



HAL
open science

Modélisation de la combustion du gaz naturel par réseaux de réacteurs avec cinétique chimique détaillée

Vincent Fichet

► **To cite this version:**

Vincent Fichet. Modélisation de la combustion du gaz naturel par réseaux de réacteurs avec cinétique chimique détaillée. Modélisation et simulation. Ecole Centrale Paris, 2008. Français. NNT: . tel-00549790

HAL Id: tel-00549790

<https://theses.hal.science/tel-00549790>

Submitted on 22 Dec 2010

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

présentée par

Vincent FICHET

pour l'obtention du

GRADE de DOCTEUR

Formation doctorale : **Energétique**

Laboratoire d'accueil : **Laboratoire d'Energétique Moléculaire et Macroscopique,
Combustion (EM2C) du CNRS et de l'ECP**

Modélisation de la combustion du gaz naturel par réseaux de réacteurs avec cinétique chimique détaillée

Soutenue le 18 décembre 2008

Composition du jury :	MMe.	BAILLOT	Françoise	Présidente du Jury Rapporteuse
	MM.	CHAMPION	Michel	Rapporteur
		DARABIHA	Nasser	Examineur
		GICQUEL	Olivier	Directeur de thèse
		MEUNIER	Philippe	Examineur
		PLION	Pierre	Examineur

Remerciements

Ce mémoire s'inscrit dans le cadre d'une thèse CIFRE qui a été menée à EDF R&D au sein du département Mécanique des Fluides, Energies et Environnement (MFEE, I87). Fruit d'une collaboration avec le laboratoire d'Energétique Macroscopique, Moléculaire et Combustion (EM2C, UPR-288-CNRS) de l'Ecole Centrale Paris (ECP), ce travail a été soutenu par l'Association Nationale de la Recherche Technique (ANRT).

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à Nasser DARABIHA, directeur du laboratoire EM2C pour m'avoir intégré à son équipe de recherche et pour avoir suivi mon travail avec intérêt en tant que membre du jury. De même, je remercie Pascal MIALON, chef du département MFEE et Bruno CARLOTTI, chef du groupe Nouvelles Filières de Production et Thermochimie (NFPT - I87) de m'avoir accueilli dans leurs locaux et de m'avoir permis de réaliser cette thèse dans d'excellentes conditions de travail.

J'adresse mes plus sincères remerciements à mon directeur de thèse, Olivier GICQUEL, professeur à l'Ecole Centrale Paris et à mon tuteur industriel, Mohamed KANNICHE, ingénieur chercheur à EDF R&D, pour leur confiance, leurs judicieux conseils et leur grande disponibilité tout au long de la thèse.

J'exprime aussi ma gratitude à Françoise BAILLOT, professeur à l'université de Rouen, pour avoir présidé mon jury de thèse mais également pour la rigueur scientifique et l'engouement qui furent apportés à la lecture de mon mémoire. Cette même gratitude va à Michel CHAMPION, directeur du laboratoire de Combustion et Détonique (LCD, UPR 9028, ENSMA) à l'Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique (Poitiers) pour sa lecture enthousiaste et attentive.

Je remercie également Philippe MEUNIER, ingénieur chercheur à GDF-Suez pour avoir évalué mes travaux avec rigueur et intérêt en tant que membre du jury.

Je tiens à remercier tout particulièrement Pierre PLION, ingénieur chercheur à EDF R&D, pour son implication, son humanité et son expertise technique qui ont contribué à l'intégration directe de mes travaux de thèse dans les outils industriels d'EDF R&D.

Enfin, merci à tous les agents, thésards, stagiaires et prestataires d'EDF R&D ou de l'ECP que j'ai côtoyés durant ces 3 ans et qui ont éclairé ma vie de leur bonne humeur et de leur amitié. Je dirigerai en particulier ces remerciements vers Emmanuel THUNIN pour avoir partagé le bureau O226 dans une joie de vivre quotidienne et infatigable.

*"C'est la diversité, et non l'efficacité, qui est la condition sine qua non
d'une vie riche et créatrice",*

René Dubos, "Les dieux de l'écologie"

A ma famille

Table des matières

Introduction	5
I Combustion turbulente : physiques et modèles	11
1 Phénomènes physiques fondamentaux	13
1.1 Cinétique chimique et combustion	13
1.1.1 Eléments de cinétique	13
1.1.2 Physique des flammes non prémélangées	16
1.1.3 Physique des flammes prémélangées	17
1.1.4 Equations de l'aérothermochimie	18
1.2 La turbulence	19
1.3 Cinétique de formation des polluants (<i>NO</i> , <i>CO</i>)	21
1.3.1 Cinétique de formation du <i>NO</i>	21
1.3.2 Cinétique de formation du <i>CO</i>	24
2 Modélisation des physiques couplées	25
2.1 Problématique de combustion turbulente	25
2.1.1 Combustion-Turbulence : couplage et problèmes	25
2.1.2 Approches de modélisation de la combustion turbulente	27
2.1.3 Problématique de l'approche <i>RANS</i>	29
2.2 Modèles de fermeture actuels	30
2.2.1 Fermeture du terme de transport turbulent	30
2.2.2 Fermeture du terme source chimique moyen	35
2.3 Introduction d'une cinétique détaillée	47
2.3.1 Méthodes de réduction	47
2.3.2 Méthodes de tabulation	50
II Modélisation de la formation des polluants	53
3 Modélisation par réseaux de réacteurs	55
3.1 Principe de modélisation	55
3.2 Procédure de calcul	57

3.2.1	Calcul CFD RANS	58
3.2.2	Découpage en zones	59
3.2.3	Calcul RN (Reactor Network)	63
3.3	Analyse des modèles existants	65
3.3.1	Confrontation des champs CFD / CRN	65
3.3.2	Isothermicité des réacteurs 0D	66
3.3.3	Résolution numérique et prédictions de NO _x	67
3.3.4	Lacunes des modèles actuels - Objectifs de la thèse	68
4	Génération d'un réseau zonal	69
4.1	Calcul CFD : Code_Saturne	69
4.1.1	Description de Code_Saturne	69
4.1.2	Calcul CFD réactif : le modèle <i>LWP</i>	70
4.2	Découpage en zones statistiquement homogènes	77
4.2.1	Définition du critère découpage	77
4.2.2	Découpage dans l'espace chimique	77
4.2.3	Découpage dans l'espace physique	81
4.2.4	Représentation des zones à direction privilégiée	85
4.3	Définition de l'écoulement simplifié	87
4.3.1	Intégration de l'équation fondamentale	87
4.3.2	Représentation des flux convectifs	89
4.3.3	Représentation des flux diffusifs	90
5	Réseaux de réacteurs chimiques idéaux	93
5.1	Modèles de réacteurs chimiques	93
5.1.1	Le modèle de PSR (Perfectly Stirred Reactor)	93
5.1.2	Le modèle de PFR (Plug Flow Reactor)	96
5.1.3	Le modèle de PaSR (Partially Stirred Reactor)	97
5.2	Définition du CRN : Chemical Reactor Network	99
5.3	Résolution numérique du CRN	102
5.3.1	Résolution d'un PSR	102
5.3.2	Résolution du réseau complet (CRN)	105
6	Réseau de réacteurs turbulents	107
6.1	Introduction des fluctuations turbulentes	107
6.1.1	Problématique	107
6.1.2	Solutions proposées	109
6.1.3	Approche choisie	111
6.2	Tabulation de la cinétique pour <i>NO</i> et <i>CO</i>	112
6.2.1	Méthodes de tabulations existantes	112
6.2.2	Tabulation de l'équilibre chimique	115
6.2.3	Tabulation par calculs de Batch	120
6.2.4	Tabulation par calculs de PSR	125
6.3	Définition du TRN : Turbulent Reactor Network	132

6.3.1	Calcul des grandeurs turbulentes intra-réacteur	132
6.3.2	Définition des variables d'avancement	134
6.4	Résolution numérique du TRN	136
6.4.1	Résolution d'un réacteur turbulent	136
6.4.2	Résolution du réseau complet (TRN)	138
6.5	Introduction d'une distribution de temps de séjour	140
6.5.1	Problématique	140
6.5.2	Solution proposée et approche engagée	142
6.6	Résolution numérique du TRN à DTS	144
6.6.1	Résolution Monte-Carlo	144
6.6.2	Génération de nombres aléatoires	145
7	Amélioration du modèle CFD	149
7.1	Représentation des états turbulents	149
7.1.1	Amélioration de la <i>pdf</i> en $c z$	151
7.1.2	Amélioration de la <i>pdf</i> en z	156
7.1.3	Pdf complète $P(z, c)$	158
7.2	Formation des polluants dans Code_Saturne	163
8	Etudes par réseaux de réacteurs	165
8.1	Cas d'étude : Flamme M de Masri (Sandia)	165
8.1.1	Description du cas d'étude	165
8.1.2	Champs CFD et découpage	168
8.1.3	Validation de l'écoulement turbulent (calcul CFD)	169
8.1.4	Validation de l'écoulement turbulent (réseaux de réacteurs)	173
8.1.5	Predictions de NO et de CO (réseaux de réacteurs)	179
8.2	Description du cas d'étude : Tube à flamme industriel	181
8.2.1	Description du cas d'étude	181
8.2.2	Champs CFD et découpage	185
8.2.3	Validation des prédictions de NO et CO (réseaux de réacteurs)	186
8.2.4	Etude de sensibilité au temps de séjour (TRN)	191
8.2.5	Etude de sensibilité à l'hygrométrie (CRN)	192
8.2.6	Etude de sensibilité au combustible (CRN)	194
8.2.7	Etude de sensibilité à la charge (CRN)	196
9	Etude des nouveaux modèles CFD	201
9.1	Description du cas d'étude : Flamme COCORICO	201
9.2	Validation des nouveaux modèles (Flamme COCORICO)	205
9.2.1	Comparaison des nouveaux modèles	205
9.2.2	Confrontation du modèle <i>pdf4pz</i> aux mesures	211
9.3	Validation des nouveaux modèles (Tube à flamme)	216

Conclusion	221
Bibliographie	225
Annexes	235
A Distribution de Curl modifiée	235
B DTS des réacteurs chimiques	245
C Evolution de T dans un PSR	249
D Méthode des moindres carrés	251
E Récurrence des fonctions β	255
F Pdf triviale en z du modèle $pdfp3z$	259

Introduction

Le 2 Février 2007 est publié le quatrième et dernier rapport du GIEC (Groupe Intergouvernemental d'experts sur l'Evolution du Climat) auquel ont contribué plus de 2500 scientifiques et 130 pays. Selon ce rapport très controversé, la probabilité que le réchauffement climatique mondial soit d'origine anthropique est supérieure à 90%. Le forçage radiatif (effet de serre additionnel) en cause est lié à une augmentation massive de la concentration de dioxyde de carbone (CO_2), entre autres, dans l'atmosphère comme l'atteste l'évolution graphique présentée en figure 1.

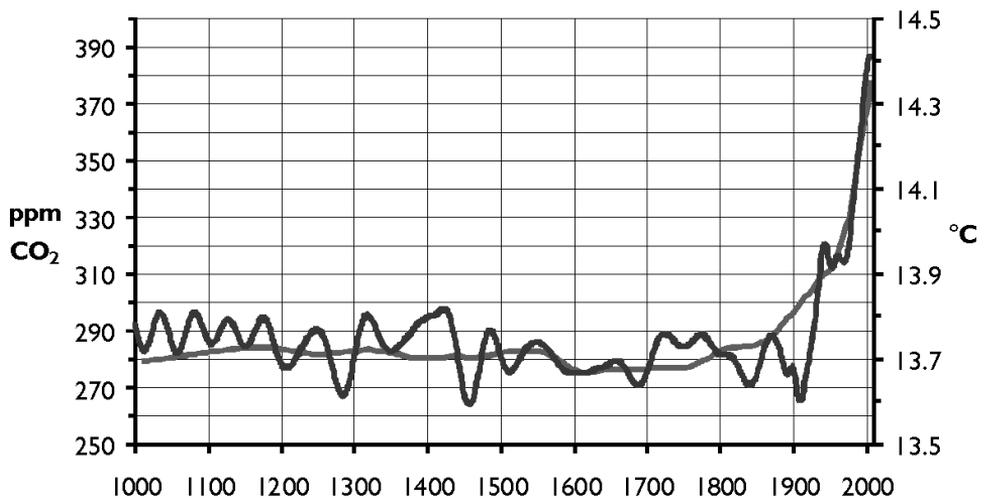


FIGURE 1 – Evolution de la température terrestre moyenne (courbe accidentée) donnée par Jones et Mann (2004) et de la concentration en dioxyde de carbone dans l'atmosphère (courbe lisse) proposée par Etheridge et al. (1998) et Jones et al. (2006) sur les 1000 dernières années. Source wikipédia, réchauffement climatique.

Les rejets anthropiques sont majoritairement issus de la combustion des énergies fossiles (composés chimiques carbonés) qui représentent encore aujourd'hui 85 % des ressources énergétiques employées pour assurer notre développement. La croissance de la demande mondiale en énergie impose de réduire notre consommation d'hydrocarbures afin de diminuer les émissions de CO_2 et d'amoindrir notre impact sur l'environnement.

Optimiser la combustion des hydrocarbures passe également par la réduction des molécules nocives qu'elle engendre. Parmi elles, on s'intéresse aux *oxydes d'azotes* (NO_x), capables d'altérer le fragile équilibre atmosphérique et au *monoxyde de carbone* (CO) qui peut quant à lui s'avérer mortel pour l'homme s'il est inhalé en grande quantité. La prise de conscience environnementale actuelle laisse fortement présager le durcissement des contraintes réglementaires portant sur ces émissions polluantes.

La directive n°2001/80/CE 2001 de la réglementation européenne, en vigueur depuis le 23/10/2001, limite les émissions de NO_x et de CO à **25 ppmvd**¹ pour les turbines à combustion terrestres (TAC) qui fonctionnent au gaz naturel. La D.R.I.R.E (Direction Régionale de l'Industrie, de la Recherche et de l'Environnement) dispose des moyens nécessaires au respect de ces seuils d'émissions par le biais de pénalités financières applicables aux sociétés d'exploitation.

De leur côté, les constructeurs de turbines à gaz ont opté pour une combustion fortement diluée par le comburant (air) afin de respecter les contraintes imposées en termes de puissance, de consommation et de pollution. Pour assurer cette dilution et stabiliser la flamme, la forme des foyers présente aujourd'hui une grande technicité (voir figure 2) et engendre des écoulements toujours plus complexes (swirls, injections multiples).

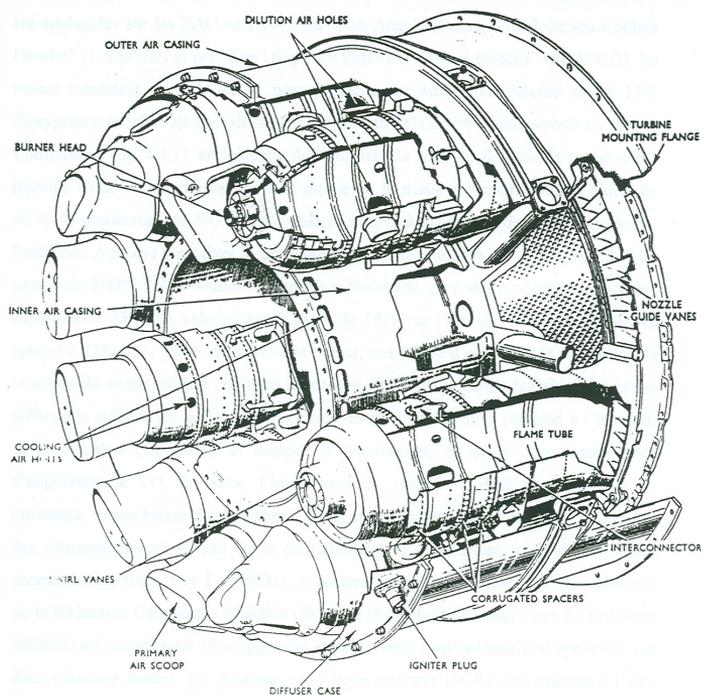


FIGURE 2 – *Chambre de combustion tubo-annulaire composée de 10 tubes à flamme placés en anneau autour de l'axe de la turbine (Singh, 1990, Von Karman Institute).*

1. parties par millions en volume sur sec, c'est-à-dire normalisées à 15 % d' O_2 dans les fumées

Toutefois, la variabilité des conditions ambiantes impose à l'exploitant d'optimiser ses réglages et le régime de fonctionnement de la TAC pour se conformer aux réglementations en vigueur dans la zone géographique d'implantation. Pour EDF, la problématique est donc de prédire la formation de ces polluants et d'adapter le fonctionnement de ses machines ("tuning") ou de les rénover ("retrofit") pour atteindre ces objectifs.

A moyen terme, cette thèse a donc pour objectif d'aider l'exploitant dans la prédiction des émissions polluantes et ses besoins opérationnels définissent les propriétés de l'outil numérique à développer :

1. Prédire avec précision la *formation des polluants* (notamment le *NO*),
2. Disposer d'un *temps de réponse rapide* (utilisation dynamique sur site),
3. Fournir *une méthodologie* applicable à différentes technologies de chambre de combustion (géométrie), à différentes compositions du combustible (gaz naturel) et à divers régimes de fonctionnement (charge de la TAC).

Remplir les objectifs définis dans ce cahier des charges requiert l'étude approfondie des physiques mises en jeu et le développement de modèles de combustion turbulente à cinétique chimique détaillée. Le travail présenté dans ce mémoire concerne donc le développement, la mise en oeuvre et la validation d'une modélisation de la combustion du gaz naturel apte à prédire la formation du *NO* et du *CO* dans les TAC.

Malgré le progrès des techniques expérimentales (méthodes de mesure non intrusives par diagnostic laser) et les avancées de la simulation numérique (machines massivement parallèles), mesurer ou simuler in situ la formation des polluants dans une configuration industrielle reste un challenge scientifique de haute volée.

Si l'expérience permet de valider les modèles proposés, la *simulation numérique* est l'unique voie de recherche qui est empruntée dans la thèse. Sa pertinence provient de la réduction des coûts de développement et de l'accès aux phénomènes locaux les plus complexes comme la formation des polluants.

Prédire numériquement la formation de ces espèces minoritaires² nécessite l'emploi d'une cinétique chimique détaillée. Pour disposer du taux de formation des polluants en chaque point de l'écoulement turbulent, on voudrait résoudre l'équation d'évolution de chaque espèce avec le solveur fluide. Toutefois, la localité des phénomènes chimiques (chocs inter-moléculaires) et les échelles temporelles associées ($10^{-9}s - 10^2s$) limitent un tel couplage. Les temps caractéristiques de l'écoulement turbulent ($10^{-5}s - 10^{-1}s$), moins étalés sur le spectre temporel, induisent deux limitations principales :

1. Si le solveur fluide emploie une méthode de résolution *implicite*, le vecteur solution sera obtenu en calculant l'inverse d'une matrice (jacobienne *J*) dont la taille est égale au carré du nombre d'équations à résoudre. En rajoutant la résolution de dizaines d'espèces (cinétique détaillée), on rend l'inversion de cette matrice trop onéreuse puisque la jacobienne devient démesurée avec ce surplus d'équations.

2. en faible quantité dans l'écoulement

2. Si le solveur fluide utilise une résolution *explicite*, le vecteur solution sera obtenu par une suite de calculs dont la convergence est assurée en limitant le pas de temps Δt associé. La raideur du schéma cinétique (dispersion des temps caractéristiques des réactions élémentaires) limite alors l'avancée de la résolution par le choix d'un pas de temps égal au plus petit temps chimique. Cette considération est également valable en implicite.

L'apparition de machines massivement parallèles et le développement de méthodes alternatives à la résolution directe de l'évolution des espèces portent néanmoins l'espoir d'une prédiction affinée des polluants pour le futur.

La *première partie* du mémoire présente donc un état de l'art des modèles physiques et numériques aptes à prédire la formation des polluants dans les TAC.

Elle introduit les fondements de la cinétique de combustion et de la turbulence, phénomènes physiques ayant une influence sur la formation des espèces minoritaires comme le *NO*. Vis-à-vis de la combustion laminaire, la cinétique de libération de la chaleur est ralentie ou accélérée par les fluctuations de vitesses de la turbulence. Ces changements affectent fortement les réactions de formation les plus lentes comme celle du *NO* à haute température. Le couplage de ces physiques dégage la problématique générale de la thèse liée aux problèmes de fermeture des modèles mathématiques pour la combustion turbulente. Le but est alors de définir des expressions pour les flux turbulents et les termes sources chimiques moyens.

Dans la littérature, le problème de fermeture est résolu moyennant certaines hypothèses simplificatrices sur la cinétique chimique. Les modèles EBU (Eddy Break Up) de Spalding (1971) et BML (Bray Moss Libby) de Moss et al. (1977) supposent une vitesse de réaction infinie. Par la mise à l'équilibre d'une partie du schéma, on peut également conserver les cinétiques lentes en vue de l'interaction avec l'écoulement comme le propose la méthode ILDM de Maas et Pope (1992a). Une approche prometteuse consiste à représenter l'état cinétique étudié par une superposition de calculs à chimie détaillée mais pour des configurations simples, c'est l'essence des méthodes FPI de Gicquel (1999) ou FGM de Oijen et al. (2001). Toutefois, dans le cadre de la prédiction des polluants, d'autres approches proposent de conserver le détail de la cinétique chimique et d'appliquer les hypothèses simplificatrices à l'écoulement afin de le dégénérer en un réseau de réacteurs chimiques.

La *seconde partie* du mémoire est dédiée à la modélisation par réseaux de réacteurs à chimie détaillée qui forme le corps du travail de thèse.

Dans cette approche, on conserve une description détaillée de la cinétique chimique pour prédire avec précision la formation des *NOx*. La méthodologie qui permet de dégénérer l'écoulement turbulent en un réseau de réacteurs 0D est une procédure à deux temps : un calcul CFD (Computational Fluid Dynamics) préalable est réalisé. Dans un

second temps, on utilise un algorithme de post-traitement pour engendrer un réseau zonal. L'utilisation d'un critère de découpage à la fois chimique et physique permet de délimiter des zones de l'écoulement considérées alors comme homogènes (0D). Les flux de masses aux frontières de ces zones sont calculés de manière à conserver la topologie globale de l'écoulement (reproduction de champs moyens).

L'association de chacune de ces zones à un réacteur chimique parfaitement prémélangé (Perfectly Stirred Reactor, PSR) incluant une cinétique détaillée permet de constituer un réseau de réacteurs chimiques idéaux modélisant l'écoulement réactif dans la chambre de combustion. La définition de ce réseau et son algorithme de résolution itératif sont ensuite décrits. Les lacunes de modélisation du réseau de réacteurs parfaitement prémélangés conduisent à l'introduction de la turbulence dans chaque réacteur. Pour rendre compte de l'interaction turbulence / cinétique détaillée, on emploie une méthode de tabulation associée à une densité de probabilité qui est définie pour chaque réacteur à partir des grandeurs turbulentes moyennes. Cette approche novatrice pour la modélisation par réseau de réacteurs induit également de faibles temps de calcul qui permettent d'envisager la prise en compte d'une distribution de temps de séjour dans chaque réacteur. L'introduction de cette dépendance physique et sa résolution par une méthode Monte-Carlo achèvent la modélisation par réseaux de réacteurs. On propose enfin une amélioration du modèle de combustion turbulente pour le calcul CFD.

Pour valider les modèles, le cas académique d'une flamme de diffusion turbulente est tout d'abord testé pour sa simplicité (maillage 2D axisymétrique, écoulement de jet avec couche de mélange). Les champs les plus représentatifs du mélange ou de la réaction chimique globale pour le calcul CFD sont confrontés aux résultats des réseaux de réacteurs. Enfin, les champs de CO et de NO sont présentés et analysés pour mettre en avant les éventuelles lacunes des modèles construits. L'étude du cas industriel d'un tube à flamme de TAC est ensuite présentée pour évaluer les capacités prédictives des modèles sur une configuration réelle. Après confrontation des champs pertinents pour le calcul CFD et les réseaux de réacteurs, on compare les émissions de NO_x prédites avec les mesures réalisées sur site. Grâce à ces approches de réseaux de réacteurs, l'influence de la distribution des temps de séjour, de l'hygrométrie, de la composition du combustible et de la charge est ensuite analysée.

Les nouveaux modèles de combustion proposés pour le calcul CFD sont validés par l'expérience sur une seconde flamme méthane-air liftée sans injection de gaz brûlés. Enfin, on évalue l'impact de ces nouveaux modèles CFD sur l'écoulement dans le tube à flamme industriel et on confronte les émissions de NO_x prédites par le calcul sans réseaux de réacteurs aux mesures sur site.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre d'une convention CIFRE, collaboration entre le département de Mécanique des Fluides, Energies et Environnement (MFEE) d'EDF R&D et le laboratoire d'Energétique Macroscopique et Moléculaire, Combustion (EM2C, UPR-288-CNRS) de l'Ecole Centrale Paris.

Première partie

**Combustion turbulente : physiques
et modèles**

Chapitre 1

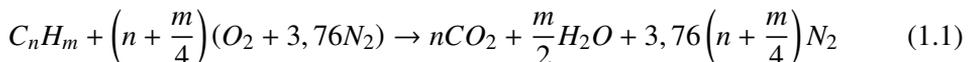
Phénomènes physiques fondamentaux

1.1 Cinétique chimique et combustion

1.1.1 Éléments de cinétique

Darabiha (1999) définit la combustion comme l'évolution irréversible d'un mélange réactif vers son état d'équilibre. Cette évolution est un *ensemble de réactions chimiques* (collisions moléculaires efficaces) décrivant au final l'oxydation d'un combustible (hydrocarbure) par un comburant ou oxydant (dioxygène de l'air).

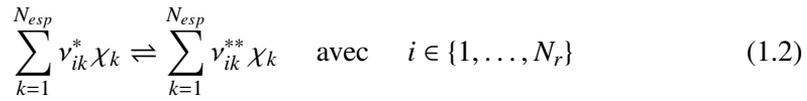
Ce processus forme majoritairement de l'eau (H_2O) et du dioxyde de carbone (CO_2). La libération des énergies de liaisons associées rend l'oxydation très exothermique : de 40 à 50 MJ / kg de combustible en moyenne pour les hydrocarbures. Si l'on s'intéresse à l'état final à l'équilibre, on peut donc décrire la combustion du point de vue thermodynamique en la traitant comme une réaction globale, unique et irréversible. A pression constante, un bilan enthalpique permet de calculer la chaleur de réaction dégagée par différence des enthalpies de formation entre produits et réactifs. L'oxydation stoechiométrique d'un hydrocarbure C_nH_m par l'oxygène O_2 de l'air (contenu classiquement à 21% en volume) s'écrirait alors :



Toutefois, cette description simpliste ne permet pas d'expliquer la formation des polluants. Seule une analyse approfondie du mécanisme réactionnel détaillé y donne accès. La taille de ce mécanisme est fonction du nombre d'éléments atomiques (C, H, O, N) contenus dans les réactifs. Le nombre de carbone du combustible multiplie les combinaisons possibles et diversifie les molécules créées. La combustion du méthane fait déjà intervenir plusieurs dizaines d'espèces dans des centaines de réactions.

L'évolution du milieu réactif débute par des *réactions d'initiation* qui sont activées suite à un apport local d'énergie (allumage) où l'élévation de température augmente la probabilité de collision des molécules. Pour les hydrocarbures, ces réactions commencent par l'ablation des atomes d'hydrogène qui enclenche l'évolution du système $H_2 - O_2$, à la base de la plupart des mécanismes réactionnels détaillés. A l'aide d'un partenaire collisionnel quelconque, ces réactions engendrent l'apparition de *radicaux* aptes à dégrader les réactifs initiaux puisqu'ils sont dotés de centres actifs. Ces radicaux (OH , CH) évoluent soit par propagation de chaînes (conservation du nombre de centres actifs) soit par ramification (augmentation du nombre de centres actifs). Ces réactions en chaîne, rapides et souvent endothermiques, finissent par stopper la multiplication des centres actifs. La durée de vie des radicaux formés est alors limitée par la cinétique des *réactions de recombinaison*. Généralement plus lentes mais très exothermiques, ces réactions sont à l'origine des produits de combustion finaux (CO_2 , H_2O). Lorsque toutes ces réactions chimiques dites élémentaires sont terminées, on dit que le système a atteint l'état d'*équilibre chimique*.

En notant respectivement v_{ik}^* et v_{ik}^{**} , le nombre de moles de la $k^{\text{ième}}$ espèce χ_k dans les réactifs et dans les produits de la $i^{\text{ième}}$ réaction, on écrit de manière générale les N_r réactions élémentaires réversibles du mécanisme complet sous la forme :



Au sein de cet ensemble réactionnel, les vitesses de réaction q_i s'étalent sur un large spectre temporel. La forte dispersion de temps caractéristiques chimiques $\tau_{c,i}$ est appelée "*raideur*" du schéma cinétique. La théorie cinétique des gaz de Maxwell permet d'explicitier la vitesse q_i selon la *molécularité* de la réaction (nombre de molécules intervenant dans la réaction) :

- Les réactions *bimoléculaires* du type $A+B \rightleftharpoons C$ sont rapides (le temps caractéristique de consommation du réactant minoritaire est en moyenne de 1 à 100 μs). On écrit :

$$q_i = k_{i,f} \prod_{k=1}^{N_{esp}} C_k^{v_{ik}^*} - k_{i,b} \prod_{k=1}^{N_{esp}} C_k^{v_{ik}^{**}} \quad (1.3)$$

- Les réactions *trimoléculaires* du type $D+E+M \rightleftharpoons F+M$ avec M , agent collisionnel, sont plus lentes (en moyenne 1 à 100 ms) :

$$q_i = \left(\sum_{k=1}^{N_{esp}} \zeta_{ik} C_k \right) \left[k_{i,f} \prod_{k=1}^{N_{esp}} C_k^{v_{ik}^*} - k_{i,b} \prod_{k=1}^{N_{esp}} C_k^{v_{ik}^{**}} \right] \quad (1.4)$$

On note C_k , la concentration de la $k^{\text{ième}}$ espèce, $k_{i,f}$, la constante de réaction directe (*forward*) et $k_{i,b}$, la constante de réaction inverse (*backward*). Les réactions trimoléculaires incluent en plus un coefficient limitant noté ζ_{ik} . La définition des vitesses de réactions q_i repose sur de nombreux phénomènes physiques.

La réversibilité de la réaction est tout d'abord exposée par la différence des deux termes antagonistes. Chaque terme contient ensuite la *loi d'action de masse* par le produit des concentrations des espèces mises en jeu. Les constantes de réaction $k_{i,f}$ en sens direct et $k_{i,b}$ en sens inverse incluent les notions d'efficacité collisionnelle (section efficace de collision, angle optimal de choc, vitesse de translation permettant au choc de dépasser le seuil énergétique nécessaire à la modification de la liaison atomique). Ces notions sont regroupées dans l'expression empirique des constantes k_i donnée par la *loi d'Arrhénius* généralisée. En effet, si T est la température du milieu et R la constante universelle des gaz parfaits, A , B et l'énergie d'activation, E_a sont à déterminer pour chaque réaction i et donnent :

$$k_i = A_i T^{B_i} \exp\left(-\frac{E_{a,i}}{RT}\right) \quad (1.5)$$

La présence du coefficient $\sum_k \zeta_{ik} C_k$ dans l'expression de la vitesse q_i des réactions trimoléculaires permet d'illustrer leur célérité réduite. Il est incorrect d'imaginer une réaction trimoléculaire comme le choc de 3 molécules réunies au même instant en un point de l'espace. En réalité, ce sont plutôt deux collisions successives s'effectuant dans un faible laps de temps. Le premier choc crée une molécule dans un état excité¹, le second doit se produire avant la désexcitation pour la transformer en une autre molécule. La somme des concentrations de toutes les espèces pondérées par leur efficacité collisionnelle en tant que troisième corps traduit la probabilité de trouver rapidement un partenaire collisionnel après excitation de la molécule par le premier choc.

Les vitesses de formation et de destruction de chaque espèce χ_k permettent de calculer le *taux de réaction* $\dot{\omega}_k$, ici en $\text{mole.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$. Cette grandeur intègre la contribution cumulée des N_r réactions dans la formation ou la destruction de l'espèce χ_k et s'écrit :

$$\dot{\omega}_k = \sum_{i=1}^{N_r} \nu_{ik} q_i \quad \text{avec} \quad \nu_{ik} = \nu_{ik}^{**} - \nu_{ik}^* \quad (1.6)$$

La non-linéarité du taux de réaction vis-à-vis des concentrations (dépendance globalement quadratique due à la loi d'action de masse) et surtout de la température (dépendance exponentielle de la loi d'Arrhénius) induit une libération de chaleur à la fois rapide et locale. Toutefois, la cinétique chimique à l'origine du taux de dégagement de chaleur (taux de réaction) ne peut résumer la combustion qui est une interaction avec des physiques multiples. Les transferts de masse et de chaleur par l'écoulement en sont les premiers acteurs et assurent l'existence de la combustion, si bien qu'elle est souvent qualifiée d'*aérothermochimie*.

En effet, la réaction chimique doit être entretenue et ne peut subsister sans l'apport continu de réactifs par l'écoulement. Suivant la manière dont les réactifs sont apportés, on distingue deux limites pour les flammes académiques (Veynante, 2006).

1. la molécule stocke provisoirement l'énergie dans ses niveaux vibrationnels

1.1.2 Physique des flammes non prémélangées

Dans les flammes non prémélangées, le combustible et l'oxydant sont initialement séparés avant de se rejoindre pour réagir. La diffusion moléculaire transporte le combustible vers l'oxydant et vice versa. Il existe ainsi une zone de l'espace où le mélange est stoechiométrique et où le dégagement de chaleur est le plus fort : c'est le lieu où se positionnera la flamme si la température locale est suffisante. Le taux de réaction chimique s'équilibre alors avec l'inter-diffusion des réactifs qui à la fois supporte et limite l'apport en gaz frais. La structure des "flammes de diffusion" est illustrée en figure 1.1 avec l'exemple d'une flamme de bougie en paraffine.

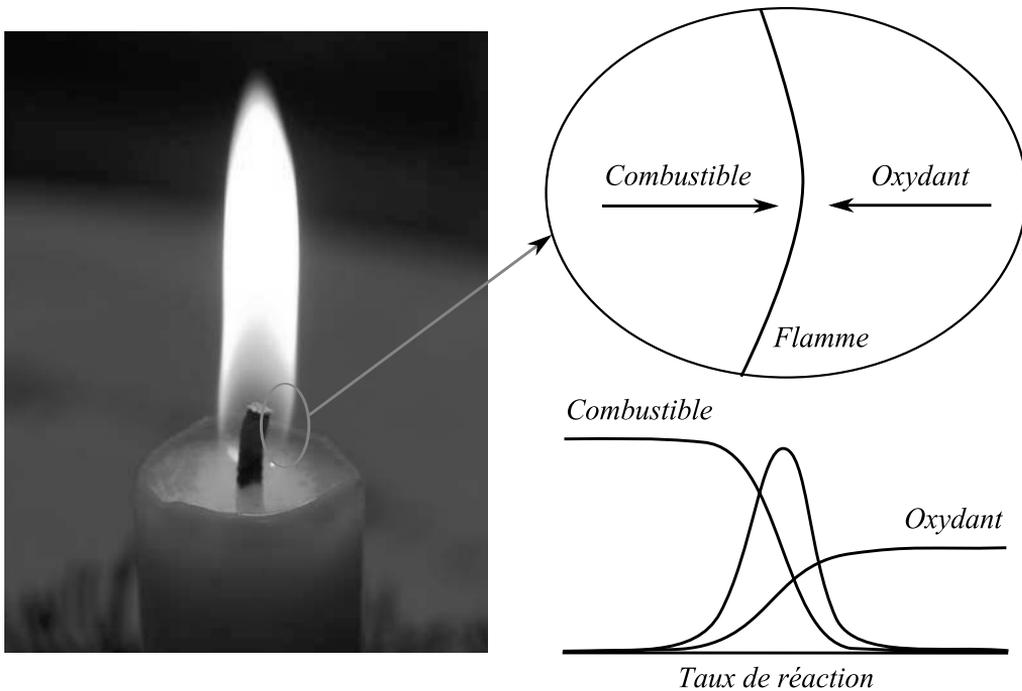


FIGURE 1.1 – Structure des flammes de diffusion (ex : flamme de bougie en paraffine)

Une flamme non prémélangée ne possède pas de dynamique propre et est entièrement déterminée par la position de la ligne stoechiométrique. Les vitesses de diffusion des réactifs et de la chaleur caractérisent son épaisseur. A travers ces propriétés, il est possible de localiser la flamme en suivant l'évolution d'une variable passive, simplement convectée et diffusée par l'écoulement. En modélisation, on définit dès lors un scalaire passif normalisé appelé *fraction de mélange*, noté z , qui décrit le *mélange entre le combustible et l'oxydant*. On impose $z = 0$ dans l'oxydant pur, $z = 1$ dans le combustible pur et on a $z = z_{st}$ à la stoechiométrie. Cette grandeur est liée à la richesse (en combustible) du mélange réactif, notée ϕ qui vaut 1 à la stoechiométrie :

$$\phi = s \frac{z}{1 - z} \quad \text{avec} \quad s = \frac{1 - z_{st}}{z_{st}} \quad (1.7)$$

1.1.3 Physique des flammes prémélangées

Dans les flammes prémélangées, le combustible et l'oxydant sont initialement mélangés, idéalement jusqu'à l'échelle moléculaire, avant de réagir. Après allumage, la flamme se propage en direction des gaz frais avec une vitesse caractéristique qui dépend principalement de la richesse ϕ , de la température et de la pression du mélange réactif. Cette propagation est issue de la diffusion de chaleur en amont du front de flamme qui préchauffe les réactifs et enclenche les réactions chimiques. Le taux de réaction s'équilibre avec la vitesse d'arrivée des réactifs sur le front de flamme par convection ou diffusion. La structure des "flammes prémélangées" est illustrée en figure 1.2 par l'exemple de 3 flammes de bec Bunsen (virole ouverte) dont la richesse décroît de gauche à droite.

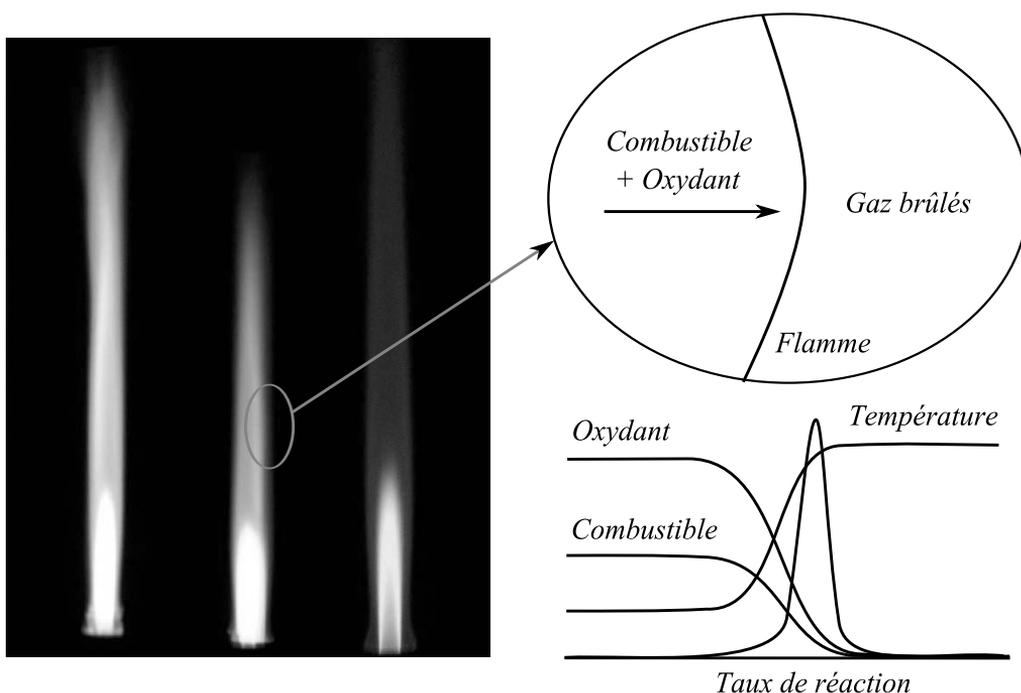


FIGURE 1.2 – Structure des flammes prémélangées (ex : flammes de bec bunsen)

Une flamme prémélangée possède une dynamique propre qui peut être contrôlée (température, vitesse de propagation ...) par la richesse ϕ du mélange. La figure 1.2 montre ainsi 3 flammes dont la richesse décroît de gauche à droite. En restant dans les limites d'inflammabilité du mélange réactif, il est possible de localiser la flamme par l'avancement de la réaction globale qui transforme les réactifs en produits à travers la flamme. En modélisation, on définit dès lors un scalaire réactif normalisé appelé *avancement*, noté c , qui décrit l'*avancée de la réaction globale entre le combustible et l'oxydant*. On impose $c = 0$ dans les réactifs et $c = 1$ dans les gaz parfaitement brûlés (fin de réaction). Cette grandeur, nécessairement monotone à la traversée de la flamme, possède diverses définitions qui seront abordées plus loin.

1.1.4 Equations de l'aérothermochimie

En raison de la physique qu'elle inclut, la combustion est modélisée par un système d'équations traitant le couplage entre l'évolution de la masse m , de la quantité de mouvement $\rho \underline{u}$, de l'énergie (enthalpie totale h_t) et des fractions massiques Y_k des espèces chimiques (Williams, 1985). L'équation fondamentale de l'aérothermochimie (Barrère et Prud'homme, 1973) pour un scalaire intensif g , réactif ou non, permet de regrouper ces équations sous la forme tensorielle suivante :

$$\frac{\partial(\rho g)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \underline{u} g) = -\nabla \cdot (\underline{J}_g) + \dot{\omega}_g \quad (1.8)$$

$$g = \begin{pmatrix} 1 \\ \underline{u} \\ Y_k \\ h_t \end{pmatrix} \quad \underline{J}_g = \begin{pmatrix} 0 \\ p\underline{I} - \underline{\underline{\tau}} \\ -\rho \underline{D}_k \nabla Y_k \\ \underline{q} - \underline{\underline{\tau}} \underline{u} \end{pmatrix} \quad \dot{\omega}_g = \begin{pmatrix} 0 \\ \rho \underline{f} \\ M_k \sum_{i=1}^{N_r} \nu_{ik} q_i \\ \frac{\partial(p)}{\partial t} + \rho \underline{u} \cdot \underline{f} + r \end{pmatrix}$$

L'expression des flux diffusifs \underline{J}_g incorpore les hypothèses classiques de modélisation :

- Une *loi de comportement newtonienne* pour le fluide visqueux avec p , la pression totale et $\underline{\underline{\tau}}$, le tenseur des contraintes visqueuses où \underline{D} est la partie symétrique de $\nabla \underline{u}$, μ , la viscosité moléculaire et $\eta = -2\mu/3$ (hypothèse de Stokes, relation de Lamé).
- Une *loi de Fick* pour la diffusion moléculaire des espèces avec D_k , le coefficient de diffusion binaire de l'espèce χ_k et ρ , la masse volumique.
- Une *loi de Fourier* (nombre de *Schmidt unitaire*) comme première contribution à la diffusion thermique, l'autre provenant de la diffusion des espèces (nombre de *Lewis unitaire*). La baro-diffusion et l'effet Soret sont négligés.

$$\text{Soit : } \underline{\underline{\tau}} = \eta (\nabla \cdot \underline{u}) \underline{I} + 2\mu \underline{D} \quad \text{et} \quad \underline{q} = -\lambda \nabla T - \sum_{k=1}^{N_{esp}} \rho D_k \nabla Y_k h_k \quad (1.9)$$

L'expression des termes sources $\dot{\omega}_g$ présente quant à elle :

- Les forces volumiques internes \underline{f} (gravité, électromagnétisme ...).
- Le taux de réaction chimique $\dot{\omega}_k$, présenté précédemment, ici pondéré par la masse molaire M_k pour être en $kg.s^{-1}$.
- Le terme source énergétique issu du travail des forces extérieures $\underline{u} \cdot \underline{f}$, du rayonnement thermique r et des éventuels chocs aérodynamiques $\partial(p)/\partial t$.

Toutefois, dans le cadre de cette thèse, nous négligeons en plus :

- Le rayonnement thermique r (faible présence de particules émissives telles que les suies) et le travail des forces extérieures $\underline{u} \cdot \underline{f}$ (phase gazeuse).
- Le terme $\partial(p)/\partial t$ et le terme $\underline{\underline{\tau}} \underline{u}$, lié à l'échauffement par frottement moléculaire, significatif seulement aux vitesses hypersoniques. Ainsi, en raison du faible nombre de Mach de l'écoulement ($Ma^2 \ll 1$), on assume l'hypothèse de *flames quasi isobares*.

1.2 La turbulence

Chassaing (2000) définit la turbulence comme l'état d'un fluide visqueux ayant dépassé le seuil d'énergie cinétique nécessaire à la décohésion des filets fluides (perte du caractère laminaire). En effet, aux faibles vitesses, la viscosité moléculaire du fluide amortit les petites perturbations au sein du fluide qui conserve un caractère laminaire ordonné. Si le fluide accélère, les gradients de vitesse augmentent et les mécanismes d'instabilités de Kelvin-Helmholtz (enroulement en structures tourbillonnaires) et de Rayleigh-Taylor amplifient de manière non-linéaire ces petites perturbations qui finissent par affecter l'ensemble de l'écoulement et le font passer à l'état turbulent.

La turbulence présente un comportement chaotique (peu prévisible), tridimensionnel (perte des symétries existantes) et instable (fortes fluctuations avec le temps). Au sein du large spectre spatial et temporel de la turbulence, on peut établir une hiérarchie des structures tourbillonnaires en considérant l'énergie qu'elles possèdent :

1. L'échelle *macroscopique* : Elle est associée aux grandes structures anisotropes de l'advection moyenne qui suivent les directions privilégiées imposées par la géométrie. Elle porte la quasi-totalité de l'énergie cinétique turbulente.
2. L'échelle de *Taylor* : Elle est associée aux échelles intermédiaires de l'écoulement qui transfèrent l'énergie vers les plus petites structures par un mécanisme d'étirement / compression du fluide qui réduit l'anisotropie initiale.
3. L'échelle de *Kolmogorov* : Elle est associée aux plus petites structures isotropes où la viscosité moléculaire intervient et finit par dissiper l'énergie tourbillonnaire résiduelle en chaleur.

Proposée par Kolmogorov (1941), cette notion de cascade d'énergie est représentée par l'évolution de l'énergie dans le spectre des vecteurs d'onde \vec{k} en (*rad/m*) de longueur d'onde $l = 2\pi/||\vec{k}||$. La turbulence est traitée comme un ensemble de structures tourbillonnaires s'étalant sur un large spectre de fréquence (assimilable à la fréquence de rotation des tourbillons). On observe alors que l'énergie est produite aux faibles nombres d'onde (gros tourbillons) et dissipée aux grands nombres d'onde (petits tourbillons).

La densité spectrale d'énergie s'exprime à l'aide du spectre de vecteur d'onde $\phi_{ij}(\vec{k}, \vec{x}, t)$ qui est l'équivalent spectral des corrélations spatiales $r_{ij}(\vec{r}, \vec{x}, t)$ avec \vec{r} le vecteur rayon et \vec{x} le vecteur position (Pope, 2000). En utilisant un opérateur de moyenne (temporel ou arithmétique) noté $\langle . \rangle$, on écrit au point $M(\vec{x}, t)$:

$$\phi_{ij}(\vec{k}, \vec{x}, t) = \frac{1}{(2\pi)^3} \iiint_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}} r_{ij}(\vec{r}, \vec{x}, t) dr_1 dr_2 dr_3 \quad (1.10)$$

$$r_{ij}(\vec{r}, \vec{x}, t) = \langle u_i(\vec{x}, t) . u_j(\vec{x} + \vec{r}, t) \rangle \quad (1.11)$$

En supprimant le décalage spatial ($\|\vec{r}\| = 0$) de ces corrélations de vitesses, on retrouve les corrélations classiques :

$$\langle u_i(t) . u_j(t) \rangle = r_{ij}(\vec{0}, t) = \iiint_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}} \phi_{ij}(\vec{k}, \vec{x}, t) d\kappa_1 d\kappa_2 d\kappa_3 \quad (1.12)$$

Ainsi, on comprend $\phi_{ij}(\vec{k}, t)$ comme la contribution des modes du vecteur d'onde \vec{k} à la covariance $\widetilde{u_i'' u_j''}$. Dès lors, l'énergie des tourbillons par gamme de nombre d'onde est le spectre d'énergie $E(\vec{k}, t)$ qui se définit par intégration sur une sphère (perte de l'information directionnelle) :

$$E(\kappa, t) = \frac{1}{2} \iiint_{-\infty}^{+\infty} \phi_{ii}(\vec{k}, t) \delta(\|\vec{k}\| - \kappa) d\kappa_1 d\kappa_2 d\kappa_3 \quad (1.13)$$

Enfin, après intégration sur l'ensemble du spectre fréquentiel de la turbulence (sur tous les nombres d'ondes), on retrouve l'énergie cinétique notée $k = \langle u_i . u_i \rangle / 2$ par :

$$\int_0^{\infty} E(\kappa, t) d\kappa = k \quad (1.14)$$

En traçant l'évolution de cette grandeur $E(\kappa, t)$, on illustre la cascade d'énergie de Kolmogorov dans le domaine spectral des nombres d'ondes (voir schéma en figure 1.3).

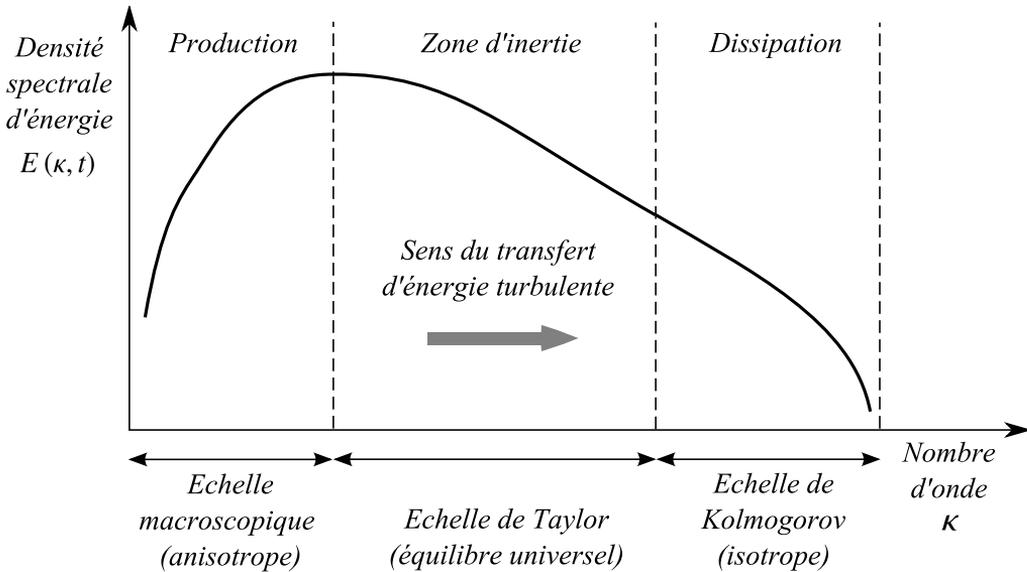


FIGURE 1.3 – Cascade d'énergie turbulente de Kolmogorov

En régime établi, l'énergie turbulente produite aux faibles nombres d'onde (gros tourbillons anisotropes) est transférée de proche en proche aux grands nombres d'onde (petits tourbillons) en "isotropisant" progressivement la turbulence initiale. Enfin, lorsque l'échelle des structures tourbillonnaires atteint celle de Kolmogorov, la viscosité dissipe de manière irréversible l'énergie cinétique en chaleur.

1.3 Cinétique de formation des polluants (NO , CO)

1.3.1 Cinétique de formation du NO

Le NO est le composant principal des oxydes d'azote (NO_x) qui regroupent également le NO_2 et le protoxyde d'azote N_2O (gaz à effet de serre). Les oxydes d'azote sont odorants, toxiques à faible dose (irritation des muqueuses pour des teneurs volumiques dépassant 0,0013%) et peuvent s'associer à l'eau pour former de l'acide nitrique (HNO_3), notamment responsable des pluies acides. De plus, les oxydes d'azote perturbent l'équilibre atmosphérique (Pauwels, 2006). Ils forment de l'ozone ("smog") dans la troposphère (10 km à 15 km, $T \approx 220K$) par des réactions photochimiques et participent à la destruction de la couche d'ozone stratosphérique (15 km à 50 km, $T \geq 270K$). Les NO_x créent donc de l'ozone (O_3) où il n'en faut pas et le détruisent là où il est nécessaire.

