe d'une pile thermique

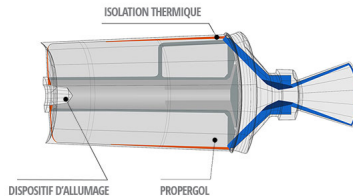


Figure: Principe de fonctionnement d'un moteur fusée. (Extrait Document Roxel)

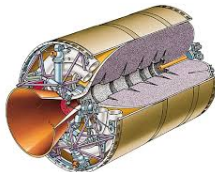


Figure: moteur fusée en perspective. (Encyclopédie en ligne larousse)

I. Évolution des modélisations en combustion pyrotechniques

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\lambda}{\rho \cdot Cp} \cdot \left(\frac{k}{r} \cdot \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} \right) + S(T(r, t)) \quad (4)$$

avec S donné par une cinétique simple d'ordre 1

Il est nécessaire de se donner une température initiale T_0 ainsi que les conditions aux limites, c'est-à-dire la température de paroi imposée T_p :

A. $T(0, r) = T_0$ pour $0 \leq r \leq R_p$;

B. $T(t, R_p) = T_p$ et $-\lambda \cdot \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)_{r=R_p} = 0$ pour $t > 0$.

II. Forme adimensionnelle de l'équation de la chaleur

$$\frac{k}{\xi} \cdot \frac{\partial \Theta}{\partial \xi} + \frac{\partial^2 \Theta}{\partial \xi^2} = -\delta \cdot \exp(\Theta) \quad (5)$$

III.

* $\zeta = \frac{r}{R_p}$

* $\Theta = \frac{E_a}{R \cdot T_p^2} \cdot (T - T_p)$ et

- * δ est le paramètre critique de Frank-Kamenetskii, défini par la relation 6

$$\delta = \frac{\rho \cdot Q \cdot Z}{\lambda} \cdot \frac{E_a \cdot r_p^2}{R_{gp} \cdot T_p^2} \cdot \exp\left(-\frac{E_a}{R \cdot T_p}\right) \quad (6)$$

δ critique en fonction de la géométrie

0.88	2	3.32
plan	cylindre	sphère

Table: Propriétés estimées du mélange fer/Soufre

Propriété	Fer + Soufre
a : Diffusivité thermique ($m^2.s^{-1}$)	$2,8.10^{-7}$
Cp : Capacité calorifique ($J.kg^{-1}K^{-1}$)	720
λ : Conductivité thermique ($W.m^{-1}K^{-1}$)	0,58
Q : Chaleur de réaction ($J.kg^{-1}$)	10^6
Ea : Energie d'activation ($Jmol^{-1}$)	168000
Z : Facteur préexponentiel (s^{-1})	1.10^{13}

... plus proches de la réalité.

Estimation des propriétés d'interfaces par une méthodes de lancers de rayons ont été effectuées :

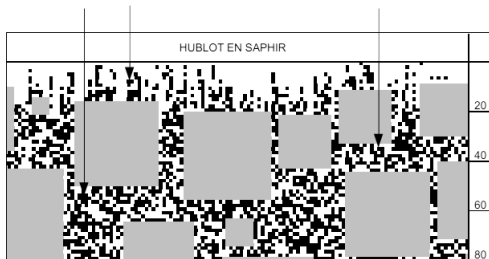


Figure: Estimation des propriétés d'interface par une méthode de lancers de rayons sur un matériau énergétique $Fe/KClO_4$ reconstitué numériquement

Ref : F. Opdebeck, P. Gillard, et E. Radenac, *Optimization of interface conditions in the case of laser diode ignition of pyrotechnic mixtures*, *Propellants, Explos. Pyrotech.*, vol. 26, n° 4, 2001, p. 261-268.

Évolutions vers des empilements + réalistes

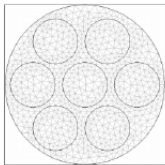


Fig. 6. Meshing of 7 grains of AP surrounded by HTPB.

Maillages

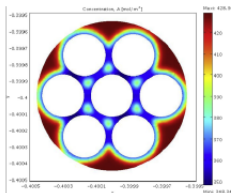


Fig. 8. View of HTPB concentrations in surrounding binder after heating for 3000 s at $T = 499$ K under AC.

Calcul des concentrations

Modèle cinétique hétérogène

$$r_1 = k_1 \cdot C_{\text{BNH}_3} \cdot C_{\text{HClO}_4}$$

$$r_2 = k_2 \cdot C_{\text{BCl}_2} \cdot C_{\text{HClO}_4}$$

$$r_3 = k_3 \times C_A$$

$$r_4 = k_4 \times C_A \times C_{\text{gO}_2}$$

$$r_5 = k_5 \times C_A \times C_{\text{gH}_2\text{O}} \times C_{\text{gNO}}$$

+ réactions d'interface et de transports
(70 au total)

Ref : P. Gillard et B. Longuet, *Investigation of heat transfer and heterogeneous reactions during the slow cook off of a composite propellant*, J. Loss Prev. Process Ind., vol. 26, no 6, p. 1506-1514, 2013

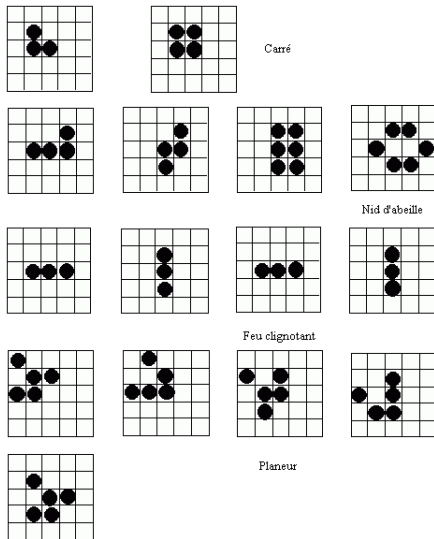
L'évolution d'une cellule est déterminée par l'état des 8 voisines.

I. Une cellule meurt si :

- * elle n'est entourée que par une ou moins de cellules occupées
- * Si elle est entourée par 4 cellules ou plus occupées (surpopulation)

donc, une cellule reste en vie si elle est entourée par 2 ou 3 autres cellules vivantes.

II. Une cellule naît si elle est entourée par exactement trois autres cellules vivantes



Exemple d'évolution

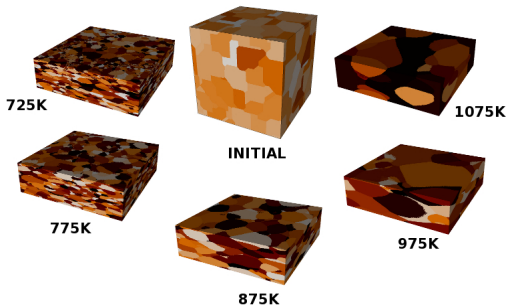
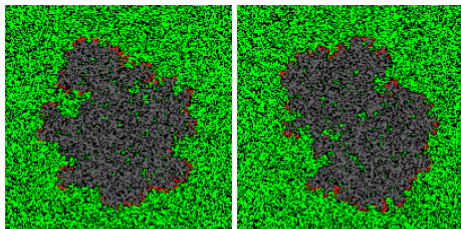


Figure: Simulation par automate de la cristallisation dans un matériau pur : Le cuivre

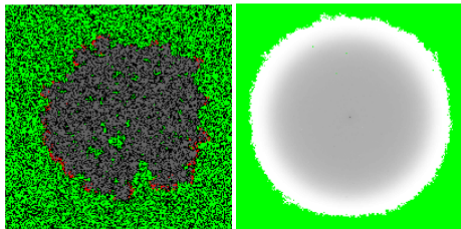
Recristallisation discontinue dynamique (DDRX) du cuivre pur, modélisée par un élément de volume représentatif basé sur des automates cellulaires. La cristallisation pour différentes températures est indiquée. Notez qu'à des températures plus élevées de 975 K et 1075 K, il se produit une croissance du grain plutôt qu'une germination.