Lors de la combustion des hydrocarbures, l'oxyde d'azote (NO) est formé par 3 mécanismes principaux comme l'illustre le schéma de la figure 1.4 :

- Le mécanisme de *Zel'dovich* formant du " NO Thermique"
- Le mécanisme de *Fenimore* formant du " NO Précoce"
- Le mécanisme formant du " $Fuel$ NO "

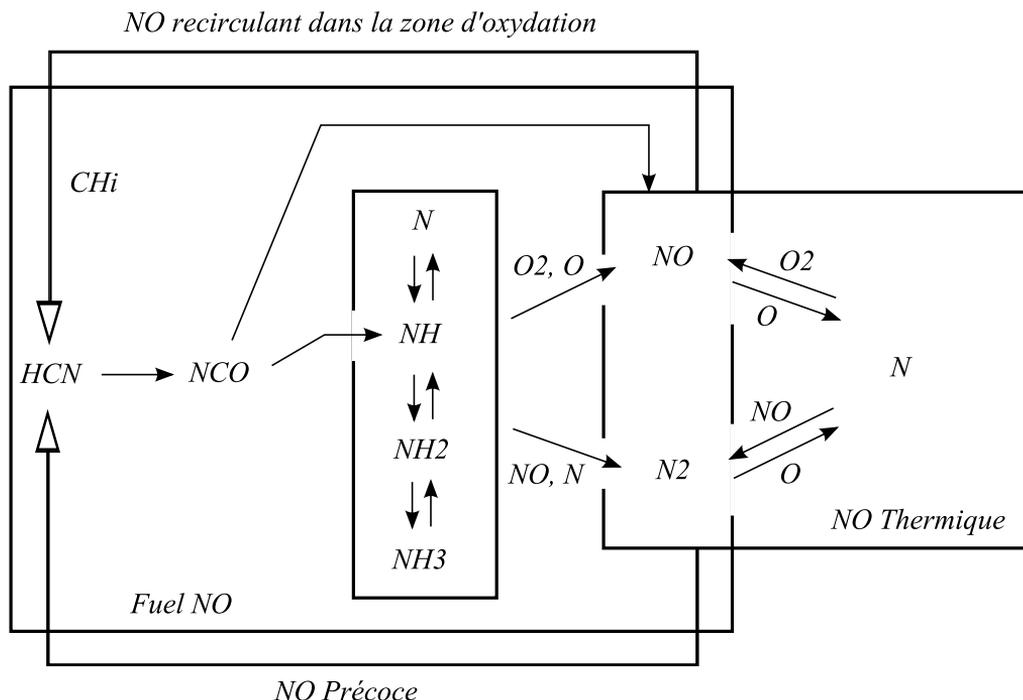


FIGURE 1.4 – Principaux mécanismes de formation du NO , inspiré de De Soete (1989)

NO thermique

Initialement composé de 2 réactions, le mécanisme de Zel'dovich et al. (1947) comporte aujourd'hui une formulation étendue à 3 réactions :



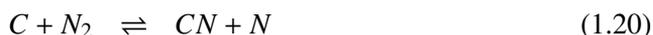
La première réaction présente une haute énergie d'activation (322 kJ/mol) qui traduit la nécessité de rompre la triple liaison du N_2 ayant une énergie de 950 kJ/mol . Cette réaction, cinétiquement limitante, induit une dépendance exponentielle du mécanisme à la température. Ainsi, le mécanisme du NO thermique ne devient efficace qu'à partir de 1800 K et impose un temps caractéristique de formation relativement long. Dès lors, le NO continue à évoluer hors du front de flamme, bien après que les autres composés (H_2O , O_2 , O et OH) aient atteint leur valeur d'équilibre. En formulant une hypothèse de *quasi-stationnarité* sur le radical N (réactions de consommation très rapides devant les réactions de production), on peut négliger les réactions inverses et écrire simplement :

$$\frac{dC_{NO}}{dt} = 2k_{f1}C_O^{eq}C_{N_2}^{eq} \quad (1.18)$$

Cette formulation, bien que simplifiée, met en avant l'influence de la concentration en atomes d'oxygène C_O dans le mécanisme de Zel'dovich qui sera favorisé par l'excès évanescents des radicaux O et OH par rapport à l'équilibre². Les gaz brûlés issus d'une combustion pauvre (*abondance d'atomes d'oxygène*) mais proche de la stoechiométrie (*hautes températures*) seront les lieux de formation du NO thermique. Un *temps de séjour long* (ex : stagnation dans une zone de recirculation) sera également nécessaire à la croissance du NO .

NO précoce

Essentiellement lié à la combustion d'hydrocarbures avec l'air, le mécanisme de Fenimore (1971) représente la proportion de NO formé dans la zone active des flammes, là où le NO thermique n'a pas encore eu le temps de se former, ce qui explique son nom. L'attaque de N_2 par des radicaux CH , C (essentiellement) et CH_2 initie le mécanisme en formant HCN et CN :



Les radicaux CH_i et C , initiateurs du mécanisme, sont majoritairement produits dans les *flammes riches*. Ils provoquent l'apparition d'un excès de HCN qui est successivement

2. la relative lenteur des réactions de recombinaison pour les radicaux oxydants limite la relaxation des valeurs en excès vers l'équilibre

transformé en NCO ou $HNCO$ pour former NH_i et enfin NO par des chemins cinétiques nombreux et complexes. La quantité de NO engendrée par cette voie est faible comparée aux valeurs de NO produites par le mécanisme de Zel'dovich et al.. Cependant, les radicaux CH_i sont capables de rompre la triple liaison de N_2 par des réactions moins endothermiques que la réaction $N_2 + O \rightleftharpoons NO + N$ et leur faible énergie d'activation permet la formation du NO à plus basse température ($T \approx 1000 K$). Ces réactions sont par ailleurs bien plus *rapides* que leurs homologues formant du NO thermique. Il est à noter que les 2 mécanismes (NO thermique et NO précoce) sont couplés comme l'illustre la réaction inverse suivante, détruisant le NO précoce pour recréer du N_2 :



Fuel NO

Certains hydrocarbures contiennent de l'azote (d'origine organique) dans leur structure élémentaire. Le charbon, fortement utilisé dans les centrales thermiques, contient par exemple jusqu'à 2% en masse d'azote lié. La pyrolyse du combustible forme rapidement des espèces intermédiaires azotées NH_i et cyanurées CN , HCN par un mécanisme très complexe qui passe alors le relais au mécanisme du NO précoce. Le NO combustible est prépondérant dans la zone réactionnelle de la flamme et sa vitesse de formation est comparable à celle du NO thermique. Favorisée par les radicaux O , OH et par O_2 , la formation de NO est ici faiblement dépendante de la température.

La gaz naturel est un mélange gazeux contenant parfois du diazote N_2 mais il n'inclut pas d'azote d'origine organique. Ainsi, le mécanisme du *Fuel NO* n'interviendra pas dans notre cas d'étude. Toutefois, pour la combustion globalement pauvre du gaz naturel dans les chambres de combustion de TAC, un mécanisme supplémentaire de formation du NO par l'intermédiaire du N_2O peut exister.

NO formé par l'intermédiaire de N_2O et de NNH

Ce mécanisme de formation dit d'*oxyde nitrique* N_2O devient important pour une combustion très pauvre, à forte pression (réaction trimoléculaire) et à faible température (ex : combustion catalytique, MILD). Il comporte 3 réactions créant du protoxyde d'azote N_2O qui sera ensuite attaqué par O ou H pour former du NO :



Le mécanisme de formation de NO par NNH est le dernier mécanisme de formation du NO et nécessite une forte concentration en atomes d'oxygène. Il peut devenir important dans le front de flamme en cas d'excès du radical NNH par rapport à l'équilibre :

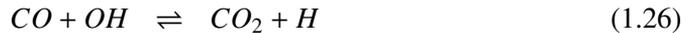


1.3.2 Cinétique de formation du CO

Le monoxyde de carbone (CO) est un gaz inodore, incolore et cependant très toxique pour les mammifères. Il peut être mortel pour l'homme s'il est absorbé en grande quantité. Son affinité pour l'ion fer de l'hémoglobine, principal transporteur d'oxygène dans le sang, est 230 fois supérieure à celle du dioxygène O_2 . En se combinant à l'hémoglobine, il forme un complexe de carboxyhémoglobine qui remplace l'oxyhémoglobine. La capacité de transport de l'oxygène nécessaire aux tissus est ainsi inhibée et affecte en premier lieu le système nerveux central et le cœur.

Issu de l'oxydation partielle des combustibles composés de chaînes carbonées (hydrocarbures C_nH_m), le CO est formé lors de la phase secondaire de la combustion. Lorsque les constituants intermédiaires (H_2 , O , H et OH) sont créés par réactions en chaîne, un défaut en atome d'oxygène (*combustion riche*) favorise sa formation et celle d' H_2O .

Dans un second temps, son oxydation en CO_2 intervient. Cette oxydation est lente et quasiment impossible en l'absence d'espèces hydrogénées (notamment OH). Elle fait principalement intervenir les réactions suivantes :



La première réaction est très exothermique et produit l'essentiel de la chaleur dans une zone où abondent OH et O . Toutefois, sa lenteur ne la rend pas compétitive avec les réactions utilisant OH pour oxyder le méthane : $CH_4 + OH \rightleftharpoons CH_3 + H_2O$. La réaction de terminaison de ce système d'oxydation du CO est une réaction trimoléculaire (lente) qui s'écrit :



Il est à noter que CO est le seul précurseur du CO_2 , produit final de combustion d'un hydrocarbure. Ainsi, toute perturbation venant consommer O , H ou OH limite l'efficacité de combustion et entraîne l'émission toxique de CO . C'est en outre une propriété des halogènes (fluor F , chlore Cl , brome Br , iode I) qui permet d'utiliser les halons (ex : CF_3Br ou CF_2BrCl) comme inhibiteurs de combustion pour l'extinction d'incendies.

Chapitre 2

Modélisation des physiques couplées

2.1 Problématique de combustion turbulente

2.1.1 Combustion-Turbulence : couplage et problèmes

Si la combustion laminaire existe (recherche en laboratoire, brûleurs domestiques), les puissances requises dans l'industrie imposent un régime de combustion turbulente.

La combustion turbulente traduit l'interaction profonde entre le dégagement de chaleur irréversible et local (taux de réaction non linéaire) induit par la combustion, et les fluctuations de vitesse existant sur l'ensemble du spectre turbulent. D'un côté, la combustion provoque une forte expansion thermique τ et modifie l'écoulement : $\tau = T_{gb}/T_{gf} - 1 = 5 \text{ à } 7$ (T_{gf} et T_{gb} sont respectivement les températures dans les gaz frais et brûlés). De l'autre, les fluctuations locales de vitesse perturbent l'arrivée des réactifs sur la flamme et changent au moins sa forme, au plus sa structure interne.

La comparaison des échelles caractéristiques des flammes τ_c et des échelles turbulentes τ_t sur l'ensemble de leur spectre d'interaction établit plusieurs régimes de combustion turbulente (Borghì et Destriau, 1998) et s'appuie sur les nombres adimensionnels de *Damkolher* $Da = \tau_{t,l_t}/\tau_c$ (l_t est l'échelle intégrale associée aux grandes échelles turbulentes) et de *Karlovitz* $Ka = \tau_c/\tau_{t,\eta}$ (η est l'échelle de Kolmogorov) :

1. Le régime des *flammelettes* ($Ka \ll 1$). La cinétique chimique est tellement rapide ($Da \rightarrow \infty$) par rapport aux échelles turbulentes que la flamme reste laminaire. Seule sa forme est modifiée par les fluctuations de vitesse.
2. Le régime des *flammes plissées avec poches* ($Ka < 1$). Pour une intensité turbulente croissante, le front de flamme laminaire est si tourmenté qu'il peut se briser en morceaux et former des poches de gaz frais dans les gaz brûlés (et vice versa).

3. Le régime des *flames plissées - épaissies* ($Ka \approx 1$). Les plus petites structures turbulentes pénètrent le front de flamme et modifient légèrement sa structure.
4. Le régime des *flames épaissies* ($Da \approx 1$). La plupart des structures tourbillonnaires interagissent avec la structure interne de la flamme qui n'est plus localement laminaire. La flamme s'épaissit en raison de la forte diffusion turbulente qui atténue le gradient induit par la réaction chimique.
5. Le régime de *combustion distribué* ($Da \ll 1$). Toutes les structures turbulentes ont pénétré le front de flamme et l'ont épaissi d'une telle façon que la réaction chimique s'étale dans l'espace et s'effectue en volume. Une flamme n'est plus réellement visible et la combustion se rapproche de ce qui se passe dans un réacteur chimique fortement mélangé.

Toutefois, ces tendances, bien que très pédagogiques, restent qualitatives. En réalité, les frontières entre ces régimes sont floues et dépendent de la définition choisie pour les échelles caractéristiques. Il est par exemple difficile de définir la vitesse ou l'épaisseur d'une flamme de diffusion.

Idéalement, pour capturer l'ensemble de ces régimes et représenter complètement le couplage combustion / turbulence, il faut suivre l'évolution de la cinétique chimique (en moyenne : $1 \mu s$) sur le spectre turbulent allant de l'échelle intégrale l_t à l'échelle de Kolmogorov η . La relation qui les relie est fonction du nombre de Reynolds $Re_\lambda = u'_\lambda \lambda / \nu$ où u'_λ , λ et ν sont respectivement la vitesse fluctuante moyenne de l'écoulement, son échelle spatiale caractéristique et sa viscosité :

$$\frac{l_t}{\eta} = Re_\lambda^{3/2} \quad \text{avec} \quad Re_\lambda = u'_\lambda \lambda / \nu \quad (2.1)$$

Numériquement, les maillages tridimensionnels extrêmement fins à mettre en oeuvre impliquent d'énormes coûts de calcul : $10^6 < N < 10^{12}$ où N est le nombre de mailles si $10^{-6} < \eta < 10^{-4}$ comme l'illustre le tableau 2.1 (Jimenez, 2002).

Re_λ	Mémoire requise	Puissance de calcul requise	Année de réalisation
70	50 Go	50 Gflops	1993
300	50 To	50 Tflops	2002
1500	50 Po	50 Pflops	2010 ?

TABLE 2.1 – Moyens numériques requis pour la simulation complète de la combustion turbulente (Jimenez, 2002)

Pour faire face à ce problème, trois approches sont proposées pour modéliser la combustion turbulente. Dans toutes les approches, on considère chaque grandeur turbulente $\phi_k(\underline{x}, t)$ comme une *variable aléatoire réelle* en raison des fluctuations spatiales et temporelles de la turbulence qui lui confèrent un caractère chaotique et peu déterministe.

2.1.2 Approches de modélisation de la combustion turbulente

Les trois voies de modélisation de la combustion turbulente sont :

- L'approche *DNS* pour *Direct Numerical Simulation*. On cherche ici à simuler directement l'évolution de la cinétique avec toutes les échelles turbulentes (spectre fréquentiel complet). Les coûts numériques, présentés dans le tableau 2.1, limitent les cas étudiés à des configurations simples (ex : flammes jets liftées, voir figure 2.1).

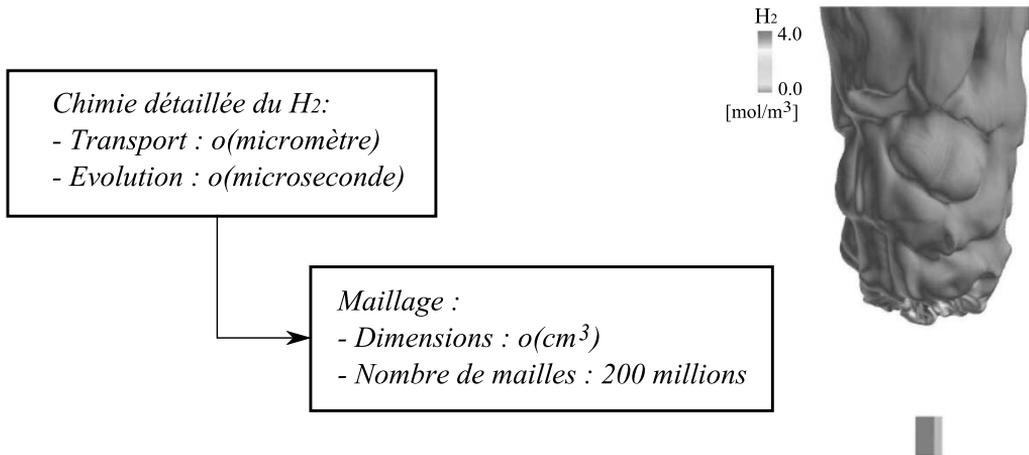


FIGURE 2.1 – DNS d'une flamme d'hydrogène liftée (Mizobuchi et al., 2002, Japon)

- L'approche *LES* pour *Large Eddy Simulation*. En appliquant un filtre spatial (ou fréquentiel), on ne simule que l'évolution des grandes échelles turbulentes et on modélise le comportement des échelles de tailles inférieures. Cette approche se développe rapidement et permet aujourd'hui de simuler des configurations industrielles mais dans des temps de calcul encore importants (ex : flamme swirlée, voir figure 2.2).

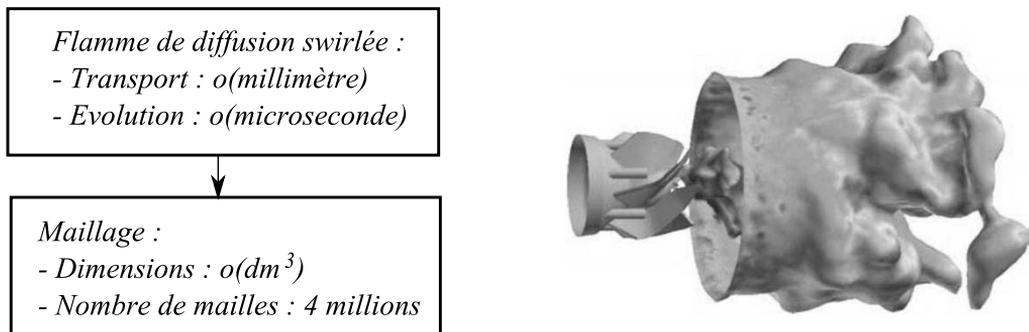


FIGURE 2.2 – LES d'une flamme de diffusion swirlée en chambre de combustion (TAC) (Selle, 2002, CERFACS, Toulouse)

- L'approche *RANS* pour *Reynolds Averaged Navier Stokes*. Largement répandue dans le monde industriel, cette approche modélise l'ensemble du spectre turbulent et permet de simuler des configurations industrielles avec des faibles temps de réponse (ex : combustion dans une TAC, voir figure 2.3).

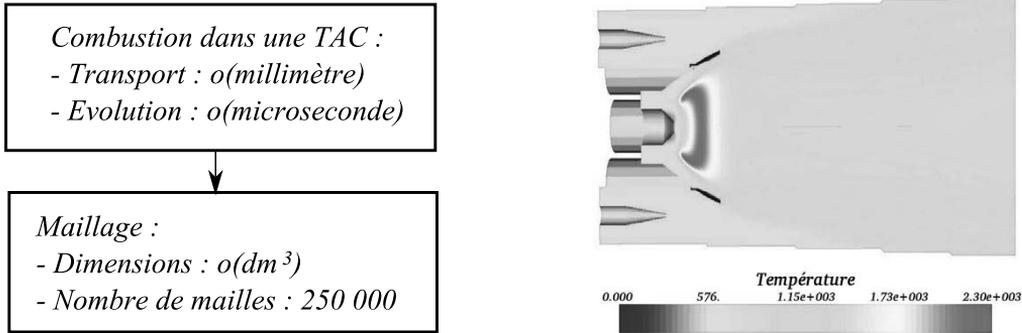


FIGURE 2.3 – Calcul *RANS* de combustion dans une TAC avec flamme non-prémélangée swirlée. (Fichet et al., 2007, EDF R&D, Chatou).

Dans la figure 2.4, on adopte une approche eulérienne ($\underline{x} = \underline{x}^*$) pour distinguer ces trois approches dans l'espace spectral (courbe d'énergie $E(\kappa, t)$ à gauche) et dans le domaine temporel (à droite) où le niveau de représentation des fluctuations est illustré.

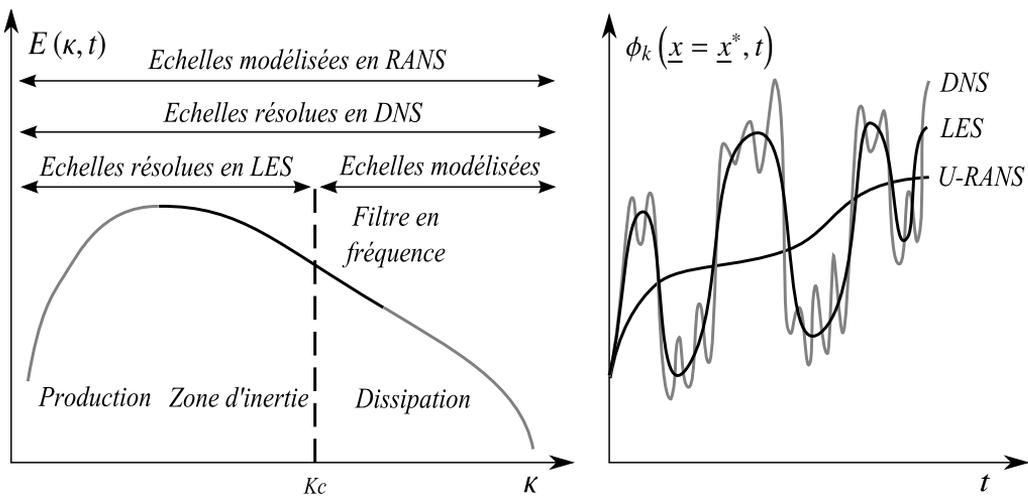


FIGURE 2.4 – Comparaison des approches *DNS*, *LES* et *U-RANS* dans l'espace spectral (à gauche) et temporel (à droite), inspirée de Poinsot et Veynante (2005)

Le cahier des charges défini dans l'introduction de ce mémoire impose le développement d'un outil numérique disposant d'un temps de réponse rapide. Par conséquent, l'approche *RANS* a été choisie pour réaliser les études de cette thèse.

2.1.3 Problématique de l'approche RANS

Dans l'approche *RANS*, on ne considère que l'évolution de l'écoulement en moyenne en traitant chaque grandeur turbulente $\phi(\underline{x}, t)$ comme une *variable statistique*. Ainsi, on la décompose en sa partie moyenne et la fluctuation autour de cette moyenne par :

$$\phi(\underline{x}, t) = \bar{\phi}(\underline{x}, t) + \phi'(\underline{x}, t) \quad \text{avec} \quad \overline{\phi'}(\underline{x}, t) = 0 \quad (2.2)$$

L'opérateur mathématique centré qui est utilisé ici est la *moyenne de Reynolds* d'où le nom de l'approche. Sous l'hypothèse d'*ergodicité*¹, cette moyenne est égale à la moyenne d'ensemble sur N réalisations $\psi_i(\underline{x}, t)$ capturées en un point (\underline{x}) :

$$\bar{\psi}(\underline{x}, t) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \psi_i(\underline{x}, t) \quad (2.3)$$

En appliquant cet opérateur de moyenne aux équations de transport instantanées présentées dans l'équation 1.8 (Barrère et Prud'homme, 1973), on ne considère que l'évolution des grandeurs moyennes, essence même de l'approche *RANS*. Toutefois, les fortes variations de la masse volumique induites par la combustion imposent de larges fluctuations ρ' autour de la moyenne. Dès lors, pour limiter l'apparition récurrente de termes couplés avec les fluctuations de la masse volumique, on introduit un second opérateur centré : la *moyenne de Favre*. Sa définition est donnée par :

$$\tilde{\phi} = \frac{\overline{\rho\phi}}{\bar{\rho}} \quad \text{avec} \quad \phi(\underline{x}, t) = \tilde{\phi}(\underline{x}, t) + \phi''(\underline{x}, t) \quad \text{et} \quad \overline{\phi''}(\underline{x}, t) = 0 \quad (2.4)$$

La linéarité des opérateurs (moyenne et dérivées) permet alors d'écrire l'équation fondamentale intégrée sous la forme indicielle suivante :

$$\frac{\partial(\bar{\rho}\tilde{\phi})}{\partial t} + \frac{\partial(\bar{\rho}\tilde{u}_j\tilde{\phi})}{\partial x_j} = -\frac{\partial}{\partial x_j} \left(\overline{J_{\phi,j}} + \bar{\rho}\tilde{u}_j\phi'' \right) + \bar{\omega}_{\phi} \quad (2.5)$$

En considérant un scalaire réactif (ex : $\phi_k = Y_k$, fraction massique d'une espèce réactive χ_k), l'équation 2.5 met en lumière les deux termes non linéaires pour lesquels les modèles de combustion turbulente ont été développés :

- Le terme de *transport turbulent* $\bar{\rho}\tilde{u}_j\phi''$
- Le terme *source chimique moyen* $\bar{\omega}_{\phi_k}$

Ne pouvant être déterminés par la seule connaissance des grandeurs moyennes $\tilde{\phi}_k$, ces termes sont fermés à l'aide de divers modèles que nous allons maintenant présenter.

1. convergence des moyennes temporelles sur une période T et des moyennes d'ensemble sur N valeurs

2.2 Modèles de fermeture actuels

2.2.1 Fermeture du terme de transport turbulent

Pour fermer le terme $\overline{\rho u_j'' \phi''}$, il est légitime de vouloir écrire son équation de transport pour disposer de son évolution complète. Considérons par exemple l'équation pour $R_{ij} = \overline{u_i'' u_j''}$ en posant $\phi'' = u_i''$ (Robin, 2007) en rappelant que τ_{ij} est le tenseur des contraintes visqueuses défini dans l'équation 1.9 pour un fluide newtonien à bas Mach :

$$\begin{aligned}
 \underbrace{\frac{\partial}{\partial t} (\overline{\rho u_i'' u_j''})}_{(1)} + \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_l} (\overline{u_l \rho u_i'' u_j''})}_{(2)} &= \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_l} (-\overline{\rho u_i'' u_j'' u_l''} + \overline{u_j'' \tau_{il}} + \overline{u_i'' \tau_{jl}} - \overline{p' u_j'' \delta_{il}} - \overline{p' u_i'' \delta_{jl}})}_{(3)} \\
 &\quad - \underbrace{\overline{\rho u_j'' u_l''} \frac{\partial \overline{u_i}}{\partial x_l}}_{(4)} - \underbrace{\overline{\rho u_i'' u_l''} \frac{\partial \overline{u_j}}{\partial x_l}}_{(4)} - \underbrace{\overline{u_j''} \frac{\partial \overline{p}}{\partial x_i}}_{(5)} - \underbrace{\overline{u_i''} \frac{\partial \overline{p}}{\partial x_j}}_{(5)} \\
 &\quad + \underbrace{\overline{p'} \left(\frac{\partial u_i''}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j''}{\partial x_i} \right)}_{(6)} - \underbrace{\overline{\tau_{il} \frac{\partial u_j''}{\partial x_l}} - \overline{\tau_{jl} \frac{\partial u_i''}{\partial x_l}}}_{(7)} \quad (2.6)
 \end{aligned}$$

Les différents termes de l'équation de transport de R_{ij} représentent :

1. L'instationnarité
2. La convection de R_{ij} par l'écoulement moyen
3. La diffusion de R_{ij} par les fluctuations de vitesse et de pression ainsi que par la diffusion moléculaire
4. Le taux de production par les gradients de vitesse dans l'écoulement moyen
5. La contribution du gradient de pression moyenne aux fluctuations de vitesse
6. La corrélation pression - déformation (terme de retour à l'isotropie par les fluctuations de pression)
7. La dissipation des contraintes fluctuantes en chaleur par les effets visqueux

Toutefois, la non-linéarité des termes convectifs engendre des termes d'ordres supérieurs (ex : $\overline{u_i'' u_j'' u_l''}$) aux corrélations (ex : $R_{ij} = \overline{u_i'' u_j''}$) pour lesquelles les équations sont écrites. Ainsi, le problème de fermeture est reporté à l'ordre supérieur et il devient de plus en plus délicat de fermer ces corrélations (sens physique de plus en plus limité).

Dès lors, il semble vain d'écrire les équations de transport pour les corrélations triples (ex : $\overline{u_i'' u_j'' u_l''}$). Par conséquent, nous présentons les modèles les plus utilisés aujourd'hui qui sont du *premier* ou du *second ordre* vis-à-vis des termes moyens $\overline{\phi}$.

Modèles du premier ordre

En raison de ses propriétés "diffusives" (atténuation des gradients loin des bords du domaine), la turbulence agit d'une manière analogue à la diffusion moléculaire. Pour transcrire cette observation, Boussinesq (1877) introduit une fermeture de type "gradient" pour R_{ij} en faisant intervenir une *viscosité turbulente* μ_t ($= \bar{\rho} \nu_t$) sur laquelle on reporte les efforts de modélisation. En effet, si la viscosité moléculaire μ est une propriété intrinsèque du fluide, la viscosité turbulente μ_t dépend de l'écoulement turbulent. Pour représenter le transport des fluctuations de vitesse par l'écoulement fluctuant (signification physique de R_{ij}), on introduit l'*énergie cinétique turbulente* \tilde{k} , définie comme la demi-trace du tenseur R_{ij} soit $\tilde{k} = 1/2 \overline{u''_i u''_i}$. On écrit au final :

$$\bar{\rho} \overline{u''_i u''_j} = -\mu_t \left(\frac{\partial \tilde{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \tilde{u}_j}{\partial x_i} \right) + \frac{2}{3} \delta_{ij} \left(\bar{\rho} \tilde{k} + \mu_t \frac{\partial \tilde{u}_l}{\partial x_l} \right) \quad (2.7)$$

Nous détaillons ici les grands types de modélisation au premier ordre de R_{ij} :

- Les **modèles à 0 équations** (ex : longueur de Prandtl). Basé sur l'analyse des écoulements cisailés 2D plans stationnaires, ce modèle proposé par Prandtl en 1920 (Boree et Karmed, 2004) introduit une *longueur de mélange* pour déterminer μ_t par :

$$\mu_t = \bar{\rho} l_m^2 \left| \frac{\partial \tilde{u}}{\partial y} \right| \quad (2.8)$$

Cette fermeture algébrique (pas d'équation de transport supplémentaire à résoudre) impose de calculer l_m pour chaque cas d'étude (jet de turbulence libre, écoulement en conduite circulaire, écoulement de couche limite). Les limites de ce modèle (uniquement valable en 2D, relations empiriques) l'ont aujourd'hui rendu obsolète.

- Les **modèles à 1 équation** (ex : modèle de Prandtl-Kolmogorov). Pour généraliser le modèle précédent, on exprime l_m avec l'énergie cinétique turbulente \tilde{k} et sa dissipation, notée $\tilde{\varepsilon}$ à l'aide d'une analyse dimensionnelle :

$$\mu_t = \bar{\rho} l_m \tilde{k}^{1/2} \quad \text{avec} \quad l_m = C_D \frac{\tilde{k}^{3/2}}{\tilde{\varepsilon}} \quad (2.9)$$

Ce modèle nécessite donc la résolution d'une équation de transport pour \tilde{k} :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \bar{\rho} \tilde{k}}{\partial t} + \frac{\partial \bar{\rho} \tilde{u}_l \tilde{k}}{\partial x_l} &= \frac{\partial}{\partial x_l} \left(-\frac{1}{2} \bar{\rho} \overline{u''_l u''_i u''_i} + \overline{u''_i \tau_{il}} - \overline{p' u''_i} \delta_{il} \right) \\ &- \bar{\rho} \overline{u''_i u''_l} \frac{\partial \tilde{u}_i}{\partial x_l} - \overline{u''_i} \frac{\partial \bar{p}}{\partial x_i} + \overline{p' \frac{\partial u''_i}{\partial x_i}} - \overline{\tau_{il} \frac{\partial u''_i}{\partial x_l}} \end{aligned} \quad (2.10)$$

Les limites du modèle résident encore une fois dans la détermination de la constante empirique C_D et de la dissipation $\tilde{\varepsilon}$, inclus dans le dernier terme de cette équation.

- Les *modèles à 2 équations* (ex : modèle $\tilde{k}-\tilde{\varepsilon}$). Dans l'optique de lever la contrainte de détermination de la dissipation $\tilde{\varepsilon}$, Kolmogorov propose en 1942 d'écrire son équation de transport comme pour \tilde{k} . L'équation de $\tilde{\varepsilon}$ est très lourde et l'on choisit ici d'écrire les équations du modèle sous la forme fermée de Launder et Spalding (1974) :

$$\frac{\partial \overline{\rho k}}{\partial t} + \frac{\partial \overline{\rho u_l k}}{\partial x_l} = \frac{\partial}{\partial x_l} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial \tilde{k}}{\partial x_l} \right] + \mathcal{P}_k + \mathcal{G}_k - \overline{\rho \varepsilon} \quad (2.11)$$

$$\frac{\partial \overline{\rho \varepsilon}}{\partial t} + \frac{\partial \overline{\rho u_l \varepsilon}}{\partial x_l} = \frac{\partial}{\partial x_l} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \frac{\partial \tilde{\varepsilon}}{\partial x_l} \right] + \frac{\tilde{\varepsilon}}{k} [C_{\varepsilon,1} (\mathcal{P}_k + \mathcal{G}_k) - C_{\varepsilon,2} \overline{\rho \varepsilon}] \quad (2.12)$$

On rappelle l'expression des termes sources de l'équation de transport de \tilde{k} en commençant par le terme source \mathcal{P}_k de production issu des gradients moyens :

$$\mathcal{P}_k = -\overline{\rho u_i'' u_l''} \frac{\partial \tilde{u}_i}{\partial x_l}, \quad \mathcal{G}_k = -\overline{u_i''} \frac{\partial \overline{p}}{\partial x_i} + \overline{p' \frac{\partial u_i''}{\partial x_i}} \quad \text{et} \quad \overline{\rho \varepsilon} = \overline{\tau_{il} \frac{\partial u_i''}{\partial x_l}} \quad (2.13)$$

La viscosité turbulente est alors exprimée par :

$$\mu_t = \overline{\rho} C_\mu \frac{\tilde{k}^2}{\tilde{\varepsilon}} \quad (2.14)$$

Les constantes du modèle $\tilde{k} - \tilde{\varepsilon}$ standard, sont regroupées dans le tableau 2.2.

C_μ	$C_{\varepsilon,1}$	$C_{\varepsilon,2}$	σ_k	σ_ε
0,09	1,44	1,92	1,0	1,3

TABLE 2.2 – Constantes du modèle $\tilde{k} - \tilde{\varepsilon}$ standard

Largement éprouvé, ce modèle à 2 équations est néanmoins mis en défaut dans certains écoulements pariétaux du type couche limite (Boree et Karmed, 2004). Il sera alors délaissé au profit de modèles analogues : $k - \omega$, RNG (Re-Normalized Group) $k - \varepsilon$.

Toutefois, tous ces modèles surestiment le niveau de turbulence pour des configurations de type "jet impactant sur une paroi". Les transferts thermiques sont alors fortement surévalués et faussent les calculs. Le gradient de pression adverse en proche paroi bouverse l'écoulement qui est alors mal prédit par ces modèles construits autour d'une diffusion turbulente issue des gradients moyens. De plus, en combustion, l'hypothèse de Boussinesq (loi gradient pour les flux turbulents) peut se révéler inadéquate puisque les variations de la masse volumique engendrent parfois des flux turbulents à contre-gradient² (Robin, 2007).

L'insuffisance des modèles du premier ordre (fermeture avec les grandeurs moyennes) conduit à la résolution des équations de transport de R_{ij} . Il faudra toutefois reporter les efforts de modélisation sur les termes non fermés de ces modèles du second ordre (Kanniche, 1990).

2. en sens inverse de celui donné par la loi gradient

Modèles du second ordre

Le modèle du second ordre le plus répandu est le modèle $R_{ij}-\varepsilon$. L'écriture des équations de transport pour les 6 composantes de $R_{ij} = \widetilde{u_i'' u_j''}$ (tenseur symétrique) permet de bien représenter l'anisotropie aux grandes échelles (Robin, 2007). Il est en ceci supérieur au modèle $\widetilde{k} - \widetilde{\varepsilon}$ qui suit implicitement l'hypothèse de turbulence homogène isotrope puisque l'on cumule les contributions de toutes les composantes de la vitesse fluctuante en écrivant $\widetilde{k} = 1/2 \widetilde{u_l'' u_l''}$ avec la convention de sommation d'Einstein.

Dans l'équation 2.6, certains termes au second membre sont connus et ne nécessitent pas de fermeture. Il s'agit des termes (4) et (5) de :

- Production \mathcal{P}_{ij} avec $\mathcal{P}_{ij} = -\overline{\rho u_j'' u_l''} \frac{\partial \widetilde{u}_i}{\partial x_l} - \overline{\rho u_i'' u_l''} \frac{\partial \widetilde{u}_j}{\partial x_l}$
- Couplage avec la pression moyenne \mathcal{G}_{ij} avec $\mathcal{G}_{ij} = -\overline{u_j''} \frac{\partial \overline{p}}{\partial x_i} - \overline{u_i''} \frac{\partial \overline{p}}{\partial x_j}$

Toutefois, ce dernier terme est fonction de la modélisation faite du terme $\overline{u_i''}$.

Dans l'équation 2.6, on remarque la présence des trois autres termes du second membre qui nécessitent une modélisation approfondie :

- Le terme de *diffusion* \mathcal{D}_{ij} avec

$$\mathcal{D}_{ij} = \frac{\partial}{\partial x_l} \left(-\overline{\rho u_i'' u_j'' u_l''} + \overline{u_j'' \tau_{il}} + \overline{u_i'' \tau_{jl}} - \overline{p' u_j''} \delta_{il} - \overline{p' u_i''} \delta_{jl} \right) \quad (2.15)$$

Une analyse des ordres de grandeur aux nombres de Reynolds élevés montre que les fluctuations de pression ont une contribution faible devant le transport par les fluctuations de vitesse et par diffusion moléculaire. Ainsi, pour traduire l'intensification du mélange par l'agitation turbulente et la diffusion laminaire, on utilise souvent une expression de type gradient généralisé :

$$\begin{aligned} \mathcal{D}_{ij} &= \frac{\partial}{\partial x_l} \left(-\overline{\rho u_i'' u_j'' u_l''} + \overline{u_j'' \tau_{il}} + \overline{u_i'' \tau_{jl}} - \overline{p' u_j''} \delta_{il} - \overline{p' u_i''} \delta_{jl} \right) \\ &\approx \frac{\partial}{\partial x_l} \left(-\overline{\rho u_i'' u_j'' u_l''} + \overline{u_j'' \tau_{il}} + \overline{u_i'' \tau_{jl}} \right) \\ &\approx \frac{\partial}{\partial x_l} \left(-C_s \frac{\widetilde{k}}{\omega} \overline{\rho u_l'' u_m''} \frac{\partial \widetilde{u}_i'' u_j''}{\partial x_m} + \mu \frac{\partial \widetilde{u}_i'' u_j''}{\partial x_l} \right) \text{ avec } C_s = 0,22 \end{aligned} \quad (2.16)$$

- Le terme de *corrélation pression-déformation* ϕ_{ij} avec

$$\phi_{ij} = p' \left(\frac{\partial u_i''}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j''}{\partial x_i} \right) \quad (2.17)$$

Ce terme est primordial dans le mécanisme de transfert de l'énergie entre les composantes du tenseur R_{ij} et reste aujourd'hui encore l'objet de recherches poussées. Une

modélisation relativement simple de ce terme le présente comme un terme d'isotropisation. On le décompose alors en une somme de trois contributions :

1. $\phi_{ij}^{(1)}$, terme "*lent*" de retour à l'isotropie des contraintes de Reynolds (effet de la turbulence sur elle même) :

$$\phi_{ij}^{(1)} = -C_1 \overline{\rho \varepsilon} \left(\overline{u_i'' u_j''} / \overline{k} - \frac{2}{3} \delta_{ij} \right) \quad (2.18)$$

2. $\phi_{ij}^{(2)}$, terme "*rapide*" d'isotropisation de la production de R_{ij} qui limite la création d'anisotropie par les gradients moyens :

$$\phi_{ij}^{(2)} = -C_2 \left(\mathcal{P}_{ij} - \frac{1}{3} \mathcal{P}_{ll} \delta_{ij} \right) \quad (2.19)$$

3. $\phi_{ij}^{(3)}$, terme d'isotropisation de la production de R_{ij} qui atténue la création d'anisotropie par les gradients moyens. Ce terme provient du couplage entre les variations de masse volumique (effet chimique) et les fluctuations de vitesses :

$$\phi_{ij}^{(3)} = -C_2 \left(\mathcal{G}_{ij} - \frac{1}{3} \mathcal{G}_{ll} \delta_{ij} \right) \quad (2.20)$$

– Le terme de *dissipation* ε_{ij} avec

$$\varepsilon_{ij} = -\overline{\tau_{il} \frac{\partial u_j''}{\partial x_l}} - \overline{\tau_{jl} \frac{\partial u_i''}{\partial x_l}} \quad (2.21)$$

Après avoir scindé ce tenseur en sa partie sphérique et sa partie déviatrice, on néglige le tenseur déviateur en assumant l'hypothèse d'isotropie des petites échelles. En le liant à la dissipation $\overline{\varepsilon}$ de l'énergie cinétique turbulente \overline{k} (demi-trace de R_{ij}), écrite précédemment (équation 2.12), on peut résoudre qu'une équation pour les composantes du tenseur de dissipation. On écrit donc :

$$\varepsilon_{ij} = \frac{2}{3} \left(\overline{-\tau_{il} \frac{\partial u_j''}{\partial x_l}} - \overline{\tau_{jl} \frac{\partial u_i''}{\partial x_l}} \right) \delta_{ij} = \frac{2}{3} \overline{\varepsilon} \delta_{ij} \quad (2.22)$$

La fermeture des modèles du second ordre est une tâche ardue. Des modèles ont été proposés pour l'étude des écoulements stratifiés (Kanniche, 1990). Pour les écoulements réactifs, les phénomènes de flux à contre-gradient ont été modélisés avec succès dans des travaux récents (Robin, 2007).

La fermeture du terme de transport turbulent $\overline{\rho u_j'' \phi''}$ est l'objet de nombreux travaux mais la majorité des recherches qui suivent l'approche *RANS* porte sur la détermination du terme source chimique moyen $\overline{\omega_\phi}$ que nous abordons maintenant.

2.2.2 Fermeture du terme source chimique moyen

Fonction non-linéaire de la température (dépendance exponentielle) et des fractions massiques des espèces (dépendance le plus souvent quadratique), le terme source chimique moyen $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}$ ne peut être déterminé par la seule connaissance des champs moyens. Il faut de nouveau recourir à la modélisation pour exprimer ce terme avec les grandeurs connues et fermer le système d'équations. En effet, mis à part pour certains cas particuliers (réacteur chimique parfaitement homogène par exemple), on constate que :

$$\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}(Y_k, T) \neq \dot{\omega}_{\phi_k}(\tilde{Y}_k, \tilde{T}) \quad (2.23)$$

En faisant abstraction des divergences de modélisation qui existent pour les divers types de flammes, on répertorie 5 approches de fermeture pour $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}(Y_k, T)$:

- Les modèles basé sur le *mélange* : Le terme de production chimique est proportionnel au taux de dissipation de la variance d'une variable réactive choisie.
- Les modèles basé sur la *topologie* : La turbulence a tendance à plisser le front de flamme, à en augmenter la surface et à accroître les zones de réactions. Le taux de production est donc proportionnel à la surface de la flamme.
- Les méthodes à *PDF* (Probability Density Function) : En associant les variables de l'écoulement à des grandeurs statistiques, on écrit la définition mathématique de la moyenne pour le terme source chimique en faisant intervenir sa densité de probabilité.
- L'approche *CMC* (Conditional Moment Closure) : Lorsque les fluctuations de température autour d'une même richesse sont faibles (loin des zones d'allumage ou d'extinction), le terme source peut s'écrire en fonction des moyennes de la température et des fractions massiques conditionnées par la fraction de mélange z .
- L'approche *MMC* (Multiple Mapping Conditioning) : Couplage des méthodes à *PDF* avec l'approche *CMC*, l'approche *MMC* recherche le nombre minimal de paramètres à suivre pour modéliser l'évolution du domaine réactif dans son intégralité. Elle utilise alors une densité de probabilité qui est conditionnée par les paramètres choisis.

Dans l'introduction, nous avons souligné le coût numérique prohibitif de la résolution des équations de transport pour les fractions massiques Y_k de toutes les espèces χ_k . En général, ces modèles imposent des simplifications qui, cumulées aux hypothèses présentées après l'équation 1.8, permettent de contourner le problème.

En liant l'évolution des espèces à celles de grandeurs clés, on peut ne résoudre que quelques équations supplémentaires à partir desquelles on en déduit l'évolution du système réactif complet. Ces grandeurs clés sont souvent la *fraction de mélange* z et la *variable d'avancement* c .

Les modèles de mélange

En suivant l'hypothèse d'une chimie infiniment rapide ($Da \rightarrow \infty$), le taux de réaction est limité par le mélange turbulent entre deux milieux : gaz frais / gaz brûlés pour les *flammes de prémélange* ou combustible / oxydant pour les *flammes non prémélangées*. La flamme représente alors une interface infiniment mince séparant deux milieux. Dans cette limite, il n'y a pas d'états intermédiaires partiellement brûlés ($0 < c < 1$) ou partiellement mélangés ($0 < z < 1$), états qui existent normalement dans la flamme. Les variables c et z valent par intermittence 0 ou 1 ($c = 0$ ou $c = 1$: gaz frais ou brûlés et $z = 0$ et $z = 1$: oxydant ou combustible) et imposent une variance maximale du milieu : $\overline{c''^2} = \overline{c}(1 - \overline{c})$ et $\overline{z''^2} = \overline{z}(1 - \overline{z})$. Entretien et limitée par le mélange turbulent, la combustion s'effectue et lorsqu'elle s'achève, tous les réactifs sont consommés. Il ne reste plus qu'un milieu homogène rempli de gaz brûlés et dont la variance est nulle : $\overline{c''^2} = 0$ et $\overline{z''^2} = 0$.

Ainsi quelle que soit la flamme, on peut relier linéairement le terme source de production chimique $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}$ (taux de consommation des réactifs) à la dissipation scalaire χ qui détruit la variance du milieu par mélange. On écrit alors : $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}} \propto \overline{\chi}$.

La dissipation est le terme source négatif qui apparaît dans les équations de transport de $\overline{c''^2}$ et de $\overline{z''^2}$. Par commodité, on la définit en fonction des champs instantanés et non des champs fluctuants, comme l'imposerait sa définition rigoureuse. On a ainsi :

$$\overline{\rho\chi} = \overline{2\rho D\nabla\phi_k''\nabla\phi_k''} \approx \overline{2\rho D\nabla\phi_k\nabla\phi_k} \quad \text{avec} \quad \phi_k = \{c, z\} \quad (2.24)$$

Dans le cas limite d'une ségrégation maximale, on trouve : $\overline{\phi_k''^2} = \overline{\phi_k}(1 - \overline{\phi_k})$ avec $\phi_k = \{c, z\}$ du fait que $\phi_k(1 - \phi_k) = 0, \forall\phi_k$. Dans le cas général, la dissipation scalaire χ reste une grandeur à fermer et nous présentons maintenant les modèles couramment utilisés dans les milieux industriels pour les *flammes de prémélange* (EBU, BML) ou *non prémélangées* (EDC).

Le modèle EBU : Eddy Break Up

Proposé par Spalding (1971), ce modèle relie la dissipation scalaire χ à la dissipation des structures turbulentes en égalant leur temps caractéristique :

$$\tau_c = \frac{\overline{c''^2}}{\chi} = \tau_t = \frac{\overline{k}}{\varepsilon} \quad (2.25)$$

Physiquement, la dissipation scalaire consomme les poches de gaz frais en un temps caractéristique τ_t lié à la dissipation des tourbillons. A la fin, il ne reste plus que des gaz brûlés. Dans ce cas, on écrit : $\chi = \overline{c''^2}/\tau_t$.

Pour recalculer le modèle avec l'expérience, on introduit une constante C_{EBU} dans l'expression du terme source chimique moyen $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}$:

$$\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}} = \overline{\rho} C_{EBU} \frac{\overline{c''^2}}{\tau_t} \quad (2.26)$$

Le modèle BML : Bray Moss Libby

Proposé initialement par Moss et Bray (Moss et al., 1977), ce modèle fut amélioré avec l'aide de Libby et Champion comme cela est détaillé par Bray (1995). Ce modèle considère une fréquence de passage de la flammelette ν_f pour se soustraire à la détermination d'une constante empirique du modèle *EBU*. L'écriture du terme source chimique $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}$ met alors en avant le fait qu'à chaque passage de flammelette on convertit des gaz frais en gaz brûlés. Ainsi, on écrit $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}} = \nu_F W_F$ avec ν_F , fréquence de passage de la flammelette et W_f , le taux de conversion moyen de gaz frais en gaz brûlés par passage de flammelette.

L'expression de ν_F est fonction du temps caractéristique associé à l'échelle intégrale de la turbulence, noté τ_{L_t} :

$$\nu_F = \frac{2\widetilde{c}''^2}{\tau_{L_t}} \quad (2.27)$$

On notera que le facteur 2 provient du fait qu'il faut deux passages de flammelette pour revenir dans le même milieu. On obtient par ailleurs une distribution de Poisson pour les temps de passage. L'expression de W_f est quant à elle définie par :

$$W_F = \overline{\rho_f} u_f^0 I_0 K \quad (2.28)$$

La masse volumique des gaz frais est notée ρ_f et u_f^0 est la vitesse d'une flamme plane laminaire. La grandeur I_0 représente la constante d'étirement local instantanée de la flamme et K est une grandeur variant comme l'inverse de la vitesse de croisement.

Au final, on écrira l'expression du terme source chimique moyen $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}$ comme :

$$\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}} = \overline{\rho_f} u_f^0 I_0 K \frac{2\widetilde{c}''^2}{\tau_{L_t}} \quad (2.29)$$

Le modèle EDC : Eddy Dissipation Concept

Extension aux flammes non prémélangées de la philosophie du modèle *EBU*, ce modèle est basé sur un temps caractéristique de dissipation des tourbillons τ_t (Magnussen et Hjertager, 1976). On considère ici que le taux de réaction est limité par l'espèce en défaut en introduisant leur fraction massique respective : \widetilde{Y}_f pour le combustible, \widetilde{Y}_{ox} pour l'oxydant et \widetilde{Y}_p pour les produits (s est le coefficient stoechiométrique massique) :

$$\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}} = \overline{\rho} \frac{\alpha}{\tau_t} \min \left(\widetilde{Y}_f, \frac{\widetilde{Y}_{ox}}{s}, \beta \frac{\widetilde{Y}_p}{1+s} \right) \quad (2.30)$$

La constante α est une constante de calage à l'image de C_{EBU} . La constante β permet de considérer l'entretien de la flamme par les gaz brûlés (effet thermique) puisque la fraction massique des produits \widetilde{Y}_p peut être la grandeur limitante.

Les modèles topologiques

Sous l'hypothèse d'une chimie suffisamment rapide (*régime de flammelettes*), la flamme est toujours considérée comme une interface fine entre 2 milieux. On s'intéresse cette fois-ci à la forme du front de flamme. Sa surface peut être plissée par les fluctuations de la vitesse d'arrivée des réactifs sur le front (flammes prémélangées) ou par les fluctuations de richesse qui modifient la ligne stoechiométrique (flammes non prémélangées).

Pour décrire la topologie du front de flamme, on se place sur la normale au front que l'on décrit par un iso-contour $c = c^*$ ou $z = z_{st}$. La normale au front s'exprime par : $\underline{n} = \nabla\phi_k/|\nabla\phi_k|$ avec $\phi_k = \{c, z\}$.

Le plissement du front entraîne l'augmentation de sa surface et le nombre de lieux où les réactions chimiques se produisent. On peut ainsi en déduire une approximation du terme source chimique moyen $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}(Y_k, T)$ dans le cas des *flammes prémélangées* (*G-Equation*, *FDS*) ou *non prémélangées* (*FDS*).

Le modèle G-equation

Pour les flammes de prémélange, on associe l'avancement instantané c à une grandeur G valant G_0 le long de la flamme. Si $G(\underline{x})$ est la distance d'un point \underline{x} au front de flamme, on obtient l'évolution de la flamme en écrivant l'équation de transport de G issue de celle de c :

$$\frac{\partial G}{\partial t} + \underline{u} \cdot \nabla G = w |\nabla G| \quad (2.31)$$

La propriété de propagation des flammes prémélangées est illustrée dans l'équation 2.31 (Williams, 1985) par la vitesse relative w de déplacement de l'iso-surface G suivant sa normale \underline{n} par rapport à l'écoulement ayant une vitesse propre notée \underline{u} .

En moyennant l'équation pour G , on fait apparaître une vitesse de propagation turbulente S_T sur laquelle on reporte les efforts de modélisation :

$$\frac{\partial \widetilde{G}}{\partial t} + \widetilde{\underline{u}} \cdot \nabla \widetilde{G} = S_T |\nabla \widetilde{G}| \quad (2.32)$$

La vitesse de flamme turbulente S_T est souvent modélisée par une relation empirique (paramètres $\alpha \approx 1, n \approx 1$) issue de constats expérimentaux qui la compare à la vitesse de flamme laminaire S_l (Damköhler, 1940) :

$$S_T = S_l \left[1 + \alpha \left(\frac{u'}{S_l} \right)^n \right] \approx S_l + u' \quad (2.33)$$

Le terme source chimique moyen $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}(Y_k, T)$ qui intervient dans l'équation de \widetilde{c} , est tiré du produit $S_T |\nabla \widetilde{G}|$ de l'équation 2.32. Il est directement dépendant de la modélisation de S_T proposée notamment par Bray et Peters (1994) ou encore Peters (1999).

Les modèles FDS : Flame Density Surface

Décrire la topologie parfaite du front de flamme n'est pas forcément nécessaire pour exprimer le terme source chimique moyen. Ici, on propose simplement de définir une *densité volumique de surface de flamme* notée Σ_f . En introduisant $\langle Q_{\phi_k}(Y_k, T) \rangle$, le terme source moyen par unité de surface de flamme, on obtient :

$$\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}(Y_k, T) = \langle Q_{\phi_k}(Y_k, T) \rangle \Sigma_f \quad (2.34)$$

Dans le régime des flammes, la flamme turbulente apparaît plus épaisse à l'oeil nu qu'une flamme laminaire classique. La rémanence de la lumière sur la rétine transforme notre oeil en intégrateur temporel et ne nous permet pas de distinguer la topologie de la flamme instantanée. En réalité, dans ce régime, la flamme turbulente est formée par l'ensemble des positions successives de flammes laminaires plissées et étirées comme l'illustre le schéma de la figure 2.5 pour une flamme prémélangée.

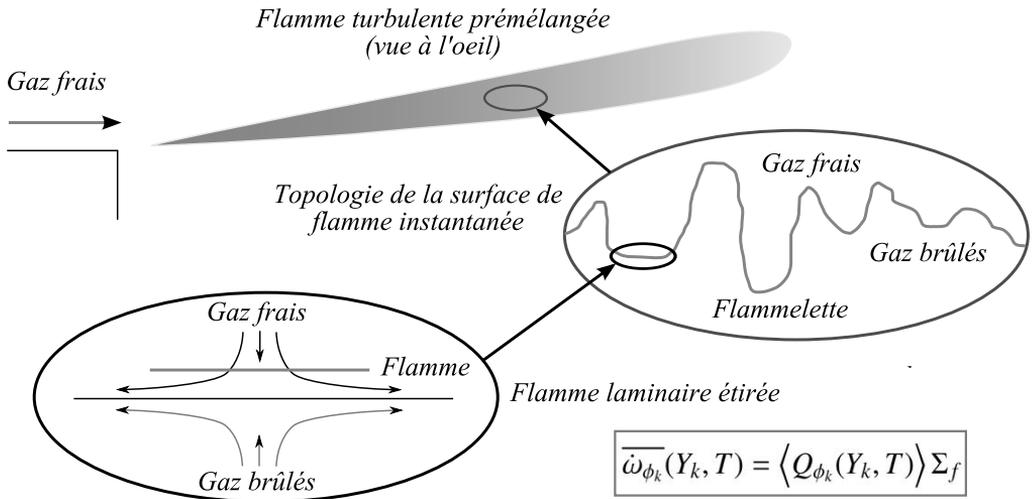


FIGURE 2.5 – Principe du modèle topologique de flammes étirées (de prémélange)

L'expression de $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}$ (équation 2.34) permet de découpler les effets de la cinétique et ceux de l'écoulement. D'une part, on calcule le terme source moyen par unité de surface de flamme $\langle Q_k(Y_k, T) \rangle$ (effet cinétique) et d'autre part, on estime l'étirement local agissant sur la densité volumique de surface de flamme Σ_f (effet de l'écoulement).