Ref : H. Hallberg, Hallberg, et Hoakan, "Approaches to Modeling of Recrystallization", *Metals (Basel)*, vol. 1, no 1, p. 16?48, oct. 2011.



(a)

(b)

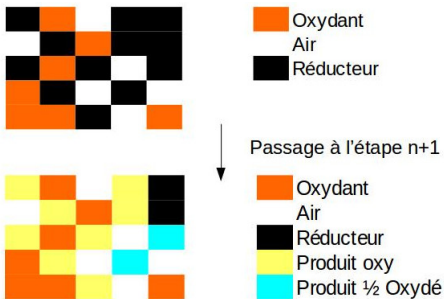


(c)

(d)

Figures de front de combustion pour un maillage de de 201x201:
Allumage central 100:100
évolution du front
différents instants

Ref :R. M. Almeida et E. E. N. Macau, *Stochastic cellular automata model for wildland fire spread dynamics*, *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 285, p. 12038, mars 2011.



Règles :

- ✓ : case noire reste noire si pas de blanche (air) ni d'orange (grain d'oxydant) à proximité
- ✓ : case noire devient jaune si case blanche proximité mais pas d'orange contigüe
- ✓ : case noire devient bleu si pas de blanche ni d'orange à proximité
- ✓ : case noire devient jaune si une case orange à proximité
- ✓ cases blanches restent blanches
- ✓ cases oranges restent oranges (valable si excès notable en oxydant)

Conclusions ...sur cette prospective

- ✓ La fin de cette présentation est une une projection des travaux vers un futur proche (pour cette année)

Conclusions ...sur cette prospective

- ✓ La fin de cette présentation est une projection des travaux vers un futur proche (pour cette année)
- ✓ L'approche semble faisable car elle s'appuie sur des exemples de réalisations dans des domaines connexes (matériaux, Incendies). Mais la bibliographie de montre rien dans notre domaine

Conclusions ...sur cette prospective

- ✓ La fin de cette présentation est une projection des travaux vers un futur proche (pour cette année)
- ✓ L'approche semble faisable car elle s'appuie sur des exemples de réalisations dans des domaines connexes (matériaux, Incendies). Mais la bibliographie de montre rien dans notre domaine
- ✓ Pour les matériaux énergétiques, il faut définir des règles plus complexes et réalistes pour vérifier :
 - I. Bilan d'énergie
 - II. Bilan des espèces
 - III. Condition de frontières
 - IV. Condition initiale (allumage)

Conclusions ...sur cette prospective

- ✓ La fin de cette présentation est une projection des travaux vers un futur proche (pour cette année)
- ✓ L'approche semble faisable car elle s'appuie sur des exemples de réalisations dans des domaines connexes (matériaux, Incendies). Mais la bibliographie de montre rien dans notre domaine
- ✓ Pour les matériaux énergétiques, il faut définir des règles plus complexes et réalistes pour vérifier :
 - I. Bilan d'énergie
 - II. Bilan des espèces
 - III. Condition de frontières
 - IV. Condition initiale (allumage)
- ✓ Ce travail sera fait de concert avec des automaticiens d'une autre équipe de Prisme mais aussi avec des spécialistes en analyse d'images.

Conclusions ...sur cette prospective

- ✓ La fin de cette présentation est une projection des travaux vers un futur proche (pour cette année)
 - ✓ L'approche semble faisable car elle s'appuie sur des exemples de réalisations dans des domaines connexes (matériaux, Incendies). Mais la bibliographie de montre rien dans notre domaine
 - ✓ Pour les matériaux énergétiques, il faut définir des règles plus complexes et réalistes pour vérifier :
 - I. Bilan d'énergie
 - II. Bilan des espèces
 - III. Condition de frontières
 - IV. Condition initiale (allumage)
 - ✓ Ce travail sera fait de concert avec des automaticiens d'une autre équipe de Prisme mais aussi avec des spécialistes en analyse d'images.
- ✓ *Merci de votre attention*