Le taux de réaction moyen d'une flammelette peut être déterminé pour divers étirements et diverses conditions de pression, de richesse et de température à l'aide d'un logiciel de cinétique chimique (ex : PREMIX). Le problème de modélisation est alors reporté sur la détermination de Σ_f dont l'expression s'écrit (Pope, 1988) :

$$\Sigma_f = \overline{|\nabla \phi_k| \delta(\phi_k - \phi_k^*)} \quad \text{avec} \quad \phi_k = \{c, z\} \quad (2.35)$$

L'équation de transport pour Σ_f est obtenue à partir de celle de $\phi_k = \{c, z\}$ en appliquant successivement les opérations mathématiques suivantes : opérateur de dérivation spatial *nabla* (∇), passage en valeur absolue, multiplication par la distribution de Dirac centrée sur la flamme (valeur ϕ_k^*) et moyenne associée à la surface de flamme (noté ici $\langle \cdot \rangle_s$). Ainsi, pour les flammes de prémélange, on écrit (Vervisch et al., 1995) :

$$\frac{\partial \Sigma_f}{\partial t} + \nabla \cdot (\langle \underline{u} \rangle_s \Sigma_f) = \underbrace{\langle \nabla \cdot \underline{u} - \underline{n} \underline{n} : \nabla \underline{u} \rangle_s \Sigma_f}_{(1)} - \underbrace{\nabla \cdot [\langle w \underline{n} \rangle_s \Sigma_f]}_{(2)} + \underbrace{\langle w \nabla \cdot \underline{n} \rangle_s \Sigma_f}_{(3)} \quad (2.36)$$

On rappelle que w est la vitesse de déplacement du front de flamme par rapport à l'écoulement et que les termes du membre de gauche représentent classiquement l'instationnarité et la convection de la grandeur dans l'écoulement moyen. Les termes du membre de droite représentent quant à eux :

1. La création de surface de flamme par l'effet d'étirement de l'écoulement
2. La propagation de la surface de flamme dans le milieu
3. L'effet de la courbure sur la production ou la disparition de la surface de flamme

Ces 3 termes ne sont pas connus par la résolution des champs moyens et nécessitent des fermetures. On écrit dès lors l'équation de Σ_f sous la forme simplifiée qui suit :

$$\frac{\partial \Sigma_f}{\partial t} + \nabla \cdot (\tilde{U} \Sigma_f) = \nabla \cdot \left(\frac{v_t}{\sigma_\Sigma} \nabla \Sigma_f \right) + S_\Sigma - D_\Sigma \quad (2.37)$$

Par commodité, on rapproche le terme de convection avec celui induit par la vitesse moyenne au sens de Favre. On introduit également un terme de propagation de la surface par une "diffusion turbulente" analogue à une loi de diffusion de Fick. Toutefois, les termes essentiels sont les termes sources de création S_Σ et de destruction D_Σ de la surface de flamme. Il existe une grande diversité de fermetures pour ces deux termes liés aux effets d'étirement et de courbure.

Dans le modèle CPB (Cant et al., 1990), on associe l'effet de l'étirement aux échelles de Kolmogorov. Dans le modèle CFM (Candel et Poinso, 1990), on favorise plutôt l'échelle intégrale en réalisant une analyse fractale basée sur des simulations numériques directes d'interactions entre un front de flamme et des tourbillons contra-rotatifs. Dans le modèle CFM-ITNFS (Meneveau et Poinso, 1991), on fait intervenir une fonction d'efficacité Γ_k de plissement de la flamme dans le terme source S_Σ (Duclos et al., 1993). Dans les modèles CD (Cheng et Diringer, 1991) et CH (Choi, 1998) on précise l'expression de l'étirement pour des valeurs extrêmes proches de l'extinction.

Il est à noter toutefois que ces modèles relient tous linéairement D_Σ à Σ_f^2 . Les travaux de (Prasad et Gore, 1999) comparent l'ensemble de ces modèles à densité de surface de flamme pour le cas des flammes "jet" prémélangées.

Les modèles à pdf (probability density function)

Les modèles à pdf ont été proposés par Pope (1985). Leur principal avantage est de n'imposer aucune hypothèse sur le régime de combustion turbulente ou la vitesse de la cinétique chimique. Un couplage complet avec une cinétique détaillée est ainsi possible.

En suivant l'approche *RANS*, on associe les grandeurs turbulentes à des variables aléatoires continues. Dès lors, il est possible de définir en un point la moyenne statistique rigoureuse d'un tel scalaire noté $\phi_k(\underline{x}, t)$. Pour cela, on fait appel à sa densité de probabilité $P(\phi_k)$ en écrivant :

$$\overline{\phi_k} = \int_{\Omega_\phi} \phi_k P(\phi_k) d\phi_k \quad (2.38)$$

Comme la moyenne de Reynolds est égale à la moyenne arithmétique par définition, on peut introduire une densité de probabilité au sens de Favre et l'écrire comme suit :

$$\tilde{\phi}_k = \frac{\overline{\rho\phi_k}}{\overline{\rho}} = \frac{1}{\overline{\rho}} \int_{\Omega_\phi} \rho\phi_k P(\phi_k) d\phi_k = \int_{\Omega_\phi} \phi_k \tilde{P}(\phi_k) d\phi_k \quad (2.39)$$

Pour une variable vectorielle $\psi_k = (\psi_1, \psi_2, \dots, \psi_N)$, la probabilité d'être comprise entre ϕ_k et $\phi_k + d\phi_k$ (avec $k = 1, 2, \dots, N$) est égale à la densité de probabilité multipliée par l'extension en phase, soit :

$$Prob. (\phi_1 \leq \psi_1 < \phi_1 + d\phi_1, \dots, \phi_N \leq \psi_N < \phi_N + d\phi_N) = P(\phi_1, \dots, \phi_N) d\phi_1, \dots, d\phi_N$$

Pour garantir une probabilité maximale unitaire, une *condition de normalisation* est appliquée à la fonction densité de probabilité :

$$\int_{\Omega_\phi} P(\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_N) d\phi_1 d\phi_2 \dots d\phi_N = 1 \quad (2.40)$$

Avec une cinétique chimique détaillée, il faut définir la densité de probabilité à partir des fractions massiques de toutes les espèces et de la température. Dès lors, avec $\phi_k = (Y_1, \dots, Y_{N_{esp}}, T)$, l'expression du taux de production moyen $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}$ devient :

$$\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}} = \int \dots \int_{\Omega} \dot{\omega}_k(Y_1, \dots, Y_{N_{esp}}, T) P(Y_1, \dots, Y_{N_{esp}}, T) dY_1 \dots dY_{N_{esp}} dT \quad (2.41)$$

Le problème de fermeture est alors reporté sur le choix des :

- Schémas cinétiques contenant les lois d'Arrhénius qui permettent de déterminer parfaitement le terme source chimique local $\dot{\omega}_k(Y_1, \dots, Y_{N_{esp}}, T)$
- Méthodes de détermination de $P(Y_1, \dots, Y_{N_{esp}}, T)$, qui peut être soit présumée en lui donnant une forme a priori, soit résolue par une méthode Monte Carlo.

Détermination de $\omega_k(Y_1, \dots, Y_{N_{esp}}, T)$

Le premier terme $\omega_k(Y_1, \dots, Y_{N_{esp}}, T)$ dépend de la précision du schéma cinétique. L'utilisation d'un schéma complet reste souvent proscrit pour des raisons de temps de calcul. D'autres méthodes ont été développées pour introduire à moindre coût une cinétique détaillée en la couplant avec l'écoulement : la *réduction* de schémas cinétiques et la *tabulation* de la cinétique en fonction de paramètres clés. Ces méthodes font l'objet de la sous-partie 2.3 nommée "introduction d'une cinétique détaillée".

Détermination de $P(Y_1, \dots, Y_{N_{esp}}, T)$

◦ *Présumer* la forme $P(Y_1, \dots, Y_{N_{esp}}, T)$ dans le cas d'une cinétique détaillée est une tâche trop complexe. Parvenir à présumer une forme justifiable de $P(Y_1, \dots, Y_{N_{esp}}, T)$ requiert d'assumer de fortes hypothèses. Dans l'hypothèse d'une chimie infiniment rapide, il est possible d'exprimer la fraction massique \tilde{Y}_k de chaque espèce χ_k et la température T en fonction de la fraction de mélange z . Ainsi, on dégénère $P(Y_1, \dots, Y_{N_{esp}}, T)$ en $P(z)$. Il est alors possible de lier les modèles à *pdf* aux modèles de mélange pour les flammes non prémélangées :

$$\tilde{Y}_k = \int_0^1 Y_k(z) \tilde{P}(z) dz \quad (2.42)$$

Pour des flammelettes non prémélangées étirées, on peut également lier les méthodes à *pdf* aux modèles topologiques. Il faut toutefois introduire la dissipation scalaire χ dans la *pdf* pour tenir compte de la dépendance du front de flamme à l'étirement. Le champ scalaire de fraction massique moyen s'écrit alors :

$$\tilde{Y}_k = \int_{\Omega_{z,\chi}} Y_k(z, \chi) \tilde{P}(z, \chi) dz d\chi \quad (2.43)$$

Sous l'hypothèse d'une chimie suffisamment rapide (flamme mince), la très faible probabilité d'être sur la flamme traduit un comportement intermittent qui est retranscrit par une forme simple et discrète de la *pdf*. Ainsi, la forme présumée qui est associée aux modèles EBU, BML ou topologiques (flammes prémélangées) s'écrit :

$$P(c) = (1 - \bar{c}) \delta(c) + \bar{c} \delta(1 - c) \quad (2.44)$$

La fonction β normalisée est la forme présumée la plus répandue. Malgré sa "*monomodalité*"³, elle peut représenter le mélange par diffusion des flammes non prémélangées. La *pdf* $P(z)$ présente d'abord deux branches infinies placés sur 0 et 1 (l'extremum est un minimum) et converge ensuite vers une forme en cloche autour de la moyenne. Pour les flammes prémélangées, la *pdf* $P(c)$ donne accès aux états intermédiaires partiellement brûlés et se rapproche de la *pdf* $P(c)$ discrète et bi-modale de l'équation 2.44 obtenue sous l'hypothèse d'une chimie infiniment rapide (ségrégation maximale).

3. un seul extremum : maximum à faible variance, minimum à forte variance

La définition générale ($\phi_k = \{z, c\}$) de la pdf $\bar{\beta}(\phi_k)$ est :

$$\bar{\beta}(\phi_k) = \frac{\phi_k^{a-1} (1 - \phi_k)^{b-1}}{\int_0^1 \phi_k^{a-1} (1 - \phi_k)^{b-1} d\phi_k} \quad (2.45)$$

Les paramètres a et b sont reliés aux 2 premiers moments (moyenne, variance) de ϕ_k :

$$\bar{\phi}_k = \int_0^1 \phi_k \bar{P}(\phi_k) d\phi_k \quad \text{et} \quad \bar{\phi}_k''^2 = \int_0^1 (\phi_k - \bar{\phi}_k)^2 \bar{P}(\phi_k) d\phi_k \quad (2.46)$$

Si l'on fait varier ces deux paramètres a et b , la fonction β normalisée change de forme comme l'illustrent les figures 2.6 et 2.7. En résolvant les équations de transport des deux premiers moments de ϕ_k (seulement 2 équations), on connaît la forme de $\bar{\beta}(\phi_k)$ en tout point x . En introduisant la ségrégation S_{ϕ_k} définie comme $S_{\phi_k} = \bar{\phi}_k''^2 / [\bar{\phi}_k(1 - \bar{\phi}_k)]$, on exprime les paramètres a et b par :

$$a = \bar{\phi}_k \left(\frac{1}{S_{\phi_k}} - 1 \right) \geq 0 \quad \text{et} \quad b = (1 - \bar{\phi}_k) \left(\frac{1}{S_{\phi_k}} - 1 \right) \geq 0 \quad (2.47)$$

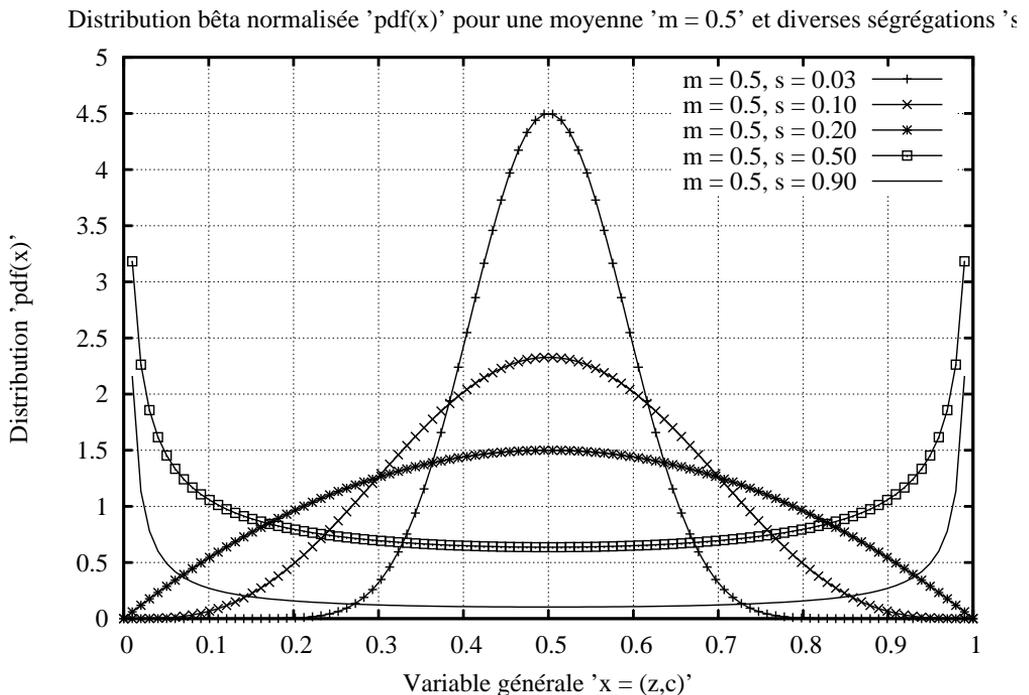


FIGURE 2.6 – Forme de la pdf β pour $z = 0,5$ et diverses ségrégations

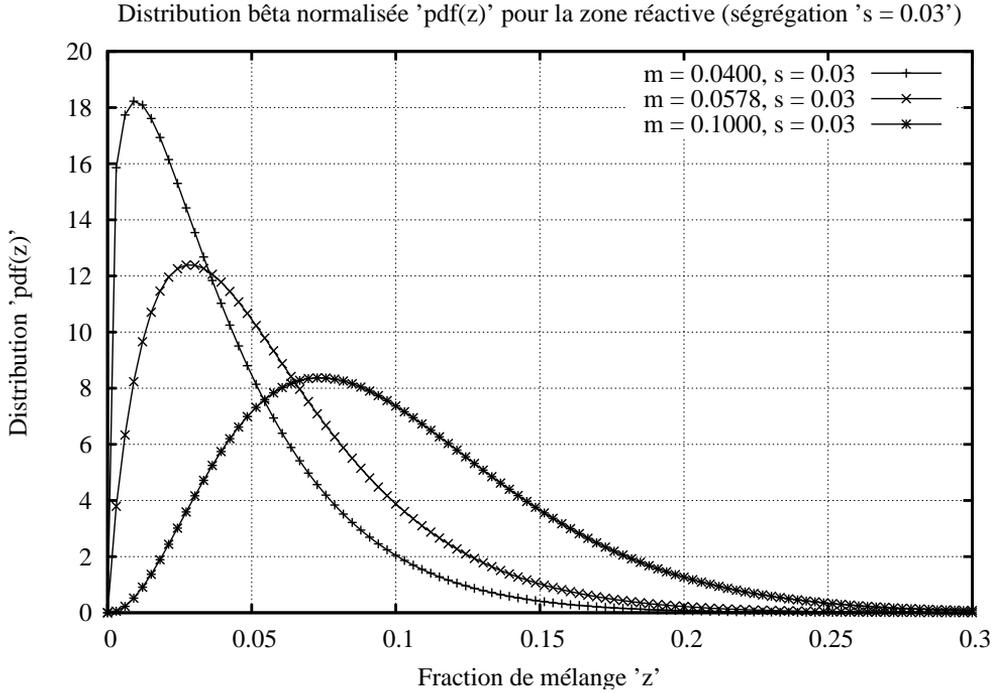


FIGURE 2.7 – Forme de la pdf β pour le domaine réactif (gaz naturel : $z_{st} = 0,0578$)

o Calculer la pdf nécessite de résoudre son équation de transport (Pope, 1985) :

$$\begin{aligned}
 \underbrace{\bar{\rho} \frac{\partial \tilde{P}}{\partial t} + \bar{\rho} \tilde{u}_k \frac{\partial \tilde{P}}{\partial x_k}}_{(1)} &= - \underbrace{\frac{\partial}{\partial x_k} \left[\bar{\rho} \overline{u_k'' | \psi = \phi} \tilde{P} \right]}_{(2)} \\
 &- \underbrace{\bar{\rho} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \frac{\partial}{\partial \phi_i} \frac{\partial}{\partial \phi_j} \left[D \left(\frac{\partial \psi_i}{\partial x_k} \frac{\partial \psi_j}{\partial x_k} | \psi = \phi \right) \tilde{P} \right]}_{(3)} \\
 &- \underbrace{\bar{\rho} \sum_i^N \frac{\partial}{\partial \phi_i} \left[\dot{\omega}_i(\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_N) \tilde{P} \right]}_{(4)}
 \end{aligned} \tag{2.48}$$

Chaque terme de l'équation 2.48 est calculé pour une composition ϕ (projection de la variable vectorielle ψ sur ϕ) et représente respectivement :

1. L'instationnarité et la convection de la pdf dans l'écoulement moyen
2. Le transport de la pdf par le mouvement convectif fluctuant
3. Le mélange à petites échelles faisant tendre la pdf vers une gaussienne
4. L'effet de réaction chimique sur la pdf

Les termes (1) et (2) représentent le transport de la *pdf* dans l'*espace physique*. Les termes (3) et (4) représentent son évolution dans l'*espace des phases* où les ϕ_k sont les variables thermochimiques (fractions massiques des espèces, température ...).

Une fois le schéma cinétique choisi, le terme (4) est fermé. Il peut être assimilé à un flux convectif déplaçant la composition du mélange réactif dans l'espace des phases.

Le véritable terme à modéliser est le terme (3) qui représente l'effet du micromélange. De nombreux modèles (lagrangiens et eulériens) existent et sans les présenter nous citerons les modèles PEUL pour "Probabiliste Eulerien Lagrange" (Vervisch, 1991), MIL pour "Modèle Intermittent Lagrangien" (Borghi, 1988), LMSE-IEM pour "Linear Mean Square Estimation" (Dopazo, 1973) et "Interaction by Exchange with the Mean" (Villermaux, 1986), le modèle de coalescence-redispersion ((Curl, 1963), le modèle GIEM ou "Bêta Mapping Closure" (Tsai et Fox, 1998) ou encore les modèles stochastiques (Kollmann, 1989) comme le "Linear Eddy Model" de Kerstein (1988).

Suivant les modèles, l'évolution de la *pdf* respecte plus ou moins de propriétés liées au mélange à petites échelles comme la conservation de la moyenne ou la relaxation vers une gaussienne.

Pour résoudre cette *pdf*, on emploie une méthode *Monte Carlo*. On fait ainsi évoluer un ensemble de particules prise une à une de manière aléatoire en leur appliquant les transformations physiques liées au micro-mélange et à la réaction chimique.

Pope (1985) recompose la *pdf* en considérant la moyenne formée par cet ensemble de particules ayant chacune une composition y_k^p . Le vecteur de composition y_k^p est de dimension N_{esp} ($N_{esp} - 1$ fractions massiques Y_k ainsi que la température T) :

$$P(\phi_k, \underline{x}, t) = \lim_{N_{part} \rightarrow \infty} \frac{1}{N_{part}} \sum_{p=1}^{N_{part}} \left(\prod_{k=1}^{N_{esp}} \delta(\phi_k - y_k^p(\underline{x}, t)) \right) \quad (2.49)$$

Dans ce cas, on détermine l'expression du terme source moyen $\bar{\omega}_k(\phi_k(\underline{x}, t))$ directement en fonction de la composition de toutes les particules traitées. Soit :

$$\begin{aligned} \bar{\omega}_k(\phi_k(\underline{x}, t)) &= \int_{\Omega_\phi} \omega_k(\phi_k(\underline{x}, t)) P(\phi_k, \underline{x}, t) d\phi_k \\ &= \lim_{N_{part} \rightarrow \infty} \frac{1}{N_{part}} \sum_{p=1}^{N_{part}} \omega_k(y_1^p(\underline{x}, t), \dots, y_{N_{esp}}^p(\underline{x}, t)) \end{aligned} \quad (2.50)$$

Applicable à toute cinétique même détaillée, cette approche de *pdf résolue* est très efficace et robuste. Toutefois, l'influence dominante des modèles de micro-mélange sur les résultats et le coût numérique des calculs Monte-Carlo ont conduit au développement d'autres méthodes.

L'approche CMC (Conditional Moment Closure)

L'idée de base de l'approche CMC est qu'autour d'un état thermochimique donné, décrit par exemple avec z et c , les fluctuations des grandeurs $\phi_k = \{Y_k, T\}$ sont faibles.

Ainsi, on conditionne ϕ_k sur une valeur fixe de c en combustion prémélangée et autour de z pour la combustion non prémélangée. On écrit ensuite les moments de ϕ_k conditionnés par $\zeta = \{z, c\}$ autour de la valeur particulière ζ^* , soit : $(\overline{\rho\phi_k|\zeta = \zeta^*})$.

Les moyennes classiques s'obtiennent par :

$$\overline{\rho\phi_k} = \int_0^1 (\overline{\rho\phi_k|\zeta = \zeta^*}) \overline{P}(\zeta^*) d\zeta^* \quad (2.51)$$

Klimenko et Bilger (1999) écrivent une équation de transport pour chaque ζ^* et déterminent $\overline{\dot{\omega}_k}(\phi_k)$ à l'aide de sa valeur conditionnée $(\overline{\rho\dot{\omega}_k}(\phi_k)|\zeta = \zeta^*)$:

$$\overline{\dot{\omega}_k}(\phi_k) = \int_0^1 \frac{(\overline{\rho\dot{\omega}_k}(\phi_k)|\zeta = \zeta^*)}{(\overline{\rho|\zeta = \zeta^*})} \overline{P}(\zeta^*) d\zeta^* \quad (2.52)$$

On admet que $(\overline{\rho\dot{\omega}_k}(\phi_k)|\zeta = \zeta^*}) \approx (\overline{\rho\dot{\omega}_k}(\phi_k|\zeta = \zeta^*})$ du fait des faibles fluctuations autour de ζ^* . Cette hypothèse reste valable hors des zones d'allumage ou d'extinction pour le CMC au premier ordre (une seule variable de conditionnement z ou c). Les comparaisons avec l'expérience démontrent une excellente capacité prédictive de l'approche CMC notamment pour les flammes non prémélangées.

L'approche MMC (Multiplie Mapping Conditioning)

Cette approche proposée par Klimenko et Pope (2003) est une généralisation du modèle de micro-mélange *Mapping Closure* (Pope, 1991). Elle combine les avantages des approches CMC et des méthodes à *pdf* en décrivant tout système réactif dans l'espace des compositions par l'évolution de l'hypersurface qui contient l'ensemble de ses états réactifs. Cette hypersurface est paramétrée par m variables de référence η (du type z, c) dont l'évolution est résolue. Les grandeurs conditionnées $\psi_k(\eta^*) = (\overline{\rho\phi_k|\eta = \eta^*}) / (\overline{\rho|\eta = \eta^*})$ permettent l'obtention de chaque grandeur ϕ_k par une projection ponctuelle sur l'hypersurface qui est associée à l'état considéré.

Dès lors, on détermine comme dans l'approche CMC l'expression de $\overline{\dot{\omega}_k}(\phi_k)$:

$$\overline{\dot{\omega}_k}(\phi_k) = \int_0^1 (\overline{\dot{\omega}_k}(\psi_k)|\eta = \eta^*) \overline{P}(\eta^*) d\eta^* \quad (2.53)$$

Tout le travail de la modélisation réside dans la recherche des m paramètres. Cleary et Kronenburg (2007a) proposent une fermeture avec 4 paramètres dont la fraction de mélange z et 3 variables représentant la dissipation scalaire. Cette approche récente est toujours en étude mais présente déjà d'excellents résultats en accord avec les calculs DNS (Cleary et Kronenburg, 2007b).

2.3 Introduction d'une cinétique détaillée

Dans le cadre de la prédiction fine d'émissions polluantes, l'emploi d'une cinétique détaillée est nécessaire.

Les schémas détaillés "complets" sont générés par la *juxtaposition* des mécanismes traitant les réactifs et les principaux intermédiaires réactionnels du mélange complexe qu'ils constituent (ex : le gaz naturel). Pour chaque classe de réactif, on obtient le mécanisme en soumettant le réactif aux réactions d'amorçage qui conduisent à la formation de radicaux. Ces radicaux évoluent selon certaines règles de génération (addition d'oxygène, isomérisation, β scission . . .) et engendrent de nouvelles espèces qui enrichissent le schéma jusqu'aux réactions de recombinaison finales. Lorsque plus aucun radical n'apparaît, le mécanisme détaillé dit *primaire* (ou *complet*) est formé.

Toutefois, la grande taille de ces mécanismes (plus de 100 espèces et plus de 1 000 réactions pour le gaz naturel) limite leur introduction complète dans un calcul CFD (Computational Fluid Dynamics) en raison des contraintes numériques qu'ils imposent : multiplicité du nombre d'équations et raideur du schéma. Pour coupler directement le calcul de l'écoulement à une cinétique détaillée mais s'abstraire de ces contraintes, deux principales approches ont été développées :

- *Réduire* la taille des schémas cinétiques
- *Tabuler* la cinétique chimique en fonction de paramètres clés (ex : z , c)

2.3.1 Méthodes de réduction

Les objectifs de la réduction cinétique sont de diminuer la taille du schéma (nombre d'espèces et de réactions) et d'atténuer sa raideur en conservant les informations essentielles au niveau de description choisie : limites d'inflammabilité, vitesse de flamme, limite d'allumage ou d'extinction, prédiction d'espèces (Peters, 1991).

Suivant le degré de raffinement, on distingue trois niveaux de réduction selon le type de schéma généré (Lepage, 2000) :

1. Le mécanisme *squelettique* (dizaines d'espèces et centaines de réactions)
2. Le mécanisme *réduit* (une dizaine d'espèces et une centaine de réactions)
3. Le mécanisme *global* (quelques espèces et une dizaine de réactions)

Ces trois niveaux de description sont succinctement abordés dans la suite du mémoire.

Mécanisme squelettique

Ce mécanisme n'est autre que le schéma détaillé auquel on a retiré les espèces et réactions dites "*redondantes*" (Turanyi, 1990), inutiles sur le domaine de réduction choisi (gamme de richesse et de température, physiques à prédire).

Pour construire ces schémas squelettiques, on cherche à reproduire avec un minimum d'erreur le profil des espèces "importantes" (Luche, 2003). Deux méthodes sont données à titre d'exemple :

- *Calcul des flux atomiques et analyse des chemins réactionnels* : On calcule les flux d'atomes A qui entrent dans une espèce χ_k .
- *Analyse de sensibilité* ou *Analyse des composantes principales (ACP)* : On étudie l'influence des constantes de réaction k_i sur la concentration de l'espèce χ_k . Pour ce faire, on introduit des coefficients de sensibilité normalisés $S_{ik} = \partial \ln(C_k) / \partial \ln(k_i)$ afin de déterminer les réactions "principales" du schéma.

En général, on classe les réactions et les espèces sous les épithètes "principales, importantes" ou "redondantes, limitantes" afin de scinder le schéma en deux groupes. La méthode CSP pour "Computational Singular Perturbation" (Lam et Goussis, 1994) permet d'illustrer cette philosophie. L'analyse des temps caractéristiques associés à chaque vitesse de réaction q_i permet d'en déterminer la contribution dans la production d'une espèce χ_k . Mathématiquement, on décompose le système matriciel associé au schéma sur une base de vecteurs propres. On écrit ensuite l'évolution de la concentration C_k de chaque espèce χ_k en deux contributions issues des modes lents et rapides :

$$\frac{\partial C_k}{\partial t} = \sum_{j=1}^M \underbrace{a_j g^j(\phi)}_{\text{Modes rapides}} + \sum_{j=M+1}^{N_{\text{esp}}} \underbrace{a_j g^j(\phi)}_{\text{Modes lents}} \quad (2.54)$$

Les M modes propres rapides $g^j(\phi)$ qui sont fonction du vecteur de composition $\phi = \{Y_k, T\}$, possèdent des temps caractéristiques petits et deviennent assez vite évanescents (relaxation des déséquilibres initiaux). En relaxant les modes rapides, les espèces restantes ne sont plus affectées que par les modes lents. Certaines espèces peuvent donc être déduites par de simples relations algébriques ce qui diminue la raideur du schéma.

Mécanisme réduit

La réduction des schémas cinétiques proposée par Peters (1985) vise à optimiser le choix des espèces ou des réactions à supprimer en fonction de critères locaux dans l'espace des compositions (richesse, température). Elle emploie principalement deux hypothèses simplificatrices qui tendent à négliger l'effet des phénomènes rapides ou de faible durée de vie : l'AEQS (Approximation de l'Etat Quasi-Stationnaire) et l'AEP (Approximation de l'Equilibre Partiel).

L'AEQS : Approximation de l'état quasi-stationnaire

Cette approximation (Bodenstein et Lutkemeyer, 1924) permet d'exprimer la concentration d'une espèce B évoluant rapidement sous une forme algébrique qui la relie aux espèces "lentes" du système. Pour expliciter l'AEQS, on pose la série de réactions suivantes : $A \xrightarrow{k_1} B \xrightarrow{k_2} C$.

Les équations d'évolution des concentrations de A et B et leurs solutions exactes sont :

$$\begin{aligned} \frac{dC_A}{dt} &= -k_1 C_A \quad ; \quad \frac{dC_B}{dt} = k_1 C_A - k_2 C_B & (2.55) \\ C_A &= C_{A,0} \exp(-k_1 t) \quad ; \quad C_B = \frac{k_1}{k_2 - k_1} C_A + \left(C_{B,0} - \frac{k_1}{k_2 - k_1} C_{A,0} \right) \exp(-k_2 t) \end{aligned}$$

Supposer que l'espèce B est en état quasi-stationnaire, c'est considérer qu'au bout d'un temps suffisamment long ($t \gg 1/k_2$) l'espèce est lentement formée et rapidement consommée. Cette hypothèse se traduit par : $k_2 \gg k_1$. Dès lors, le terme en $\exp(-k_2 t)$ devient négligeable devant le terme en $\exp(-k_1 t)$ et l'expression de C_B se simplifie :

$$C_B \approx \frac{k_1}{k_2 - k_1} C_A \approx \frac{k_1}{k_2} C_A \quad (2.56)$$

Cette relation algébrique montre que les flux de destruction ($k_2 C_B$) et de création ($k_1 C_A$) de B s'équilibrent ($k_1 C_A - k_2 C_B = 0$). Ainsi, après un temps d'induction $t = 1/k_2$, la dynamique de C_B est limitée et ne dépend plus que de l'évolution lente de C_A .

En éliminant une partie des espèces à faibles temps caractéristiques, cette méthode permet à la fois de réduire la taille et la raideur du schéma cinétique (Lepage, 2000).

L'AEP : Approximation de l'équilibre partiel

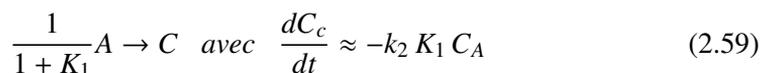
L'objet de cette approximation est de simplifier les expressions algébriques obtenues pour l'évolution des concentrations d'espèces soumises à l'AEQS (Peters, 1985). L'AEP s'applique non plus à une espèce mais à une réaction et pour l'explicitier, on pose une série de réactions dont la première est réversible : $A \xrightleftharpoons[k_2]{k_1} B \xrightarrow{k_2} C$. Les équations d'évolution des concentrations de A et B sont :

$$\frac{dC_A}{dt} = -k_{1,f} C_A + k_{1,r} C_B \quad ; \quad \frac{dC_B}{dt} = k_{1,r} C_A - (k_{1,r} + k_2) C_B \quad (2.57)$$

Supposer que la réaction 1 est en équilibre partiel, c'est considérer que les réactions de production (réactions 1 directe et inverse) de B sont rapides devant sa réaction de consommation (réaction 2) soit : $k_{1,f}; k_{1,r} \gg k_2$. L'évolution de B est reliée à celle de A et on peut donc éliminer la variable B par la relation $C_B \approx K_1 C_A$ avec $K_1 = k_{1,r}/k_{1,f}$. L'évolution de B se simplifie donc :

$$\frac{dC_B}{dt} = -\frac{dC_A}{dt} - k_2 C_B \quad \rightarrow \quad (1 + K_1) \frac{dC_A}{dt} = -k_2 C_B \quad (2.58)$$

Couplée à l'évolution de la concentration de C , on obtient l'évolution d'un schéma réduit à 2 espèces et 1 réaction (Luche, 2003) :



Mécanisme global

Dégénérescence extrême du schéma réduit, le mécanisme global comporte moins de 10 réactions et n'inclut souvent que les espèces majoritaires (CO_2 , H_2O , H_2 , $CO \dots$). Il est très utilisé dans les calculs CFD mais sa prédictivité se limite souvent à la vitesse de flamme et aux limites d'inflammabilité (Fernández-Tarrazo et al., 2006).

En dessous de 2 réactions (une pour l'oxydation du combustible et une autre pour l'oxydation du CO en CO_2), l'empirisme devient prépondérant et il faut caler les constantes de réactions à partir des données expérimentales (Westbrook et Dryer, 1984).

2.3.2 Méthodes de tabulation

Les méthodes de tabulations sont des approches récentes qui sont très utilisées en centre de recherche et de plus en plus dans le milieu industriel. Nous présentons ici les 3 plus grandes approches de tabulation nommées ILDM, FPI (ou FGM) et ISAT.

La méthode ILDM : Intrinsic Low Dimensional Manifold

Par l'analyse dynamique des équations chimiques, Maas et Pope (1992a) recherchent l'existence d'un sous-espace attracteur (low dimensional manifold) vers lequel vont converger les trajectoires d'évolution des fractions massiques $Y_i(t)$ des espèces χ_k . Un schéma de principe illustre cette notion à travers la figure 2.8.

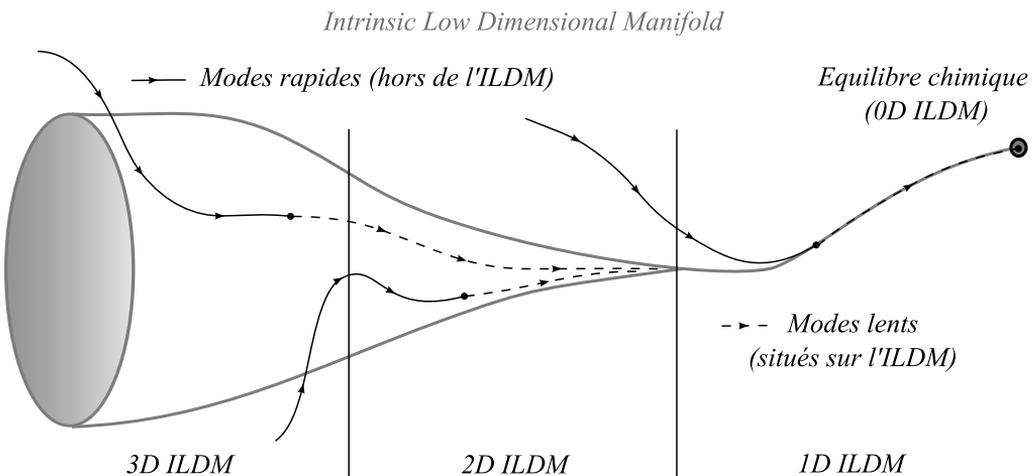


FIGURE 2.8 – Convergence des trajectoires $Y_k(t)$ (modes lents et rapides) vers l'ILDM

En accord avec l'équation 2.54, les trajectoires convergent plus au moins vite vers l'ILDM selon le temps caractéristique (inverse des valeurs propres du système) de leur mode associé. Les modes rapides sont considérés comme relaxés et limitent ainsi l'évolution de la chimie sur la "variété lente" (Zurbach, 1998). La difficulté est de décrire l'évolution topologique de l'ILDM dans l'espace des compositions (hypersurface).

Cette méthode est à la fois une approche de réduction de schéma dite *automatique* et une approche de tabulation. Comme une méthode de réduction, elle optimise les hypothèses faites localement dans l'espace des compositions (richesse, température) pour un nombre donné de degrés de liberté (nombre d'espèces et de réactions) comme l'explique Maas et Pope (1992b). De plus, elle permet de déterminer la fraction massique des espèces $Y_k(t)$ en fonction de paramètres qui décrivent le sous espace attracteur (ex : la variable d'avancement c ou la fraction de mélange z) et qui peuvent servir d'entrée pour une tabulation.

La méthode FPI : Flame Prolongation of ILDM

Le formalisme de la méthode ILDM s'appuie sur de solides fondations mathématiques et fournit d'excellents résultats près de l'équilibre chimique. Toutefois, en raison de l'hypothèse de relaxation des modes rapides situés hors de l'ILDM (voir figure 2.8), elle décrit assez mal les zones de basses températures. Il fallait donc trouver une approche capable de traiter les problèmes où interviennent l'allumage, les phénomènes transitoires ou autres phénomènes de diffusion.

La solution proposée par Gicquel (1999) est de prolonger l'ILDM avec des *calculs 1D de flammes laminaires stationnaires à cinétique détaillée*. Cette méthode est similaire à la méthode FGM proposée indépendamment par Oijen et al. (2001).

Bien que disposant d'un support mathématique moins rigoureux que l'ILDM originel, ces méthodes fournissent de bien meilleurs résultats à basse température tout en convergeant vers les résultats de l'ILDM à haute température (Gicquel et al., 2000).

La méthode ISAT : In Situ Adaptive Tabulation

Le principal défaut de la tabulation cinétique est qu'elle devient numériquement coûteuse au delà de 2 ou 3 coordonnées (z , c , l'enthalpie totale h_t , ...) en raison des problèmes d'accès et de taille mémoire ou des interpolations multi-linéaires à calculer.

Constatant qu'une infime partie de la table est employée au cours de la simulation du fait de localité de la zone réactive dans l'espace des compositions, Pope (1997) propose de générer dynamiquement la partie utile de la table au cours de la simulation (in situ).

On pose $\phi = (Y_k, T)$, le vecteur de composition d'un mélange réactif. Son évolution dans l'espace des phases est alors donnée par :

$$\frac{d\phi}{dt} = S[\phi(t)] \quad (2.60)$$

Le terme $S[\phi(t)]$ exprime le terme source chimique. En partant d'une composition ϕ^0 au temps t_0 , la composition au pas de temps suivant $t_0 + \Delta t$ est calculée par $\phi(t_0 + \Delta t) = R[\phi(t_0)]$ où $R[\phi(t_0)]$ est l'intégrale de $S[\phi(t)]$ entre t_0 et $t_0 + \Delta t$.

Chaque entrée de la table contient la composition ϕ_0 , la réaction projetée $R(\phi^0)$ et le gradient de projection $A(\phi^0) = \partial R_i(\phi^0) / \partial \phi_j$. Ce dernier mesure la sensibilité de la réaction projetée aux changements de composition et fournit les coefficients requis pour les interpolations linéaires.

Chaque entrée est associée à une taille de zone où l'on recherche la réaction projetée avec une tolérance ϵ_{tol} qui est fournie par l'utilisateur. La grandeur sera alors estimée par interpolation linéaire. Lors de l'entrée d'une composition ϕ^q , on requiert la réaction projetée $R(\phi^q)$. On recherche alors la composition ϕ^0 la plus proche dans la table par une méthode d'arborescence binaire. Ensuite, trois actions sont possibles :

- Si ϕ^q appartient à une localité déjà précisée dans la table existante ϕ^0 , une simple interpolation linéaire est effectuée :

$$R(\phi^q) = R(\phi^0) + A(\phi^0)(\phi^q - \phi^0) \quad (2.61)$$

- Si ϕ^q est en-dehors des localités précisées de la table ϕ^0 , alors $R(\phi^q)$ est calculée par intégration de l'équation 2.60 et sera comparée à l'interpolation linéaire pour en donner l'écart ϵ . Deux cas sont alors considérés :
 - Si $\epsilon \leq \epsilon_{tol}$, on augmente la taille de la région précisée qui est fonction de ϕ^0 .
 - Si $\epsilon > \epsilon_{tol}$, une nouvelle entrée est introduite.

Au début du calcul, la table est vide et les requêtes induisent la création de nouvelles entrées. Lorsque le sous-espace attracteur (ILDM) est peuplé, les nouvelles entrées sont rares. Couplée à une méthode de *pdf* transportée, cette approche est très efficace comparée à l'intégration directe d'un schéma complet (facteur 1000 sur certaines configurations). L'efficacité de cette approche lui a par ailleurs permis d'être incluse dans certains codes de calcul commerciaux.

Deuxième partie

Modélisation de la formation des polluants

Chapitre 3

Modélisation par réseaux de réacteurs

3.1 Principe de modélisation

Pour positionner cette approche "réseaux de réacteurs" dans l'éventail des modèles de combustion turbulente, nous rappelons qu'un couplage *complet* entre l'écoulement turbulent et la cinétique détaillée reste proscrit pour des raisons de temps de calcul (raideur du schéma cinétique) et d'espace mémoire (nombre d'espèces chimiques).

Néanmoins, il est impératif de coupler ces deux physiques pour obtenir une prédiction pointue des émissions polluantes en sortie de la chambre de combustion. En effet, la dépendance du NO et du CO à la température et à la richesse *requiert le calcul de l'écoulement turbulent* qui donne accès localement à leur taux de réaction. Ce taux de formation est par ailleurs fonction des sur-équilibres radicalaires dont l'évolution complexe nécessite *l'emploi d'un mécanisme a minima squelettique*.

En ajoutant à cela les contraintes de temps de réponse (rapide) imposées à l'outil prédictif (utilisation dynamique sur site), le choix d'une méthode à *pdf* couplée totalement au schéma squelettique apparaît inadéquate (méthode Monte-Carlo numérique coûteuse). On ne pourrait pas non plus recourir à une méthode de tabulation qui conserverait l'évolution cinétique complète du système chimique dont le NO car la taille de la table serait immense (centaines de Mo voire Go). Dès lors, *l'unique solution est de coupler partiellement l'écoulement et la cinétique en simplifiant soit l'un soit l'autre*.

La plupart des modèles de combustion turbulente détaillent l'écoulement et restreignent la cinétique chimique au calcul des espèces majoritaires (CO_2 , H_2O) responsables du dégagement de chaleur. Dans notre cas, c'est l'inverse : on porte les efforts de modélisation vers la chimie et la prédiction des espèces minoritaires en simplifiant l'écoulement en un réseau de réacteurs à cinétique détaillée.

Dans ce type de modélisation, on couple l'écoulement turbulent et la cinétique détaillée de manière partielle puisque l'on sépare le calcul en deux étapes. Cette séparation est justifiée par *l'infime présence des espèces minoritaires dont l'effet sur l'écoulement est négligeable* (faible dilatation thermique).

Le principe de modélisation par réseaux de réacteurs n'est pas récent et déjà dans les années 70, son objectif était de prédire la formation de polluants au sein des chambres de combustion de turbines à gaz. Le manque d'informations détaillées sur l'écoulement turbulent conduisait alors à une description grossière des diverses zones de la chambre. Dès lors, les réseaux étaient simples et constitués de seulement quelques réacteurs délimités par une analyse empirique de l'écoulement comme l'illustre la figure 3.1.

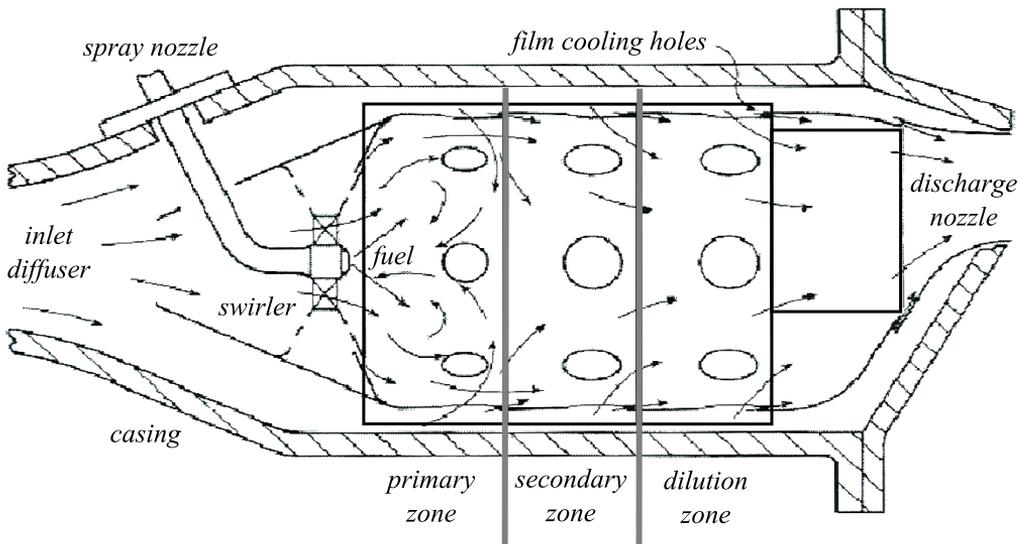


FIGURE 3.1 – Réseau de réacteurs grossier pour une chambre de combustion tubulaire

Dans la figure 3.1, on observe que la zone primaire accueille de fortes recirculations et favorise le mélange entre le combustible et l'air mis en rotation par le *swirler*. Un unique réacteur 0D ouvert et parfaitement homogène, nommé *PSR* (Perfectly Stirred Reactor) englobait la totalité de cette zone fortement brassée. Dans les zones secondaire et de dilution, l'air est introduit pour achever l'oxydation du combustible et limiter les imbrûlés ou le *CO*. En raison de la direction privilégiée de l'écoulement en sortie, ces zones pouvaient être modélisées par des réacteurs 0D en série ou par un réacteur 1D nommé *PFR* (Plug Flow Reactor).

Pour valider le modèle associé avec d'éventuelles mesures d'émissions en sortie, un calage des paramètres était requis. L'expérience des chercheurs et ingénieurs de développement les poussait à modifier le découpage pour adapter le volume des zones ou la répartition des débits d'air et de combustible en entrée. L'empirisme de cette approche ne donnait pas entière satisfaction et limitait les capacités prédictives réelles de l'outil hors des configurations pour lesquelles il avait été calé.

Avec le développement du calcul CFD (Computational Fluid Dynamics), une nouvelle voie de génération des réseaux de réacteurs est née. Elle permet de s'affranchir des considérations empiriques sur la topologie de l'écoulement. Initiée par Ehrhardt (1993), la méthodologie s'appuie sur les résultats d'un pré-calcul CFD afin de délimiter le volume des zones et leur temps de séjour (temps de résidence d'une particule fluide dans le volume délimité) ou encore les conditions aux limites du domaine fluide.

3.2 Procédure de calcul

La génération du réseau de réacteurs à l'aide d'un pré-calcul CFD est illustrée dans figure 3.2 et conduit au développement d'une procédure à 3 étapes pour prédire la formation des polluants.

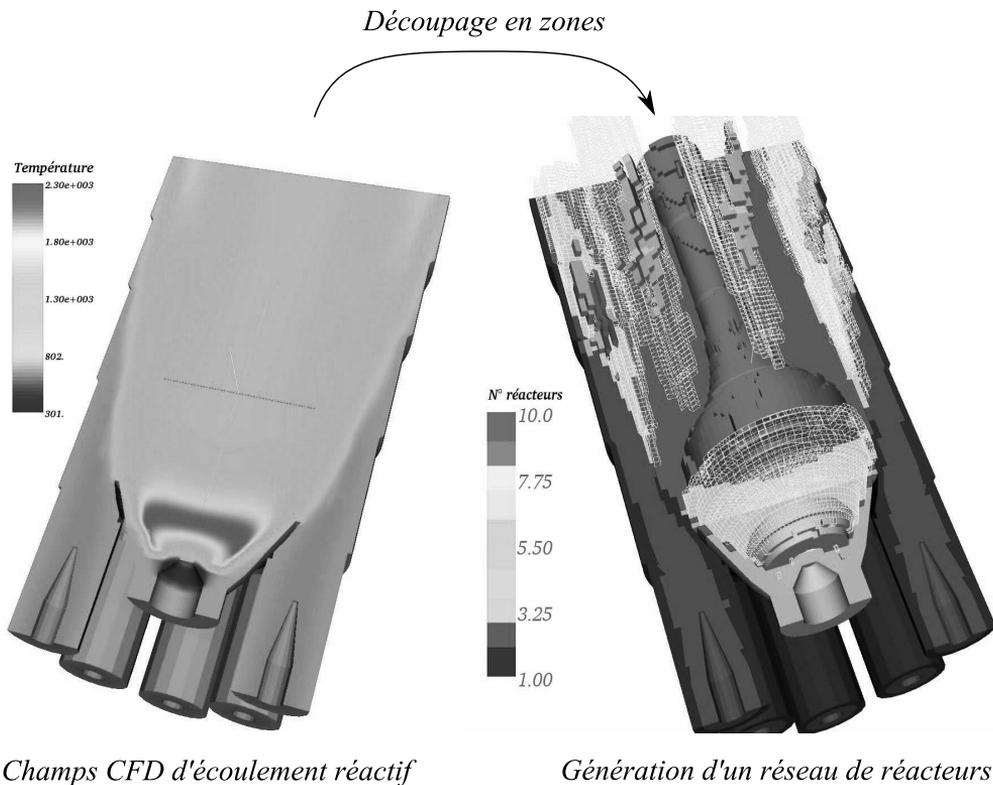


FIGURE 3.2 – Procédure de génération d'un réseau de réacteurs à partir du calcul CFD

Cette procédure à 3 étapes est composée d'un :

1. *Calcul CFD RANS* : On réalise un calcul RANS d'écoulement turbulent réactif avec une cinétique globale (oxydation d'hydrocarbures à l'exemple de la réaction globale de l'équation 1.1) qui ne tient compte que des espèces majoritaires. On obtient ainsi les champs moyens de vitesse \underline{u} , de richesse ϕ et de température T .

2. *Découpage en zones* : On post-traite les résultats du calcul CFD en délimitant des zones de l'écoulement à l'aide de critères de découpage appliqués aux champs calculés. On construit le réseau de réacteurs en déterminant les flux de masse échangées entre les zones ou en entrée du domaine.
3. *Calcul du RN (Reactor Network)* : On associe chaque zone découpée à un réacteur incluant une cinétique détaillée. On calcule ainsi l'évolution chimique de la composition et surtout la formation du *NO* et du *CO*. La résolution du réseau global fournit les émissions à l'état stationnaire en sortie du domaine.

Dans la littérature scientifique, peu de chercheurs ont travaillé sur la modélisation par réseaux de réacteurs issue des calculs CFD. De surcroît, si la philosophie reste la même, les approches divergent au cours des étapes de calcul comme nous le présentons ici.

3.2.1 Calcul CFD RANS

Pour la fermeture du terme de transport turbulent $\overline{\rho u'_j \phi''_k}$, le modèle $k - \varepsilon$ est le plus communément employé (Frassoldati et al., 2005 ; Mancini et al., 2007c). Toutefois, Falcitelli et al. (2002b) utilisent un simple modèle algébrique du premier ordre (μ_t constant) issu de l'expansion des jets libres. Ils représentent ainsi l'injection d'air dans un four verrier de 5 MWth ou dans un générateur de vapeur de 320 MWe. A l'opposé, Mancini et al. (2007a) testent l'influence d'un modèle plus poussé ($k - \varepsilon$ RNG) qui se rapproche des modèles au second ordre type $R_{ij} - \varepsilon$ où l'on transporte les composantes du tenseur de Reynolds. Ils ne trouvent toutefois que des changements mineurs sur leurs résultats.

Si les travaux de Falcitelli et al. (2002b) se limitent à un modèle de turbulence simple, ils prennent en compte le rayonnement thermique avec les parois. Ils emploient un modèle aux ordonnées discrètes avec une approximation S4 (Truelove, 1987) qui raffine légèrement les champs de température obtenus. De manière analogue, Frassoldati et al. (2005) recourent à un modèle P1 pour le rayonnement afin de simuler une flamme de diffusion fortement swirlée. La prise en compte du rayonnement leur apparaît cependant peu influente sur les champs de vitesse.

La fermeture du terme source chimique moyen $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}$ pour ces cas industriels repose beaucoup sur les modèles de mélange. Toutefois, Mancini et al. (2007a) confrontent les modèles de mélange *EBU* et *EDC* à une méthode de *pdf* présumée utilisant une tabulation non adiabatique qui tient ou non compte des fluctuations de la fraction de mélange z . Ils mettent en avant une légère amélioration des résultats avec la chimie non infiniment rapide. Leur cas d'étude fortement dilué par des gaz brûlés (combustion MILD pour Moderate and Intensive Low Oxygen Dilution) exhibe par contre une forte atténuation des fluctuations turbulentes ($\overline{z''^2} \rightarrow 0$) qui n'ont qu'une infime influence sur leurs résultats. Cette hypothèse d'intense mélange turbulent conduit par ailleurs Benedetto et al. (2000), Falcitelli et al. (2002b) et Frassoldati et al. (2005) à transporter l'équation pour la fraction massique moyenne \overline{Y}_k de plusieurs espèces χ_k .

Ainsi, dans toutes ces approches, un schéma cinétique contenant au moins deux réactions est introduit pour représenter l'oxydation de l'hydrocarbure (Westbrook et Dryer, 1984) et celle du CO en CO_2 . Cet effort de modélisation garantit une bonne représentation du taux de dégagement de chaleur et assure l'obtention de champs de température précis malgré les faiblesses du modèle de mélange (*EBU*, *EDC*).

3.2.2 Découpage en zones

Dans la plus récente des études menées sur la modélisation par réseau de réacteurs (Mancini et al., 2007b), le découpage est encore semi-empirique en raison de la relative simplicité de l'écoulement principalement composé de jets en expansion libre. En effet, le dispositif semi-expérimental de l'IFRF (International Flame Research Foundation) d'une section de 4 m^2 et d'une puissance de $0,58 \text{ MW}$ (en fonctionnement stationnaire) dispose de deux jets périphériques de gaz naturel qui se joignent progressivement à un jet central d'oxydant fortement composé de gaz brûlés à 1573K ($19,5 \%$ d' O_2 , $59,1 \%$ de N_2 , 15% d' H_2O et $6,4 \%$ de CO_2 en volume). Ainsi, Mancini et al. ont scindé ces écoulements quasi-unidirectionnels en une série de PSR (réacteurs 0D) de même longueur et dont la largeur est donnée par la ligne de vitesse axiale nulle. Un réacteur *R22* englobe tous les autres et représente la zone de recirculation globale de ce foyer MILD. La figure 3.3 illustre la configuration étudiée et le découpage réalisé.

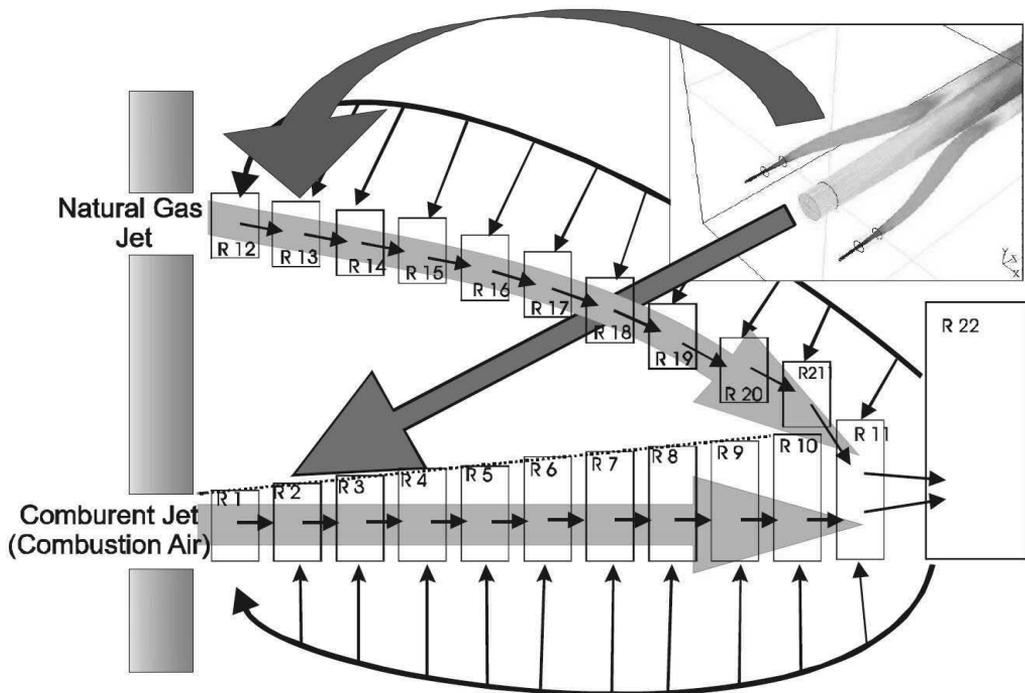


FIGURE 3.3 – Découpage semi-empirique d'un brûleur MILD de l'IFRF. Mancini et al. (2007a)

Pour un écoulement industriel quelconque, le découpage en zones doit être décrit par un algorithme complexe qui tient compte de considérations géométriques et chimiques.

Dans la littérature, nous n'avons trouvé qu'un seul algorithme de découpage suffisamment robuste pour être appliqué à n'importe quelle configuration géométrique. Nous décrivons ici les fondements de cet algorithme développé par Falcitelli et al. (2002c) qui se décompose en 3 parties :

1. On découpe tout d'abord l'écoulement dans l'espace *chimique* en projetant sur un point du plan (richesse ϕ , température T) les grandeurs calculées dans chaque cellule du maillage CFD. Dès lors, on découpe ce domaine chimique par de *simples intervalles de richesse et de température* comme l'illustre la figure 3.4.

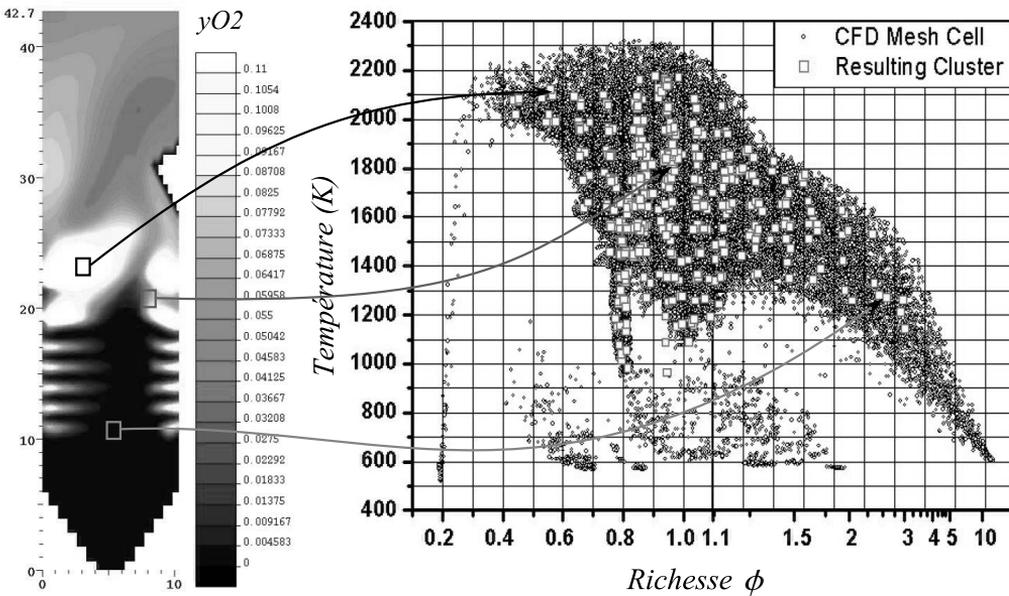


FIGURE 3.4 – Découpage dans l'espace chimique des champs CFD et réacteurs résultant de l'algorithme complet. Falcitelli et al. (2002c)

Pour la température, on impose ici l'intervalle $\Delta T = (T_{max} - T_{min}) / (N - 1) = 100K$ avec $T_{min} = 400K$ et $T_{max} = 2400K$. On définit ainsi une *loi régulière* pour N valeurs de coupe (indice c) :

$$T_{c,i} = T_{min} + \Delta T (i - 1) \quad i = (1, \dots, N) \quad (3.1)$$

Pour la richesse, on distingue les mélanges pauvres (exposant l pour "lean") et riches (exposant r , "rich"). On impose toutefois un unique intervalle de richesse $\Delta\phi = 0, 1$. Une nouvelle loi régulière est définie pour les mélanges pauvres à partir de la stoechiométrie qui se place autour de $\phi_f = 1.1$ avec une chimie détaillée.

Pour les mélanges riches, on propose une loi harmonique croissante afin de considérer un domaine d'inflammabilité plus large. On a donc :

$$\phi_{c,i}^l = \phi_f - \Delta\phi(i-1) \quad i = (1, 2, \dots) \quad (3.2)$$

$$\phi_{c,i}^r = \phi_f \frac{1}{1 - i\Delta\phi} \quad i = (1, 2, \dots) \quad (3.3)$$

2. On découpe ensuite l'écoulement dans l'espace *physique* en tenant compte de critères géométriques pour obtenir des *réacteurs connexes*. En effet, deux zones de l'écoulement, éloignées l'une de l'autre, peuvent toutefois avoir la même richesse et la même température sans pour autant avoir été générées de la même manière (flamme de diffusion ou de prémélange). Pour chaque zone, on teste l'appartenance des réacteurs voisins au même groupe chimique. On réalise ainsi un découpage géométrique qui permet d'*isoler une physique par réacteur*.
3. Ce sur-découpage géométrique engendre un trop grand nombre de réacteurs pour être exploité directement. Pour cette raison, on effectue un *reclassement* de l'ensemble des réacteurs sur la base du nombre de cellules qu'ils contiennent. Ainsi, les plus "gros" réacteurs en nombre de mailles sont conservés et les plus petits sont redistribués parmi les plus imposants. Afin de réaliser la *meilleure redistribution possible*, on quantifie la ségrégation Z_{tot} de chaque réacteur :

$$Z_{tot} = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^{N_{esp}} Z_k \quad (3.4)$$

La ségrégation Z_k de chaque espèce est une grandeur adimensionnée, normalisée et qui est construite par le rapport de la variance d'une espèce χ_k sur sa variance maximale $\overline{Y_k^2} = \overline{Y_k} (1 - \overline{Y_k})$. Dans un *PSR* (réacteur parfaitement homogène), les grandeurs sont idéalement mélangées, la variance est donc nulle : Z_k vaut 0. Pour un milieu parfaitement ségrégué, Z_k vaut 1. Ainsi, on écrit :

$$Z_k = \frac{\overline{Y_k^2} - \overline{Y_k}^2}{\overline{Y_k} (1 - \overline{Y_k})} \quad (3.5)$$

Chaque grandeur de la zone, $\overline{Y_k^2}$ et $\overline{Y_k}$, est une moyenne obtenue par sommation sur les cellules qu'elle contient en pondérant chaque contribution par sa masse :

$$\overline{Y_k} = \frac{\sum_j \rho_j V_j Y_{k,j}}{\sum_j \rho_j V_j} \quad (3.6)$$

Pour effectuer la redistribution des petits réacteurs parmi les plus gros, on estime l'incrément de ségrégation Z_{tot}^{inc} du réacteur d'accueil. Pour chaque petit réacteur,

on calcule pour ses gros réacteurs voisins la différence entre la ségrégation hypothétique Z_{tot}^* du gros réacteur accru du petit réacteur traité et la ségrégation du réacteur Z_{tot} avant l'ajout du petit réacteur :

$$Z_{tot}^{inc} = (n + 1)Z_{tot}^* - nZ_{tot} \quad (3.7)$$

Dès lors, on choisit comme réacteur d'accueil, le gros réacteur voisin dont l'incrément de ségrégation Z_{tot}^{inc} est minimal. C'est ainsi qu'on optimise l'homogénéité des gros réacteurs pour chaque petit réacteur traité en respectant la contrainte imposée sur le nombre maximal de réacteurs à calculer.

L'écoulement réactif dans un générateur de vapeur à murs opposés d'une puissance de 320 MWe est ainsi décomposé en réseaux de réacteurs par cet algorithme. Un réseau de 400 réacteurs ressort d'une *étude de sensibilité au nombre de réacteurs* comme le meilleur compromis entre temps de calcul et description de l'écoulement.

Falcitelli et al. (2002c) présentent en figure 3.5 les distributions sur l'ensemble des zones (zone frequency) de la variance des fractions massiques moyennes à travers l'indice de ségrégation Z_{tot} et de la variance des températures moyennes.

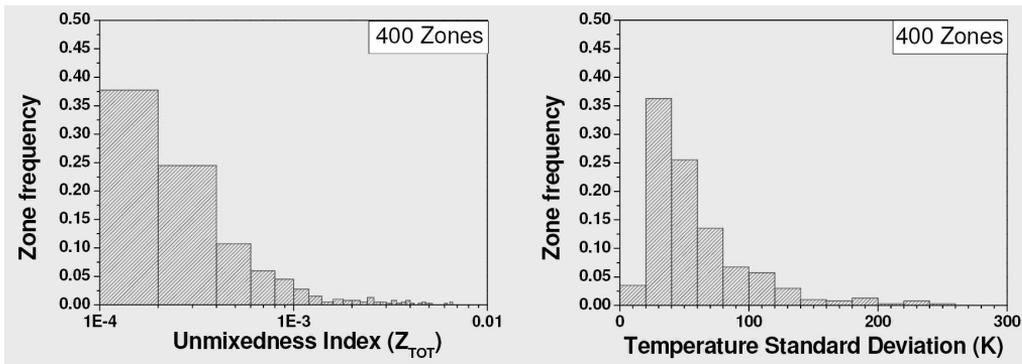


FIGURE 3.5 – Distribution sur l'ensemble des zones de l'indice de ségrégation Z_{tot} et de la variance des températures moyennes. Falcitelli et al. (2002c)

On observe ainsi qu'avec ce découpage $\Delta\phi = 0,1$ et $\Delta T = 100K$, l'homogénéité des réacteurs est satisfaisante ($Z_{tot} \leq 10^{-3}$). Le pic visible pour la variance des températures moyennes provient des zones d'allumage où les gradients sont forts.

Dans les travaux de Faravelli et al. (2001), on retrouve la même philosophie de découpe en scindant tout écoulement réactif dans l'espace chimique et physique (considérations géométriques). Le sur-découpage physique qui minimisait la ségrégation du réseau est toutefois remplacé par un découpage géométrique arbitraire.

Dans les travaux plus récents de Frassoldati et al. (2005), on crée automatiquement le découpage géométrique en utilisant un critère semblable à ceux employés par les générateurs de maillage CFD. De même, on automatise le découpage chimique en appliquant

un critère sur l'écart type des températures (σ_T) et des richesses (σ_ϕ) moyennes dans chaque zone. On pose pour cela $\langle . \rangle$ comme la moyenne sur le volume de la zone :

$$\sigma_T = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{N_{cell}} (T(i) - \langle T \rangle)^2}{N_{cell}}} \quad \text{et} \quad \sigma_\phi = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{N_{cell}} (\phi(i) - \langle \phi \rangle)^2}{N_{cell}}} \quad (3.8)$$

On continue la sub-division chimique de chaque zone géométrique tant que le critère sur l'écart type n'est pas vérifié.

3.2.3 Calcul RN (Reactor Network)

Une fois le découpage réalisé, un numéro de zone est assigné à chaque cellule du maillage. Il ne reste plus qu'à associer chaque zone à un réacteur chimique. Dans la littérature, les réacteurs chimiques utilisés sont idéaux (mélange parfait suivant deux ou trois directions de l'espace). Ainsi, une zone au sein de laquelle l'écoulement est très chaotique et où la direction du vecteur vitesse est fortement variable, sera modélisée par un réacteur 0D idéal (*PSR*). Si la zone est le siège d'un écoulement ayant une direction privilégiée, elle sera associée à un réacteur 1D idéal (*PFR*). Cette distinction est illustrée par la figure 3.6 à travers la dispersion des angles polaire et sagittal du vecteur vitesse.

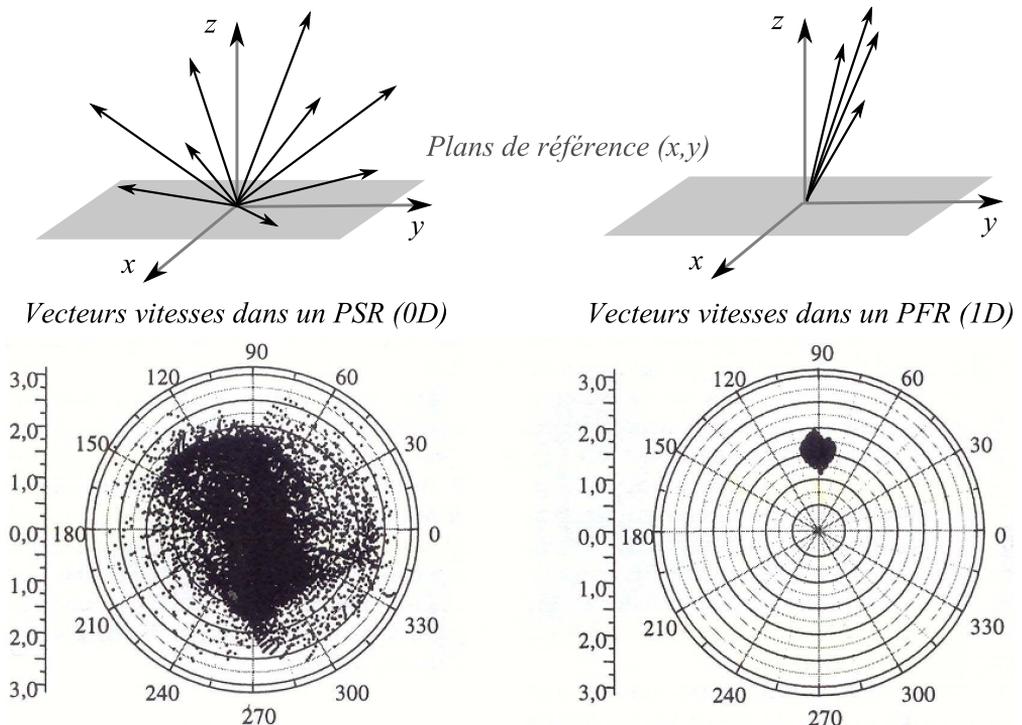


FIGURE 3.6 – Angles sagittal et polaire des vecteurs vitesse dans un PSR et dans un PFR. Faravelli et al. (2001)

Cette distinction entre réacteurs 0D (*PSR*) et 1D (*PFR*) est en réalité un moyen de garantir une bonne représentation de l'écoulement, première propriété que doit respecter un réseau de réacteurs. Dans ces réacteurs idéaux, le paramètre de couplage entre les phénomènes de transport et la cinétique détaillée est le *temps de séjour* qui limite l'évolution de la composition vers l'équilibre chimique. Ainsi, on peut valider la représentation de l'écoulement en confrontant les *Distributions de Temps de Séjour (DTS)* obtenues pour le réseau de réacteurs et le calcul CFD sur la frontière de sortie du domaine fluide. Cette confrontation des *DTS* entre calcul CFD et approche "réseau" (SFIRN : Simplified Fluidynamic by Ideal Reactor Network) est présentée dans les travaux de Faravelli et al. (2001) que nous résumons en figure 3.7.

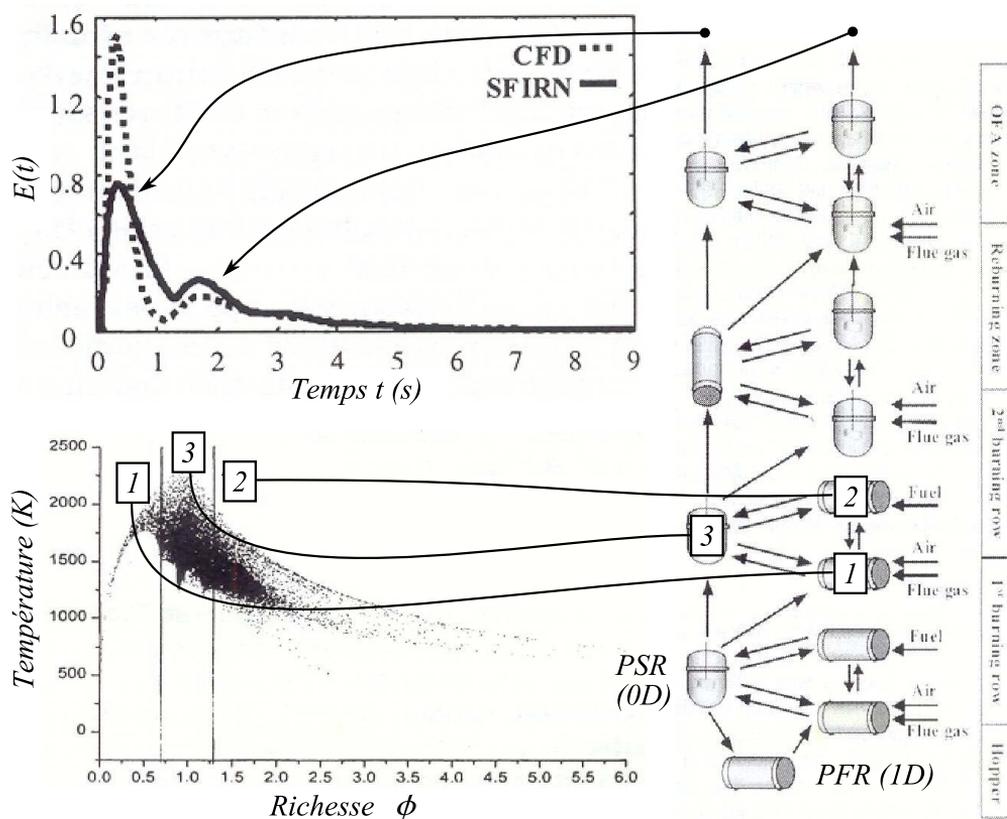


FIGURE 3.7 – Distribution des temps de séjour du calcul CFD et du réseau de réacteurs. Faravelli et al. (2001)

Pour l'étude de ce four industriel présentant des injections successives localisées à différentes hauteurs, un découpage chimique en 3 richesses est imposé. Il produit un réseau simple formé de seulement 13 réacteurs qui sépare néanmoins les deux filets fluides que l'on retrouve en sortie du domaine. La bimodalité (présence de 2 maxima) de la distribution des temps de séjour est correctement reproduite par le réseau de réacteurs. L'emploi mixte de réacteurs 0D et 1D permet ainsi de simuler avec justesse les différentes zones de mélange et de recirculation dans l'écoulement.

3.3 Analyse des modèles existants

3.3.1 Confrontation des champs CFD / CRN

Pour des réseaux de réacteurs composés de nombreux éléments (plus de 50), la comparaison des DTS peut être supplantée par une confrontation directe des champs calculés. Ainsi, lorsque Benedetto et al. (2000) ou Faravelli et al. (2001) accordent les DTS de réseaux simples (13 réacteurs) à celle issue du calcul CFD, Falcitelli et al. (2002c) appo- sent face à face les champs de fraction massique d' O_2 issu du calcul CFD et de leur CRN de 400 réacteurs comme l'illustre la figure 3.8.

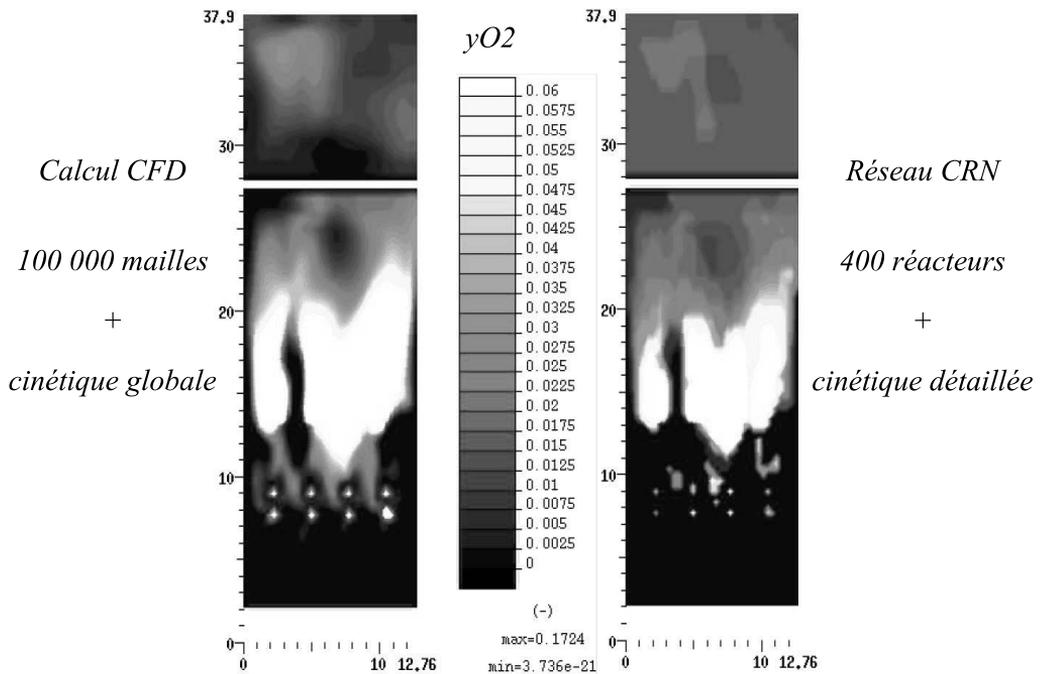


FIGURE 3.8 – Champs de fraction massique d' O_2 dans la chambre de combustion en coupe. Falcitelli et al. (2002c)

Les résultats probants ici présentés proviennent en partie du fait que la cinétique globale utilisée dans le calcul CFD est en réalité un schéma réduit (8 espèces et 9 réactions). Le schéma est en partie issu des études de Westbrook et Dryer (1984) et malgré une fiabilité non testée, il prédit une évolution des espèces majoritaires (ici, O_2) en très bon accord avec la cinétique détaillée utilisée dans le CRN (130 espèces, 1200 réactions).

L'autre raison d'un si bon accord des champs d'espèces majoritaires provient de l'emploi de *réacteurs* 0D (et 1D) *isothermes*. Par "*isotherme*", on entend que la température de fonctionnement du réacteur sera fixe lors du calcul à cinétique détaillée et que seule, la composition chimique évoluera dans le CRN. Cette température de fonctionnement est alors obtenue à partir du calcul 3D.

3.3.2 Isothermicité des réacteurs 0D

Avant toute analyse, il est essentiel de noter que cette approche de *réacteurs isothermes* est commune à toutes les études trouvées dans la littérature. De même, les flux de masses échangés entre zones sont *constants* au cours du calcul CRN.

L'isothermicité des réacteurs requiert néanmoins l'utilisation, dans le calcul CFD, d'un schéma cinétique réduit comportant au moins 2 réactions (oxydation de l'hydrocarbure C_nH_m et du CO en CO_2). En effet, l'influence prépondérante de la température sur les réactions chimiques impose de calculer la température de fonctionnement des réacteurs à partir du calcul CFD avec un maximum d'acuité.

Diverses approches sont proposées dans la littérature. La plus simple expression propose de calculer la température moyenne $\langle T \rangle$ du réacteur en pondérant la contribution \bar{T}_j de chaque cellule j qui le constituent par leur volume associé (possibilité de post-traitement du logiciel CFD "Fluent"). En notant $\langle T \rangle$, la température moyenne du réacteur, il viendrait alors :

$$\langle T \rangle = \frac{\sum_j V_j \bar{T}_j}{\sum_j V_j} \quad (3.9)$$

Toutefois, pour accroître la précision et la rigueur de ce calcul, il convient plutôt d'employer une grandeur conservative comme l'enthalpie de chaque zone pour en déduire sa température. C'est l'approche proposée par Falcitelli et al. (2002c) en notant m_j la masse de la $j^{\text{ième}}$ cellule d'un réacteur de masse m et d'enthalpie massique H :

$$m H(\langle T \rangle) = \sum_j m_j \int_0^{\langle T \rangle} C_{p_j}(\bar{T}) d\bar{T} = \sum_j m_j \int_0^{T_j} C_{p_j}(\bar{T}) d\bar{T} \quad (3.10)$$

Enfin, dans les travaux de Faravelli et al. (2001) et plus récemment de Frassoldati et al. (2005), on recourt à une pondération "cinétique" qui accentue l'impact de paramètres chimiques sur la détermination de la température moyenne du réacteur. Ainsi, on écrit la pondération "cinétique" par la contribution à la formation du NO :

$$\langle T \rangle = \frac{\int_0^\infty \bar{T} f(\bar{T}) X_{NO}(\bar{T}, \phi, \tau) \tau(\bar{T}) d\bar{T}}{\int_0^\infty f(\bar{T}) X_{NO}(\bar{T}, \phi, \tau) \tau(\bar{T}) d\bar{T}} \quad (3.11)$$

Dans l'équation ci-dessus, $f(\bar{T})$ est la distribution normalisée de la température \bar{T} dans la zone, X_{NO} , la fraction molaire de NO formée dans une cellule pour une température \bar{T} , une richesse ϕ et un temps de séjour τ dépendant lui aussi de la température par $\tau(\bar{T})$.

Cette habile et complexe pondération permet d'obtenir une température de fonctionnement du réacteur apte à prédire avec précision la formation du NO .

3.3.3 Résolution numérique et prédictions de NOx

Pour la résolution des réseaux de réacteurs, une *méthode itérative* est communément employée dans la littérature. A chaque itération, on calcule l'évolution de la composition dans tous les réacteurs, les uns après les autres. Pour résoudre chaque réacteur, on déploie un solveur implicite d'équations algèbro-différentielles, capable de traiter les systèmes raides (mécanisme détaillé). Mancini et al. (2007b) utilisent CHEMKIN 4.0 alors que les publications italiennes (Falcitelli et al., 2002c ; Frassoldati et al., 2005) emploient un logiciel équivalent nommé DSMOKE.

Bien qu'il ne soit jamais explicitement donné, le critère de convergence s'applique à la composition chimique en raison de l'hypothèse d'isothermicité des réacteurs. Les travaux de Skoth-Rasmussen et al. (2004) sur une problématique assez proche (post-traitement avec cinétique détaillée appliqué à toutes les cellules du maillage CFD) proposent un critère global pour admettre la convergence. Le réseau est convergé si une grandeur ε_{conv} , définie ci-après, est inférieure à un seuil, typiquement 10^{-10} .

$$\varepsilon_{conv} = \sum_{i=1}^{N_{cell}} \sum_{k=1}^{N_{esp}} \left[\frac{\langle Y_k \rangle^{(i)} - \langle Y_k \rangle^{(i-1)}}{\langle Y_k \rangle^{(i-1)}} \right] \quad (3.12)$$

On souligne également que les zones de recirculation nécessitent un surplus d'itérations afin de stabiliser la composition des réacteurs dans le réseau (convergence).

Les exemples suivants étayent le faible temps de calcul et la finesse de prédiction des émissions de NOx associés à l'approche "réseaux de réacteurs chimiques idéaux".

S'ils ne donnent aucune information sur les temps de calcul, les travaux de Mancini et al. (2007a) sont les plus poussés en termes de prédiction de NOx. A l'aide du schéma squelettique GRI 3.0 (53 espèces, 325 réactions), ils analysent la part des émissions de NO provenant des différents chemins de formation du NO. Pour leur configuration, illustrée en figure 3.3, la part de NO thermique est évaluée 30% et le NO précoce à 70%. Les voies de formation par l'intermédiaire du N₂O ou du "reburning" (re-combustion par circulation de gaz brûlés) sont présentées comme négligeables. La comparaison des profils de NO le long du jet central de comburant pour les différents modèles testés présente un très bon accord avec les mesures expérimentales. L'acuité de leur résultats se retrouvent dans la prédiction des émissions de NOx en sortie du foyer : 140 ppmvd mesurés et de 129 à 140 ppmvd prédits selon les modèles de combustion du calcul CFD.

A l'opposé, les travaux de Frassoldati et al. (2005) étudiant l'impact du mouvement de Swirl sur la formation de NOx, fournissent des informations sur le temps de calcul mais assez peu sur les émissions de NOx. Avec un schéma complet de 250 espèces et 5000 réactions (Ranzi et al., 1995), la convergence d'un "SFIRN" de 100 réacteurs demande 2 heures avec un Pentium 4 de 2 GHz. A titre d'information, ils observent qu'une augmentation du mouvement de Swirl ($S = 0,6 \rightarrow 1,6$) réduit la formation du NO d'un facteur 2 dans la flamme de diffusion associée. L'effet global vise à diminuer les temps de séjour et les températures dans la zone de recirculation au centre du Swirl.

L'emploi d'un faible nombre de réacteurs dans Faravelli et al. (2001) permet d'obtenir de très bons résultats dans des temps de calcul encore plus courts. Ainsi, leur réseau de 13 réacteurs (modélisation un foyer à gaz de 75 MWe illustré en figure 3.7) ne requiert que 30 minutes pour converger malgré un schéma cinétique de 3000 réactions et 200 espèces. Les prédictions des émissions de NO_x sont de 223 ppmvd pour 212 ppmvd mesurés. De plus, l'évolution relative des émissions en fonction des conditions opérationnelles est encore meilleure.

Dans les travaux de Falcitelli et al. (2002c) et de Frassoldati et al. (2005), on met toutefois en avant le bénéfice associé à l'utilisation de réseaux plus conséquents en nombre de réacteurs. En plus d'une prédiction fine des émissions en sortie, on obtient une représentation visuelle des champs qui convergent vers le calcul CFD avec un accroissement du nombre de réacteurs comme l'illustre la figure 3.8. Le réseau de 400 réacteurs (Falcitelli et al., 2002c) converge en 8 h de calcul sur un Pentium II après 80 itérations et utilise un schéma cinétique de 130 espèces et de 1200 réactions.

Enfin, Falcitelli et al. (2002a), établissent un bilan des études industrielles analysées à l'aide de réseaux de réacteurs. Le nombre de réacteurs des réseaux testés s'étale sur une large plage. On décrit ainsi un réseau de 12 réacteurs (25 itérations, 75 minutes sur un Pentium II) composé de PSR (0D) et de PFR (1D) et l'on traite des réseaux allant jusqu'à plus de 400 réacteurs (80 itérations, 8 heures sur un pentium II). L'effet des systèmes de réduction de NO_x est même testé avec succès. Les écarts de prédiction en valeur absolue ne dépassent pas 5 %. Les tendances d'émissions liées aux variations de configuration (changement du combustible ou des débits d'injection, mise en marche des systèmes de recombustion) sont encore meilleures (écarts inférieurs à 2%).

3.3.4 Lacunes des modèles actuels - Objectifs de la thèse

En dépit des excellents résultats présentés dans la littérature, il est important de noter qu'aucune de ces approches ne tient compte des deux effets suivants, pourtant susceptibles d'avoir un impact fort sur la formation des NO_x :

- *Les fluctuations turbulentes* : Les calculs CFD mettent en avant l'existence de fluctuations de sous-maille. Cette pléthore d'états thermo-chimiques instantanés, plus ou moins riches et brûlés, peut engendrer une création de NO_x bien différente de celle obtenue en ne considérant que les états moyens au sein de chaque réacteur.
- *La distribution des temps de séjour* : Non plus à l'échelle du réseau, mais bien au sein de chaque réacteur, même idéal, il existe une *DTS*. La lente formation du NO (notamment le NO thermique) souligne le potentiel de ce raffinement sur le temps de résidence dans chaque réacteur.

Ces deux axes de recherche forment en outre les aspects novateurs développés au cours de nos travaux de thèse.

Chapitre 4

Génération d'un réseau zonal

4.1 Calcul CFD : Code_Saturne

4.1.1 Description de Code_Saturne

Créé à EDF R&D en 1998, *Code_Saturne* concentre les potentialités de ses deux codes de calcul pères : un code dédié aux aspects géométriques et de maillage (*N3S*) et un code de calcul d'écoulement turbulent (*Estet*). Depuis janvier 2007, *Code_Saturne* est disponible en open-source (<http://rd.edf.com/accueil-fr/edf-recherche-developpement/logiciels/code-saturne/code-saturne-telechargement-106998.html>).

Sa structure fortement modulaire est constituée d'un noyau central auquel peuvent être rajoutés divers modules traitant de physiques particulières (*combustion*, rayonnement, électromagnétisme, diphasique lagrangien).

Le noyau de *Code_Saturne* permet la résolution des équations de Navier-Stokes incompressibles ou faiblement dilatatables avec divers modèles de turbulence et gère l'introduction de scalaires utilisateurs. Les travaux de Archambeau et al. (2004) détaillent le noyau et le schéma temporel utilisé. On y décrit également la discrétisation spatiale par une méthode de volumes finis collocalisés (toutes les variables sont localisées au centre des cellules) qui est développée pour des maillages structurés ou non.

En combinant le potentiel de ses codes pères, *Code_Saturne* déploie une abondance de grandeurs géométriques et physiques précalculées qui sont très utiles lors du post-traitement. Par exemple, on dispose de la distance $I'J'$ entre les projetés orthogonaux des centres I et J de deux cellules voisines sur la normale de leur face commune. On connaît aussi la valeur du flux de masse convectif $\rho \underline{u} \cdot \underline{n}$ associée à une vitesse \underline{u} traversant une face de normale unitaire \underline{n} . Les documentations "théorique" et "utilisateur" sont également téléchargeables (<http://rd.edf.com/accueil-fr/edf-recherche-developpement/logiciels/code-saturne/code-saturne-doc-108039.html>).

4.1.2 Calcul CFD réactif : le modèle *LWP*

Comme nous l'avons vu, la modélisation de la combustion turbulente nécessite d'écrire l'expression de deux termes non connus à partir des champs moyens résolus. Ainsi, pour fermer le terme de transport turbulent $\overline{\rho u''_j \phi''_k}$, nous utilisons un modèle $k - \varepsilon$ standard décrit en première partie du mémoire.

La fermeture du terme source moyen $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}$ utilise un modèle *LWP* pour *Libby Williams Poitiers* (Libby et Williams, 2000) que nous n'avons volontairement pas décrit dans l'étude bibliographique de la première partie. Ce modèle a été développé pour *modéliser la combustion turbulente partiellement prémélangée*. Ce type de combustion existe au sein des turbines à gaz où le combustible est injecté dans l'air en rotation et se mélange plus ou moins avant de brûler.

Le modèle *LWP* emploie une méthode à *pdf présumée* (Pope, 1985) afin de déterminer le terme source chimique moyen $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}$. Pour y parvenir, il restreint le domaine de recherche en émettant certaines hypothèses simplificatrices :

- *L'approximation quasi-isobare*. Si le nombre de Mach est faible ($M_a^2 \ll 1$), le milieu continu gazeux peut être considéré comme *isobare* : $P = cste$.
- *La loi des gaz parfaits*. Pour des pressions relativement faibles ($p < 100 \text{ bars}$), le fluide gazeux suit la loi des gaz parfaits : $P = \rho r T$ où ρ est la masse volumique du fluide, T sa température, $r = R/M$ avec R la constante des gaz parfaits et M , la masse molaire du fluide.
- *Nombre de Lewis unitaire*. Pour des écoulements suffisamment turbulents, la diffusion turbulente (μ_t) prédomine sur les phénomènes de transport moléculaire (μ_l) : $\mu_t \gg \mu_l$. Ainsi, on assume que la turbulence contrôle de la même manière la diffusion de la chaleur et celle des espèces : $D_k = D$ et $Le_k = Le = 1$
- *L'adiabaticité des parois*. Pour la combustion du gaz naturel, on néglige le rayonnement (pas de particules émissives telles que les suies). On néglige maintenant l'échange avec les parois du tube à flamme. L'enthalpie h_t est alors un scalaire passif (pas de terme source) transporté dans l'écoulement. Les travaux de Gonçalves dos Santos (2007) sur le couplage "combustion turbulente - rayonnement" montrent que les transferts radiatifs agissent sur la dynamique de la flamme (calcul LES) mais affectent assez peu les champs moyens de température (et donc de *NO*).

A titre informatif, dans *Code_Saturne* les équations de transport des scalaires quelconques ϕ_k comportent un *nombre de Schmidt turbulent* de 0,7. On considère ainsi que la quantité de mouvement, liée à la diffusivité turbulente μ_t , détermine la diffusion de masse qui est représentée par le coefficient ρD_t . Cette valeur de 0,7 pour le nombre de *Schmidt turbulent* est valable pour tous les scalaires transportés.

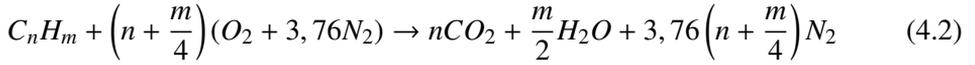
Sous ces hypothèses, l'état thermo-chimique du milieu réactif peut être décrit par seulement 2 grandeurs. Pour capturer la physique des flammes partiellement prémélangées, il faut en modéliser la distribution de richesse (mélange entre le combustible et l'air) et l'avancement de la réaction globale. Le modèle *LWP* s'oriente donc vers l'utilisation des 2 variables suivantes : la fraction de mélange z et la fraction massique de combustible Y_f , considérée comme variable d'avancement de la réaction chimique (l'avancement est relié à la quantité de combustible consommée).

Comme nous l'avons présenté dans la première partie du mémoire, l'emploi d'une *pdf* *présumée* requiert le choix du schéma cinétique et la définition de la forme de la *pdf* :

$$\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}} = \int_{\Omega_\phi} \dot{\omega}_{\phi_k} P(\phi_k) d\phi_k \quad (4.1)$$

A l'aide des hypothèses précédentes, la *pdf* multi-scalaire ($k \in (1, \dots, N_{esp})$) de la composition $\tilde{P}(\phi_k)$ dégénère en une *pdf* bi-scalaire notée $\tilde{P}(z, Y_f)$. De même, l'expression du terme source moyen $\overline{\dot{\omega}_{\phi_k}}$ se simplifie en $\overline{\dot{\omega}_f}$ qui est le taux de consommation du combustible ("fuel", indice f).

Le schéma cinétique global associé au modèle *LWP* comporte une seule réaction qui décrit l'oxydation d'un hydrocarbure C_nH_m par l'oxygène O_2 de l'air (contenu classiquement à 21% en volume) :



Dès lors, le terme source chimique local $\dot{\omega}_f$ est donné par une loi de type Arrhénius :

$$\dot{\omega}_f = -\rho \frac{u_0}{d} Y_f Y_{O_2} e^{-\theta} \quad \text{avec} \quad \theta = \frac{T_a}{T} \left(1 - \frac{T}{T^*}\right) \quad (4.3)$$

Ici Y_f et Y_{O_2} représentent respectivement les fractions massiques du combustible et du dioxygène de l'air. Le rapport u_0/d représente un temps caractéristique de l'écoulement, T_a est la température d'activation de la loi d'Arrhénius et la grandeur T^* est une température caractéristique de calage.

La forme initiale de $P(z, Y_f)$ a été proposée par Libby et Williams (2000) et incorpore 2 distributions de Dirac situées dans le plan (z, Y_f) . Le support \mathcal{D} de la $P(z, Y_f)$ est un domaine triangulaire délimité par 3 segments de droite. La borne supérieure est la limite non réactive où résident les gaz frais (avancement $c = 0$, $Y_f = Y_{f,max}$) : c'est la *droite de mélange* $Y_f = z$ entre l'air pur ($z = 0$) et le combustible pur ($z = 1$). Les *droites de combustion complète* pauvre $Y_f = 0$ et riche $Y_f = (z - z_{st})/(1 - z_{st})$ sont séparées par la stoechiométrie ($z = z_{st}$) et définissent la borne inférieure. Elles représentent les gaz complètement brûlés ($c = 1$, $Y_f = Y_{f,min}$) bien que la réaction globale (équation 4.2) impose qu'un défaut d'oxydant se traduise par l'existence d'imbrûlés.

La forme de $P(z, Y_f)$, composée de 2 distributions de Dirac, traduit une hypothèse d'intermittence du fluide réactif entre 2 états thermo-chimiques. Comme cette *pdf* est construite pour modéliser la combustion partiellement prémélangée, ces états peuvent être plus ou moins riches (selon z) et plus ou moins brûlés (selon Y_f). La figure 4.1 schématise la forme triangulaire du support \mathcal{D} et celle de la *pdf* présumée.

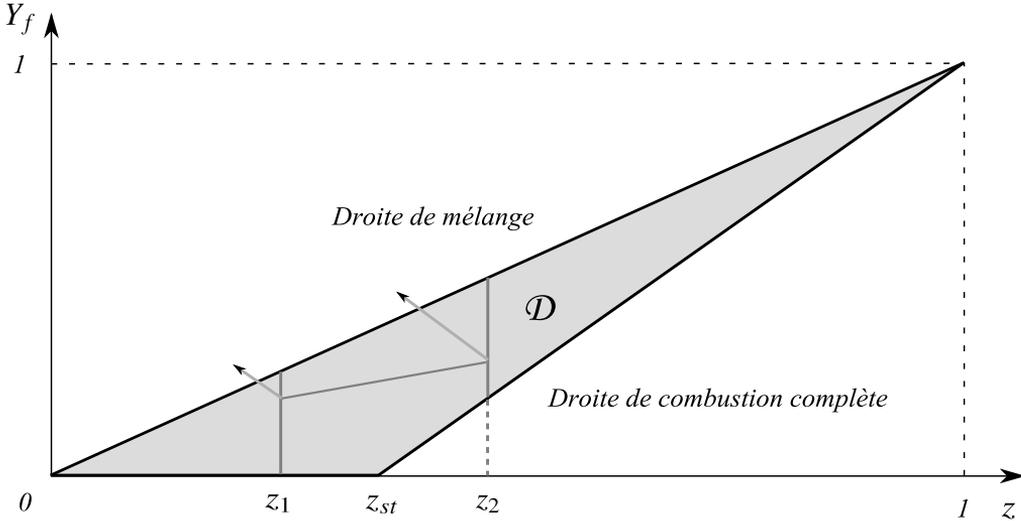


FIGURE 4.1 – Pdf présumée $P(z, Y_f)$ à 2 distributions de Dirac situés dans \mathcal{D} .

On détermine cette *pdf* présumée à partir des premiers moments statistiques pour les variables z et Y_f . Ainsi, en plus des équations de transport classiques moyennées (masse, quantité de mouvement, k , $\varepsilon \dots$), on résout 4 équations pour la moyenne et la variance de z et Y_f que l'on écrit ici sous forme fermée :

$$\frac{\partial(\bar{\rho}\bar{z})}{\partial t} + \frac{\partial(\bar{\rho}\bar{u}_i\bar{z})}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \bar{z}}{\partial x_i} \right) \quad (4.4)$$

$$\frac{\partial(\bar{\rho}\bar{z}''^2)}{\partial t} + \frac{\partial(\bar{\rho}\bar{u}_i\bar{z}''^2)}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \bar{z}''^2}{\partial x_i} \right) + 2\bar{\rho} D_t \frac{\partial \bar{z}}{\partial x_i} \frac{\partial \bar{z}}{\partial x_i} - \frac{\bar{\rho}}{R_z} \frac{\varepsilon}{k} \bar{z}''^2 \quad (4.5)$$

$$\frac{\partial(\bar{\rho}\bar{Y}_f)}{\partial t} + \frac{\partial(\bar{\rho}\bar{u}_i\bar{Y}_f)}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \bar{Y}_f}{\partial x_i} \right) + \bar{\omega}_f \quad (4.6)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\bar{\rho}\bar{Y}_f''^2)}{\partial t} + \frac{\partial(\bar{\rho}\bar{u}_i\bar{Y}_f''^2)}{\partial x_i} &= \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \bar{Y}_f''^2}{\partial x_i} \right) + 2\bar{\rho} D_t \frac{\partial \bar{Y}_f}{\partial x_i} \frac{\partial \bar{Y}_f}{\partial x_i} - \frac{\bar{\rho}}{R_{Y_f}} \frac{\varepsilon}{k} \bar{Y}_f''^2 \\ &+ 2\bar{Y}_f''\bar{\omega}_f \end{aligned} \quad (4.7)$$

Dans les équations précédentes, les flux scalaires turbulents $\overline{\rho u_j'' z''}$ et $\overline{\rho u_j'' Y_f''}$ ont été fermés par une hypothèse gradient (modèle $k - \varepsilon$ du premier ordre avec diffusivité turbulente D_t). Les termes de dissipation (termes sources de destruction de la variance) ont quant à eux été exprimés par une *loi de relaxation linéaire* du type $-\overline{\rho} \varepsilon / (R_z k) \overline{\phi_k''^2}$. Cette loi de fermeture relie linéairement la dissipation à la variance $\overline{\phi_k''^2}$ et à un temps caractéristique de mélange donné par l'agitation turbulente k/ε .

Avec ces 4 équations et les 6 inconnues de la *pdf* (l'amplitude des 2 pics de Dirac et leurs coordonnées respectives $(z_1, Y_{f,1})$ et $(z_2, Y_{f,2})$), on réalise que 2 autres relations sont à pourvoir pour fermer le système. La condition de normalisation de la *pdf* fournit une information supplémentaire sur les amplitudes (α pour le premier pic, $1 - \alpha$ pour l'autre). Ribert et al. (2004) proposent de définir la position des 2 pics de Dirac avec $\phi_k = (z, Y_f)$ et la forme de la *pdf* par les relations suivantes (détails en Annexe A) :

$$P(z, Y_f) = \alpha \delta(Y_f - Y_{f,1}) \delta(z - z_1) + (1 - \alpha) \delta(Y_f - Y_{f,2}) \delta(z - z_2) \quad (4.8)$$

$$\phi_{k,1} = \overline{\phi_k} - \sqrt{\frac{1 - \alpha}{\alpha} \overline{\phi_k''^2}} \quad \text{et} \quad \phi_{k,2} = \overline{\phi_k} + \sqrt{\frac{\alpha}{1 - \alpha} \overline{\phi_k''^2}} \quad (4.9)$$

Une sixième relation restait toutefois à définir pour fermer le système. Libby et Williams (2000) ont alors proposé d'écrire une équation supplémentaire pour la covariance de z et Y_f notée $\overline{z'' Y_f''}$ mais les travaux de Ribert et al. (2004) ont démontré la sur-détermination d'un tel système. Sur la figure 4.1, on remarque qu'un segment (colorié en violet) relie les 2 distributions $Y_f|z$ conditionnés en z_1 et z_2 . La pente $d = \pm (Y_f - \overline{Y_f}) / (z - \overline{z})$ de cette droite s'exprime par : $d = \pm \sqrt{\overline{Y_f''^2} / \overline{z''^2}}$. Comme tous les états de la *pdf* sont en effet situés sur cette droite, la covariance est entièrement déterminée par les variances de z et Y_f . On a alors :

$$\overline{z'' Y_f''} = \sqrt{\overline{z''^2} \overline{Y_f''^2}} \quad (4.10)$$

Comme le coefficient de corrélation $R = \overline{z'' Y_f''} / \sqrt{\overline{z''^2} \overline{Y_f''^2}}$ vaut 1, la covariance n'apporte pas d'information supplémentaire et ne peut être employée pour clore le système.

L'hypothèse d'une distribution de Curl modifiée est alors proposée pour déterminer l'amplitude α (détails en Annexe A). L'hypothèse originelle de Curl est issue du génie chimique et propose une certaine loi de micro-mélange. Toutefois, elle ne satisfait pas la physique des mélanges gazeux. Pour les états turbulents gazeux, il faut en effet que l'écart entre leurs amplitudes respectives évoluent de la même manière que leur écart à la position moyenne. Champion et Libby (2003) propose alors d'utiliser le troisième moment pour respecter cette contrainte. Pour éviter de résoudre des équations supplémentaires, Plion (2004) propose d'exprimer le moment d'ordre 3 en fonction des 2 premiers moments. Pour se rapprocher d'une fonction β , connue pour bien représenter le mélange, il propose d'égaliser le troisième moment d'une *pdf* à 2 pics de Dirac avec celui d'une *pdf* β ayant les mêmes premiers moments (moyenne et variance).

On pose une variable $\phi_k = (z, Y_f)$ qui varie entre $\phi_{k,min}$ et $\phi_{k,max}$. Le moment d'ordre 3 pour une *pdf* β (détails en Annexe A) est alors donné par :

$$\overline{\phi_k''^3} = 2\overline{\phi_k''^2} \frac{\phi_{k,max} - 2\overline{\phi_k} + \phi_{k,min}}{(\phi_{k,max} - \overline{\phi_k})(\overline{\phi_k} - \phi_{k,min}) + \overline{\phi_k''^2}} \quad (4.11)$$

Pour une *pdf* à 2 pics de Dirac placés en $\phi_{k,1}$ et $\phi_{k,2}$ et d'amplitudes respectives α et $1 - \alpha$, le même moment d'ordre 3 (détails en Annexe A) s'exprime par :

$$\overline{\phi_k''^3} = \alpha(1 - \alpha)(2\alpha - 1)(\phi_{k,2} - \phi_{k,1})^3 \quad (4.12)$$

En égalant ces deux relations 4.11 et 4.12 (Annexe A), on obtient l'amplitude α par :

$$\alpha = \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\zeta} \quad \text{avec} \quad \zeta = \frac{(\overline{\phi_k''^3})^2}{4(\overline{\phi_k''^2})^3 + (\overline{\phi_k''^3})^2} \quad (4.13)$$

L'expression de ζ peut également s'écrire avec les 2 premiers moments ($\overline{\phi_k}$ et $\overline{\phi_k''^2}$) et les bornes $\phi_{k,min}$ et $\phi_{k,max}$ définies par les limites correspondantes du domaine \mathcal{D} :

$$\zeta = \frac{\overline{\phi_k''^2} (\phi_{k,max} - 2\overline{\phi_k} + \phi_{k,min})^2}{\overline{\phi_k''^2} (\phi_{k,max} - 2\overline{\phi_k} + \phi_{k,min})^2 + \left[(\phi_{k,max} - \overline{\phi_k})(\overline{\phi_k} - \phi_{k,min}) + \overline{\phi_k''^2} \right]^2} \quad (4.14)$$

Toutefois, les travaux de Robin et al. (2006) ont permis d'enrichir la forme $P(z, Y_f)$ qui comporte désormais 4 distributions de Dirac.

Cette fois-ci, les inconnues sont au nombre de 12 (4 amplitudes, 4 couples (z, Y_f) pour les positions des pics). Le nombre d'équations se limite à 5 en comptant les 4 équations de transport pour \overline{z} , $\overline{z''^2}$, $\overline{Y_f}$ et $\overline{Y_f''^2}$ ainsi que la condition de normalisation de la *pdf*.

On résout alors l'équation de transport pour la covariance $\overline{z'' Y_f''}$ (6^{ième} relation) :

$$\frac{\partial (\overline{\rho z'' Y_f''})}{\partial t} + \frac{\partial (\overline{\rho u_i z'' Y_f''})}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\overline{\rho} D_t \frac{\partial \overline{z'' Y_f''}}{\partial x_i} \right) + 2\overline{\rho} D_t \frac{\partial \overline{z}}{\partial x_i} \frac{\partial \overline{Y_f}}{\partial x_i} - \frac{\overline{\rho}}{R_{z,Y_f} k} \overline{z'' Y_f''} + \overline{z'' \dot{\omega}_f} \quad (4.15)$$

Pour réduire le système de 2 inconnues, on propose que la *pdf* à 4 pics soit issue de la *pdf* à 2 pics en imposant aux 4 états de se trouver sur seulement 2 fractions de mélange z_1 et z_2 . Il ne reste alors plus que 4 relations à trouver.

Cette nouvelle contrainte imposée sur la forme de $P(z, Y_f)$ nous permet d'introduire les *probabilités conditionnées en z* que nous noterons $P(Y_f)|z$:

$$P(z, Y_f) = \alpha P(Y_f)|z \delta(z - z_1) + (1 - \alpha) P(Y_f)|z \delta(z - z_2) \quad (4.16)$$

Ces probabilités conditionnées en z sont également soumises à la condition de normalisation et sont données par :

$$P(Y_f)|z \delta(z - z_1) = P(Y_f)|z_1 = \beta \delta(Y_f - Y_{f1,1}) + (1 - \beta) \delta(Y_f - Y_{f1,2}) \quad (4.17)$$

$$P(Y_f)|z \delta(z - z_2) = P(Y_f)|z_2 = \gamma \delta(Y_f - Y_{f2,1}) + (1 - \gamma) \delta(Y_f - Y_{f2,2}) \quad (4.18)$$

La nouvelle forme (4 pics de Dirac) de la *pdf* est illustrée en figure 4.2 :

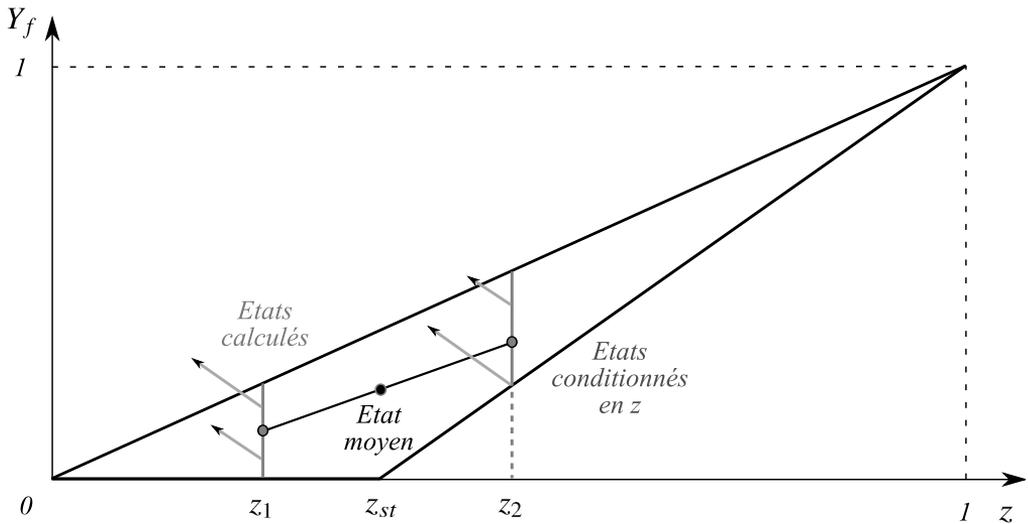


FIGURE 4.2 – Pdf présumée à 4 pics de Dirac du modèle LWP

On notera que pour une *pdf* à 4 pics de Dirac, la covariance joue un rôle prépondérant puisqu'elle définit désormais la pente de la droite reliant les états moyens positionnés sur z_1 et z_2 . Sur la figure 4.2, ces points sont situés sur une droite de part et d'autre de l'état moyen. La pente d de cette droite s'écrit ainsi : $d = z'' \widetilde{Y_f''} / \widetilde{z''}^2$.

L'hypothèse de Curl modifiée est utilisée *trois fois* pour déterminer l'amplitude des pics soit α, β et γ en s'appliquant respectivement à $P(z, Y_f)$, $P(Y_f)|z_1$ et $P(Y_f)|z_2$.

La décomposition de la *pdf* 2 pics en une *pdf* à 4 pics nous conduit également à définir des *états conditionnés en z* pour la moyenne et la variance de Y_f que nous noterons simplement $\widetilde{Y_f}|z$ et $\widetilde{Y_f''^2}|z$.

La définition de \widetilde{z} , \widetilde{z}''^2 , \widetilde{Y}_f , $\widetilde{Y}_f''^2$ et de $z''Y_f''$ à partir de $P(z, Y_f)$ induisent les expressions suivantes pour les valeurs conditionnées :

$$\widetilde{Y}_f|z_1 = \beta Y_{f1,1} + (1 - \beta) Y_{f1,2} \quad (4.19)$$

$$\widetilde{Y}_f''^2|z_1 = \beta Y_{f1,1}^2 + (1 - \beta) Y_{f1,2}^2 - (\widetilde{Y}_f|z_1)^2 = \beta(1 - \beta)(Y_{f1,2} - Y_{f1,1})^2 \quad (4.20)$$

$$\widetilde{Y}_f|z_2 = \gamma Y_{f2,1} + (1 - \gamma) Y_{f2,2} \quad (4.21)$$

$$\widetilde{Y}_f''^2|z_2 = \gamma Y_{f2,1}^2 + (1 - \gamma) Y_{f2,2}^2 - (\widetilde{Y}_f|z_2)^2 = \gamma(1 - \gamma)(Y_{f2,2} - Y_{f2,1})^2 \quad (4.22)$$

Comme les amplitudes α , β et γ sont définies par l'hypothèse de Curl modifiée, on obtient la position de tous les pics :

$$z_1 = \widetilde{z} - \sqrt{\frac{1 - \alpha}{\alpha}} \widetilde{z}''^2 \quad \text{et} \quad z_2 = \widetilde{z} + \sqrt{\frac{\alpha}{1 - \alpha}} \widetilde{z}''^2 \quad (4.23)$$

$$Y_{f1,1} = \widetilde{Y}_f|z_1 - \sqrt{\frac{1 - \beta}{\beta}} \widetilde{Y}_f''^2|z_1 \quad \text{et} \quad Y_{f1,2} = \widetilde{Y}_f|z_1 + \sqrt{\frac{\beta}{1 - \beta}} \widetilde{Y}_f''^2|z_1 \quad (4.24)$$

$$Y_{f2,1} = \widetilde{Y}_f|z_2 - \sqrt{\frac{1 - \gamma}{\gamma}} \widetilde{Y}_f''^2|z_2 \quad \text{et} \quad Y_{f2,2} = \widetilde{Y}_f|z_2 + \sqrt{\frac{\gamma}{1 - \gamma}} \widetilde{Y}_f''^2|z_2 \quad (4.25)$$

La dernière relation porte sur les 2 variances conditionnées en z_1 et z_2 . On fait l'hypothèse que leurs valeurs normalisées sont égales en posant :

$$\frac{\widetilde{Y}_f''^2|z_1}{(\widetilde{Y}_f^{max}|z_1 - \widetilde{Y}_f|z_1)(\widetilde{Y}_f|z_1 - \widetilde{Y}_f^{min}|z_1)} = \frac{\widetilde{Y}_f''^2|z_2}{(\widetilde{Y}_f^{max}|z_2 - \widetilde{Y}_f|z_2)(\widetilde{Y}_f|z_2 - \widetilde{Y}_f^{min}|z_2)} \quad (4.26)$$

Avec l'expression de la variance de Y_f , on ferme le système et l'on détermine entièrement la forme de cette *pdf* à 4 pics :

$$\widetilde{Y}_f''^2 = \alpha \left[\widetilde{Y}_f''^2|z_1 + (\widetilde{Y}_f|z_1)^2 \right] + (1 - \alpha) \left[\widetilde{Y}_f''^2|z_2 + (\widetilde{Y}_f|z_2)^2 \right] - \widetilde{Y}_f^2 \quad (4.27)$$

En résumé, pour cette $P(z, Y_f)$ à 4 pics, 9 paramètres sont à déterminer : 3 amplitudes (α , β et γ), 2 abscisses (z_1 et z_2) et 4 ordonnées ($Y_{f1,1}$, $Y_{f1,2}$, $Y_{f2,1}$ et $Y_{f2,2}$).

Grâce à l'expression des 2 variances conditionnées ($\widetilde{Y}_f''^2|z_1$ et $\widetilde{Y}_f''^2|z_2$), reliées entre elles par la relation 4.26 et déterminées par la relation 4.27, on applique 3 fois l'hypothèse de Curl modifiée pour obtenir les amplitudes : une fois sur $P(z, Y_f)$ et une fois sur chaque probabilité conditionnée $P(Y_f)|z_1$ et $P(Y_f)|z_2$. Les 6 paramètres de position des pics sont alors connus par l'expression des 2 moyennes conditionnées ($\widetilde{Y}_f|z_1$ et $\widetilde{Y}_f|z_2$).

4.2 Découpage en zones statistiquement homogènes

4.2.1 Définition du critère découpage

Le découpage en réseau de réacteurs à partir de champs CFD est un sujet assez peu décrit dans la bibliographie comme nous avons pu le voir dans le chapitre 3. Néanmoins, les travaux réalisés, en particulier ceux de Falcitelli et al. (2002), permettent d'établir les critères à respecter pour générer un réseau de réacteurs apte à prédire correctement les émissions de NO_x .

Nous avons ainsi distingué 2 étapes de découpage dont les objectifs diffèrent :

- Un *découpage dans l'espace chimique* : Son objectif est de rassembler en une même zone les cellules du maillage CFD qui ont une même influence sur la formation du NO . Les paramètres les plus influents sur la formation du NO sont connus : ce sont la température T et la richesse ϕ du milieu réactif. Ces 2 grandeurs agissent directement sur le taux de réaction du NO suivant les différents chemins de formation (NO thermique, NO précoce ...) d'où l'appellation de "découpage chimique".
- Un *découpage dans l'espace physique* : Son objectif est d'isoler une physique par zone. En effet, deux zones peuvent présenter la même température T et la même richesse ϕ et peuvent pourtant provenir de deux physiques différentes (flamme de prémélange ou de diffusion). De même, on différenciera les zones où l'écoulement est quasi-unidirectionnel (1D) et les zones de recirculation (0D) qui présentent de longs temps de résidence. Puisque les zones sont éloignées les unes des autres, ce découpage est presque "géométrique". Cependant, il tient compte des caractéristiques de l'écoulement (lignes de courant) et reste avant tout un "découpage physique".

4.2.2 Découpage dans l'espace chimique

Dans un premier temps, nous avons appliqué des *lois uniformes* de coupe sur les champs de température T et de richesse ϕ pour des raisons de simplicité.

A l'image des travaux de Falcitelli et al. (2002c), nous avons défini une loi régulière pour la température qui nécessitait 3 paramètres : une précision de découpe $\Delta T = 100K$ et les bornes extrêmes de coupe $T_{min} = 400K$ et $T_{max} = 2400K$.

$$T_{c,i} = T_{min} + \frac{T_{max} - T_{min}}{N - 1} (i - 1) \quad i = (1, \dots, N) \quad (4.28)$$

Toutefois, de telles lois de coupe nécessitent de changer les paramètres (limites d'inflammabilité, température adiabatique maximale) pour chaque mélange réactif. Afin d'accroître la généralisation du découpage à tout mélange réactif et pour améliorer la précision autour des zones à haute formation de NO (hautes températures, richesses stoechiométriques), une nouvelle formulation est proposée.

Pour ce faire, nous n'appliquons plus le découpage à la température T ou à la richesse ϕ mais à la fraction de mélange moyenne \widetilde{z} et à l'avancement cinétique moyen \widetilde{c} . Ces 2 grandeurs sont les plus répandues dans les modèles de combustion turbulente et ne dépendent pas du mélange réactif traité ni de la définition de la variable d'avancement.

Dans notre approche utilisant le modèle *LWP* à *pdf* présumée, nous construisons la variable d'avancement \widetilde{c} à partir de la fraction massique du fuel \widetilde{Y}_f :

$$\widetilde{c} = \frac{\widetilde{Y}_f^{max} - \widetilde{Y}_f}{\widetilde{Y}_f^{max} - \widetilde{Y}_f^{min}} \quad (4.29)$$

Grâce à la *pdf* et à son support \mathcal{D} , les valeurs de \widetilde{Y}_f^{max} et de \widetilde{Y}_f^{min} sont connues :

$$\widetilde{Y}_f^{max} = \alpha \widetilde{Y}_f^{max}|_{z_1} + (1 - \alpha) \widetilde{Y}_f^{max}|_{z_2} = \alpha z_1 + (1 - \alpha) z_2 = \widetilde{z} \quad (4.30)$$

$$\begin{aligned} \widetilde{Y}_f^{min} &= \alpha \widetilde{Y}_f^{min}|_{z_1} + (1 - \alpha) \widetilde{Y}_f^{min}|_{z_2} = \alpha \min [0, (z_1 - z_{st}) / (1 - z_{st})] \\ &+ (1 - \alpha) \min [0, (z_2 - z_{st}) / (1 - z_{st})] \end{aligned} \quad (4.31)$$

Le nouvel algorithme déploie une *loi géométrique* de coupe sur la température adiabatique du mélange afin de raffiner le découpage de l'écoulement autour des zones stoechiométriques. Il faut souligner que nous ne découpons pas à partir de la température locale mais que seule la température adiabatique du mélange réactif $T_{ad}(z)$ est utilisée pour le découpage. L'algorithme de découpe dans l'espace chimique est donc :

1. Dans le domaine de calcul, on recherche z_{min} et z_{max} ainsi que la température minimum T_{min} sur les entrées (indice e) puisqu'elles sont à l'origine des extrema de z (scalaire passif se mélangeant) : $T_{min} = \min [T_e(z_{min}), T_e(z_{max})]$
2. En utilisant la réaction globale du modèle CFD, on tabule la courbe de température adiabatique du mélange, $T_{ad}(z)$ entre les valeurs extrêmes de la fraction de mélange, z_{min} et z_{max} . On détermine ainsi la température maximale T_{max} de la courbe tabulée et le $z_{T_{max}}$ correspondant.
3. Après avoir calculé l'écart de température maximum $\Delta T_{max} = T_{max} - T_{min}$, on impose un écart de référence ΔT_{imp} pour le découpage et on en déduit le nombre entier n d'intervalles ΔT_{imp} à placer sur ΔT_{max} avec une loi régulière.
4. La loi géométrique qui porte sur l'écart $\Delta T_{c,i}$ entre deux températures de coupe $T_{c,i}$ est définie par la relation suivante : $\Delta T_{c,i} = T_{c,i} - T_{c,i-1}$. La forme de la suite $(\Delta T_{c,i})$ est donnée par :

$$\Delta T_{c,i} = \Delta T_{c,1} q^{i-1} \quad (4.32)$$

5. Cette loi géométrique a pour objet d'affiner les intervalles $\Delta T_{c,i}$ autour des hautes températures. Un rapport K^2 est imposé entre l'intervalle le plus large $\Delta T_{c,1}$ (basses températures) et l'intervalle le plus fin $\Delta T_{c,n}$ (situé en dessous la température maximale). Ce rapport K^2 provient des relations :

$$\Delta T_{c,1} = \Delta T_{c,1} q^0 = K \cdot \Delta T_{imp} \quad (4.33)$$

$$\Delta T_{c,n} = \Delta T_{c,1} q^{n-1} = \Delta T_{imp} / K \quad (4.34)$$

6. Avec ces 2 relations, on en déduit la raison q de la suite géométrique :

$$q = \left(\frac{1}{K^2} \right)^{1/(n-1)} \quad (4.35)$$

7. En partant de $T_{c,1} = T_{min}$, on définit les intervalles $\Delta T_{c,i}$ et par conséquent la position des points de coupe $T_{c,i}$ en température.

8. Afin de faire coïncider $T_{c,n}$ avec la température maximale en conservant à la fois la valeur de n et $T_{c,1} = T_{min}$, on corrige chaque intervalle $\Delta T_{c,1}$ en le multipliant par un coefficient ΔT_{corr} qui s'écrit :

$$\Delta T_{corr} = \Delta T_{max} / \sum_{i=1}^n \Delta T_{c,i} \quad (4.36)$$

9. On projette les points de coupe corrigés $T_{c,i}$ sur la courbe tabulée $T_{ad}(z)$ afin d'obtenir pour chaque $T_{c,i}$ les points de coupe $z_{c,j}$ associées en pauvre $z < z_{st}$ et en riche $z > z_{st}$. Cette projection est illustrée sur la figure 4.3.

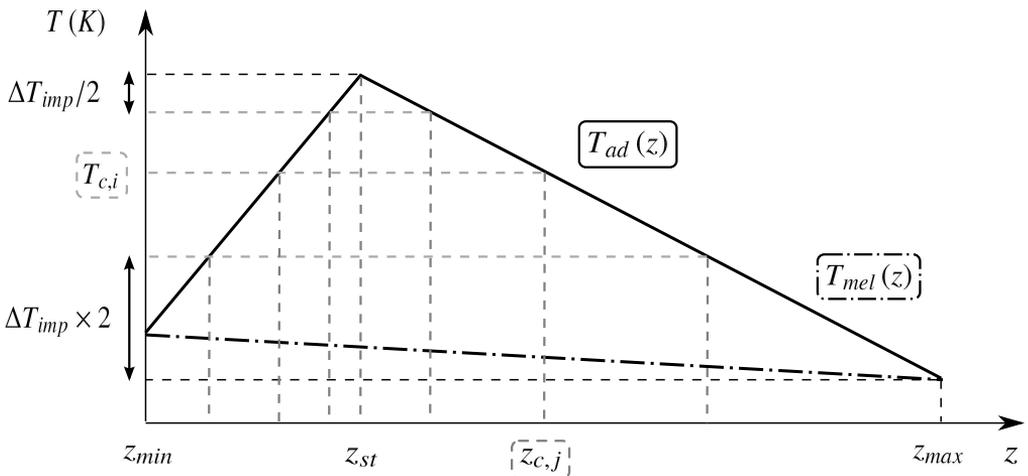


FIGURE 4.3 – Découpage chimique intermédiaire : Projection des points de coupe $T_{c,i}$ sur $T_{ad}(z)$ pour obtenir les points de coupe $z_{c,j}$ en pauvre $z < z_{st}$ et en riche $z > z_{st}$

10. Une fois que les points de coupe $z_{c,j}$ sont définis à l'aide de la loi géométrique portant sur les $\Delta T_{c,i}$, le découpage en température est retiré. On lui préfère un découpage suivant l'avancement cinétique c . On définit encore une fois $c(z)$ à partir de la fraction massique de fuel $Y_f(z)$ et de ses valeurs extrêmes $Y_{f,min}(z)$ et $Y_{f,max}(z)$ en s'aidant du domaine de définition présenté en figure 4.1 :

$$c(z) = \frac{Y_{f,max}(z) - Y_f(z)}{Y_{f,max}(z) - Y_{f,min}(z)} \quad (4.37)$$

11. Les $n_k + 1$ points de coupe $c_{c,k}$ sur l'avancement c sont alors imposés par une simple loi uniforme entre $c_{min} = 0$ et $c_{max} = 1$:

$$c_{c,k} = \frac{c_{max} - c_{min}}{n_k} (k - 1) + c_{min} \quad (4.38)$$

12. Le découpage dans l'espace chimique (z, T) est enfin délimité par les points de coupe en fraction de mélange $z_{c,j}$ et en avancement $c_{c,k}$. Il reste toutefois borné par les droites de température adiabatique $T_{ad}(z)$ et de mélange entre les gaz frais $T_{mel}(z)$. Le découpage final dans l'espace chimique est illustré en figure 4.4.

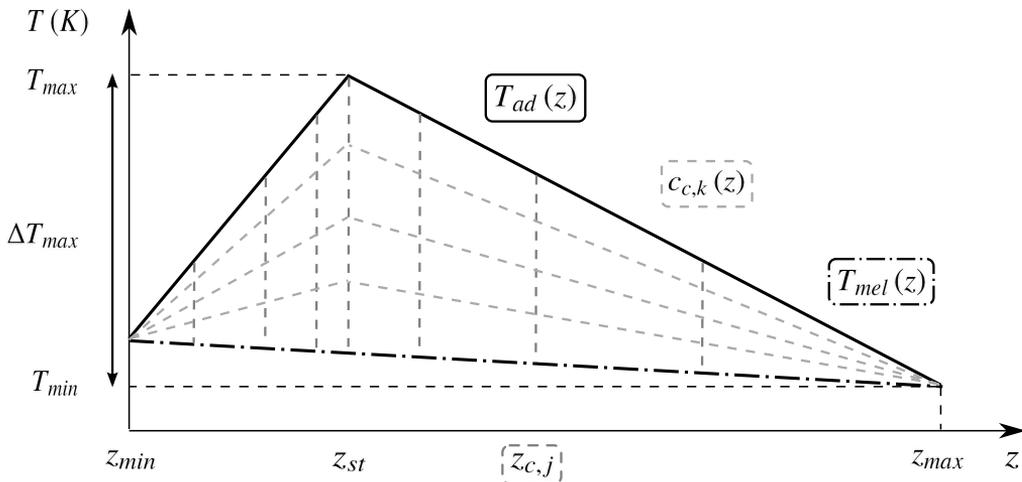


FIGURE 4.4 – Découpage final dans l'espace chimique. Intersections des points de coupe $z_{c,j}$ et des points $c_{c,k}$ au sein du domaine borné (z, T)

L'algorithme développé traite désormais de manière automatique tout type de mélange réactif en disposant de sa stoechiométrie z_{st} . En effet, par le calcul de la température adiabatique en fonction de z , il adapte le découpage pour l'avancement cinétique c . Un degré de liberté est laissé dans le choix de K (classiquement égal à 2) et permet de gérer la précision ou le type du découpage (loi régulière pour $K = 1$).

Nous savons toutefois que ce découpage dans l'espace chimique ne peut suffire en lui-même. Un sur-découpage dans l'espace physique est nécessaire pour considérer les propriétés de l'écoulement (direction privilégiée, zone de recirculation) ou les particularités de la géométrie étudiée (entrées multiples).

4.2.3 Découpage dans l'espace physique

Pionniers de l'approche de "réseau de réacteurs généré à partir d'un pré-calcul CFD", Ehrhardt et al. (1998) découpent un écoulement de jet *en suivant les lignes de courant*. Ils soulignent ainsi l'importance de représenter autant que possible sa topologie.

Le sur-découpage en réacteurs connexes proposé par Falcitelli et al. (2002c) est très robuste et efficace. Pour un nombre imposé de réacteurs, l'algorithme garantit la *connexité des réacteurs* et minimise la ségrégation globale du réseau pendant la répartition des petits réacteurs parmi les plus imposants. Néanmoins, pour des configurations présentant des injections multiples (parfaitement équivalentes mais éloignées les unes des autres), il distingue inutilement les réacteurs alors que la physique représentée est la même.

Le découpage géométrique proposé par Frassoldati et al. (2005) équivaut à un maillage grossier créé à l'aide d'un générateur automatique. Le critère ne considère que la géométrie et aucunement la topologie fine de l'écoulement. De plus, la connexité imposée (diverses entrées = divers réacteurs) pose le même problème que précédemment.

Enfin, le découpage semi-empirique (figure 3.3) réalisé par Mancini et al. (2007a) met en avant la nécessité de détailler l'évolution axiale des écoulements unidirectionnels. En effet, le découpage scinde uniformément chaque jet le long de sa trajectoire afin de *modéliser correctement la diffusion transversale* qui intervient. Leurs travaux (Mancini et al., 2007c) démontrent par ailleurs la prépondérance du phénomène d'entraînement des différents jets dans la physique de la combustion MILD. Dès lors, ils représentent chaque jet par une série de PSR (0D) plutôt qu'un unique PFR (1D) afin de modéliser l'évolution des flux transversaux et de capturer l'entraînement du fluide.

Pour regrouper l'ensemble de ces critères au sein de notre *découpage dans l'espace physique*, nous avons *utilisé des traceurs fluides*. Ceux-ci permettent en effet de suivre la topologie de l'écoulement et de considérer des entrées multiples en s'appuyant sur la valeur qu'on leur assigne comme condition aux limites. L'*âge fluide* noté a est une variable intensive qui décrit aussi bien l'évolution des écoulements quasi-1D que les zones de recirculation. Pour modéliser la complexité de ces zones où l'écoulement ne présente pas de direction privilégiée, nous formerons un *quadrillage fluide* en couplant le champ d'*âge fluide* avec celui d'un traceur fluide classique noté Tr .

Pour un écoulement stationnaire (calcul RANS), les lignes de courant et les trajectoires des particules fluides (ie suivant parfaitement l'écoulement sans inertie) se confondent. Nous distinguons donc 2 variables "fluides" en suivant leur évolution le long d'une ligne de courant notée Γ . Le traceur " Tr " paramètre Γ puisqu'il *reste constant* le long de la ligne de courant avec une valeur égale à sa valeur d'entrée (condition aux limites). Ayant une valeur nulle en entrée du domaine l'âge fluide a est quant à lui associé au temps d'existence d'une particule fluide et *augmente régulièrement* le long de Γ en raison du vieillissement de la particule. De même, l'âge fluide prendra de fortes valeurs au sein des zones à faible vitesse (recirculation) où le temps de résidence est long.

Pour définir a et Tr , on se place tout d'abord dans une approche lagrangienne.

Le vieillissement de a et la constance de Tr s'expriment en suivant la particule initialement en $\underline{x} = \underline{x}_0$ le long d'une trajectoire fluide au cours du temps t :

$$\frac{d}{dt} [Tr(\underline{x}_0, t)] = 0 \quad (4.39)$$

$$\frac{d}{dt} [a(\underline{x}_0, t)] = 1 \quad (4.40)$$

Code_Saturne utilise une modélisation RANS dans laquelle on adopte une approche eulérienne moyennée. Pour ces raisons, l'équation de transport d'un scalaire $\phi_k(\underline{x}, t)$ quelconque est généralement formulée de la manière suivante (terme instationnaire + flux convectifs et diffusifs = terme source) :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\bar{\rho} \tilde{\phi}_k) + \text{div} (\bar{\rho} \tilde{u} \tilde{\phi}_k - \bar{\rho} D_{\phi_k} \underline{\text{grad}} (\tilde{\phi}_k)) = \bar{\omega}_{\phi_k} \quad (4.41)$$

Cette formulation générale provient de la conservation d'un scalaire intensif $\phi_k(\underline{x}, t)$. Pour une formulation eulérienne instantanée, la dérivée particulaire induit en effet :

$$\frac{d}{dt} [\rho \phi_k(\underline{x}, t)] = \frac{\partial}{\partial t} (\rho \phi_k) + \frac{\partial}{\partial \underline{x}} \left(\frac{\partial \underline{x}}{\partial t} \rho \phi_k \right) = \dot{\omega}_{\phi_k} \quad (4.42)$$

En régime turbulent, l'approche RANS applique un opérateur de moyenne (Reynolds). La vitesse $\partial \underline{x} / \partial t$ est ainsi décomposée en une partie moyenne \tilde{u} et une partie fluctuante substituée par un terme diffusif pour les modèles du premier ordre (hypothèse de viscosité turbulente μ_t). Il est raisonnable de s'imaginer que les oscillations des lignes de courant (fluctuations de vitesse) sont ainsi représentées.

Pour déterminer l'expression du terme source associé à chaque traceur fluide, on effectue un simple développement des équations lagrangiennes :

$$\frac{d}{dt} (\rho Tr) = \frac{d\rho}{dt} Tr + \frac{dTr}{dt} \rho = \dot{\omega}_{Tr} \quad (4.43)$$

$$\frac{d}{dt} (\rho a) = \frac{d\rho}{dt} a + \frac{da}{dt} \rho = \dot{\omega}_a \quad (4.44)$$

Comme l'écoulement est à bas nombre de Mach ($Ma^2 \ll 1$), il est considéré comme dilatable mais incompressible, on a donc : $d\rho/dt = 0$. Les définitions lagrangiennes des 2 traceurs imposent :

$$\dot{\omega}_{Tr} = 0 \quad \text{et} \quad \dot{\omega}_a = \rho \quad (4.45)$$

En appliquant la moyenne de Reynolds, on obtient le terme source à inclure dans l'équation de transport de chaque traceur pour le formalisme eulérien de *Code_Saturne*. On intègre alors ces 2 équations de transport au système pour disposer du champ d'âge fluide a et du champ de traceur Tr .

Pour différencier les zones de l'écoulement qui présentent des caractères distincts (ex : direction privilégiée ou zone de recirculation), on impose une valeur différente pour Tr par le biais des conditions aux limites d'entrée. En se basant sur les débits massiques issus de chaque zone, on scinde le champ de Tr à une valeur caractéristique qui provient du mélange entre les différents flux.

Prenons l'exemple de 2 zones distinctes, présentant une direction privilégiée pour l'une notée p et une zone de recirculation pour l'autre notée d . En notant Q_p et Q_d , les débits issus des 2 zones ainsi que Tr_p et Tr_d , les valeurs d'entrée associées, on définirait la valeur de coupe Tr_c comme la pondération des débits massiques :

$$Tr_c = \frac{Q_p Tr_p + Q_d Tr_d}{Q_p + Q_d} \quad (4.46)$$

Pour traiter les zones quasi-unidirectionnelles (1D) du type "jet à diffusion transversale", on cherche à définir un critère qui puisse scinder l'écoulement en une série de réacteurs le long de sa direction privilégiée. A l'image du découpage semi-empirique de Mancini et al. (2007b), le critère sera presque géométrique mais doit suivre l'évolution des lignes de courant. Les propriétés de l'âge fluide a le présente alors comme le parfait candidat. En effet, son vieillissement progressif le long d'un ligne de courant Γ permet d'envisager un découpage uniforme qui séparerait de manière régulière les réacteurs.

Pour modéliser ces zones quasi-1D en une série de réacteurs en cascade, nous proposons d'utiliser une loi uniforme pour les points de coupe $a_{c,i}$:

$$a_{c,i} = \frac{a_{max} - a_{min}}{(N_a - 1) - 1} (i - 1) + a_{min} \quad (i = 1, \dots, N_a - 1) \quad (4.47)$$

L'histoire des particules commence à l'entrée du domaine CFD ($a_{min} = 0$), on a donc :

$$a_{c,i} = \frac{a_{max}}{(N_a - 1) - 1} (i - 1) \quad (i = 1, \dots, N_a - 1) \quad (4.48)$$

La représentation des zones complexes (0D) du type swirl avec recirculation requiert d'appliquer un critère de connexité supplémentaire. En effet, dans ces zones chaotiques où la direction de l'écoulement est variable, le sur-découpage dans le champ d'âge fluide ne suffit plus à isoler une physique par zone.

On cherche donc à générer un *quadrillage fluide* afin d'assurer la connexité en conservant une description fine de la topologie de l'écoulement sans recourir à des critères géométriques.

En rappelant que le gradient $\nabla\phi_k$ d'une grandeur ϕ_k est localement normal à l'isosurface le long de laquelle la grandeur est constante $\phi_k = \phi_k^*$, il apparaît que les lignes d'iso-gradients pour le champ d'âge fluide a et le traceur Tr s'entrecroisent.

En effet, pour une vitesse non nulle ($\underline{v} = \partial \underline{x} / \partial t \neq 0$) et un écoulement stationnaire ($\partial \phi_k / \partial t = 0$), la définition lagrangienne des 2 traceurs fluides impose :

$$\frac{d}{dt} [Tr(\underline{x}, t)] = \frac{\partial Tr}{\partial t} + \frac{\partial Tr}{\partial \underline{x}} \frac{\partial \underline{x}}{\partial t} = 0 + \nabla Tr \cdot \underline{v} = 0 \quad (4.49)$$

$$\frac{d}{dt} [a(\underline{x}, t)] = \frac{\partial a}{\partial t} + \frac{\partial a}{\partial \underline{x}} \frac{\partial \underline{x}}{\partial t} = 0 + \nabla a \cdot \underline{v} = 1 \quad (4.50)$$

Le vecteur ∇Tr est normal en tout point au vecteur vitesse \underline{v} alors que le vecteur ∇a ne l'est pas ; ils s'entrecroisent donc. En progressant continûment le long de la ligne de courant Γ , le champ d'âge fluide induit probablement un gradient ∇a localement colinéaire avec le vecteur \underline{v} . L'intersection des iso-gradients de a et de Tr serait alors perpendiculaire comme l'illustre la figure 4.5 qui schématise ce *quadrillage fluide*.

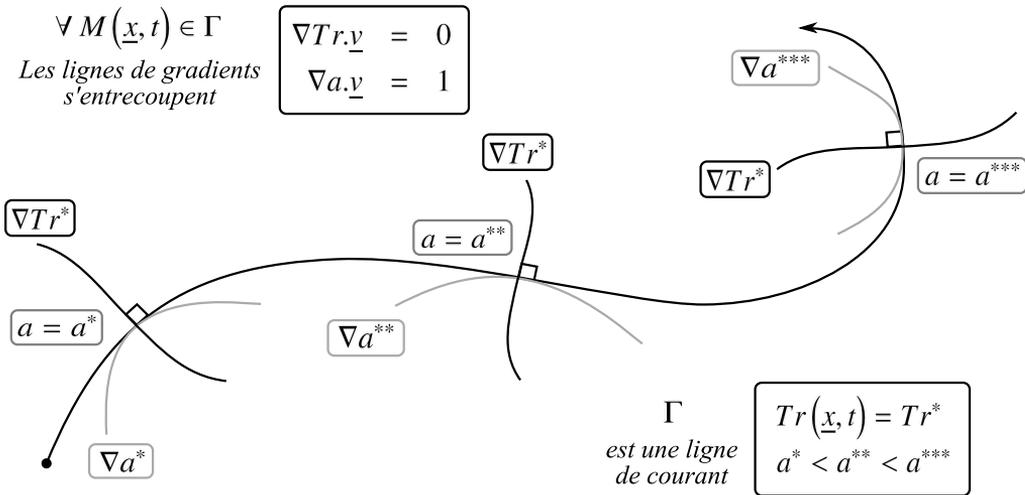


FIGURE 4.5 – Découpage de l'écoulement en zones homogènes basé sur les champs d'âge du fluide et de traceur

En plus de la loi uniforme de coupe pour l'âge fluide a (équation 4.47) qui est proposée dans le cas des écoulements simples (quasi-1D), on applique une simple loi uniforme pour découper le champ du traceur Tr afin d'achever le quadrillage fluide de l'écoulement complexe (zone de recirculation 0D) :

$$Tr_{c,i} = \frac{Tr_{max} - Tr_{min}}{(N_{Tr} - 1) - 1} (i - 1) + Tr_{min} \quad (i = 1, \dots, N_{Tr} - 1) \quad (4.51)$$

En effet, comme les iso-gradients s'entrecroisent et que chaque champ gradient est normal à l'iso-contour associé, les iso-contours des valeurs de coupe pour a et Tr s'entrecroisent et induisent une connexité locale capable d'isoler une physique par réacteur.

Le nombre d'intervalles (N_a, N_{Tr}) des lois de coupe uniformes associées sont les seuls paramètres de découpage dans l'espace physique.

4.2.4 Représentation des zones à direction privilégiée

Les travaux de Mancini et al. (2007a) utilisent une série de PSR (0D) pour représenter les écoulements de jet à diffusion transversale. Cependant, les travaux Faravelli et al. (2001) sur des petits réseaux (13 réacteurs) proposent de modéliser simplement les écoulements à direction privilégiée par un unique PFR (1D).

Nous montrons ici qu'une série de PSR équivaut à un PFR vis-à-vis de la compétition entre la convection et la cinétique chimique qui est modélisée dans ces réacteurs chimiques idéaux. Même si le PFR modélise en plus la diffusion axiale, sa contribution est du second ordre par rapport à l'influence du temps de séjour. Dès lors, on peut comparer les écoulements dans une série de PSR et dans un PFR en confrontant leur Distribution de Temps de Séjour (DTS).

La DTS dans un PFR (Plug Flow Reactor) est un *pic de Dirac* centré sur le temps de séjour du réacteur. En effet, on y suppose une parfaite homogénéité radiale qui dégenère l'écoulement 3D sur une seule direction. Dès lors, les particules sont toutes convectées à la même vitesse et sortent ensemble au même instant t (Villiermaux, 1993). La DTS théorique d'un PFR (voir détails en Annexe B) s'écrit donc :

$$E(t) = \delta(t - \tau) \quad (4.52)$$

La DTS dans un PSR (Perfectly Stirred Reactor) est une *exponentielle décroissante* dont la valeur à $t = 0s$ est non nulle. En raison de ses propriétés idéales de mélange, un signal d'entrée composé d'un pic de Dirac induirait un remplissage *instantané* du réacteur. Certaines particules pourraient donc se retrouver théoriquement à la sortie dès les premiers instants (Villiermaux, 1993). Dès lors, l'expression de la DTS théorique d'un PSR (voir détails en Annexe B) s'écrit :

$$E(t) = \frac{e^{-t/\tau}}{\tau} \quad (4.53)$$

Cette DTS théorique du PSR nous empêche de représenter une chambre de combustion entière par un seul réacteur 0D. En effet, pour que la DTS du système devienne "physiquement admissible", il faut que $E(t)$ ait une valeur nulle à $t = 0s$. Sinon, cela signifierait qu'il existe des particules traversant instantanément le réacteur (temps de séjour nul = vitesse infinie des particules), ce qui n'est pas réaliste.

En plaçant au moins 2 PSR l'un derrière l'autre, on corrige la forme de la DTS. Pour l'expliquer, on impose une impulsion de Dirac en entrée du premier PSR : $e(t) = \delta(t)$. Le premier PSR est donc instantanément rempli avec un traceur fluide contenant par exemple une forte concentration en particules. Au même instant ($t = 0^+$), le second PSR, initialement vide, ne voit en entrée qu'une faible quantité de particules issue du premier PSR puisque l'on a $e(0^+) = 1/\tau$. Ces quelques particules en entrée du second réacteur sont dispersées dans tout son volume ce qui diminue énormément leur concentration. Par conséquent, la probabilité de trouver une particule dans la section de sortie du second réacteur est infime (théoriquement nulle).

Notre découpage dans l'espace physique doit donc toujours imposer au moins 2 réacteurs en série entre l'entrée et la sortie du domaine CFD pour avoir une signification physique ($E(t) = 0$ pour $t = 0s$). La figure 4.6 illustre cette singularité physique.

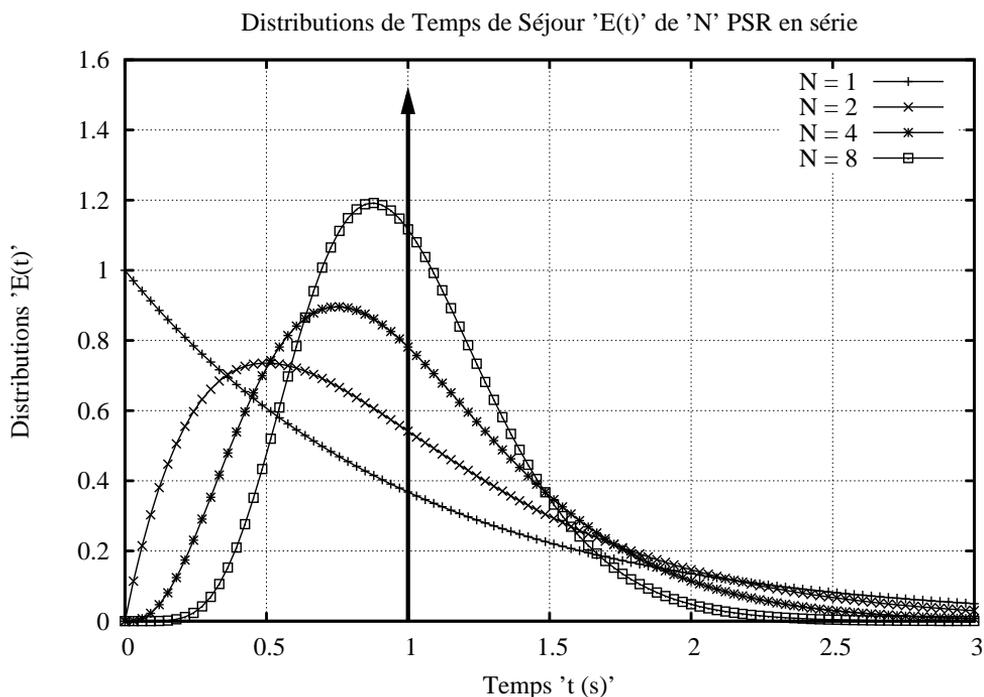


FIGURE 4.6 – Distributions des temps de séjour pour une série de "N" PSR. La flèche représente la DTS (pic de Dirac) du PFR équivalent à une infinité de PSR ($N \rightarrow \infty$)

En considérant chaque réacteur comme un système linéaire, on exprime analytiquement la DTS d'un système de "N" PSR en série à l'aide des transformées de Laplace et du produit de convolution (voir détails en Annexe B). On montre ainsi qu'un nombre croissant de ces réacteurs en série permet de faire converger la DTS du système vers celle du PFR (Villermaux, 1993) comme l'illustre la figure 4.6 :

$$E(t) = \left(\frac{N}{\tau}\right)^N \frac{t^{N-1} e^{-Nt/\tau}}{(N-1)!} \quad (4.54)$$

Ces lois analytiques ne sont toutefois valables que si les PSR ont tous le même temps de séjour moyen τ . Le découpage uniforme de l'âge fluide a (équation 4.47) garantit cette condition puisqu'il produit des intervalles d'âge constants $\Delta a_c = a_{c,i+1} - a_{c,i}$ égal au temps de séjour moyen du réacteur découpé. La loi théorique peut donc être appliquée et il est légitime de représenter un écoulement à direction privilégiée (quasi-1D) par une série de PSR. On remplace ainsi avantageusement un unique PFR en termes de temps de calcul et de représentation de la diffusion transversale.

4.3 Définition de l'écoulement simplifié

4.3.1 Intégration de l'équation fondamentale

Une fois le découpage effectué, un numéro de zone est assigné à chaque cellule. Chaque zone est donc une coalescence de cellules et peut être considérée comme l'élément d'un maillage CFD grossier. Ce méta-maillage, embryon du réseau de réacteurs, n'est plus géométrique mais il est fonction de l'écoulement en raison des critères physiques imposés lors du découpage. On applique une approche "*volumes finis*" afin d'obtenir l'évolution des grandeurs dans chaque zone en cumulant la contribution des flux entrants et des termes sources associés.

Dans l'optique d'exprimer les flux et les termes sources de manière générique, on écrit l'équation fondamentale de l'aérothermochimie pour un scalaire réactif quelconque g sous une formulation locale et tensorielle :

$$\frac{\partial(\rho g)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \underline{u} g) = -\nabla \cdot (\underline{J}_g) + \dot{\omega}_g \quad (4.55)$$

Après avoir appliqué l'opérateur de moyenne (régime turbulent), on adopte les hypothèses liées à l'emploi d'un modèle $k - \varepsilon$ (modèle du premier ordre pour fermer le flux turbulent $\overline{\rho u_i'' g''}$) et du modèle LWP (fermeture du terme source chimique moyen). L'hypothèse sous-jacente d'un nombre Schmidt unitaire ($Sc_g = \mu_t / (\bar{\rho} D_t) = 1$) et d'une diffusion turbulente dominante ($D + D_t \approx D_t$) nous conduit à écrire :

$$\overline{\rho u_i'' g''} = -\frac{\mu_t}{Sc_g} \frac{\partial \tilde{g}}{\partial x_i} = -\bar{\rho} D_t \frac{\partial \tilde{g}}{\partial x_i} \quad (4.56)$$

En adoptant une formulation moyennée et indicielle, l'équation fondamentale s'écrit :

$$\frac{\partial(\bar{\rho} \tilde{g})}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\bar{\rho} \tilde{u}_i \tilde{g}) = + \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \tilde{g}}{\partial x_i} \right) + \overline{\dot{\omega}_g} \quad (4.57)$$

Comme nous envisageons de ne traiter que des *zones OD* dans nos modèles, on intègre cette équation sur le volume de chaque zone définie par un domaine \mathcal{D} :

$$\iiint_{\mathcal{D}} \left[\frac{\partial(\bar{\rho} \tilde{g})}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\bar{\rho} \tilde{u}_i \tilde{g}) - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \tilde{g}}{\partial x_i} \right) - \overline{\dot{\omega}_g} \right] dV = 0 \quad (4.58)$$

On utilise alors le théorème de *Green-Ostrogradski* pour les domaines \mathcal{D} à contour fermé Γ avec un vecteur \underline{v} et une formulation tensorielle :

$$\int_{\mathcal{D}} \nabla \cdot (\underline{v}) dV = \oint_{\Gamma} (\underline{v}) \underline{n} dS \quad (4.59)$$

On en déduit que l'équation fondamentale intégrée en formulation indicielle donne :

$$\iiint_{\mathcal{D}} \frac{\partial(\bar{\rho}\tilde{g})}{\partial t} dV + \iint_{\Gamma} (\bar{\rho}\tilde{u}_i \tilde{g}) n_i dS - \iint_{\Gamma} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \tilde{g}}{\partial x_i} \right) n_i dS = \iiint_{\mathcal{D}} \bar{\omega}_g dV \quad (4.60)$$

On suppose alors que les zones sont *parfaitement homogènes au niveau macroscopique*.

Cette hypothèse est le fondement même de l'approche "réseau de réacteurs". A l'intérieur de chaque zone, on admet que toutes les grandeurs $\psi(\underline{x}, t)$ sont uniformes sur le volume du domaine \mathcal{D} . Par conséquent, si on pose $\psi_m(t)$ comme la valeur moyenne de $\psi(\underline{x}, t)$ sur le volume V de la zone, on a en tout point : $\psi(\underline{x}, t) \rightarrow \psi(t) = \psi_m(t)$

On peut exprimer cette homogénéité par la distribution $P(\psi)$ des grandeurs $\psi(\underline{x}, t)$ en tout point $M(\underline{x}, t) \in \mathcal{D}$. L'expression de $P(\psi)$ se résume alors à un pic de Dirac centré sur la moyenne $\psi_m(t)$. Cette propriété impose que l'on ait :

$$\psi(t) = \psi_m(t) = \int_{\mathcal{D}} \psi(\underline{x}, t) P(\psi) d\psi = \int_{\mathcal{D}} \psi(\underline{x}, t) \delta(\psi - \psi_m) d\psi \quad (4.61)$$

Après intégration sur le volume V , les variables $g(\underline{x}, t)$ ne dépendent plus que du temps. L'équation fondamentale intégrée se simplifie donc en :

$$V \frac{\partial(\bar{\rho}\tilde{g})_m}{\partial t} + \iint_{\Gamma} (\bar{\rho}\tilde{u}_i \tilde{g}) n_i dS - \iint_{\Gamma} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \tilde{g}}{\partial x_i} \right) n_i dS = V \bar{\omega}_{g_m} \quad (4.62)$$

Les grandeurs moyennes (indice m) de chaque zone sont définies à partir des N_{cell} qui la constituent. Leur contribution est néanmoins pondérée par leur masse en raison du formalisme de Favre utilisé dans la modélisation CFD (RANS). Ainsi, pour calculer la grandeur moyenne g_m sur le volume V de la zone, on écrit :

$$g_m = \frac{\sum_j \bar{\rho}_j V_j \tilde{g}_j}{\sum_j \bar{\rho}_j V_j} \quad \text{avec} \quad j = (1, \dots, N_{cell}) \quad (4.63)$$

Dans tous nos modèles de réseaux de réacteurs, nous considérons *l'état stationnaire* :

$$V \frac{\partial(\bar{\rho}\tilde{g})_m}{\partial t} = 0 \quad (4.64)$$

Pour comprendre l'intérêt de notre approche, il est essentiel de préciser que les termes sources $\bar{\omega}_{g_m}$ ne sont pas juste moyennés (comme pour g_m) mais seront supplantés par un $\dot{\omega}_{g_m}$ calculé à partir de g_m à l'aide d'une cinétique chimique détaillée.

$$\bar{\omega}_{g_m} \neq \frac{\sum_j \bar{\rho}_j V_j \widetilde{\dot{\omega}_{g,j}}}{\sum_j \bar{\rho}_j V_j} \quad (4.65)$$

En substituant α à i (indice du vecteur position \bar{x}) pour des raisons de notation, nous déterminons enfin l'équation générale qui décrit l'évolution nos réseaux de réacteurs macroscopiquement homogènes :

$$\iint_{\Gamma} (\bar{\rho} \bar{u}_{\alpha} \bar{g}) n_{\alpha} dS - \iint_{\Gamma} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \bar{g}}{\partial x_{\alpha}} \right) n_{\alpha} dS - V \dot{\omega}_{g_m} = 0 \quad (4.66)$$

Cette équation traite l'évolution d'une grandeur g au sein d'une seule zone \mathcal{D} et fait intervenir les *flux convectifs et diffusifs* à travers son contour Γ . Le traitement des termes sources sera abordé en détail dans les chapitres suivants et nous décrivons maintenant le calcul de chaque type de flux.

4.3.2 Représentation des flux convectifs

Pour définir l'expression des flux convectifs, nous considérons chaque zone comme un domaine \mathcal{D} fermé de contour Γ . Ce contour est perméable par morceaux et on le décompose en 3 parties ($\Gamma = \Gamma_e \cup \Gamma_s \cup \Gamma_0$) suivant le flux de masse qui le traverse :

- Sur Γ_e , le flux de masse est *entrant* (sens opposé à la normale \underline{n} extérieure à Γ_e).
- Sur Γ_s , le flux de masse est *sortant* (même sens que la normale \underline{n} extérieure à Γ_s).
- Sur Γ_0 , le flux de masse est *nul* (parallèle à Γ_0).

Chaque zone i est susceptible d'accueillir plusieurs voisins j et doit donc disposer de N_{entr} entrées p et de N_{sort} sorties q :

$$\Gamma_e = \bigcup_{p=1}^{N_{entr}} \Gamma_{e,p} \quad et \quad \Gamma_s = \bigcup_{q=1}^{N_{sort}} \Gamma_{s,q} \quad (4.67)$$

Décomposée sur chaque contour, l'expression du flux convectif devient :

$$\iint_{\Gamma} (\bar{\rho} \bar{u}_{\alpha} \bar{g}) n_{\alpha} dS = \sum_{p=1}^{N_{entr}} \iint_{\Gamma_{e,p}} (\bar{\rho} \bar{u}_{\alpha} \bar{g}) n_{\alpha} dS + \sum_{q=1}^{N_{sort}} \iint_{\Gamma_{s,q}} (\bar{\rho} \bar{u}_{\alpha} \bar{g}) n_{\alpha} dS + 0 \quad (4.68)$$

La parfaite homogénéité de chaque zone impose la valeur moyenne g_m sur l'ensemble de ses sorties, on a donc : $\forall q, g_{s,q} = g_m$. En conséquence, sur chaque entrée p et sur chaque sortie q , nous faisons l'hypothèse que le flux de masse est uniforme. Grâce à l'*uniformité du flux de masse*, l'expression du flux convectif devient :

$$\iint_{\Gamma} (\bar{\rho} \bar{u}_{\alpha} \bar{g}) n_{\alpha} dS = - \sum_{p=1}^{N_{entr}} Q_{e,p} g_{e,p} + \sum_{q=1}^{N_{sort}} Q_{s,q} g_{s,q} \quad (4.69)$$

Les flux de masse d'entrée $Q_{e,p}$ et de sortie $Q_{s,q}$ sont positifs et s'écrivent :

$$Q_{e,p} = - \iint_{\Gamma_{e,p}} (\bar{\rho} \bar{u}_{\alpha}) n_{\alpha} dS \quad et \quad Q_{s,q} = \iint_{\Gamma_{s,q}} (\bar{\rho} \bar{u}_{\alpha}) n_{\alpha} dS \quad (4.70)$$

Numériquement, on va définir une *matrice de flux convectif* dont la composante $F_{c_{ij}}$ représente le flux de masse qui traverse l'interface Γ_{ij} en allant de la zone i vers j . Cette matrice inclut à la fois les flux entrants dans i et sortants de i suivant que l'on considère la ligne i (flux sortants de i) ou la colonne i (flux entrants dans i).

La discrétisation spatiale du domaine (maillage CFD) induit d'approcher $F_{c_{ij}}$ en sommant algébriquement les flux de masse ($\bar{\rho}\tilde{u}_\alpha n_\alpha$) qui traversent les surfaces S_l des $N_{fac_{ij}}$ faces constituant l'interface Γ_{ij} entre les zones i et j . On a ainsi :

$$F_{c_{ij}} = \iint_{\Gamma_{i,j}} (\bar{\rho}\tilde{u}_\alpha) n_\alpha dS \approx \sum_{l=1}^{N_{fac_{ij}}} S_l (\bar{\rho}\tilde{u}_\alpha n_\alpha)_l \quad (4.71)$$

Enfin, dans nos calculs, nous ne traitons que des flux entrants (positifs), soit $\max(0, F_{c_{ij}})$.

4.3.3 Représentation des flux diffusifs

Pour exprimer les flux diffusifs, on procède de manière identique au calcul des flux convectifs en décomposant le contour Γ selon sa perméabilité. L'expression du flux diffusif devient :

$$\begin{aligned} \iint_{\Gamma} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \tilde{g}}{\partial x_\alpha} \right) n_\alpha dS &= \sum_{p=1}^{N_{entr}} \iint_{\Gamma_{e,p}} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \tilde{g}}{\partial x_\alpha} \right) n_\alpha dS + \\ &\sum_{q=1}^{N_{sort}} \iint_{\Gamma_{s,q}} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \tilde{g}}{\partial x_\alpha} \right) n_\alpha dS + 0 \end{aligned} \quad (4.72)$$

Etant parfaitement homogène, chaque zone mélange instantanément toute entrée et ne considère qu'un unique débit entrant avec une composition et une température moyenne. Ces moyennes d'entrée résultent de la pondération des grandeurs par les débits massiques provenant de chaque zone voisine. Après avoir défini ci-dessus la contribution convective de ce débit massique d'entrée, nous cherchons maintenant l'expression de la contribution diffusive.

Nous utilisons donc une fois de plus *l'uniformité du flux de masse* sur chaque entrée p et sur chaque sortie q afin de définir un flux de masse transportant la grandeur. Ainsi, en nous appuyant sur la physique du flux de masse diffusif, par essence réciproque, nous avons considéré *chaque flux de masse diffusif* comme 2 *flux de masse convectifs réciproques et égaux* pour tenir compte de la diffusion dans nos réacteurs OD.

Numériquement, on introduit encore une *matrice de flux diffusifs* dont la composante $F_{d_{ij}}$ représente le flux de masse qui traverse l'interface Γ_{ij} en allant de la zone i vers j :

$$F_{d_{ij}} = \iint_{\Gamma_{i,j}} \left(\bar{\rho} D_t \frac{\partial \tilde{g}}{\partial x_\alpha} \right) n_\alpha dS \approx \sum_{l=1}^{N_{fac_{ij}}} S_l \left(\bar{\rho} D_t \frac{\Delta \tilde{g}}{\Delta x_\alpha} n_\alpha \right)_l \quad (4.73)$$

La figure 4.7 schématise l'écoulement représenté par l'association des flux convectifs et diffusifs traversant l'interface Γ_{ij} entre 2 réacteurs.

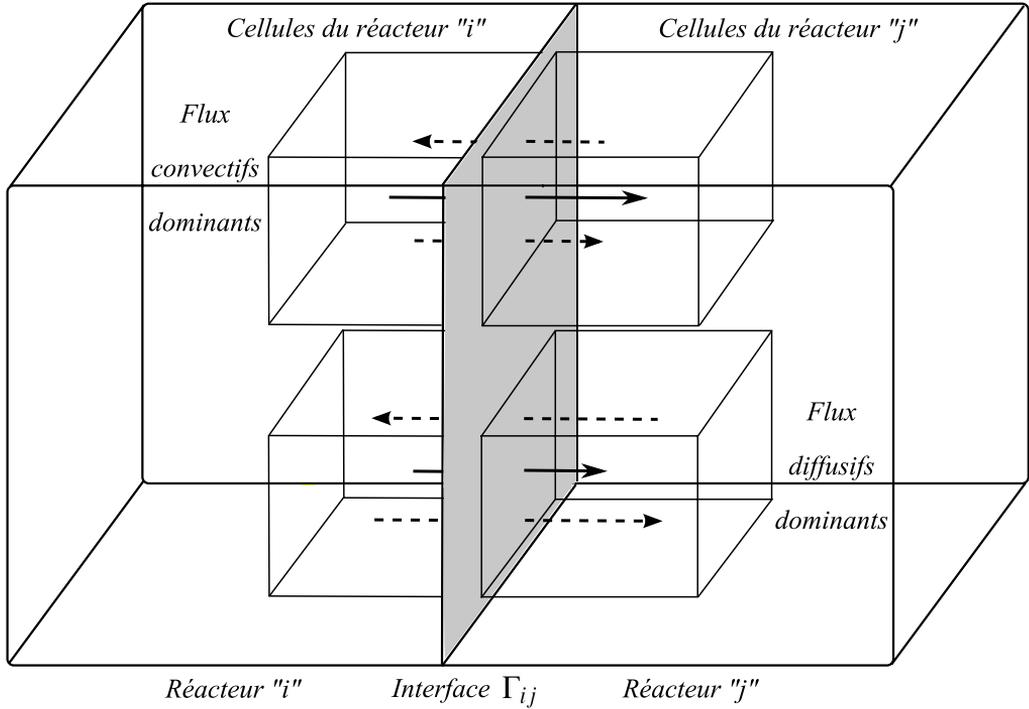


FIGURE 4.7 – Représentation de l'écoulement par l'association des flux convectifs (en plein) et diffusifs (en pointillés) échangés entre 2 réacteurs à travers Γ_{ij}

Dans l'équation précédente, Δx_α est la distance entre les centres I et J des cellules voisines de chaque côté de Γ_{ij} . Toutefois, en raison du formalisme "colocalisé" de *Code_Saturne*, les grandeurs \tilde{g}_i et \tilde{g}_j sont calculées sur ces points centraux. Pour des maillages non orthogonaux, ces points ne coïncident pas avec leurs projetés I' et J' sur la normale n_α à la facette l . Le calcul du gradient local de \tilde{g} doit donc être corrigé.

En effet, le formalisme numérique de *Code_Saturne* fournit pour chaque face l une valeur de $\mu_{t,l} S_l / I'J'$ à partir de laquelle on cherche à calculer le flux diffusif par :

$$Fd_{ij} \approx \sum_{l=1}^{N_{fac_{ij}}} S_l \left(\mu_{t,l} \frac{1}{(I'J')_\alpha} n_\alpha (\tilde{g}_{i'} - \tilde{g}_{j'}) \right)_l \quad (4.74)$$

En effet, n'ayant plus l'égalité $I'J' = \Delta x_\alpha$, on calcule \tilde{g} en I' et J' notées respectivement $\tilde{g}_{i'}$ et $\tilde{g}_{j'}$ par un développement limité spatial à l'ordre 1 :

$$\tilde{g}_{i'} = \tilde{g}_i + (\nabla \tilde{g})_i . II' \quad \text{et} \quad \tilde{g}_{j'} = \tilde{g}_j + (\nabla \tilde{g})_j . JJ' \quad (4.75)$$

Des raisons de stabilité numérique nous imposent : $(\nabla \tilde{g})_i = (\nabla \tilde{g})_j = 1/2 [(\nabla \tilde{g})_i + (\nabla \tilde{g})_j]$

Ainsi, en posant $I'J' = \Delta x'_\alpha$ et grâce à l'hypothèse d'un nombre de Schmidt unitaire, on exprime le flux diffusif entre 2 réacteurs i et j pour un maillage quelconque :

$$Fd_{ij} \approx \sum_{l=1}^{N_{fac_{ij}}} S_l \left(\bar{\rho} D_t \frac{1}{\Delta x'_\alpha} n_\alpha (\tilde{g}_{i'} - \tilde{g}_{j'}) \right)_l \quad (4.76)$$

Toutefois, nous voulons exprimer un flux de masse diffusif capable de transporter l'information moyenne $g_{m,i}$ et $g_{m,j}$ entre les 2 réacteurs. En remplaçant directement $\tilde{g}_{i'} - \tilde{g}_{j'}$ par $g_{m,i} - g_{m,j}$, on sur-estimerait fortement le flux de masse échangé entre réacteurs. Pour garantir une représentation correcte des flux diffusifs transportant $g_{m,i}$ vers j et $g_{m,j}$ vers i , le flux de masse Fd_{ij} doit respecter la condition :

$$Fd_{ij}(g_{m,i} - g_{m,j}) = \sum_{l=1}^{N_{fac_{ij}}} S_l \left(\bar{\rho} D_t \frac{1}{\Delta x'_\alpha} n_\alpha (\tilde{g}_{i'} - \tilde{g}_{j'}) \right)_l \quad (4.77)$$

La figure 4.8 illustre ces deux corrections : la prise en compte de maillage non-orthogonal et la contrainte imposée sur le flux de masse transportant les valeurs moyennes g_m .

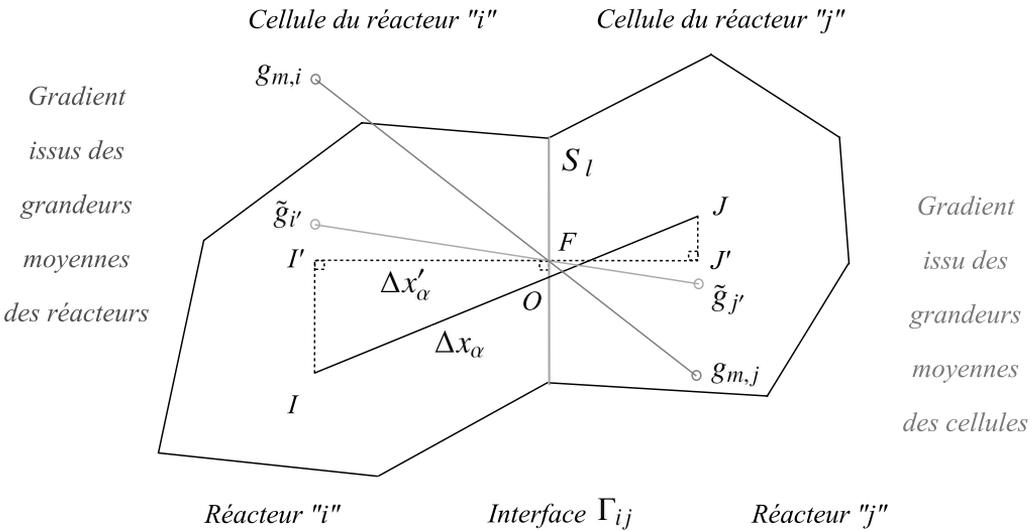


FIGURE 4.8 – Calcul du flux diffusif corrigé à travers Γ_{ij} (maillage non orthogonal)

Enfin, pour engendrer 2 flux convectifs réciproques et égaux chargés de représenter la diffusion dans nos zones homogènes, on traitera les flux positifs de Fd_{ij} et de sa transposée Fd_{ij}^T soit : $\max(0, Fd_{ij} + Fd_{ij}^T)$. Dès lors, l'expression finale du flux diffusif échangé entre deux zones i et j est :

$$Fd_{ij} \approx \sum_{l=1}^{N_{fac_{ij}}} S_l \left(\bar{\rho} D_t \frac{1}{\Delta x'_\alpha} n_\alpha (\tilde{g}_{i'} - \tilde{g}_{j'}) \right)_l / |g_{m,i} - g_{m,j}| \quad (4.78)$$

Chapitre 5

Réseaux de réacteurs chimiques idéaux

5.1 Modèles de réacteurs chimiques

A cette étape de modélisation, le découpage a généré un ensemble de zones sur la base de critères liés à la formation du NO ou à la topologie de l'écoulement. Les flux de masse convectifs et diffusifs échangés entre ces zones ont été construits de manière à transporter l'information en respectant les propriétés de l'écoulement. Parmi les termes de l'équation 4.66, seul le terme source $\dot{\omega}_{g_m}$ qui est fonction des grandeurs moyennes g_m du réacteur, reste à évaluer. L'objectif de cette sous-partie est de répertorier les modèles de réacteurs chimiques capables d'exprimer $\dot{\omega}_{g_m}$ à l'aide d'une cinétique détaillée. Nous aurons ainsi accès à la formation d'espèces minoritaires comme le NO .

Les modèles de *réacteurs chimiques ouverts* (0D et 1D) ici présentés couplent tous une cinétique chimique détaillée avec l'écoulement. Nous décrivons donc les propriétés et les limites de leurs différents niveaux de représentation.

5.1.1 Le modèle de PSR (Perfectly Stirred Reactor)

Le *réacteur parfaitement mélangé* ou *Perfectly Stirred Reactor* (PSR) est un réacteur 0D dans lequel on suppose une parfaite homogénéité tant au niveau macroscopique que microscopique (dégénérescence spatiale complète d'un écoulement 3D en 0D).

Un tel réacteur mélange instantanément ses débits entrants (indice e) et impose sur chacune de ses sorties l'état moyen qui s'établit en son sein avec l'évolution cinétique. Dans un *PSR*, la distribution $P(g)$ des grandeurs $g(x, t)$ se résume à un pic de Dirac centré sur la moyenne $g_m(t)$.

La figure 5.1 illustre les données afférentes à un réacteur parfaitement mélangé.

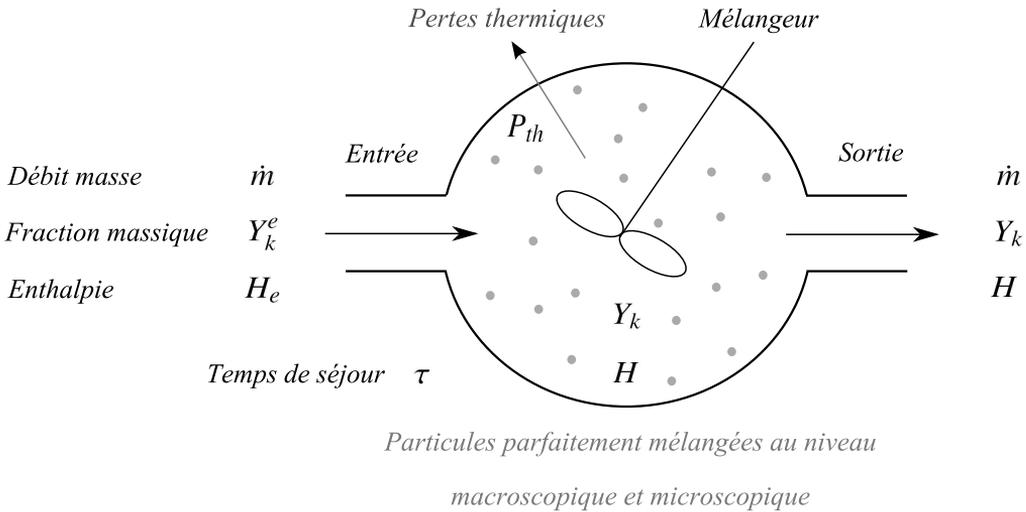


FIGURE 5.1 – Schéma descriptif d'un réacteur parfaitement mélangé (PSR)

Grâce à l'expression de $P(g)$, on exprime le terme source $\dot{\omega}_{g_m}$ d'un PSR par :

$$\dot{\omega}_{g_m}(t) = \int_D \dot{\omega}_g(\underline{x}, t) P(g) dg = \int_D \dot{\omega}_g(\underline{x}, t) \delta(g - g_m) dg \quad (5.1)$$

La physique représentée dans ce réacteur est donc la *compétition entre la cinétique et la convection*. Ce réacteur 0D est soumis à un flux stationnaire \dot{m} qui l'alimente en espèces réactives (fraction massique Y_k). Comme le réacteur dispose d'un volume V fixe, nous introduisons la notion de *temps de séjour* $\tau = \rho V / \dot{m}$ où ρ est la masse volumique dans le réacteur. Le temps de séjour *moyen* τ dans le réacteur est un facteur de contrôle limitant la complétude des réactions.

Dès lors, même si l'écoulement est stationnaire en entrée ($\dot{m} = cst$), l'évolution des grandeurs (T, ρ, Y_k) dans le *PSR* peut être transitoire afin d'atteindre l'équilibre. Les équations résolues sont la conservation de la masse (fraction massique Y_k des espèces) et de l'énergie (enthalpie massique totale H en $J.kg^{-1}$) :

$$\rho V \frac{dY_k}{dt} = \dot{m} (Y_k^e - Y_k) + V M_k \dot{\omega}_k \quad \text{avec} \quad \dot{\omega}_k = \sum_{i=1}^{N_r} \nu_{ik} q_i \quad (5.2)$$

$$\rho V \frac{dH}{dt} = \dot{m} (H_e - H) - P_{th} \quad \text{avec} \quad H = \sum_{k=1}^{N_{esp}} Y_k h_k \quad (5.3)$$

Dans l'équation 5.2, M_k est la masse molaire de l'espèce χ_k , ν_{ik} est la différence des coefficients stoechiométriques molaires de l'espèce χ_k dans les produits et les réactifs de la réaction i de vitesse q_i (cf. chapitre 1, équation 1.6).

Pour l'équation de conservation de l'énergie, on note P_{th} les pertes thermiques aux parois et h_k , l'enthalpie massique (en $J.kg^{-1}$) de l'espèce χ_k .

L'enthalpie massique h_k et la vitesse de réaction q_i ont une très forte dépendance à la température. Ainsi, on considère le réacteur *isobare* ($P = cste$) et on suppose que le mélange réactif multi-espèce suit la *loi des gaz parfaits* avec M_m , sa masse molaire moyenne :

$$T = \frac{PM_m}{\rho R} \quad \text{avec} \quad M_m = \left(\sum_{k=1}^{N_{esp}} \frac{Y_k}{M_k} \right)^{-1} \quad (5.4)$$

L'évolution de la température T du *PSR* est déduite des équations pour Y_k et H . En effet, dans le cadre des hypothèses employées, l'enthalpie massique H du mélange n'est fonction que de la température et de la fraction massique des espèces : $H(T, Y_k)$.

Par dérivation de H en fonction de ses variables T et Y_k , on écrit :

$$\frac{dH}{dt} = \frac{\partial H}{\partial T} \frac{dT}{dt} + \sum_{k=1}^{N_{esp}} \frac{\partial H}{\partial Y_k} \frac{dY_k}{dt} \quad (5.5)$$

La définition de H pour un mélange s'écrit à partir de l'enthalpie massique h_k de chaque espèce χ_k par :

$$H = \sum_{k=1}^{N_{esp}} Y_k h_k \quad \text{avec} \quad h_k = h_k^0 + \int_{T_0}^T C p_k(T^*) dT^* \quad (5.6)$$

On rajoute également la définition de la capacité calorifique massique Cp :

$$Cp = \left. \frac{\partial H}{\partial T} \right|_{P=cst} = \sum_{k=1}^{N_{esp}} Y_k C p_k \quad (5.7)$$

Ces définitions supplémentaires simplifient l'équation 5.5 en :

$$\frac{dH}{dt} = Cp \frac{dT}{dt} + \sum_{k=1}^{N_{esp}} h_k \frac{dY_k}{dt} \quad (5.8)$$

En combinant les équations 5.2, 5.3 et 5.8 (voir détails en Annexe C), on finit par obtenir l'équation d'évolution de la température T dans le *PSR* :

$$\rho V Cp \frac{dT}{dt} = \dot{m} \sum_{k=1}^{N_{esp}} Y_{k,p}^e (h_k^e - h_k) - V \sum_{k=1}^{N_{esp}} h_k M_k \dot{\omega}_k - P_{th} \quad (5.9)$$

5.1.2 Le modèle de PFR (Plug Flow Reactor)

Le réacteur "piston" ou *Plug Flow Reactor* (PFR) est un réacteur 1D en forme de tube. On y suppose une parfaite homogénéité dans le sens radial tant au niveau macroscopique que microscopique (dégénérescence partielle d'un écoulement 3D en 1D).

A l'image du *PSR*, il possède sur chaque section une diffusion instantanée qui permet de mélanger par exemple les différents débits entrants (indice e) qu'il supporte. Cependant, son évolution axiale établit un état de sortie différent de l'état moyen dans le réacteur.

La figure 5.2 illustre les données afférentes à un réacteur "piston".

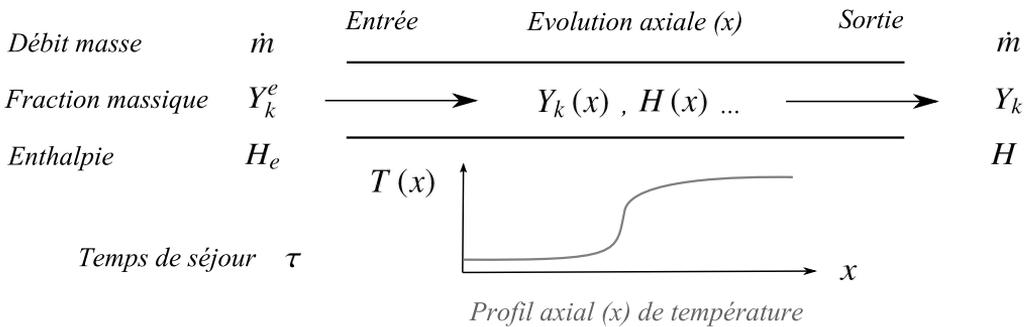


FIGURE 5.2 – Schéma descriptif d'un réacteur "piston" (PFR)

La forme 1D du *PFR* impose de définir la section de passage A qui peut être variable suivant l'axe x même si l'on considère toujours l'écoulement entrant comme stationnaire. Ainsi, pour chaque section de passage le long de x , on a conservation de la masse en notant ρu , la quantité de mouvement (masse volumique \times vitesse axiale) :

$$\dot{m} = \rho(x) u(x) A(x) = cste \quad (5.10)$$

La dégénérescence incomplète de l'écoulement 3D permet de représenter le long d'une seule dimension la *compétition entre la cinétique et la convection* mais également le *transport diffusif des espèces et de la chaleur*.

En régime stationnaire et pour un *PFR*, la conservation de la fraction massique Y_k et de l'énergie (équation d'évolution axiale de la température T) s'écrivent :

$$\dot{m} \frac{dY_k}{dx} = - \frac{d}{dx} (\rho A Y_k V_k) + V M_k \dot{\omega}_k \quad (5.11)$$

$$\dot{m} \frac{dT}{dx} = \frac{1}{C_p} \left[\frac{d}{dx} \left(\lambda A \frac{dT}{dx} \right) - A \frac{dT}{dx} \sum_{k=1}^{N_{esp}} \rho Y_k V_k C_{p_k} - A \sum_{k=1}^{N_{esp}} h_k M_k \dot{\omega}_k \right] \quad (5.12)$$

Dans les équations de conservation précédentes, on note λ , la conductivité thermique et V_k , la vitesse de diffusion de l'espèce χ_k .

La définition de cette *vitesse de diffusion* V_k se décompose en 3 contributions qui représentent respectivement la vitesse de diffusion "normale" V_k^N induite par le gradient de concentration, la vitesse de diffusion "thermique" V_k^T et la vitesse de correction V_c :

$$V_k = V_k^N + V_k^T + V_c \quad (5.13)$$

La vitesse de diffusion V_k^N est donnée par l'approximation de Curtiss-Hirschfelder :

$$V_k^N = -D_k \frac{1}{X_k} \frac{dX_k}{dx} \quad \text{avec} \quad D_k = (1 - Y_k) \left(\sum_{j \neq k}^{N_{esp}} \frac{X_k}{D_{kj}} \right)^{-1} \quad (5.14)$$

Dans l'équation 5.14, on note X_k , la fraction molaire de l'espèce χ_k et D_k sa vitesse moyenne de diffusion, fonction des coefficients de diffusion binaire D_{kj} .

La vitesse de diffusion thermique V_k^T n'est significative que pour les espèces à faible masse moléculaire (H , H_2 , H_e) et par le biais d'un rapport de diffusion thermique k_{T_k} :

$$V_k^T = \frac{k_{T_k} D_k}{X_k} \frac{1}{T} \frac{dT}{dx} \quad (5.15)$$

Enfin, la vitesse de correction V_c est indépendante de l'espèce mais fonction de x . Elle intervient afin d'assurer que la somme des fractions massiques Y_k reste égale à 1.

5.1.3 Le modèle de PaSR (Partially Stirred Reactor)

Le *réacteur partiellement mélangé* ou *Partially Stirred Reactor* (PaSR) est un réacteur 0D dans lequel on suppose une parfaite homogénéité au niveau macroscopique mais pas au niveau microscopique (dégénérescence complète d'un écoulement 3D en 0D en moyenne au niveau macroscopique).

Le *PaSR* est donc une amélioration du *PSR* puisqu'à l'échelle macroscopique il dispose des mêmes propriétés (mélange instantané, entrées moyennées, état moyen renvoyé en sortie) mais il représente en plus l'imperfection du mélange à l'échelle microscopique. Ce phénomène de *micromélange* doit donc être modélisé.

La problématique des modèles de micromélange est très étudiée dans la littérature. En première partie du mémoire, quelques-uns de ces modèles ont été énoncés (chapitre 2, sous-partie 2.2, calculer la *pdf*). Bien que la présentation de ces modèles sorte du cadre de la thèse, on informera le lecteur que les *PaSR* sont très utilisés pour la modélisation des chambres de combustion automobile où le mélange du combustible et de l'air doit être représenté pour capturer avec précision les délais d'allumage (Ren et Pope, 2004 ; Mauviot, 2007). Mura et Borghi (2004) proposent en outre un modèle de micromélange hybride (IEM - Curl) qui semble prometteur.

La figure 5.3 illustre les données afférentes à un réacteur partiellement mélangé.

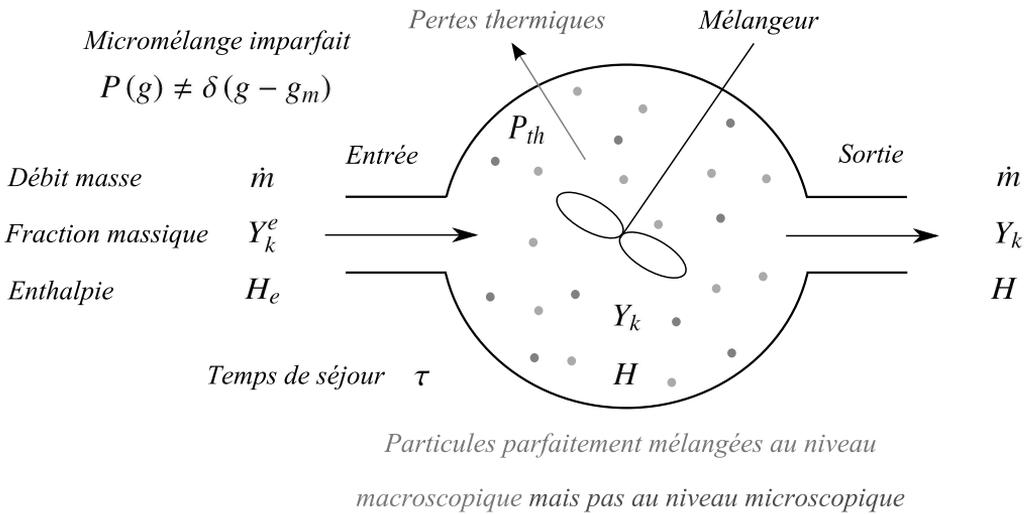


FIGURE 5.3 – Schéma descriptif d'un réacteur partiellement mélangé (PaSR)

Un PaSR inclut une représentation macroscopique de la *compétition entre la cinétique et la convection* qui est équivalente à celle du PSR. Les équations de conservation pour l'état moyen du réacteur sont donc les mêmes. La moyenne g_m sera en revanche calculée à partir de la distribution $P(g)$ qui tient compte de l'inhomogénéité des petites échelles. L'imperfection du micromélange se traduit par : $P(g) \neq \delta(g - g_m)$

En conséquence, la distribution $P(g)$ n'est pas déterminée et pour décrire l'évolution des grandeurs g dans le réacteur, on écrit son équation d'évolution. On considère pour cela g comme le vecteur de composition $\phi = (\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_N)$ avec $\phi_k = \{T, Y_k\}$:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\bar{\rho} \tilde{P}) = & - \frac{\bar{\rho}}{\tau} (\tilde{P} - \tilde{P}_{in}) \\ & - \bar{\rho} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \frac{\partial}{\partial \phi_i} \frac{\partial}{\partial \phi_j} \left[D \left(\frac{\partial \psi_i}{\partial x_k} \frac{\partial \psi_j}{\partial x_k} \Big|_{\psi = \phi} \right) \tilde{P} \right] \\ & - \bar{\rho} \sum_i^N \frac{\partial}{\partial \phi_i} \left[\dot{\omega}_i(\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_N) \tilde{P} \right] \end{aligned} \quad (5.16)$$

En suivant l'ordre des lignes, les 3 contributions qui font évoluer $P(\phi)$ sont :

- Le *transport convectif* de la grandeur d'entrée P_{in} à travers le temps de séjour τ .
- Le *micromélange* qui fait intervenir les gradients locaux de composition et qui fait tendre le vecteur ϕ vers la moyenne. C'est le terme caractéristique du PaSR.
- La *réaction chimique* qui modifie la composition globale.

5.2 Définition du CRN : Chemical Reactor Network

A l'image du découpage en réseau de réacteurs, issu de l'étude approfondie des modèles existants et de leurs lacunes, nous définissons les propriétés de notre modèle de réseau de réacteurs chimiques idéaux.

Dans un premier temps, nous devons choisir la qualité des réacteurs chargés de représenter les diverses formes de l'écoulement (quasi-unidirectionnelle ou zone de recirculation). Le découpage basé sur les traceurs fluide a et Tr nous conduit à préférer un ensemble de réacteurs 0D (en série ou non) à un unique réacteur 1D pour capturer les phénomènes de diffusion transverse. De plus, nous avons montré que du point de vue de la compétition "convection - cinétique chimique", il est possible de représenter un PFR avec une série de PSR .

Notre première conclusion est *l'emploi unique de réacteurs 0D (PSR ou PaSR)* dans le réseau de réacteurs.

Dans les chambres de combustion automobiles, modéliser le mélange à petites échelles entre le combustible et l'air est essentiel au détail des délais d'allumage. Le choix d'un modèle de $PaSR$ est donc justifié. Cette nécessité provient en partie de la violente injection du combustible qui modifie fortement l'écoulement quasi-isochore. Pour la chambre de combustion quasi-isobare d'une TAC, l'injection du combustible est plus pondérée et le mélange combustible-air s'effectue à petites échelles mais également par le biais de grandes structures tourbillonnaires (ex : swirl). Le choix d'un $PaSR$ n'est plus alors si légitime. De plus, les temps de calcul liés à la résolution de l'équation pour $P(g)$ (méthode Monte-Carlo) dans un seul $PaSR$ sont en désaccord avec le temps de réponse rapide demandé à l'outil de prédiction des NOx sur site en centrale.

Notre seconde conclusion est donc *l'utilisation exclusive de PSR* dans notre réseau de réacteurs chimiques.

Nous justifions ce choix d'une modélisation uniquement basée sur des PSR en soulignant qu'un ensemble d'entités simples peuvent néanmoins représenter des phénomènes complexes par un agencement pertinent (réseau). L'approche "volumes finis" qui discrétise un domaine fluide en simples mailles en est le meilleur exemple. Nous nous reposons donc la description de l'écoulement par notre découpage (chimique et physique) et notre calcul des flux convectifs et diffusifs échangés entre réacteurs.

Ainsi, notre découpage sur l'âge fluide a permet de générer des PSR en série aptes à représenter la diffusion transverse. Ces flux à grandes échelles permettent toutefois de mélanger le combustible et l'air (substitution du $PaSR$ à moindre coût). En travaillant sur la définition des flux diffusifs (matrice Fd_{ij}), il est même possible de modéliser la diffusion de chaleur vers l'amont comme c'est le cas dans une flamme prémélangée calculée par un PFR .

En effet, sous l'hypothèse d'un nombre de Lewis unitaire, on assume que les flux de masse transportent les espèces et la chaleur de la même manière.

Pour expliciter la définition des flux diffusifs Fd_{ij} en vue de représenter la diffusion du combustible ou de la chaleur, nous rappelons sa définition (équation 4.78) avec une grandeur quelconque g :

$$Fd_{ij} \approx \sum_{l=1}^{N_{fac,ij}} S_l \left(\bar{\rho} D_t \frac{1}{\Delta x'_\alpha} n_\alpha (\tilde{g}'_i - \tilde{g}'_j) \right)_l / |g_{m,i} - g_{m,j}|$$

Dans le modèle de combustion *LWP* du calcul CFD, la fraction de mélange z représente le mélange combustible-air et la fraction massique de combustible Y_f est reliée à l'avancement global de la réaction chimique qui est exothermique. La définition précédente de Fd_{ij} calcule en réalité un flux de masse à partir de flux de diffusion scalaire pour g . Dès lors, un gradient de z est associé à une diffusion combustible-air et un gradient de Y_f à une diffusion de chaleur. En effet, la fraction massique de combustible Y_f restante est significative de l'avancement de la réaction globale (équation 4.2). La libération de chaleur est pilotée par cet avancement cinétique et par conséquent, un gradient de Y_f équivaut à un gradient d'avancement cinétique et un gradient de température.

Par conséquent, pour chaque interface Γ_{ij} entre 2 réacteurs i et j , nous évaluons numériquement la définition de Fd_{ij} en calculant successivement le flux diffusif avec $g = z$ et $g = Y_f$. Nous assumons ensuite le choix suivant : parmi ces 2 définitions, nous sélectionnons l'expression qui fournit le *plus grand flux diffusif* Fd_{ij} . Ainsi, si le flux de chaleur est prédominant, le Fd_{ij} calculé avec $g = Y_f$ sera choisi et l'on optera pour $g = z$ si la diffusion "combustible-air" prévaut.

En considérant le plus grand flux diffusif Fd_{ij} pour chaque interface Γ_{ij} , notre réseau de réacteurs devient légèrement plus diffusif que ne l'est l'écoulement CFD initial. Il convient tout de même de relativiser cette remarque en soulignant que l'hypothèse d'homogénéité parfaite (*PSR*) induit une diffusion spatiale dont l'effet est bien plus visible.

Nous rappelons que l'objectif de la modélisation par réseau de réacteurs est de simplifier l'écoulement pour limiter les efforts de calcul à la résolution de la cinétique détaillée, seule capable de prédire l'évolution précise des espèces minoritaires telles que le *NO*.

Nous avons ainsi opté pour une modélisation en réseau de réacteurs chimiques idéaux uniquement constituée de *PSR* dont le coût de calcul est peu onéreux. Dans les publications appliquant cette même modélisation (Ehrhardt et al., 1998 ; Falcitelli et al., 2002c ; Frassoldati et al., 2005 ; Mancini et al., 2007a), une température constante est imposée dans chaque réacteur. Cette hypothèse d'isothermicité des réacteurs leur est permise par l'emploi dans le modèle CFD d'une cinétique contenant au moins 2 réactions pour représenter l'oxydation de l'hydrocarbure C_nH_m et celle du *CO* en CO_2 .

En raison de l'unique réaction globale (équation 4.2) du modèle *LWP*, la température de notre écoulement est mal calculée. On ne peut donc pas l'appliquer comme température de fonctionnement de nos *PSR* pour espérer prédire avec précision la formation du *NO* qui en dépend de manière exponentielle.

En conséquence, nous utilisons des *réacteurs non isothermes* dans notre réseau et nous recalculons la composition complète de chaque *PSR* à savoir la fraction massique Y_k de chaque espèce χ_k et la température T . Dès lors, le système d'équations que nous considérons pour chaque *PSR* regroupe l'évolution de la masse, de l'enthalpie totale H et de la fraction massique Y_k de chaque espèce.

L'introduction de chaque réacteur dans le réseau nous conduit à reformuler les équations de conservation du *PSR* en considérant pour chacun N_{ent} entrées (indice e) associées à ses N_{ent} réacteurs voisins. En s'appuyant également sur l'équation fondamentale intégrée, on écrit ces équations *en instationnaire* :

$$Q_s = Q_e - V \frac{d\rho}{dt} \quad \text{avec} \quad Q_e = \sum_{p=1}^{N_{ent}} Q_{e,p} \quad (5.17)$$

$$\rho V \frac{dH}{dt} = \sum_{p=1}^{N_{ent}} (Q_{e,p} H_{e,p}) - Q_e \cdot H \quad (5.18)$$

$$\rho V \frac{dY_k}{dt} = \sum_{p=1}^{N_{ent}} Q_{e,p} Y_{k,p}^e - Q_e \cdot Y_k + V M_k \dot{\omega}_k \quad (5.19)$$

En considérant le débit massique d'entrée Q_e comme la somme des débits massiques entrants, le temps de séjour moyen (d'une particule fluide) de chaque *PSR* est donné par : $\tau = \rho V / Q_e$

Par cohérence avec les hypothèses du calcul CFD (modèle LWP), nous supposons l'*écoulement adiabatique*. Ainsi, nous ne considérons ni le rayonnement ni les pertes thermiques ($Q = 0$). L'enthalpie massique totale H devient une grandeur conservative.

Avec un logiciel de modélisation des systèmes dynamiques (dépendance temporelle) nommé Dymola (langage Modélica), nous avons simulé au début de la thèse des petits réseaux de réacteurs (moins de 50 éléments). Nous avons mis en évidence la nécessité de découpler l'écoulement et la résolution de la composition chimique. En effet, l'équation 5.17 impose de recalculer le débit de sortie Q_s à partir de la variation de masse volumique $d\rho/dt$ qui évolue avec la composition (T, Y_k) par la loi de gaz parfaits. Les débits changeant ainsi, les temps de séjour varient en conséquence et d'interminables itérations sont requises pour respecter toutes les équations du système précédent.

Dès lors, la formulation finale de nos réseaux de réacteurs est *stationnaire* :

$$Q_s = Q_e \quad (5.20)$$

$$H = \frac{1}{Q_e} \sum_{p=1}^{N_{ent}} (Q_{e,p} H_{e,p}) \quad (5.21)$$

$$Y_k = \frac{1}{Q_e} \left(\sum_{p=1}^{N_{ent}} Q_{e,p} Y_{k,p}^e + V M_k \dot{\omega}_k \right) \quad (5.22)$$

5.3 Résolution numérique du CRN

5.3.1 Résolution d'un PSR

Les modèles de réseaux de réacteurs que nous avons développés, en Fortran, s'articulent autour d'un programme proposé par Glarborg et al. (1986) et amélioré par Kee et al. (1989) pour le logiciel de cinétique chimique CHEMKIN II.

L'objectif de ce calcul de *PSR* à cinétique détaillée est l'obtention du terme source chimique $\dot{\omega}_k$ qui apparaît dans l'équation Y_k pour chaque espèce χ_k (notamment *NO* et *CO*). Pour une cinétique détaillée, nous rappelons que ce terme source est exprimé par :

$$\dot{\omega}_k(Y_k, T) = \sum_{i=1}^{N_r} \nu_{ik} q_i(T, Y_k) \quad (5.23)$$

Les vitesses de réactions $q_i(T, Y_k)$ sont déterminées à l'aide des bibliothèques CHEMKIN II (Kee et al., 1989). Le schéma cinétique utilisé dans cette thèse est le *GRI 3.0* du Gas Research Institute (<http://www.me.berkeley.edu/gri-mech/version30/text30.html>). Ce mécanisme réactionnel est décrit par 53 espèces et 325 réactions. Il contient suffisamment d'informations pour reproduire les principaux chemins de formation du *NO* (*NO* thermique par le mécanisme de Zeldovitch, *NO* Précoce par le mécanisme de Fenimore ou par la voie du *NNH*) ce qui justifie notre choix.

Le système d'équations algébriques non-linéaires (ou algébro-différentielles dans le cadre instationnaire) à résoudre pour le *PSR* nécessite de lui définir à la fois des conditions initiales et aux limites d'entrée.

En entrée du réacteur, nous imposons le débit masse \dot{m} , la composition Y_k^e pour chaque espèce χ_k (ou équivalent en fraction molaire X_k^e) et l'enthalpie massique d'entrée H_e comme l'illustre la figure 5.1.

En réalité, le programme utilise plutôt une température d'entrée T_e que nous recalculons à partir de la composition et de l'enthalpie massique d'entrée H_e par dichotomie. Nous rappelons en effet qu'au sein du réseau, nous transportons l'enthalpie massique H en raison de ses attrayantes propriétés (grandeur conservative).

L'enthalpie massique H , qui est définie dans les équations 5.2, 5.3 et 5.6, s'exprime en fonction de l'enthalpie massique h_k de chaque espèce. Cette enthalpie h_k possède une forte dépendance à la température T qui est traduite numériquement par une fonction polynômiale (Tables JANAF) :

$$\frac{h_k(T)}{RT} = \sum_{i=1}^5 \frac{a_i}{i} T^{i-1} + \frac{a_6}{T} \quad (5.24)$$

Cette relation "Enthalpie - Température" sert également à définir l'enthalpie initiale du *PSR*. En effet, on choisit la composition d'entrée Y_k^e comme composition initiale du *PSR*

et on impose une température élevée (typiquement 2000 K) pour initier le mélange réactif. La compétition convection - cinétique chimique induit 2 régimes de fonctionnement pour le *PSR*. La courbe d'hystérésis ($T = f(\tau)$) qui est présentée en figure 5.4 se divise en une branche chaude qui accueille les fortes températures susceptibles d'engendrer du *NO* et une branche froide.

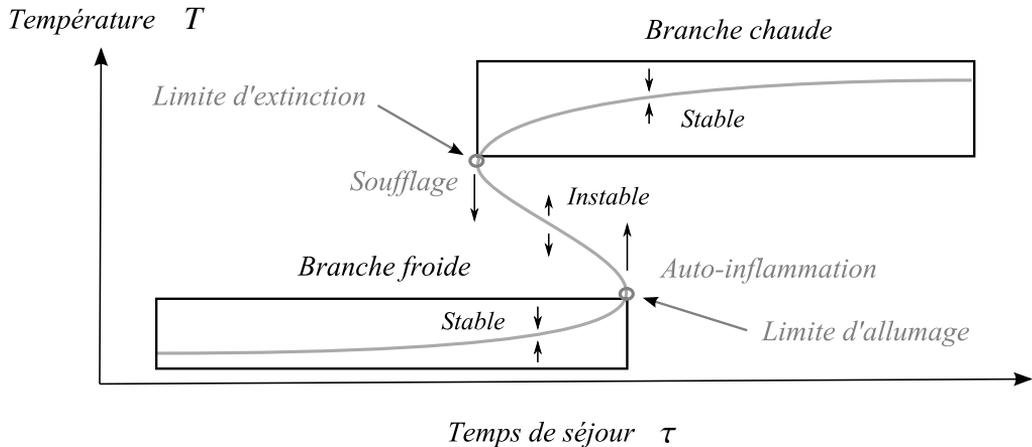


FIGURE 5.4 – Courbe hystérésis "Température - Temps de séjour" qui caractérise un réacteur parfaitement agité (*PSR*)

Pour que le *PSR* reste *allumé* et fonctionne sur la branche chaude, le temps de séjour τ doit être supérieur à la valeur limite imposée par le point d'extinction au-delà duquel le *PSR* s'éteint et bascule sur la branche froide. S'il s'y trouve déjà, sa température est basse (très proche de celle de l'entrée) et la cinétique est très lente. Toutefois, un très long temps de séjour permettra d'atteindre la limite d'allumage, d'initier le mélange et de basculer sur la branche chaude. On provoque bien ainsi un phénomène d'hystérésis.

La définition *stationnaire* de notre réseau de réacteurs nous incite à ne chercher que les solutions *stationnaires* ($d/dt = 0$) du système d'équations algébriques non-linéaires (masse, enthalpie et espèces) associé au *PSR*. Pour cela, on utilise un *algorithme de Newton modifié* susceptible d'amortir les non-linéarités induites par la raideur du schéma cinétique. Ces non-linéarités sont principalement dues à la dépendance exponentielle de la température que l'on trouve au sein des lois d'Arrhénius, elles-mêmes incluses dans les vitesses de réactions $q_i(T, Y_k)$.

L'objet de cet algorithme est de faire converger une suite de vecteurs ϕ contenant des solutions approchées en vue d'atteindre la véritable solution. Pour ce faire, on définit un vecteur de résidu F et on évalue sa valeur pour chaque vecteur ϕ en sachant qu'il prend une valeur nulle pour la solution exacte, soit :

$$F(\phi) = 0 \quad (5.25)$$

Chaque vecteur ϕ contient les variables du système, soit dans notre cas :

$$\phi = (T, Y_1, \dots, Y_k, \dots, Y_{N_{exp}})^T \quad (5.26)$$

En proposant une solution initiale $\phi^{(0)}$, l'algorithme génère une suite $\{\phi^{(n)}\}$ pour converger vers la solution du système d'équations non linéaires $F(\phi) = 0$. La formulation première de cet algorithme est :

$$\phi^{(n+1)} = \phi^{(n)} - \left(\frac{\partial F}{\partial \phi} \right)_{\phi^{(n)}}^{-1} F(\phi^{(n)}) \quad (5.27)$$

Toutefois, évaluer la matrice jacobienne $\partial F / \partial \phi$ est coûteux en temps et la convergence requiert alors une estimation pertinente de la solution initiale $\phi^{(0)}$. Dans la nouvelle formulation, on remplace la jacobienne par sa valeur à l'itération précédente soit :

$$J^{(n)} = J^{(n-1)} = \left(\frac{\partial F}{\partial \phi} \right)_{\phi^{(n-1)}} \quad (5.28)$$

De surcroît, on emploie un paramètre d'amortissement $\lambda^{(n)}$ pour accélérer le calcul de $\phi^{(n+1)}$ connaissant $\phi^{(n)}$ en écrivant l'algorithme sous la forme :

$$\phi^{(n+1)} = \phi^{(n)} - \lambda^{(n)} (J^{(n)})^{-1} F(\phi^{(n)}) \quad (5.29)$$

Il n'est pas nécessaire de calculer l'inverse de la jacobienne pour résoudre le système linéaire en introduisant un vecteur $\Delta\phi^{(n)}$ de correction non-amorti tel que :

$$J^{(n)} \Delta\phi^{(n)} = F(\phi^{(n)}) \quad (5.30)$$

Le choix du paramètre $\lambda^{(n)}$ est imposé par une condition d'amortissement qui évalue la solution $\phi^{(n+2)}$ pour valider le choix de la solution $\phi^{(n+1)}$. Cette condition d'amortissement impose une diminution en amplitude du pas d'avancement qui se traduit par :

$$|(J^{(n)})^{-1} F(\phi^{(n+1)})| < |(J^{(n)})^{-1} F(\phi^{(n)})| \quad (5.31)$$

Cette condition restreint la solution $\phi^{(n+1)}$ à rester dans la région où la solution exacte doit se trouver. Si la solution $\phi^{(n+1)}$ échoue, on retente l'étape avec $\lambda^{(n)}/2$ en sachant que l'on a toujours $0 < \lambda^{(n)} \leq 1$ ou alors on propose une nouvelle jacobienne.

Les itérations de l'algorithme se poursuivent jusqu'à ce que la norme du vecteur de correction non-amorti $\Delta\phi^{(n)}$ soit inférieure à la tolérance (absolue A et relative R) imposée par l'utilisateur. La convergence est ainsi atteinte lorsque :

$$|\Delta\phi^{(n)}| \leq \max(A, R \times |\phi|) \quad (5.32)$$

Dans le cas extrême où la convergence n'aurait pas lieu malgré les itérations réalisées en diminuant le paramètre d'amortissement $\lambda^{(n)}$ ou en proposant une nouvelle jacobienne $J^{(n)}$, l'algorithme utilise une résolution temporelle. Ainsi, les équations instationnaires sont alors résolues en prenant de très petits pas de temps afin de garantir la convergence en s'écartant très peu de la solution précédente. Dans cette méthode robuste mais lente, les dérivées temporelles sont approchées par une méthode d'Euler rétrograde :

$$\frac{d\phi_k}{dt} \approx \frac{\phi_k^{n+1} - \phi_k^n}{\delta t} \quad (5.33)$$

Dès lors, l'algorithme de Newton peut être relancé avec la solution issue de cette intégration temporelle et cette procédure sera répétée jusqu'à convergence. A la suite de cet algorithme, un échec nécessiterait de diminuer le pas de temps δt ou de proposer une autre solution initiale $\phi^{(0)}$ plus pertinente ou encore de réduire la précision imposée par le biais des tolérances absolues A et relatives R .

5.3.2 Résolution du réseau complet (CRN)

A partir des équations de conservation stationnaires pour un PSR à N_{ent} entrées, on écrit le système d'équations associé au réseau complet (Nb_{reac} réacteurs) avec une notation introduisant les flux de masse convectifs Fc_{ij} et diffusifs Fd_{ij} :

$$Q_{s,i} = Q_{e,i} \quad (5.34)$$

$$H_i = \frac{1}{Q_{e,i}} \left(Fcl_i H_i^{cl} + \sum_{j=1}^{Nb_{reac}} (Fc_{ji} + Fd_{ji}) H_j \right) \quad (5.35)$$

$$Y_{k,i} = \frac{1}{Q_{e,i}} \left(Fcl_i Y_{k,i}^{cl} + \sum_{j=1}^{Nb_{reac}} (Fc_{ji} + Fd_{ji}) Y_{k,j} + V_i M_{k,i} \dot{\omega}_{k,i} \right) \quad (5.36)$$

En effet, les débits entrants $Q_{e,p}$ pour chaque entrée p du réacteur i ne sont autres que les *flux convectifs et diffusifs* provenant des autres réacteurs j ou des conditions aux limites. Il est à noter qu'aux limites du domaine, on ne considère que les flux convectifs Fcl_j .

Les valeurs aux limites H_i^{cl} et $Y_{k,i}^{cl}$ sont calculées par une moyenne surfacique (surface S_{ij}^b) des grandeurs H_{ij}^b et $Y_{k,ij}^b$ sur les $N_{b,i}$ faces de bord du calcul CFD qui débitent dans le réacteur i :

$$H_i^{cl} = \frac{\sum_j S_{ij}^b H_{ij}^b}{\sum_j S_{ij}^b} \quad et \quad Y_{k,i}^{cl} = \frac{\sum_j S_{ij}^b Y_{k,ij}^b}{\sum_j S_{ij}^b} \quad (5.37)$$

Les études réalisées en début de thèse avec le logiciel Dymola nous ont démontré qu'une méthode matricielle, résolvant ensemble tous les éléments du réseau, était inappropriée (temps de calcul de 12 h pour des réseaux de seulement 50 réacteurs).

Dès lors, une *méthode de résolution itérative* est développée en Fortran pour résoudre notre réseau de Nb_{reac} réacteurs. Les réacteurs i sont résolus un à un pour une itération n donnée. Pour ne pas dépendre de l'ordre dans lequel la séquence de calcul des PSR est réalisée, la remise à jour des grandeurs ϕ_k^n (fractions massiques Y_k de l'espèce χ_k , température T) est effectuée une fois que tous les PSR ont été traités.

Le *critère de convergence* que nous imposons est plus sévère que celui présenté dans l'équation 3.12. Ce dernier n'examine qu'une moyenne des écarts de fraction massique Y_k calculée sur tous les éléments du réseau d'une itération à l'autre. Dans notre cas, le réseau est convergé pour *une variation maximale de température inférieure à 1% dans tous les réacteurs d'une itération à l'autre*. Ce critère est plus contraignant car quelques réacteurs limitants, souvent situés dans une zone de recirculation, peuvent empêcher la convergence alors que le reste du réseau a atteint un état d'équilibre.

En effet, malgré l'emploi des flux de masse constants, un équilibrage du réseau est nécessaire en raison des changements de composition et d'enthalpie de chaque PSR. Pour des réseaux de plus de 100 réacteurs, le respect de ce critère demande plusieurs dizaines d'itérations (non-linéarité de la température T de ces réacteurs *non-isothermes* vis-à-vis de la composition). Pour limiter le temps d'équilibrage du réseau et le nombre d'itérations nécessaire, nous initialisons chaque *PSR* avec la moyenne massique issue du calcul CFD en espérant que l'écart de température avec le calcul CRN soit faible.

Comme cela est proposé dans l'équation 3.10 par Falcitelli et al. (2002), nous calculons la température initiale de chaque *PSR* à partir d'un bilan enthalpique sur les cellules qui le composent. Le vecteur de composition initial (Y_k) est généré en considérant la fraction massique de combustible Y_f comme variable d'avancement de la réaction globale (équation 4.2). Avec \tilde{z} et \tilde{Y}_f , on détermine les fractions massiques moyennes pour l'oxydant \tilde{Y}_{ox} et les produits \tilde{Y}_{pr} . Comme l'oxydant est composé de 0,21 O_2 et de 0,79 N_2 en volume et que les produits sont formés de CO_2 et de H_2O en proportions stoechiométriques, on dispose d'un vecteur multi-espèces Y_k qui décrit l'état d'avancement initial du réacteur.

Malgré cet effort d'initialisation, les non-linéarités du système peuvent tout de même engendrer de violentes oscillations de température (ex : allumage, extinction) entre deux itérations successives. Pour les atténuer, nous introduisons *un coefficient de relaxation du nouvel état calculé* noté α . Il pondère la part de l'ancien calcul dans le nouveau résultat. Intervenant lors de la remise à jour des grandeurs du PSR, ce coefficient α restreint les variations des grandeurs ϕ_k^{n+1} . Ces grandeurs sont alors obtenues par une pondération entre leur valeur à la fin de l'itération précédente ϕ_k^n et leur valeur après le nouveau calcul de PSR $\phi_k^{n+1,*}$ ce qui donne :

$$\phi_k^{n+1} = \alpha \phi_k^n + (1 - \alpha) \phi_k^{n+1,*} \quad (5.38)$$

Cette méthode de relaxation est efficace mais nécessite davantage d'itérations.

Chapitre 6

Réseau de réacteurs turbulents

6.1 Introduction des fluctuations turbulentes

6.1.1 Problématique

Au delà de la modélisation par réseaux de réacteurs chimiques idéaux, les objectifs de la thèse visent à prendre en compte les fluctuations turbulentes.

En effet, une modélisation à base de *PSR* ne considère que l'état moyen g_m dans le réacteur puisque la distribution des grandeurs g en son sein est : $P(g) = \delta(g - g_m)$

Cette représentation de l'écoulement turbulent s'avère insuffisante si les fluctuations turbulentes sont fortes. Du point de vue macroscopique, ces fluctuations turbulentes sont assimilées à une diffusivité supplémentaire améliorant le mélange ce qui justifierait d'autant mieux l'emploi de *PSR*. Toutefois, elles représentent physiquement les différents états instantanés qui existent aux petites échelles. Ces états turbulents sont des informations de "*sous-maille*" puisqu'en RANS, la taille caractéristique des cellules (de l'ordre du *cm*) est bien souvent supérieure à celle des phénomènes représentés. En effet, l'épaisseur caractéristique d'une flamme prémélangée non épaissie, de l'ordre du *mm*, est 10 fois moindre. Ce constat met en exergue l'importance de l'information de sous-maille dans laquelle est "cachée" toute la physique pour une approche RANS.

Grâce aux moments statistiques résolus en chaque point du maillage CFD, on accède tout de même à une partie de cette information. Ainsi, la variance $\overline{\phi_k''^2}$ d'une grandeur ϕ_k nous informe sur la dispersion des valeurs statistiques autour de la moyenne $\overline{\phi_k}$. Dans les réacteurs idéaux qui n'utilisent que l'information moyenne, on se prive donc d'une grande partie de la physique résolue.

Pour souligner la différence entre "état moyen" et "états turbulents instantanés", nous prenons l'exemple d'un domaine \mathcal{D} dans lequel siège une flamme partiellement prémélangée. Cette flamme est entretenue par un écoulement de gaz frais comportant un gradient de richesse ϕ .

Le domaine \mathcal{D} peut être assimilé à une cellule du maillage CFD ou à une zone découpée dans l'écoulement (futur réacteur). Au cours du temps, les mouvements intermittents de la flamme font en sorte que le domaine \mathcal{D} soit majoritairement rempli de gaz frais ou brûlés, riches ou pauvres. Après intégration de ces fluctuations sur une durée suffisante à l'obtention de statistiques, on connaît la distribution des grandeurs dans le volume et on en calcule les premiers moments. On visualise alors des états discrets différents de l'état moyen en terme de fraction de mélange z et d'avancement cinétique lié à Y_f .

Par exemple, une flamme partiellement prémélangée au sein de laquelle existent des gradient de richesse et d'avancement peut être représentée par des états discrets riche et pauvre plus ou moins brûlés. L'état moyen induit lui sera localisé autour de la stoechiométrie suivant la pondération associée à chaque état. Pour illustrer cette notion, nous utilisons le modèle LWP et ses 4 distributions de Dirac, états statistiques riches ou pauvres, plus ou moins brûlés et distants de l'état moyen de maille comme la figure 6.1.

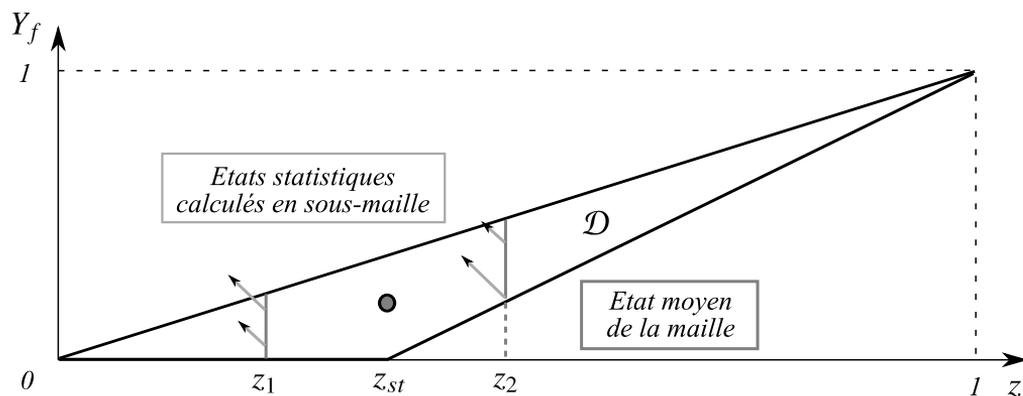


FIGURE 6.1 – Différence entre l'état moyen de la maille et les états statistiques discrets de sous-maille pour une flamme partiellement prémélangée

Comme nous le savons, le taux de production de NO (ou de CO) dépend fortement de la richesse ϕ liée à z et de la température liée à l'avancement cinétique c issue de Y_f . La non-linéarité de $\dot{\omega}_{NO}$ avec z et c produit de larges écarts entre le NO calculé sur l'état moyen (calcul PSR) et celui généré par la moyenne des différents états turbulents. Nous devons donc modéliser au mieux ces états turbulents pour prédire avec précision les émissions de NO_x .

La problématique est donc d'introduire ces fluctuations turbulentes dans notre modèle de réseau de réacteurs sans recourir au $PaSR$ trop coûteux en temps de calcul.

6.1.2 Solutions proposées

Une première solution propose de se rapprocher d'un *PaSR* en conservant la même structure que le modèle du *PSR*. On introduit pour cela un simple temps de mélange τ_{mel} (typiquement k/ε) avant lequel la réaction chimique ne peut s'effectuer puisque l'allumage des gaz frais nécessite un mélange avec les gaz brûlés.

Le modèle de Vulis (1961) est issu de cette approche et suggère de calculer le terme source $\dot{\omega}_k$ à partir d'une composition virtuelle Y_k^* intermédiaire entre l'état d'entrée Y_k^e et l'état moyen du réacteur Y_k . En s'appuyant sur les équations stationnaires du *PSR*, on écrit 2 relations qui introduisent 2 temps caractéristiques, le temps de séjour τ_{res} (équivalent au temps de séjour moyen $\tau = \rho V/\dot{m}$) et le temps de mélange τ_{mel} :

$$\frac{Y_k - Y_k^e}{\tau_{res}} = \frac{M_k \dot{\omega}_k(Y_k^*, T)}{\rho} \quad \text{et} \quad \frac{Y_k^* - Y_k}{\tau_{mel}} = \frac{M_k \dot{\omega}_k(Y_k^*, T)}{\rho} \quad (6.1)$$

La réaction chimique induite par cette composition fictive est le résultat de 2 contraintes physiques : la convection des grandeurs d'entrée vers la sortie en un temps τ_{res} et le mélange de ces grandeurs fictives avec l'état moyen du réacteur en un temps τ_{mel} .

La combinaison ces 2 équations fournit une relation dans laquelle intervient le rapport des 2 temps caractéristiques :

$$Y_k^* = Y_k (1 + \alpha) - \alpha Y_k^e \quad \text{avec} \quad \alpha = \frac{\tau_{mel}}{\tau_{res}} \quad (6.2)$$

Les efforts de calcul seront alors reportés sur la détermination de cette composition virtuelle Y_k^* à l'aide de la relation :

$$Y_k^* = Y_k^e + \tau_{mel} \frac{M_k \dot{\omega}_k(Y_k^*, T)}{\rho} \quad (6.3)$$

Pour résoudre cette équation non-linéaire, on utilise une nouvelle fois l'algorithme de Newton modifié puisque la forme de l'équation 6.3 est très proche de celle du *PSR*. Les résultats de ce modèle présentent les mêmes limites d'extinction que le modèle IEM pour des *temps de calcul 100 fois moindre* (Dumand, 2005). Cette approche induirait néanmoins un conséquent surplus de calcul par rapport à notre modélisation par CRN.

Une autre approche, proposée par Bass et Barat (2003), suggère également un modèle de *PSR* amélioré en substitution du modèle classique de *PaSR*. Selon eux, le coût de calcul des méthodes Monte Carlo provient de leur inefficacité à résoudre la même forme d'équation différentielle (avec les mêmes conditions aux limites) pour différents points (tir de particules). Dès lors, ils envisagent d'intégrer l'équation de transport d'une particule à l'échelle du réacteur.

Pour cela, ils assument que *les particules de même âge possèdent la même composition* Y_k dans le réacteur. Ainsi, ils ne font dépendre la composition Y_k que du temps passé dans le réacteur et donc de sa distribution de temps de séjour $E(t)$. On écrit :

$$\frac{dY_k}{dt} = -C_\phi \omega (Y_k - Y_{k,m}) + \frac{M_k \dot{\omega}}{\rho} \quad (6.4)$$

En considérant, $Y_{k,m}$ comme la moyenne de Y_k sur le réacteur, le premier terme du membre de droite traite le micromélange. Equivalente au modèle IEM de retour à la moyenne, son expression fait intervenir une constante C_ϕ et une fréquence de mélange ω souvent égale à ε/k .

L'état moyen $Y_{k,m}$ est alors calculé par intégration sur l'âge interne des particules dont la distribution est égale à celle des temps de séjour $E(t)$ en raison de l'hypothèse de parfaite homogénéité macroscopique. On écrit donc :

$$Y_{k,m} = \int_0^{t'} E(t) Y_k(t) dt \quad \text{avec} \quad E(t) = \frac{1}{\tau} e^{-t/\tau} \quad (6.5)$$

La valeur de t' vaut $13,8\tau$ pour une erreur sur la masse du réacteur de 10^{-6} . Avec cette approche, on obtient encore des temps de calculs *100 moindre que pour la résolution d'un PaSR doté d'un modèle IEM*. Ce gain de temps est obtenu à l'aide d'une méthode itérative et non plus de l'algorithme de Newton modifié. Au cours des itérations sur les divers temps t , on remplace progressivement $Y_{k,m}$ par sa dernière valeur calculée et en résolvant préférentiellement les N_{esp} équations 6.5 sous la forme différentielle suivante :

$$\frac{dY_{k,m}}{dt} = E(t) Y_k(t) \quad (6.6)$$

Comme précédemment, nous savons que l'ajout d'équations à résoudre alourdira le temps de calcul vis-à-vis de notre modélisation par CRN.

Dans un souci d'exhaustivité de la recherche des méthodes applicables à notre étude, nous avons encore envisagé une approche directement issue de la modélisation par réseau de réacteurs chimiques idéaux (CRN). L'idée est de transporter non plus seulement les grandeurs moyennes g_m mais également les variances g_v entre réacteurs.

Pour se substituer au PaSR, cette méthode doit inclure un terme source de dissipation de la variance g_v dans chaque réacteur. En effet, contrairement à l'évolution des grandeurs moyennes g_m qui peuvent être juste convectées et diffusées entre réacteurs (avec termes sources réactifs éventuels), l'évolution de la variance g_v doit converger naturellement vers 0 en absence de termes excitateurs (ex : réaction chimique). La dissipation χ qui représente le mélange aux petites échelles doit alors être modélisée. Cependant, même le simple modèle d'échange à la moyenne (IEM) présente déjà des temps de calculs 100 fois plus importants que les modèles de Vulis ou de Bass et Barat.

6.1.3 Approche choisie

Au final, l'approche que nous avons engagée se préoccupe en premier lieu de représenter la distribution des états turbulents dans chaque réacteur et dans un second temps de tenir compte du micromélange qui agit sur son évolution.

Comme notre découpage physique s'attache à représenter au mieux la topologie de l'écoulement, nous pouvons modéliser cette distribution et son évolution en utilisant au maximum les informations fournies par le calcul CFD. En effet, le modèle *LWP* inclut déjà un modèle de micromélange dans les équations de transport de $\widetilde{Y_f''^2}$ et de $\widetilde{z''^2}$. Les termes de dissipation χ sont linéairement reliés à la variance à dissiper par le temps de mélange k/ε (inverse de la fréquence ω du modèle IEM). Ces termes de dissipation ont par ailleurs été améliorés (Mura et al., 2007) et implantés numériquement dans le modèle *LWP* pendant la thèse EDF-CNRS de Robin (2007).

Dans chaque cellule du maillage CFD, on résout les premiers moments de Y_f et de z dont l'évolution est soumise au micromélange. Le découpage induit une coalescence de cellules qui nous fournit des moyennes g_m et variances g_v associées à l'évolution du mélange sur l'ensemble des réacteurs.

L'expression de ces moments sur l'ensemble du réacteur nous permet de construire une distribution présumée $P(z, Y_f)$ et de définir des états turbulents discrets en adoptant la méthodologie du modèle *LWP*. Avec la position $(z, Y_f)_j$ et l'amplitude (α_j) de N_D états discrets j dans un réacteur, nous pouvons exprimer le terme source moyen $\dot{\omega}_k^m$ de formation d'une espèce χ_k :

$$\dot{\omega}_k^m = \int_{\mathcal{D}} \dot{\omega}_k(z, Y_f) P(z, Y_f) dz dY_f = \sum_{j=1}^{N_D} \alpha_j \dot{\omega}_k(z_j, Y_{f,j}) \quad (6.7)$$

Nous proposons ensuite de tabuler l'évolution des termes sources locaux $\dot{\omega}_k$ en fonction de z et Y_f . Deux tabulations de $\dot{\omega}_{NO}$ et $\dot{\omega}_{CO}$ sont alors créées à l'aide d'une cinétique détaillée. En pondérant ces termes sources par la *pdf présumée* $P(z, Y_f)$, on dispose d'un terme source moyen $\dot{\omega}_k^m$ calculé à partir des états turbulents de chaque réacteur.

L'étape suivante est la résolution de tous les réacteurs au sein du réseau. En conservant les flux de masse échangés (un *PaSR* équivaut à un *PSR* au niveau macroscopique), on résout l'équation de transport de Y_k pour le $i^{\text{ème}}$ *PSR* en utilisant ce terme source moyen "turbulent" $\dot{\omega}_k^m$ (en $\text{mol.cm}^{-3}.\text{s}^{-1}$) :

$$Y_{k,i} = \frac{1}{Q_{e,i}} \left(F_{cl,i} Y_{k,i}^{cl} + \sum_{j=1}^{N_{breac}} (F_{c_{ji}} + F_{d_{ji}}) Y_{k,j} + V_i M_{k,i} \dot{\omega}_{k,i}^m \right) \quad (6.8)$$

Le terme source $\dot{\omega}_{k,i}^m$, moyen de chaque réacteur est fonction de la fraction massique $Y_{k,i}$ de l'espèce χ_k créée. Il dépend donc des échanges de masse entre réacteurs et du temps de séjour qui est proportionnel à $V_i/Q_{e,i}$.

6.2 Tabulation de la cinétique pour NO et CO

6.2.1 Méthodes de tabulations existantes

La philosophie de la cinétique tabulée a été présentée dans la première partie. Elle consiste à décrire l'évolution de grandeurs telles que le terme source chimique local $\dot{\omega}_k$ d'une espèce χ_k (ex : NO , CO) en fonction de variables clés dont elle dépend. En combustion turbulente, une influence prépondérante de 2 variables est démontrée :

- *La fraction de mélange z* : Elle représente le mélange des atomes issus du combustible et de l'oxydant. Son influence sur la cinétique chimique provient de sa relation linéaire avec la richesse ϕ du mélange réactif.
- *La variable d'avancement cinétique c* : Elle représente l'avancée globale des réactions chimiques du mécanisme détaillé. Selon sa définition, elle peut être reliée à la température T , à la fraction massique Y_k des réactifs ou des produits. Etablissant l'écart à l'état final (équilibre chimique), son influence est évidente.

Plusieurs méthodes permettent de tabuler la cinétique chimique en fonction de z et c . La problématique est de trouver un moyen de faire évoluer la cinétique en fonction de ces 2 paramètres et de conserver les données ($\dot{\omega}_{NO}$, $\dot{\omega}_{CO}$) pour un nombre fini de points. La figure 6.2 illustre l'éventail des méthodes de tabulation existantes.

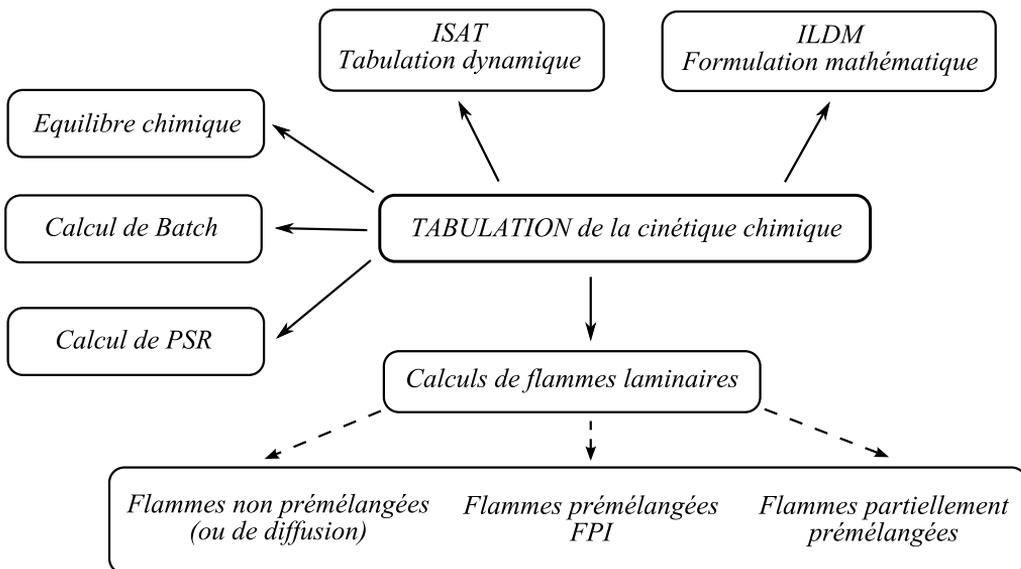


FIGURE 6.2 – Méthodes de tabulation de la cinétique chimique

Dans la première partie (sous partie 2.3.2), nous avons déjà présenté les méthodes *ISAT* et *ILD M*, situées dans la partie haute de la figure 6.2.

Pour rappel, la méthode *ISAT* propose une génération dynamique in-situ de la table, c'est à dire qu'elle sera créée pendant le calcul CFD et de manière optimale en fonction de la composition Y_k (ou z) et de la température T (ou c) dans chaque cellule. La méthode *ILDM* est issue d'une analyse mathématique poussée qui porte sur les disparités de temps caractéristiques associés au mécanisme détaillé. En effet, chaque valeur propre de la jacobienne (k_j , constante de vitesse de la réaction j) est proportionnelle à l'inverse du temps chimique associé à la réaction j . Après convergence sur l'*ILDM* (relaxation des modes rapides), on peut paramétrer la chimie à partir des modes lents.

L'équilibre chimique étant l'état d'avancement maximal ($c = 1$) du mélange réactif, cette tabulation ne permet pas de capturer l'évolution de Y_k , T ou $\dot{\omega}_k$ avec c . Toutefois, elle fournit en fonction de z la composition finale à $c = 1$ de tout mélange réactif initial (composition initiale : Y_k^i, T_i).

Le réacteur *Batch* est l'équivalent du *PSR* pour les réacteurs fermés. Comme aucun écoulement ne le traverse ($\dot{m} = 0$), le temps de séjour ($\tau = \rho V / \dot{m}$) est infini. Tout mélange réactif frais ($c = 0$) de richesse ϕ (ou de fraction de mélange z) évoluera avec le temps t vers l'équilibre chimique ($c = 1$). Pour diverses valeurs de z (entre 0 et 1), on peut balayer tout le spectre de c (entre 0 et 1) par le biais de l'évolution en temps t .

Le réacteur ouvert *PSR* modélise la compétition cinétique - convection caractérisée par le temps de séjour τ . Pour des mélanges de différentes richesses ϕ (ou z), en entrée et au sein du réacteur, on peut initialiser le réacteur sur la branche froide (voir figure 5.4) et augmenter progressivement le temps de séjour pour enflammer le mélange (c augmente). On peut aussi l'initialiser sur la branche chaude avec de grands temps de séjour τ ($c \rightarrow 1$) que l'on réduit progressivement jusqu'à atteindre l'extinction. Malgré de longs temps de séjour, les limites d'inflammabilité et l'instabilité de la zone d'hystérésis (figure 5.4) bornent la tabulation au domaine réactif en z et à l'étude de la branche servant d'initialisation en c .

Pour les flammes laminaires plissées, on distingue 3 types de tabulations comme le montre la figure 6.2.

La méthode *FPI* proposée par Gicquel (1999) calcule des *flammes laminaires prémélangées* libres pour différentes richesses ϕ (ou z). Ces flammes 1D à cinétique détaillée sont calculées à l'aide de *PFR*, réacteurs chimiques 1D présentés précédemment et illustrés en figure 5.2. En parcourant x le long de ces flammes propagatives 1D, on visualise les gaz frais ($c = 0$), leur allumage par diffusion thermique en amont du front de flamme ($0 < c < 1$), le front de flamme et les gaz brûlés ($c \rightarrow 1$). On balaye ainsi l'intervalle c sur toute son amplitude. En résolvant la diffusion des espèces et de la chaleur, cette tabulation, à base de *PFR*, présente une représentation physique plus complète que celle du *PSR*. Néanmoins, de même que le *PSR*, elle restreint la tabulation en z aux limites d'inflammabilité.

Les 2 autres tabulations de flammes laminaires utilisent une configuration à contre-courant où le jet d'air ($z = 0$) est envoyé contre l'écoulement d'un mélange réactif riche ($z < 1$) ou composé de combustible pur ($z = 1$).

La figure 6.3 illustre la configuration de flammes de diffusion ou partiellement prémélangées à contre-courant.

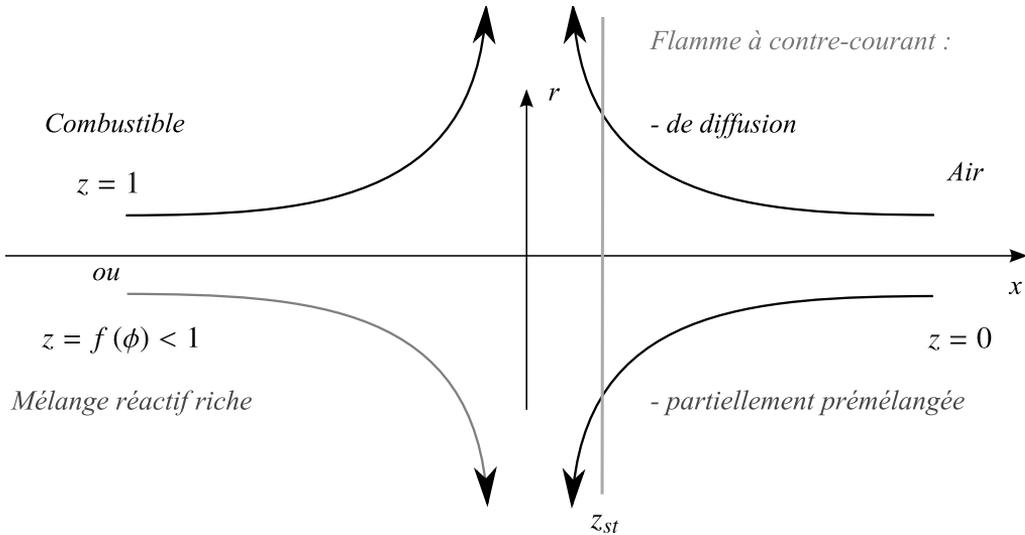


FIGURE 6.3 – *Flammes de diffusion ou partiellement prémélangée à contre-courant*

Pour un jet de combustible pur ($z = 1$), on forme une flamme de diffusion à contre-courant. Si on abaisse la richesse ϕ du mélange réactif ($z = f(\phi) < 1$), on forme une flamme partiellement prémélangée (Fiorina et al., 2005a). Il est également possible de générer une seconde flamme du côté riche (non représentée sur la figure 6.3).

Pour ce type de configuration, on utilise le caractère auto-semblable de l'écoulement en coordonnées cylindriques (x, r) et on obtient une description 1D du problème. Dès lors, on balaye les différents régimes de combustion ($0 < c < 1$) jusqu'à l'extinction en augmentant des débits injectés afin d'étirer la flamme à contre-courant. L'extinction arrive lorsque les particules de combustible ou d'air traversent la zone réactive en un temps trop court pour permettre leur allumage. Toutefois, en représentant l'étirement de la flamme par l'écoulement sur une très vaste variation de z et de c , cette tabulation semble la plus aboutie du point de vue de la représentation physique d'une flammelle étirée. Cet étirement est par ailleurs relié linéairement au taux de dissipation scalaire χ_z qui détruit les fluctuations scalaires de z .

Ces diverses tabulations modélisent différentes configurations physiques à cinétique détaillée et peuvent être couplées pour compenser d'éventuels défauts de représentation. Par exemple, les travaux de Fiorina et al. (2005a) ont mis en avant une lacune du modèle FPI dans la représentation des flammes de diffusion. En effet, la simple juxtaposition de calculs de flammes laminaires à différents z ne tient pas compte de la diffusion à travers les iso-valeurs de z . Ce phénomène de diffusion suivant z est pourtant prépondérant pour l'obtention de compositions (Y_k et T) correctes en riche. Le couplage de tabulation pour des flammes de diffusion à contre-courant avec la méthode FPI fut alors proposé.

6.2.2 Tabulation de l'équilibre chimique

Dans les modèles de cinétique tabulés que nous avons développés et que nous présenterons dans les prochaines sous-parties, l'état d'équilibre chimique est souvent choisi comme état initial. Il fournit en effet un vecteur de composition complet (Y_k, T) qui est représentatif de gaz chauds et propice à l'allumage d'un mélange réactif.

Nous rappelons que le gaz naturel est un mélange complexe d'espèces carbonées. Les travaux de thèse de Lepage (2000) au LCSR d'Orléans sur le mécanisme détaillé du gaz naturel en donnent une composition volumique qui négligent les inertes (N_2) et autres composés réactifs minoritaires (H_2, CO) (moins de 1 % en volume) : 89 % de CH_4 (méthane), 8.9 % de C_2H_6 (éthane) et 2.1 % de C_3H_8 (propane).

Ces espèces sont incluses dans le GRI 3.0, mécanisme détaillé du méthane que nous utilisons pour nos études. Nous décrivons notre gaz naturel avec cette même composition. A partir de l'équation 4.2, on écrit les réactions globales associés au CH_4 , au C_3H_8 et au gaz naturel dans le modèle LWP du calcul CFD :

- Pour la réaction globale $CH_4 - Air$, on a : $z_{st} = 0,055066$ et $s = 17, 16$
- Pour la réaction globale $C_3H_8 - Air$, on a : $z_{st} = 0,060241$ et $s = 15, 6$
- Pour la réaction globale $Gaz\ naturel - Air$, on a : $z_{st} = 0,0578$ et $s = 16, 3$

Le coefficient stoechiométrique massique $s = (1 - z_{st})/z_{st}$ permet de relier la richesse ϕ à la fraction de mélange z par la relation : $\phi = s(z/(1 - z))$.

Le programme STANJAN (Kee et al., 1989), autour duquel est générée la tabulation, cherche à minimiser la différence d'énergie libre standard (de Gibbs) entre les produits et les réactifs, notée $\Delta_r G^0$. En reprenant les notations de la première partie (chapitre 1, sous-partie 1.1.1 sur la cinétique chimique), on écrit pour une réaction i :

$$\Delta_r G^0 = -RT \ln(K_{e,i}) \quad \text{avec} \quad K_{e,i} = \frac{k_{i,f}}{k_{i,b}} \quad (6.9)$$

La constante d'équilibre $K_{e,i}$ de la réaction i est le rapport des constantes de réaction en sens direct (forward) et inverse (backward). On la relie à la constante d'équilibre $K_{p,i}$ exprimée en fonction des pressions partielles de chaque espèce χ_k par :

$$K_{e,i} = K_{p,i} \left(\frac{P_{atm}}{RT} \right)^{\sum_{k=1}^{N_{esp}} \nu_{ik}} \quad (6.10)$$

La constante d'équilibre $K_{p,i}$ est alors définie comme :

$$K_{p,i} = K_{e,i} e^{\left(-\frac{\Delta_r G_i^0}{RT} \right)} = K_{e,i} e^{\left(\frac{\Delta_r S_i^0}{RT} - \frac{\Delta_r H_i^0}{RT} \right)} \quad (6.11)$$

Les variations d'enthalpie $\Delta_r H_i^0$ et d'entropie $\Delta_r S_i^0$ sont calculées à partir des grandeurs associées pour chaque espèce χ_k .

On écrit donc les deux expressions suivantes :

$$\Delta_r S_i^0 = \sum_{k=1}^{N_{esp}} \nu_{ik} \frac{S_k^0}{R} \quad \text{et} \quad \Delta_r H_i^0 = \sum_{k=1}^{N_{esp}} \nu_{ik} \frac{H_k^0}{RT} \quad (6.12)$$

L'expression des H_k^0 et S_k^0 est issue des polynômes JANAF (cf. équation 5.24).

A l'aide de ce programme, on construit une tabulation de l'équilibre chimique qui inclut *10 000 points discrets* en z régulièrement répartis entre 0 et 1. Il faut donc fournir pour chaque z la composition initiale Y_k des gaz frais et leur température.

La température initiale pour les mélanges $CH_4 - Air$ ou $C_3H_8 - Air$ est de 300 K. La pression imposée est la pression atmosphérique : $P = P_{atm} = 1 \text{ bar}$. En accord avec les mesures effectuées sur notre cas d'étude industriel (chambre de combustion de TAC), la pression imposée pour le mélange *Gaz Naturel - Air* est de 15 bars. La température de l'air frais est préchauffée à 687 K et le combustible reste à 300 K. La température initiale est alors calculée à partir d'un bilan enthalpique entre une fraction massique $Y_f = z$ de combustible et une fraction massique $Y_{ox} = 1 - z$ d'oxydant (air) de la même manière que l'initialisation de notre réseau de réacteurs chimiques idéaux (*PSR*).

L'évolution selon z de la température d'équilibre chimique est présentée en figure 6.4 pour les 3 mélanges réactifs, $CH_4 - Air$, $C_3H_8 - Air$ et *Gaz naturel - Air*.

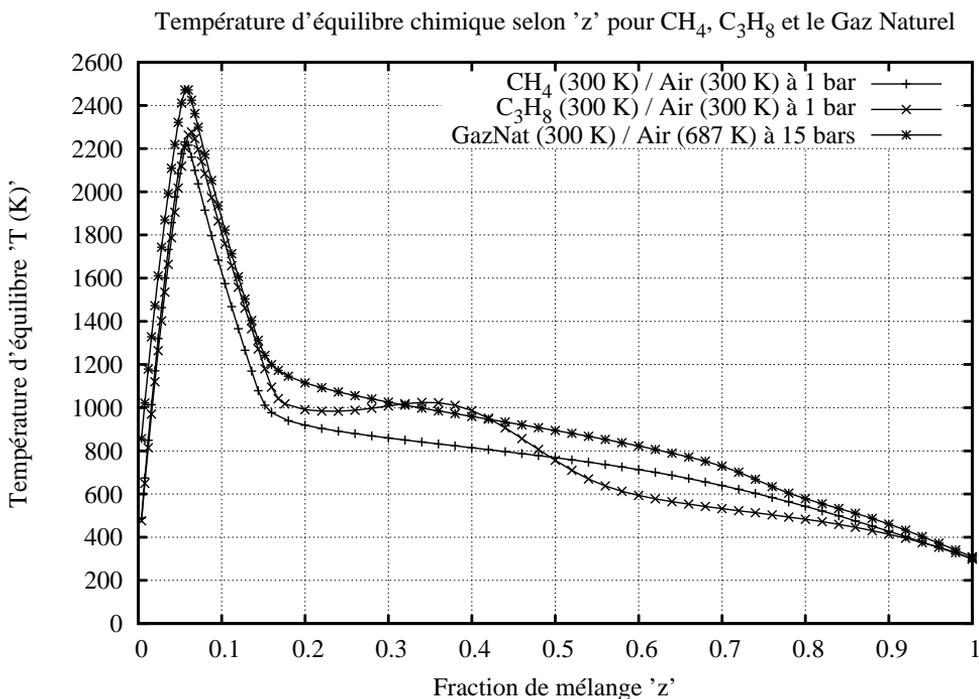


FIGURE 6.4 – Tabulation sur 10 000 points en z de la température d'équilibre chimique

Sur la figure 6.4, on remarque en premier lieu la position des maxima de température. La surchauffe de l'air à 687 K induit une enthalpie plus élevée pour le mélange *Gaz naturel* - *Air* et la pression de 15 bars contraire la dissociation du CO_2 conduisent à la plus haute valeur avoisinant les 2500 K. Pour le mélange CH_4 - *Air*, le maximum se situe autour des 2220 K et autour de 2250 K pour le mélange C_3H_8 - *Air*. Les positions en z de ces maxima se situe près de leur stoechiométrie, très légèrement coté riche.

On note également que la courbe présente un caractère quasi-linéaire du côté pauvre ($z < z_{st}$) mais pas du côté riche où la quasi-linéarité s'arrête à un z situé autour de 0,16 à 0,18 ($\phi \approx 3,5$). Sous l'hypothèse Burke et Schumann (1928) (espèces et température linéaires en z), une droite relierait le maximum de température au point extrême du côté riche ($z = 1$). Les dissociations, notamment celle du CO_2 en CO , induisent une température calculée en riche qui est alors inférieure à celle de la limite théorique ne supposant qu'une réaction unique.

Pour les 3 courbes, la rupture de pente près de la limite d'inflammabilité riche s'explique par la complexité des dissociations qui dégrade alors le combustible dans un manque d'oxygène. Les combinaisons possibles entre les différentes molécules sont fonction du nombre de carbone du combustible initial et sont mises en lumière par l'allure oscillante de la température d'équilibre pour le mélange C_3H_8 - *Air*. La prépondérance du méthane dans la composition du gaz naturel (89 % en volume) limite cet effet et impose son comportement du côté riche.

La figure 6.5 illustre la fraction massique de NO à l'équilibre en fonction de z pour les 3 mélanges réactifs, CH_4 - *Air*, C_3H_8 - *Air* et *Gaz naturel* - *Air*.

Etant donné l'état d'équilibre chimique, les températures atteintes sont maximales et le NO à l'équilibre provient quasi-intégralement du mécanisme de Zel'dovich (NO thermique). Ainsi, la position et l'amplitude des maxima de température imposent les extrema du NO . On atteint un peu plus de $6 \cdot 10^{-3}$ pour le Y_{NO} maximum avec un mélange *Gaz naturel* - *Air* et respectivement $3,4 \cdot 10^{-3}$ et $3,8 \cdot 10^{-3}$ pour les mélanges CH_4 - *Air* et C_3H_8 - *Air*. La présence nécessaire des atomes d'oxygène dans la formation du NO thermique porte les maxima de NO du côté pauvre autour d'une richesse $\phi \approx 0,8$ (z situé entre 0,046 et 0,052).

Pour cette même raison, le domaine de formation du NO à l'équilibre est très restreint et ne s'étale quasiment que sur la partie pauvre du domaine réactif de $z \approx 0,015$ à z_{st} (la figure 6.5 effectue un zoom sur $z \in [0, 0.1]$). L'allure globale des courbes est cette fois-ci équivalente pour les 3 mélanges réactifs.

La figure 6.6 illustre la fraction massique de CO à l'équilibre en fonction de z pour les 3 mélanges réactifs, CH_4 - *Air*, C_3H_8 - *Air* et *Gaz naturel* - *Air*.

Comme attendu, le CO est majoritairement formé en riche. Ses maxima sont localisés au niveau de la rupture de pente de la température d'équilibre, près de la limite d'inflammabilité où le régime de dégradation du combustible change et où prévalent les dissociations complexes fonctions du nombre de carbone.

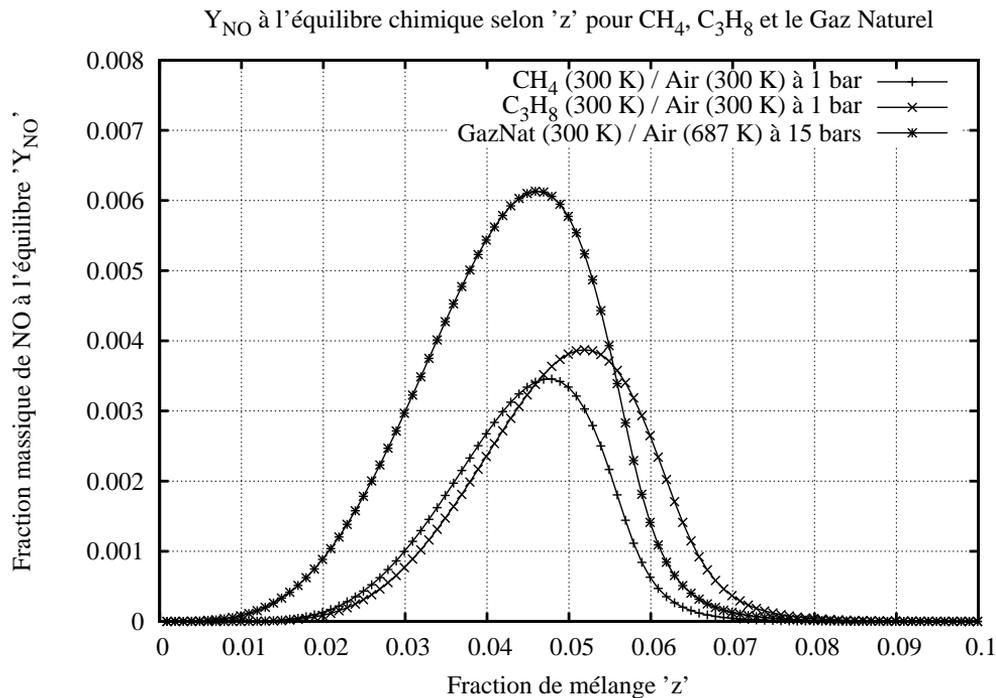


FIGURE 6.5 – Tabulation sur 10 000 points en z de Y_{NO} à l'équilibre chimique

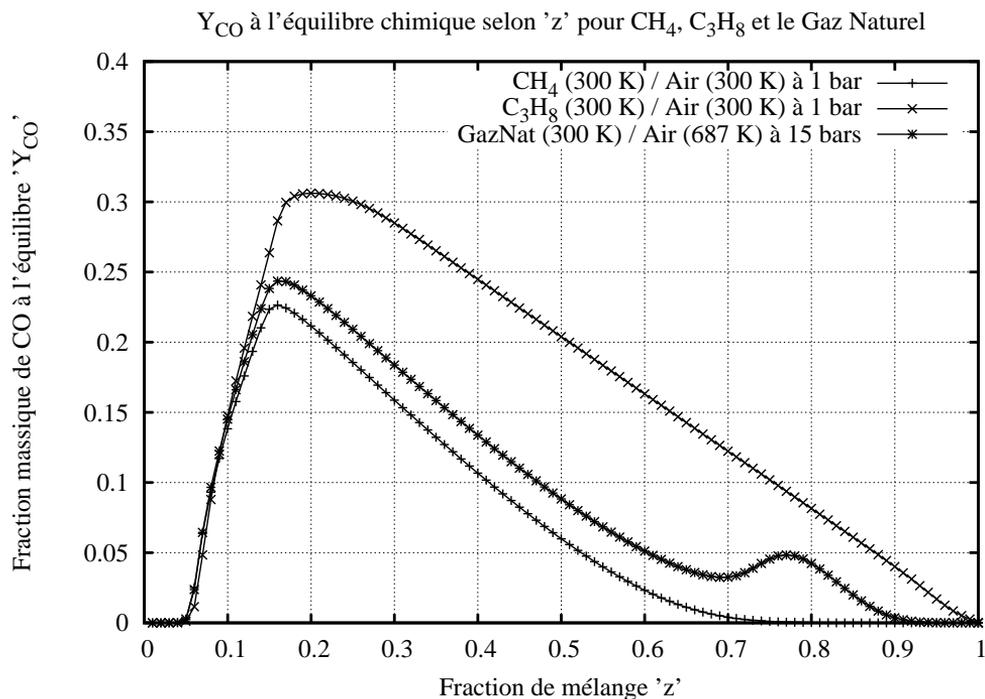


FIGURE 6.6 – Tabulation sur 10 000 points en z de Y_{CO} à l'équilibre chimique

Cette fois-ci, c'est le mélange C_3H_8 - *Air* qui induit la plus forte valeur avec une fraction massique de 0,3. Les mélanges CH_4 - *Air* et *Gaz naturel* - *Air* n'atteignent respectivement que 0,25 et 0,29.

Contrairement au *NO*, le *CO* à l'équilibre peut être formé sur l'intégralité du domaine en z . Son maximum coïncide avec le point d'inflexion de la courbe en température et l'explique puisque l'enthalpie de formation du *CO* pénalise le transfert d'énergie vers l'enthalpie sensible. On remarque par ailleurs une perturbation dans le *CO* formé avec le mélange *Gaz naturel* - *Air* pour $z \in [0.7, 0.9]$. Cette évolution coïncide avec la disparition du *CO* formé à partir du CH_4 et exhibe un autre changement de régime de formation du *CO*.

Chaque tabulation cinétique comporte donc 10 000 lignes dans lesquelles on écrit le z calculé, la température T et la fraction massique Y_k de toutes les espèces du schéma choisi (53 espèces pour le GRI 3.0 complet).

Pour initialiser les calculs de réacteurs *Batch* et *PSR*, nous générons 2 types de tabulations de l'équilibre chimique "avec" et "sans" les espèces azotées sauf le N_2 . A partir du GRI 3.0 initial comportant 53 espèces, nous générons un schéma de 36 espèces.

L'ensemble des tabulations cinétiques et autres calculs de réseaux de réacteurs ont été réalisés en "local" (aucun appel ou accès au réseau) et avec un seul processeur. La machine que nous utilisons est dotée de 4 Go de RAM, de 2 processeurs Xéon mono-cœur cadencés à 3,2 GHz et de 2 disques dur de 120 Go tournant à 7200 tr/min. Le système d'exploitation est Linux (distribution KDE).

Le tableau 6.1 résume les données afférentes au calcul numérique de ces différentes tabulations de l'équilibre chimique :

Mélange réactif	CH_4 - <i>Air</i>	C_3H_8 - <i>Air</i>	<i>Gaz naturel</i> - <i>Air</i>
Tabulation à 36 espèces sans NO			
Temps de calcul	93 s	112 s	90 s
Taille mémoire	6 Mo	6 Mo	6 Mo
Nombre d'erreurs de convergence	0	0	38
Tabulation à 53 espèces avec NO			
Temps de calcul	138 s	162 s	130 s
Taille mémoire	9 Mo	9 Mo	9 Mo
Nombre d'erreurs de convergence	0	0	38

TABLE 6.1 – Données numériques afférentes à la tabulation de l'équilibre chimique

Il est à noter que les erreurs de convergence pour divers z sont recalculées en fin d'itération sur z avec une nouvelle initialisation qui est calculée à partir des points voisins convergés par une simple interpolation linéaire.

6.2.3 Tabulation par calculs de Batch

Cette tabulation $OD(t)$ est basée sur le solveur LSODE pour les équations différentielles ordinaires (ODE, Ordinary Differential Equations) du type $dy/dt = f(y, t)$ où y est une grandeur vectorielle. En effet, un réacteur batch est équivalent à un *PSR* fermé dans le sens où une parfaite homogénéité est assumée sur le volume du réacteur.

Les équations de conservation de la masse (ou de la fraction massique Y_k de chaque espèce χ_k) et de l'énergie (évolution de T) sont équivalentes à celles du *PSR* sans le terme de convection, c'est à dire en considérant τ comme infini. On écrit donc :

$$\frac{dY_k}{dt} = \frac{1}{\rho} M_k \dot{\omega}_k \quad (6.13)$$

$$\frac{dT}{dt} = -\frac{1}{\rho C_p} \sum_{k=1}^{N_{esp}} h_k M_k \dot{\omega}_k \quad (6.14)$$

Ce système d'équations différentielles nécessite une solution initiale en (Y_k, T) que nous lui donnons à l'aide des vecteurs (Y_k, T) , résultats de la tabulation cinétique de l'équilibre chimique sans *NO*. Chaque calcul de mélange réactif est réalisé aux pressions correspondantes (1 et 15 bars).

En effet, on fait l'hypothèse ici que l'évolution du *CO*, bien que lente, est terminée lorsque c approche 1 et que l'on se trouve dans les gaz brûlés. Toutefois, pour capturer l'évolution complète de la formation du *NO thermique*, on part du vecteur de fractions massiques Y_k à l'équilibre mais sans les espèces azotées sauf N_2 . En déployant ensuite un schéma GRI 3.0 réordonné contenant 53 espèces, on observe la variation du *NO* avec le temps dans les gaz brûlés.

Avec cette initialisation, l'algorithme qui englobe le solveur LSODE calcule à chaque itération n , le nouveau pas de temps Δt^n à adopter. Pour capturer les phénomènes les plus rapides, nous avons imposé comme premier pas de calcul $\Delta t^{(1)} = t_{min} = 10^{-8}$. Ainsi, pour chaque z et à chaque itération n , l'algorithme est le suivant :

1. Calcul du vecteur de composition $Y_k^{(n)}$ et $T^{(n)}$ pour le prochain appel de LSODE.
2. Lancement de LSODE avec le pas de temps $\Delta t^{(n)}$ pour obtenir $Y_k^{(n+1)}$ et $T^{(n+1)}$.
3. Vérification de la convergence du calcul LSODE. La convergence est assumée si $T^{(n+1)} - T^{(n)} \leq \Delta T_{cv}$ avec $\Delta T_{cv} = 10K$ imposé par l'utilisateur.
4. Calcul du nouveau pas de temps $\Delta t^{(n+1)}$ en fonction de la convergence :
 - Si le calcul est convergé, on impose : $\Delta t^{(n+1)} = \Delta t^{(n)} \times 2$
 - Sinon, le calcul de LSODE est relancé avec $\Delta t^{(n+1)} = \Delta t^{(n)} / 2$
5. Si le calcul est convergé, on stocke les grandeurs tabulées (ex : $\dot{\omega}_{NO}^{(n+1)}$, $\dot{\omega}_{CO}^{(n+1)}$) en vue d'une écriture future dans la table.

Nous avons également adopté des *temps finaux* t_{fin} de 10 s ou 100 s pour capturer la plus grande partie de la formation du NO tout en restant dans des délais réalistes. De toute manière, les écoulements en chambre de combustion de TAC que nous simulons imposent des temps de séjour qui n'excèdent pas 0,1 s.

En initialisant avec l'équilibre chimique, la température $0D(t)$ reste constante au cours du temps et cela pour tous les z . Ainsi, le critère de convergence est respecté pour chaque itération n et le pas de temps augmente continûment jusqu'à la valeur maximale imposée à $t_{fin}/2$. Cette invariance de la température met en exergue la minorité des espèces azotées (surtout NO) du point de vue du dégagement de chaleur.

Démarrant de $t_{min} = 10^{-8}$ et pour $t_{fin} = 10s$ ou $t_{fin} = 100s$, le nombre d'itérations vaut respectivement 30 et 34 car on a $2^{30} \approx 10^9 = 10/10^{-8}$ et $2^{34} \approx 10^{10} = 100/10^{-8}$.

En figure 6.7, on présente l'évolution selon z du NO formé au cours du temps pour une composition initiale à l'équilibre vierge de toutes espèces azotées (sauf N_2) pour le mélange *Gaz naturel - Air*.

Sur la figure 6.7, l'ensemble des points tabulés en z au même temps t présente une forme en cloche. Comme l'illustrent les points tabulés à $t = 10s$ et à $t = 100s$, ces cloches partent de 0 et s'imbriquent pour converger progressivement vers l'équilibre chimique qui enveloppe l'ensemble des valeurs de Y_{NO} calculées au cours du temps t .

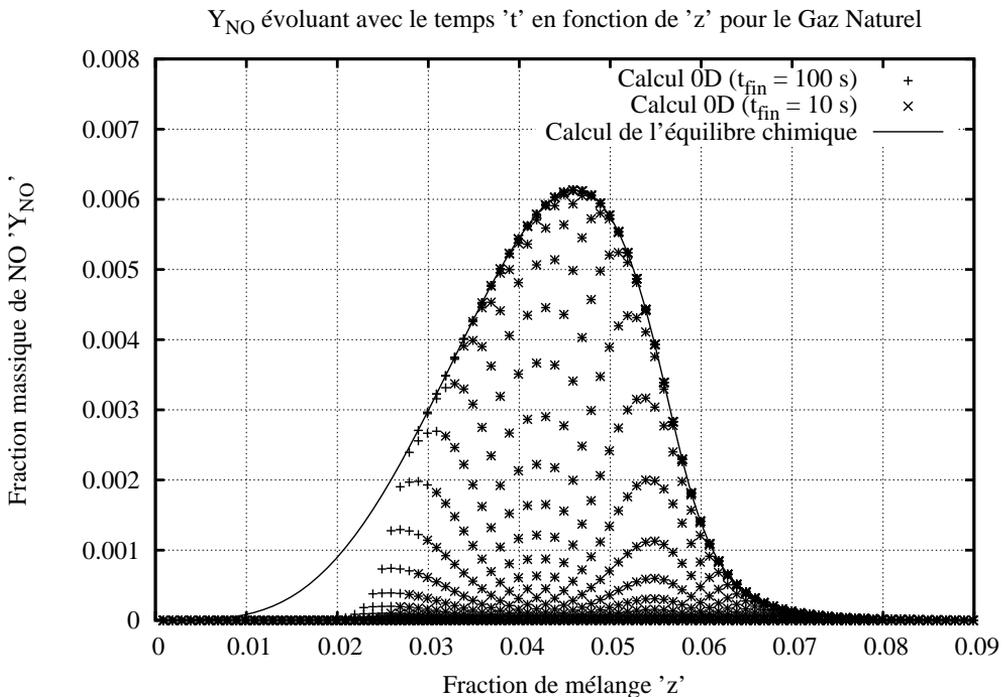


FIGURE 6.7 – Tabulation $0D(t)$ du Y_{NO} évoluant avec le temps vers l'équilibre chimique

Cette évolution est également illustrée dans la figure 6.8 pour différentes richesses ϕ du domaine réactif. On constate que la formation du NO avec le temps t pour une composition à l'équilibre est exponentielle. En effet, avant d'atteindre l'équilibre et de rester constante, l'évolution semble prendre la forme d'une fonction $Y_{NO}(t)$ affine dans ce diagramme log-log : $\ln(Y_{NO}) = a \ln(t) + b$. On a alors $Y_{NO} = Bt^a$ avec $B = e^b$ et $a = 1$. Par un développement limité en $t \rightarrow 0$, cela équivaut à $Y_{NO} = B(1 - e^{-t})$

Pour les différentes richesses ϕ , on conserve cette même dépendance exponentielle (même pente des droites). Toutefois, les valeurs à l'origine dépendent néanmoins de la richesse ϕ et une abondance d'atomes O (coté pauvre, $\phi = 0,77$ et $\phi = 1,00$) permettra un terme source plus fort dès les premiers instants ($t = 10^{-8}$). L'inertie de la formation du NO côté pauvre est également illustrée par le temps d'équilibrage nécessaire à la courbe pour $\phi = 0,6$ qui est supérieur à 1 seconde. Les autres évolutions en régime pauvre convergent en moins de 0,1 secondes.

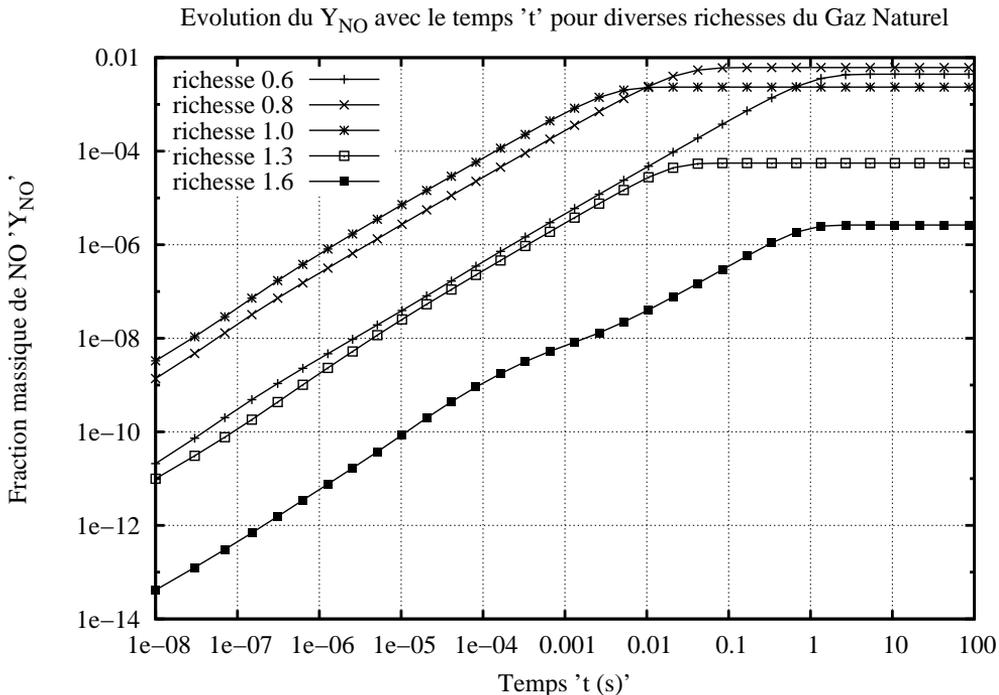


FIGURE 6.8 – Tabulation $OD(t)$ du Y_{NO} évoluant avec le temps à diverses richesses ϕ

Numériquement, nous créons des tabulations contenant les mêmes 10 000 points en z que la tabulation d'équilibre chimique. Chaque ligne contient les indices i et j de chaque point tabulé, le z (indice i) et le temps t (indice j) calculés ainsi que les fractions massiques et termes sources de NO et de CO .

Pour faciliter l'intégration numérique, chaque terme source local $\dot{\omega}_k$ est en fait décomposé en un terme de création \dot{C}_k et un terme de destruction linéarisé $\dot{D}_k Y_k$.

En effet, les réactions formant l'espèce χ_k (ex : $A + B \rightarrow \chi_k + C$) la place du côté des produits et permettent de décomposer le terme source local $\dot{\omega}_k$ (Kee et al., 1989) :

$$\dot{\omega}_k = \dot{C}_k - \dot{D}_k Y_k \quad \text{avec} \quad \dot{D}_k = \frac{1}{\tau_k} \quad (6.15)$$

En décomposant ainsi le terme source et en faisant apparaître τ_k , le temps caractéristique d'équilibrage de $Y_k(t)$, l'équation 6.15 nous permet d'intégrer l'équation $dY_k/dt = \dot{\omega}_k$:

$$Y_k(t) = \frac{\dot{C}_k}{\dot{D}_k} \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_k}} \right) \quad \text{avec} \quad \dot{D}_k = \frac{1}{\tau_k} \quad (6.16)$$

Cette formulation du terme source facilite également la résolution numérique.

L'analyse de l'évolution du NO à la stoechiométrie du mélange *Gaz naturel - Air* et dans les gaz brûlés (tabulation 0D(t) à $c = 1$) souligne l'existence de valeurs quasi-constantes pour \dot{C}_{NO} et \dot{D}_{NO} . Sur la figure 6.9, on présente les évolutions de $\dot{\omega}_{NO}$, terme source net de Y_{NO} et de ses contributions créatrices et destructrices. On remarque que l'évolution du terme source de destruction complet $\dot{D}_{NO} \cdot Y_{NO}$ possède la même allure linéaire que celle du Y_{NO} présentée en figure 6.8 : sa valeur est donc constante. Pour le terme source de création \dot{C}_{NO} , on note par contre l'existence d'une évolution légèrement croissante (diagramme log-log).

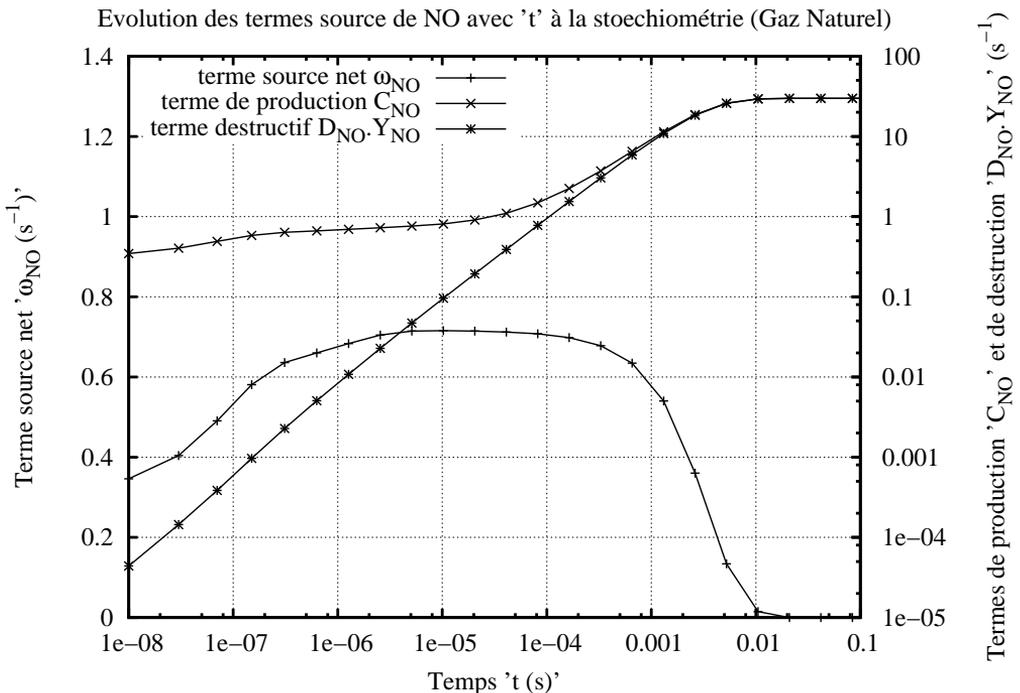


FIGURE 6.9 – Evolution des termes sources de NO dans les gaz brûlés ($c = 1$)

Cette évolution de la partie créatrice du terme source de NO provient en réalité d'une mise à l'équilibre du radical N puisque notre tabulation sans NO initial ne comprenait pas non plus d'espèces azotées mis à part N_2 . Le radical N intervient dans la majorité des réactions du mécanisme de Zel'dovitch comme élément constitutif du futur NO formé comme l'illustre la figure 6.10 qui présente les différentes contributions des vitesses q_i au taux de réaction net $\dot{\omega}_{NO}$. Les réactions prépondérantes sont celles du mécanisme de Zel'dovitch, fonction du radical N qui atteint son état stationnaire au bout de $2.10^{-7} s$.

Sur la figure 6.10, on remarque en effet que l'évolution des contributions faisant intervenir le radical N et les espèces majoritaires OH , CO et CO_2 s'équilibrent en $2.10^{-7} s$:



Ces 2 réactions consomment ainsi un peu de CO_2 et de OH qui restent, eux, constants mais permettent d'équilibrer l'état du radical N en formant du NO .

Toutefois, les réactions formant du NO par l'intermédiaire de N_2O ou de NH sont loin d'être négligeables. Ainsi, après une courte mise à l'équilibre des radicaux principaux (N , NH et HNO en état quasi-stationnaire), on pourrait considérer les termes sources \dot{C}_{NO} et \dot{D}_{NO} comme constants afin de simplifier la méthode de résolution adoptée pour le réseau de réacteurs complet que nous aborderons plus loin.

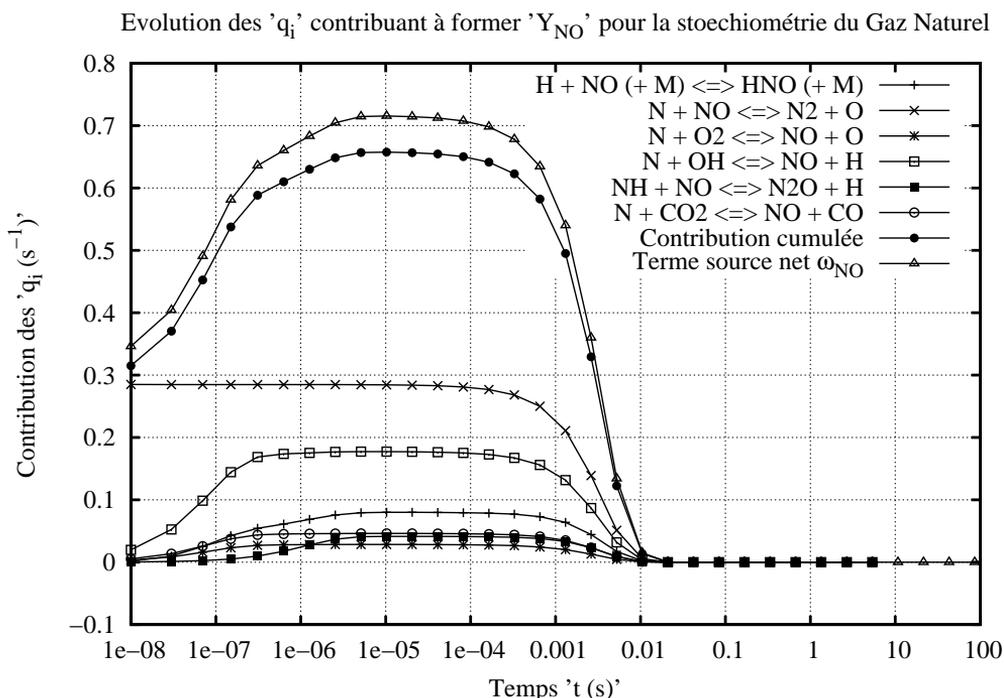


FIGURE 6.10 – Contributions des vitesses de réactions q_i à la formation du NO à $c = 1$

Les termes sources tabulés sont finalement les suivants : les taux de réaction nets $\dot{\omega}_{NO}$, $\dot{\omega}_{CO}$ puis leurs composantes de création \dot{C}_{NO} , \dot{C}_{CO} et de destruction \dot{D}_{NO} , \dot{D}_{CO} . Par conséquent, nous avons généré des tabulation 0D(t) avec des temps finaux de 10 et 100 secondes pour nos 3 mélanges réactifs $CH_4 - Air$, $C_3H_8 - Air$ et $Gaz naturel - Air$.

Le tableau 6.2 résume les données afférentes au calcul numérique de ces différentes tabulations de l'équilibre chimique :

Mélange réactif	$CH_4 - Air$	$C_3H_8 - Air$	$Gaz naturel - Air$
Tabulation avec $t_{fin} = 10$ s			
Temps de calcul	1 727 s	2 019 s	2 310 s
Taille mémoire	40 Mo	40 Mo	40 Mo
Nombre d'itérations (points en temps)	30	30	30
Tabulation avec $t_{fin} = 100$ s			
Temps de calcul	1 955 s	2 391 s	2 695 s
Taille mémoire	45 Mo	45 Mo	45 Mo
Nombre d'itérations (points en temps)	34	34	34

TABLE 6.2 – Données numériques afférentes à la tabulation des calculs Batch 0D(t)

6.2.4 Tabulation par calculs de PSR

Les tabulations de l'équilibre chimique et des calculs 0D(t) de réacteurs Batch que nous avons développées ne sont fonction que de z (10 000 points entre 0 et 1) et assument l'état d'équilibre ($c = 1$), sauf pour les espèces azotées lors des calculs 0D. Ce constat nous rappelle que la dépendance de la cinétique à la variable c doit être introduite dans une tabulation pour rendre compte des réactions radicalaires intervenant également dans la formation du NO (ex : formation du NO précoce) et du CO .

A l'instar des tabulations cinétiques basées sur les calculs de flammes laminares (calculs de PFR), la tabulation de calculs de PSR donne accès à une tabulation dépendant de z et c . Notre choix de la tabulation PSR par rapport aux tabulations 1D de flammes laminares est justifié par :

- Cohérence avec notre modélisation en réseaux de réacteurs statistiquement homogènes (ie parfaitement mélangés au niveau macroscopique). La physique représentée (compétition convection - cinétique chimique) est également en accord avec le découpage développé et la définition du réseau établie.
- La possibilité de réaliser des calculs avec de longs temps de séjour (10 voire 100 secondes) pour capturer l'évolution complète du NO thermique. Pour accéder à la même évolution du NO dans les gaz brûlés pour une flamme laminaire, la distance nécessaire serait de l'ordre d'une centaine de mètres (Rullaud, 2004). Les calculs de flammes laminares sont en général limité à 10 cm et n'y donnent donc pas accès.

- Les temps de calculs associés au calcul de *PSR*. En effet, pour le calcul d'un *PSR* pour un z , parcourir le domaine en c ne demandera en moyenne que 30 secondes alors que le calcul d'une flamme laminaire donnant accès à tous les c pour le même z est plutôt de 5 minutes (soit 10 fois plus). Ce dernier calcul nécessite en plus une initialisation 1D (ex : champ de température $T(x)$) plus complexe.

Notre tabulation de calculs *PSR* s'articule autour du programme *PSR* développé par Kee et al. (1989). Son algorithme de résolution par une méthode de Newton modifiée a été présenté précédemment (sous partie 3.3.1 résolution du *PSR*).

La courbe en hystérésis (figure 5.4) nous rappelle qu'un *PSR* dispose de 2 régimes de fonctionnement. La branche froide induit une formation de *NO* négligeable (réactions chimiques très lentes en raison des basses températures). En conséquence, nous n'avons calculé que la branche chaude, susceptible de former le plus de *NO* du fait de l'état allumé du réacteur et des hautes températures induites.

Dès lors, pour balayer l'ensemble de la branche chaude entre l'équilibre chimique et l'extinction et de manière analogue à la tabulation 0D(t), nous avons développé l'algorithme suivant pour chaque z :

1. Nous partons de l'équilibre chimique en supposant qu'il est atteint dans le *PSR* pour de très longs temps de séjour : $\tau_{max} = 10s$ voire $100s$. L'initialisation du réacteur en Y_k et T provient alors de l'équilibre chimique (avec *NO*).
2. D'autres calculs préalables de *PSR* (isothermes ou non) vérifient l'évaluation de l'équilibre chimique équivalent ($\tau = \tau_{max}$) pour ce problème avec conditions aux limites d'entrée (\dot{m} , T_e , $Y_f^e = z$ et $Y_{ox}^e = 1 - z$). On obtient ainsi le vecteur définitif d'initialisation $Y_k^{(0)}$ et $T^{(0)}$ pour l'itération $n = 0$.
3. Dans une boucle d'itérations sur le temps de séjour $\tau^{(n)}$, on calcule $Y_k^{(n)}$ et $T^{(n)}$ dans le réacteur.
4. On lance *PSR* avec $\tau^{(n)}$ pour obtenir $Y_k^{(n+1)}$ et $T^{(n+1)}$.
5. On vérifie la convergence du calcul et l'état du *PSR* (allumé ou éteint). La convergence est encore une fois assumée si $T^{(n+1)} - T^{(n)} \leq \Delta T_{cv}$ avec $\Delta T_{cv} = 10K$ imposé par l'utilisateur.
6. On recalcule ensuite le nouveau temps de séjour $\tau^{(n+1)}$ selon la convergence :
 - Si le calcul est convergé, on impose : $\tau^{(n+1)} = \tau^{(n)}/2$
 - Sinon, le calcul de *PSR* est retenté avec les $Y_k^{(n*)}$ et $T^{(n*)}$ du dernier état allumé (exposant $*$) et $\tau^{(n+1)} = 3\tau^{(n)}/2$.
7. Si le calcul est convergé, on stocke les grandeurs tabulées (ex : $\dot{\omega}_{NO}^{(n+1)}$, $\dot{\omega}_{CO}^{(n+1)}$) en vue d'une écriture future dans la table.

Avec cet algorithme, on détaille le point d'extinction jusqu'à un nombre donné d'itérations en τ (100 maximum par z) ou un nombre donné de calculs ayant convergé vers la branche froide (5 calculs successifs).

Ce critère en température pourrait être remplacé par un critère considérant la formation du NO pour limiter l'avancée en τ . Il présente néanmoins l'avantage de balayer toute la branche chaude. De plus, les temps de séjour initiaux sont aptes à prédire un NO proche de l'équilibre comme l'atteste la figure 6.11 pour un mélange *Gaz naturel - Air*.

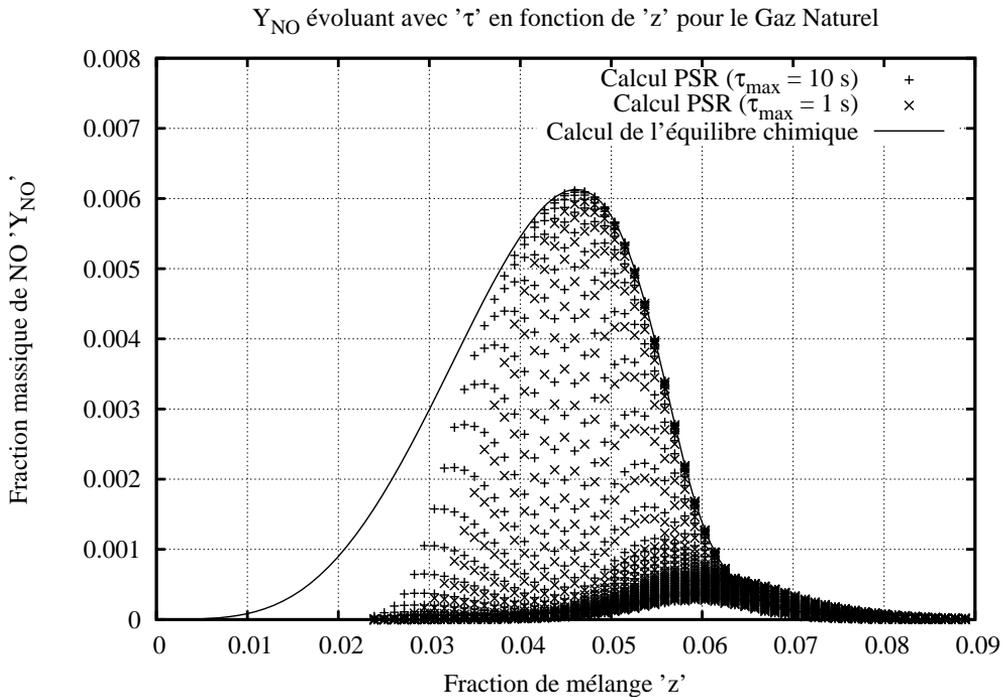


FIGURE 6.11 – Tabulation PSR du Y_{NO} évoluant avec τ vers l'équilibre chimique

Comme pour la tabulation $0D(t)$, les courbes créées pour les différents τ convergent vers l'équilibre qui forme une enveloppe autour des valeurs calculées en z . Toutefois, la forte pression (15 bars) à laquelle brûle ce mélange *Gaz Naturel - Air* intensifie les taux de réactions y compris celui du NO . Ainsi, malgré sa lente évolution, le NO atteint l'équilibre en moins d'une seconde pour les valeurs de z proches de la stoechiométrie comme l'atteste la figure 6.11. Seul le NO formé aux très faibles richesses continue à évoluer vers l'équilibre pour des temps de séjour plus longs (10 s).

On remarque toutefois que pour z compris entre 0,06 et 0,08 (richesse ϕ de 1,0 à 1,5), certaines valeurs de NO formé dépassent l'équilibre. La tabulation $0D(t)$ ne présente pas une telle protubérance mais ne modélise que la formation du NO par le mécanisme de Zel'dovich puisqu'elle évolue depuis une composition à l'équilibre ($c = 1$) dépourvue d'espèces azotées sauf N_2 .

La création du NO par les autres voies de formation (ex : NO précoce) requiert de modéliser les sur-équilibres radicalaires qui existent lorsque l'avancement réactionnel global c ne vaut pas encore 1. A travers la diminution progressive du temps de séjour τ , l'algorithme précédent limite l'avancement réactionnel global c du réacteur à l'état stationnaire. Il nous est donc possible d'accéder à ces effets radicalaires par la tabulation de calculs de PSR.

Dans la figure 6.12, on présente le maximum de NO calculé dans les différentes tabulations en fonction de z pour le mélange *Gaz Naturel - Air*. Pour la tabulation PSR, on trace en plus l'avancement $c = f(Y_{CO} + Y_{CO_2})$ auquel il est formé.

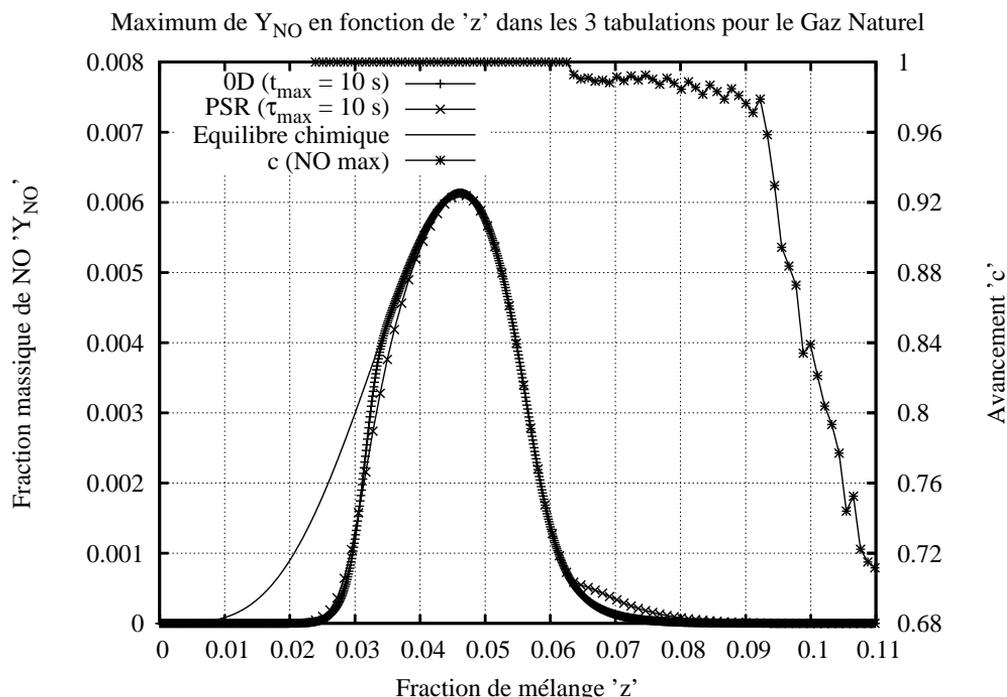


FIGURE 6.12 – Maximum de NO en fonction de z pour les 3 tabulations du Gaz Naturel et avancement c associé pour la tabulation PSR

On remarque ainsi que les 3 tabulations sont cohérentes en termes de NO formé pour les mélanges pauvres et stoechiométriques où le temps d'évolution permet de se rapprocher de la courbe d'équilibre. Le mécanisme de NO est alors prédominant puisque l'avancement du maximum de NO vaut 1 et souligne sa formation pour des temps longs au sein de gaz parfaitement brûlés et riche en atomes d'oxygène.

Etant donné la position (côté légèrement riche) et l'amplitude restreinte par rapport au pic de NO (NO thermique), nous supposons que cet excès de NO par rapport à l'équilibre provient du mécanisme de NO précoce. Pour vérifier cette hypothèse, nous comparons en figure 6.13 les valeurs maximales de HCN , principal acteur du NO précoce, pour les 3 tabulations et le mélange *Gaz naturel - Air*.

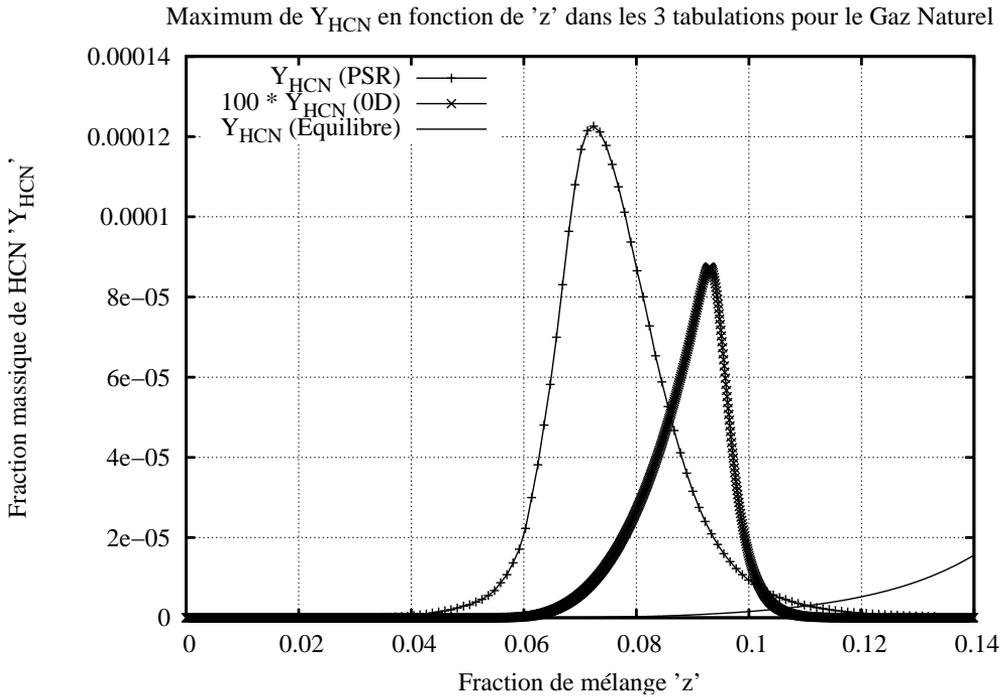


FIGURE 6.13 – Maximum de Y_{HCN} selon z dans les 3 tabulations pour le Gaz Naturel

Les maxima de HCN ($1,2 \cdot 10^{-4}$) sont plus de 100 fois supérieurs aux valeurs maximales tabulées en réacteur Batch et bien supérieurs à la valeur d'équilibre tabulée dont le maximum est déplacé vers les mélanges très riches. La position de ces sur-équilibres de Y_{HCN} , situés entre $z = 0,06$ et $z = 0,08$ aux mêmes endroits que les sur-équilibres de NO calculés au sein des PSR nous conforte dans cette hypothèse.

Ainsi, cette tabulation basée sur des calculs de PSR nous donne accès aux autres chemins de formation (en particulier le NO précoce) qui peuvent être pertinents pour la combustion du gaz naturel dans une TAC.

A l'image de la tabulation $OD(t)$, nous présentons en figure 6.14, l'évolution du NO avec le temps de séjour pour diverses richesses ϕ du domaine réactif.

On observe en premier point que les évolutions avec le temps de séjour τ sont monotones en pauvre $\phi \leq 1$ en raison de la prédominance du mécanisme du NO thermique. Pour ces richesses, le NO croît de manière forte (diagramme log-log) avec τ et de longs temps de séjour (ici $\tau_{max} = 10s$) sont nécessaires à son équilibre, notamment pour $\phi = 0,6$.

En raison du mécanisme de NO précoce, l'évolution du NO avec le temps de séjour n'est plus monotone en riche. En effet, les temps de séjour ($\tau = 1ms$ à $10ms$) qui génèrent les sur-équilibres de HCN conduisent à des maximums de NO atteints pour des avancements non unitaires comme l'illustre les courbes pour $\phi = 1,3$ et $\phi = 1,6$.

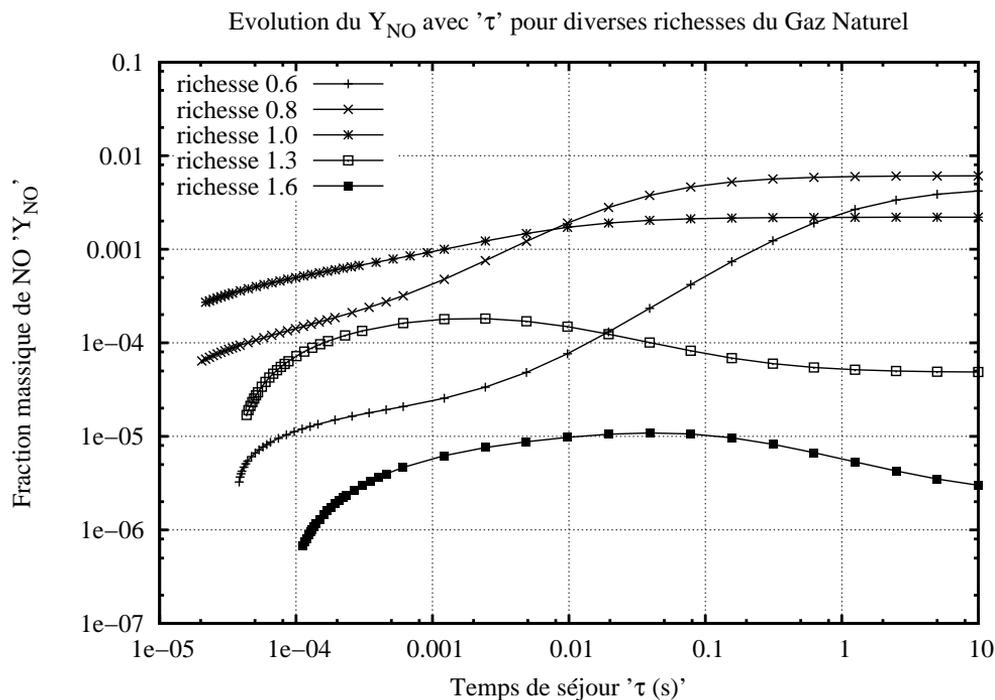


FIGURE 6.14 – Evolution du Y_{NO} avec τ pour diverses richesses ϕ du Gaz Naturel

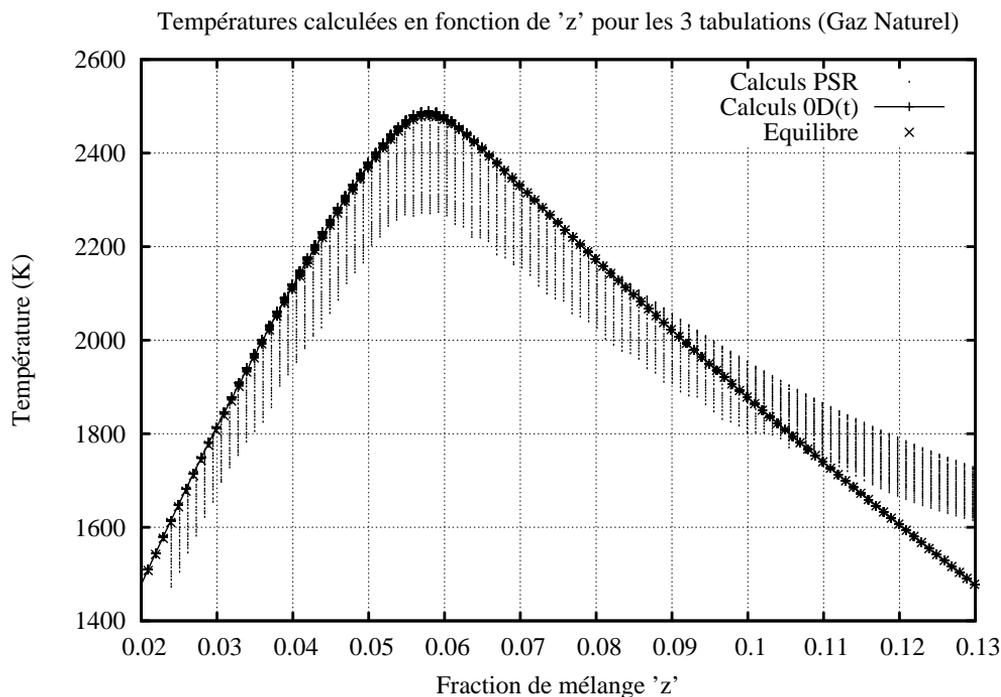


FIGURE 6.15 – Températures $T(z)$ calculées pour les 3 tabulations (Gaz Naturel)

Par ailleurs, on constate également que les températures calculées dans le PSR peuvent être supérieures aux valeurs d'équilibre pour les fortes richesses comme l'illustre la figure 6.15. Contrairement au réacteur Batch, le PSR est un réacteur ouvert qui est doté de conditions aux limites. Celles-ci peuvent dévier l'équilibre du système chimique vers des compositions autres que celle d'un système fermé ayant pourtant la même cinétique et le même mélange réactif (initial).

Nous rappelons également que les calculs de *PSR* ne restent allumés qu'entre les limites d'inflammabilité du mélange. En nous basant sur les travaux de Westbrook et Dryer (1984) et de Fernández-Tarrazo et al. (2006), nous n'avons donc tabulé les mélanges réactifs qu'entre $\phi_{min} = 0,4$ et $\phi_{max} = 2,5$, les limites d'inflammabilité du méthane qui est le composant majoritaire du gaz naturel. Le temps de calcul est alors réduit puisque la convergence est difficile lorsque l'on approche de ces limites d'inflammabilité. Au final, on calcule l'évolution en z sur 100 points régulièrement répartis entre $z_{min} = f(\phi_{min})$ et $z_{max} = f(\phi_{max})$.

Pour chaque tabulation *PSR*, chaque ligne contient l'indice i et la valeur du z calculé ainsi que l'indice j et la valeur des temps de séjour τ tabulés en z . La tabulation inclut ensuite les fractions massiques de *NO* et de *CO* ainsi que la température T et l'avancement cinétique global c , défini plus loin. La tabulation de calculs *PSR* comporte enfin les taux de réaction nets $\dot{\omega}_{NO}$, $\dot{\omega}_{CO}$ ainsi que leurs contributions créatrices \dot{C}_{NO} , \dot{C}_{CO} et destructrices \dot{D}_{NO} , \dot{D}_{CO} .

Nous avons donc généré les tabulations *PSR* avec des temps de séjour maximum de 10 et 100 s pour les mélanges réactifs *CH₄ - Air*, *C₃H₈ - Air*. Pour le mélange réactif *Gaz Naturel - Air*, la forte pression de 15 bars permet au système de converger plus vite et nos tabulations s'arrêtent alors à des temps de séjour 10 fois moindres (respectivement 1 et 10 secondes).

Le tableau 6.3 résume les données numériques afférentes au calcul des tabulations *PSR* :

Mélange réactif	<i>CH₄ - Air</i>	<i>C₃H₈ - Air</i>	<i>Gaz naturel - Air</i>
Tabulation avec $\tau_{max} = 10$ s (1 s pour le gaz naturel)			
Temps de calcul	2 932 s	1 560 s	1 426 s
Taille mémoire	700 Ko	750 Ko	650 Ko
Nombre d'erreurs de convergence	7	1	1
Tabulation avec $\tau_{max} = 100$ s (10 s pour le gaz naturel)			
Temps de calcul	2 509 s	1 437 s	1 263 s
Taille mémoire	770 Ko	810 Ko	730 Ko
Nombre d'erreurs de convergence	0	0	0

TABLE 6.3 – Données numériques afférentes à la tabulation des calculs *PSR*

6.3 Définition du TRN : Turbulent Reactor Network

6.3.1 Calcul des grandeurs turbulentes intra-réacteur

Notre approche de réseaux de réacteurs turbulents vise à exprimer le terme source moyen $\dot{\omega}_k^m$ de l'espèce χ_k dans chaque réacteur en tenant compte à la fois des fluctuations turbulentes et d'une cinétique détaillée.

Grâce aux tabulations cinétiques, nous disposons du terme source local $\dot{\omega}_k(z, Y_f)$ et il nous faut maintenant déterminer la *pdf* $P(z, Y_f)$ représentant les états turbulents qui existent dans le réacteur.

Pour présumer $P(z, Y_f)$ dans chaque réacteur, nous utilisons les différents moments résolus pour Y_f et z dans le calcul CFD lors de l'emploi du modèle LWP.

En chaque cellule du maillage CFD, nous disposons donc des 5 grandeurs suivantes :

- La moyenne et la variance de la *fraction de mélange* z : \widetilde{z} et $\widetilde{z''^2}$
- La moyenne et la variance de la *fraction massique de combustible* Y_f , considérée comme variable d'avancement : \widetilde{Y}_f et $\widetilde{Y_f''^2}$
- La covariance de z et Y_f , très rarement transportée dans les modèles de combustion turbulente classique : $\widetilde{z''Y_f''^2}$

Comme chaque réacteur est une coalescence de cellules du maillage CFD, on cherche l'expression de leurs moyennes (indice m) et variances (indice v) à partir des N_{cell} cellules qui le constitue. La définition du CRN donnait déjà l'expression des moyennes de chaque réacteur pondérées par la masse en raison du formalisme de Favre (équation 4.63). Les moyennes sur le réacteur de z et Y_f s'expriment donc par :

$$z_m = \frac{\sum_j \bar{\rho}_j V_j \widetilde{z}_j}{\sum_j \bar{\rho}_j V_j} \quad \text{et} \quad Y_f^m = \frac{\sum_j \bar{\rho}_j V_j \widetilde{Y}_{f,j}}{\sum_j \bar{\rho}_j V_j} \quad \text{avec} \quad j = (1, \dots, N_{cell}) \quad (6.19)$$

L'expression des variances et de la covariance au sein du réacteur passe par l'écriture du second moment de Y_f et de z . Pour ce faire, on utilise la décomposition en moyenne de Favre à l'échelle des cellules pour toute grandeur $\phi_k = \{Y_f, z\}$:

$$\begin{aligned} \phi_k &= \widetilde{\phi}_k + \phi_k'' \quad \text{avec} \quad \widetilde{\phi_k''} = 0 \\ \phi_k^2 &= \widetilde{\phi}_k^2 + 2\widetilde{\phi}_k \phi_k'' + \phi_k''^2 \\ \widetilde{\phi_k^2} &= \widetilde{\phi}_k^2 + \widetilde{\phi_k''^2} \end{aligned} \quad (6.20)$$

En appliquant l'opérateur de moyenne du réacteur sur ϕ_k^2 , on écrit l'expression de son second moment en fonction des valeurs calculées dans chacune de ses cellules j :

$$(\phi_k^2)^m = \frac{\sum_j \bar{\rho}_j V_j \widetilde{\phi_{k,j}^2}}{\sum_j \bar{\rho}_j V_j} = \frac{1}{\sum_j \bar{\rho}_j V_j} \left[\sum_j \bar{\rho}_j V_j \left(\widetilde{\phi_{k,j}^2} + \widetilde{\phi_{k,j}''^2} \right) \right] \quad (6.21)$$

En utilisant maintenant la moyenne définie sur le volume V du réacteur, l'expression du second moment devient :

$$(\phi_k^2)^m = (\phi_k^m)^2 + (\phi_k)^v \quad (6.22)$$

On fait apparaître ainsi la variance $(\phi_k)^v$ de la grandeur ϕ_k au sein du réacteur dont l'expression est enfin :

$$\phi_k^v = \frac{1}{\sum_j \bar{\rho}_j V_j} \left[\sum_j \bar{\rho}_j V_j \left(\overline{\phi_{k,j}^2} + \overline{\phi_{k,j}''^2} \right) \right] - (\phi_k^m)^2 \quad (6.23)$$

Les seconds moments calculés dans chaque réacteur incluent 2 contributions :

1. La dispersion sur le réacteur des moyennes $\overline{\phi_{k,j}}$ calculées en chaque cellule. En effet, le découpage de l'écoulement en réseau de réacteurs utilise des intervalles de coupe appliqués aux moyennes de chaque cellule et induit par conséquent une certaine dispersion des grandeurs ϕ_k au sein du réacteur (termes $\overline{\phi_{k,j}^2}$).
2. La moyenne sur le réacteur des variances $\overline{\phi_{k,j}''^2}$ (fluctuations de sous-maille) calculées en chaque cellule. Cette contribution porte l'information sur la physique des états turbulents non résolus. Sa valeur est en général bien plus importante (facteur 100 environ) que la dispersion des grandeurs moyennes et ce ratio augmente avec la finesse du découpage (intervalles plus fins = moins de dispersion).

On obtient ainsi les variances de Y_f et de z à l'échelle du réacteur :

$$z_v = \frac{1}{\sum_j \bar{\rho}_j V_j} \left[\sum_j \bar{\rho}_j V_j \left(\overline{z_j^2} + \overline{z_j''^2} \right) \right] - (z_m)^2 \quad (6.24)$$

$$Y_f^v = \frac{1}{\sum_j \bar{\rho}_j V_j} \left[\sum_j \bar{\rho}_j V_j \left(\overline{Y_{f,j}^2} + \overline{Y_{f,j}''^2} \right) \right] - (Y_f^m)^2 \quad (6.25)$$

En appliquant ce même développement au produit $Y_f z$, on obtient également la covariance (indice *cov*) au sein du réacteur :

$$(Y_f z)^{cov} = \frac{1}{\sum_j \bar{\rho}_j V_j} \left[\sum_j \bar{\rho}_j V_j \left(\overline{Y_{f,j} z_j} + \overline{Y_{f,j}'' z_j''} \right) \right] - Y_f^m z^m \quad (6.26)$$

Avec ces 5 moments résolus dans le calcul CFD, il ne reste plus qu'à présumer une forme de la *pdf* $P(z, Y_f)$. Soucieux de généraliser l'approche aux divers modèles de combustion turbulente, nous exprimons en réalité la *pdf* en fonction de l'avancement cinétique global c sous la forme $P(z, c)$ pour la relier aux tabulations cinétiques.

6.3.2 Définition des variables d'avancement

Les travaux de Bray et al. (2005) définissent le rôle de l'avancement cinétique et en donnent certains critères de définition pour la combustion partiellement prémélangée. En considérant de manière générale, les bornes $c = 0$ et $c = 1$ qui sont associées aux gaz frais (indice 0) et aux gaz parfaitement brûlés (temps d'évolution infini) c'est à dire l'équilibre chimique (indice eq), on peut définir l'avancement cinétique à partir de la température T ou des fractions massiques Y_k .

Le choix d'une variable d'avancement cinétique c est souvent fonction du cas étudié. En plus d'être une variable *normalisée* ($c \in [0, 1]$), elle doit respecter un critère de *monotonie* : $\partial c / \partial t \geq 0$ pour le calcul en temps d'un réacteur Batch ou $\partial c / \partial \tau \geq 0$ sur la branche chaude pour le calcul d'un PSR en fonction du temps de séjour ou encore $\partial c / \partial x \geq 0$ pour le calcul (PFR) d'une flamme laminaire 1D.

Le développement de notre tabulation PSR nous a orienté dans le choix de la variable d'avancement c . En effet, nous avons testé plusieurs définitions, fonctions de la température, de la fraction massique des réactifs Y_r , ici Y_f pour le combustible, ou de la fraction massique des produits Y_p , ici $Y_{CO} + Y_{CO_2}$ (Fiorina et al., 2005a) :

$$c_1 = c(T) = \frac{T - T_0}{T_{eq} - T_0} \quad (6.27)$$

$$c_2 = c(Y_r = Y_f) = \frac{Y_r^0 - Y_r}{Y_r^0 - Y_r^{eq}} \quad (6.28)$$

$$c_3 = c(Y_p = Y_{CO} + Y_{CO_2}) = \frac{Y_p - Y_p^0}{Y_p^{eq} - Y_p^0} \quad (6.29)$$

Lorsque l'avancement c est défini à partir de la température, la monotonie vis-à-vis du temps de séjour n'est pas assurée. En effet, du côté riche, les réactions chimiques s'effectuent en faible présence d'oxygène et induisent une cinétique radicalaire complexe. Comme l'a montré la figure 6.15, la température dans le PSR peut dépasser celle atteinte par l'équilibre chimique vers lequel on converge pour de longs temps de séjour. Dès lors, si l'on considère l'équilibre chimique comme l'état d'avancement maximal ($c = 1$) en l'associant aux plus grands temps de séjour ($\tau_{max} = 10$ s) de la tabulation PSR, on risque de trouver des valeurs d'avancement supérieures à l'unité pour des valeurs de τ plus faibles. La température ne semble pas alors être le choix le plus adéquat pour décrire la cinétique réactionnelle par une variable évoluant entre 0 et 1.

L'utilisation de la fraction masique de combustible Y_f comme variable d'avancement en cinétique détaillée pose un autre problème. A l'état d'équilibre, l'oxydation du combustible (côté pauvre) ou sa dégradation en radicaux carbonés (côté riche) sont maximales et permettent de ne pas dépasser $c = 1$. Toutefois, près de la stoechiométrie, la cinétique est si rapide que le combustible est toujours intégralement consommé quel que soit le temps de séjour. Ainsi, le balayage en temps de séjour τ ne permet plus de représenter l'évolution de c qui reste à 1.

On perd ainsi le bénéfice de la tabulation PSR qui, contrairement aux tabulations assumant l'équilibre chimique, donne normalement accès à la cinétique radicalaire intervenant aux avancements réactionnels intermédiaires.

La variable d'avancement basée sur la fraction massique des produits ($Y_{CO} + Y_{CO_2}$) ne présente aucun de ces deux inconvénients.

En effet, la lente oxydation du CO en CO_2 permet d'accroître progressivement la fraction massique des produits Y_p sans atteindre la valeur d'équilibre et en restreignant ainsi l'avancement c qui est calculé à ne jamais dépasser 1 quel que soit le z tabulé.

De plus, même autour de la stoechiométrie où la cinétique est rapide, on observe les effets d'une vitesse finie comme l'oxydation partielle en CO . Dès lors, l'avancement cinétique n'atteint pas la valeur unitaire et descend jusqu'à 0,9 pour les temps de séjour les plus courts. Ainsi, sur l'ensemble des z tabulés, on dispose désormais d'une large gamme d'états turbulents en c pour lesquels la cinétique détaillée est connue.

La figure 6.16 résume ces différents constats en présentant tous les points d'avancement pour la tabulation basée sur $c = f(Y_{CO} + Y_{CO_2})$ ainsi que les avancements maximum et minimum tabulés en fonction de z pour les 2 autres définitions.

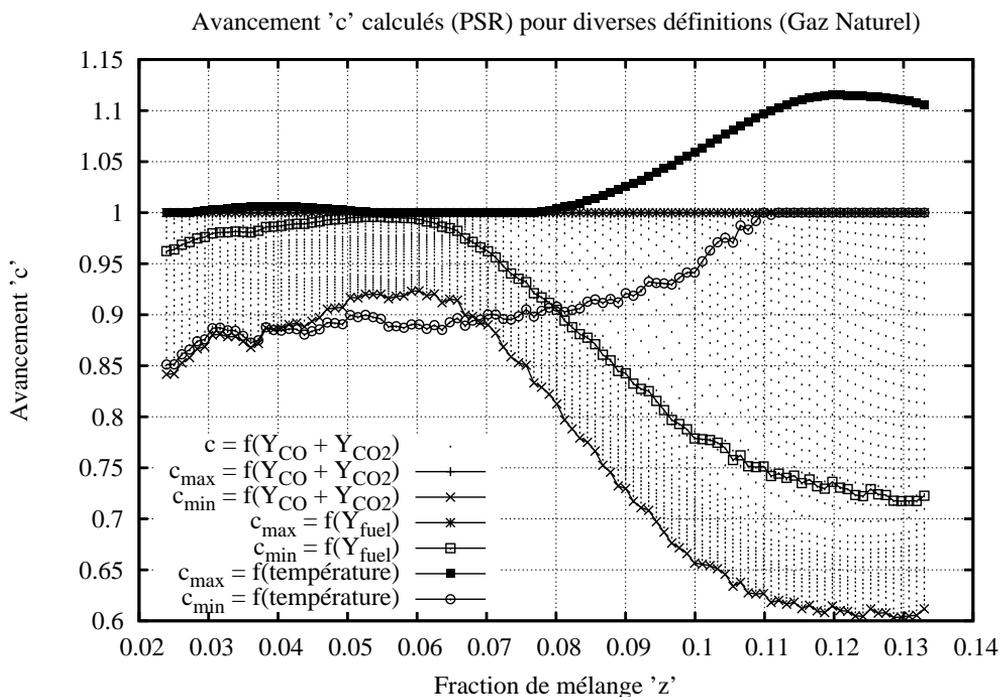


FIGURE 6.16 – Tabulation PSR de l'avancement avec z pour plusieurs définitions de c

Par conséquent, la dernière définition de c basée sur la fraction massique des produits CO et CO_2 sera choisie pour notre tabulation à base de calculs PSR.

6.4 Résolution numérique du TRN

6.4.1 Résolution d'un réacteur turbulent

Pour calculer le terme source $\dot{\omega}_k^m$ nécessaire dans chaque réacteur, nous couplons les tabulations à chimie détaillée avec la *pdf* présumée du modèle LWP sous la forme $P(z, c)$. Nous rappelons que le terme source chimique moyen $\dot{\omega}_k^m$ de formation d'une espèce χ_k dans un réacteur s'exprime alors par :

$$\dot{\omega}_k^m = \int_{\mathcal{D}} \dot{\omega}_k(z, c) P(z, c) dz dc = \sum_{j=1}^{N_D} \alpha_j \dot{\omega}_k(z_j, c_j | z) \quad (6.30)$$

En effet, nous sommes désireux de représenter la formation de *NO* et de *CO* :

1. Sur la plus large plage de richesse $\phi = f(z)$ possible y compris *hors des limites d'inflammabilité* en raison du mélange potentiel entre les gaz brûlés et le combustible ou d'une dilution de ces derniers avec de l'air. La tabulation *OD(t) de réacteurs Batch* contenant l'ensemble du domaine en z est utilisée si $c \rightarrow 1$.
2. En limitant leur *évolution temporelle* à des temps de séjour réalistes pour la configuration étudiée (écoulement dans un TAC). L'évolution lente du *NO* thermique est calculée dans la tabulation *OD(t) de réacteurs Batch* lorsque l'avancement c sera significatif de gaz brûlés dont la température n'évolue plus ($c \rightarrow 1$).
3. Par la prise en compte des divers chemins de formation du *NO* (mécanisme de Zel'dovich, de Fenimore) et de sa dépendance aux états partiellement brûlés où l'avancement réactionnel global c est inférieur à 1. Seule la tabulation de *calculs PSR* propose de considérer la dépendance du *NO* à z et à l'évolution de c .

Ainsi, pour chaque état du modèle LWP décrit en z et c , le terme source local est obtenu par *interpolation bilinéaire* dans la tabulation PSR. Cette interpolation est facilitée puisque chaque avancement c tabulé est conditionné sur une valeur de z calculée entre les limites d'inflammabilité.

Pour faciliter la résolution numérique du Y_{NO} et du Y_{CO} , on cherche plutôt à définir une partie destructrice linéarisée \dot{D}_k^m du terme source moyen $\dot{\omega}_k^m$ qui reste cohérente avec la fraction massique moyenne Y_k^m formée dans chaque réacteur :

$$\dot{\omega}_k^m = \dot{C}_k^m - \dot{D}_k^m \cdot Y_k^m \quad (6.31)$$

La définition rigoureuse du terme source moyen et la linéarité de l'intégrale induisent :

$$\begin{aligned} \dot{\omega}_k^m &= \int_{\mathcal{D}} \dot{\omega}_k(z, c) P(z, c) dz dc = \int_{\mathcal{D}} (\dot{C}_k - \dot{D}_k \cdot Y_k)(z, c) P(z, c) dz dc \\ &= \int_{\mathcal{D}} \dot{C}_k(z, c) P(z, c) dz dc - \int_{\mathcal{D}} [\dot{D}_k \cdot Y_k](z, c) P(z, c) dz dc \end{aligned} \quad (6.32)$$

Ainsi, pour tenir compte du temps caractéristique $\tau_k = 1/\dot{D}_k$ associé à la formation de l'espèce χ_k pour chaque état, nous écrivons :

$$\dot{C}_k^m = \sum_{i=1}^{N_D} \alpha_i \dot{C}_k(z_i, c_i|z) \quad \text{et} \quad \dot{D}_k^m = \sum_{i=1}^{N_D} \alpha_i \frac{\dot{D}_k(z_i, c_i|z) \cdot Y_k(z_i, c_i|z)}{Y_k^m} \quad (6.33)$$

La fraction massique moyenne Y_k^m est donnée par : $Y_k^m = \sum_{i=1}^{N_D} \alpha_i Y_k(z_i, c_i|z)$

Toutefois, si l'avancement c s'approche de 1 pour un des 4 états de la *pdf*, la résolution du *NO* diffère de celle du *CO*. En accord avec la tabulation *0D(t)*, nous assumons que l'évolution du *CO* est terminée pour $c \rightarrow 1$: $\dot{\omega}_{CO}^m = \dot{C}_{CO}^m - \dot{D}_{CO}^m \cdot Y_{CO}^m = 0$.

Il n'en est pas de même pour l'évolution du *NO* lorsque $c \rightarrow 1$. Le mécanisme de Zel'dovitch intervenant principalement dans les gaz brûlés est susceptible en effet d'engendrer de très larges valeurs de *NO* pour les grands temps de séjour ou les longues évolutions (ex : 10 s). En première approximation, nous limiterons donc la création du *NO* au temps de séjour moyen de chaque réacteur. La DTS exponentielle du PSR impose en effet une faible probabilité d'avoir de grands temps de séjour (ex : 10 s).

Dès lors, si un ou plusieurs des 4 états paramétrés par z et $c|z$ possède un avancement supérieur à $c_{lim_psr_0D}$ et que son amplitude dépasse une valeur seuil ($\varepsilon = 10^{-8}$), on calcule l'évolution du terme source moyen $\dot{\omega}_{NO}^m(t)$ pour le réacteur. Ce dernier dispose alors de 2 contributions :

- Une contribution *constante* provenant des états intermédiaires ($c < c_{lim_psr_0D}$) issus de réactions radicalaires et calculés par la tabulation PSR.
- Une contribution *évolutive* comprenant les états brûlés ($c \geq c_{lim_psr_0D}$) au sein desquels le *NO* thermique continue de se former. L'ensemble des points en temps de la tabulation *0D* pour $c = 1$ est alors utilisé.

La fraction massique de *NO* formée par les réactions radicalaires (contribution constante) sert de valeur d'origine à la tabulation $\dot{\omega}_{NO}^m(t) = f(Y_{NO}^m(t))$ qui est alors générée pour le réacteur. A partir des points tabulés en *temps* pour l'état dont l'avancement c dépasse $c_{lim_psr_0D}$, on construit une tabulation mixte PSR-0D des termes sources de *NO* dans chaque réacteur. Cette tabulation reçoit en entrée la valeur de Y_{NO}^m dans le réacteur à l'itération précédente et fournit en retour la valeur de $\dot{\omega}_{NO}^m(t)$ à l'itération courante.

Le terme source moyen $\dot{\omega}_{NO}^m$ du réacteur est alors limité par la formation du Y_{NO}^m en son sein. Cette création est elle-même fonction des échanges avec les réacteurs voisins et du temps de séjour moyen τ_i^m dans chaque réacteur qui peut être vu comme le temps nécessaire pour traverser le volume V_i du réacteur avec un débit masse $Q_{e,i}$ en entrée. On limite ainsi l'évolution du *NO* thermique au temps passé dans le réacteur.

6.4.2 Résolution du réseau complet (TRN)

Au sein de ce réseau de réacteurs turbulents (TRN pour "Turbulent Reactor Network"), on ne cherche plus à calculer l'évolution complète de la composition ou la température de chaque réacteur comme dans le CRN (Chemical Reactor Network). Seule la résolution de Y_{NO} et de Y_{CO} est envisagée.

A partir de l'équation de transport de ces grandeurs dans le réacteur (équation 6.8) et de la description du terme source $\dot{\omega}_k^m$ au sein du réacteur, on écrit pour chaque réacteur i et chaque espèce χ_k :

$$Y_{k,i}^m = \frac{1}{Q_{e,i}} \left[F c_{l,i} Y_{k,i}^{cl} + \sum_{j=1}^{Nb_{reac}} (F c_{ji} + F d_{ji}) Y_{k,j}^m + V_i M_{k,i} (\dot{C}_{k,i}^m - \dot{D}_{k,i}^m \cdot Y_{k,i}^m) \right] \quad (6.34)$$

Pour le Y_{NO} , une méthode itérative permet de résoudre cette équation non linéaire lorsque le terme source moyen $\dot{\omega}_{NO,i}^m$ est fonction de $Y_{NO,i}^m$ évoluant lui même au cours des échanges entre les réacteurs (tabulation $\dot{\omega}_{NO}^m(t) = f(Y_{NO}^m(t))$). On calcule alors les réacteurs un à un jusqu'à convergence lorsque la variation de $Y_{NO,i}^m$ ne dépasse pas 1 % d'une itération à l'autre dans tous les réacteurs.

Toutefois, la tabulation du terme source chimique $\dot{\omega}_k^m$ sous forme "création - destruction" permet d'envisager une autre méthode de résolution notamment pour Y_{CO} . En effet, dans les configurations que nous avons étudiées, nous considérons que les conditions aux limites du domaine fluide sont vierges de NO et de CO et nous imposons donc $Y_{k,i}^{cl} = 0$. Nous rappelons également que nos tabulations PSR et 0D incluent les termes sources \dot{C}_k et \dot{D}_k en s^{-1} . Dans l'équation 6.34, le terme source $\dot{C}_{k,i}^m$ est présenté en $mole.cm^{-3}.s^{-1}$ et on tabule en effet les valeurs fournies par CHEMKIN en $mole.cm^{-3}.s^{-1}$ en les pondérant par M_k/ρ pour revenir en s^{-1} .

Pour alléger la formulation, nous incluons donc dans les termes sources de création $\dot{C}_{k,i}^m$ et de destruction $\dot{D}_{k,i}^m$ le coefficient de pondération $M_{k,i}/\rho_i^m$ tel que nous le faisons en réalité dans nos tabulations. Nous considérons ainsi que la masse volumique moyenne ρ_i^m du réacteur i est donnée par :

$$\rho_i^m = \sum_{l=1}^{N_D} \alpha_l \rho_l(z_l, c_l|z) \quad (6.35)$$

On reformule alors l'équation 6.34 sous la forme d'un système linéaire $A_{ij}.Y_j = B_i$ en faisant intervenir le temps de séjour moyen dans le réacteur donné par $\tau_i^m = \rho_i^m V_i / Q_{e,i}$:

$$\sum_{j=1}^{Nb_{reac}} \left[(1 + \tau_i^m \dot{D}_{k,i}^m) \delta_{ij} - \frac{F c_{ji} + F d_{ji}}{Q_{e,i}} \right] Y_{k,j}^m = \tau_i^m \dot{C}_{k,i}^m \quad (6.36)$$

En posant $Y_{k,j}^m$ comme le vecteur inconnu Y_j , la matrice A_{ij} et le vecteur B_i deviennent :

$$A_{ij} = \left(1 + \tau_i^m \dot{D}_{k,i}^m\right) \delta_{ji} - \frac{Fc_{ji} + Fd_{ji}}{Q_{e,i}} \quad \text{et} \quad B_i = \tau_i^m \dot{C}_{k,i}^m \quad (6.37)$$

Nous avons alors construit 2 méthodes de résolution pour ce système linéaire : une première méthode de résolution dite *directe*, la méthode de *Gauss - Jordan* et une seconde méthode de résolution dite *Indirecte*, la méthode de *Gauss - Seidel*.

◦ La méthode de *Gauss - Jordan* cherche à transformer la matrice A_{ij} en la matrice identité I_{ij} contenant des 1 sur sa diagonale et des 0 sur tous les termes extra-diagonaux. L'inversion matricielle ($A.A^{-1} = I$) est calculée en considérant l'algorithme suivant :

Pour chaque ligne $l_i^{(k)}$ de la matrice A_{ij} à l'itération k , en notant $A_{ij}^{(k)}$, sa composante associée à l'itération k et pour k allant de 1 à Nb_{reac} et si $A_{kk}^{(k)} \neq 0$ (sinon A n'est pas inversible puisque son déterminant $|A|$ est nul) :

1. On remplace la ligne $l_k^{(k)}$ par la valeur $l_k^{(k-1)} / A_{kk}^{(k-1)}$
2. Puis pour i allant de 1 à Nb_{reac} et $i \neq k$, on remplace $l_i^{(k)}$ par $l_i^{(k-1)} - A_{ik}^{(k-1)} l_k^{(k-1)}$

Du fait des boucles d'itérations sur i, k et les Nb_{reac} composantes de chaque ligne l_i^k , le coût numérique de cet algorithme est de l'ordre de $2(Nb_{reac})^3/3$.

◦ La méthode de *Gauss - Seidel* cherche à résoudre itérativement le système en proposant une suite de vecteur ($Y_j^{(k)}$) convergeant vers le vecteur solution. Pour accélérer l'algorithme que nous allons présenter, on y adjoint une *sur-relaxation* par le biais d'un coefficient λ . L'algorithme proposé est alors le suivant pour chaque itération k :

1. Pour i allant de 1 à Nb_{reac} , on remplace $Y_i^{(k)}$ par la valeur

$$(1 - \lambda) Y_i^{(k)} + \lambda \left(B_i - \sum_{j=1}^{i-1} A_{ij}^{(k)} - \sum_{j=i+1}^{Nb_{reac}} A_{ij}^{(k-1)} \right) / A_{ii}$$

2. A chaque fin d'itération k et pour chaque i , on estime l'erreur absolue ε définie par $|Y_i^{(k)} - Y_i^{(k-1)}| / Y_i^{(k-1)}$.
3. Si ε est inférieur à 10^{-6} pour toutes les lignes i , la convergence est assumée.

Le facteur de relaxation λ est optimal pour une valeur de 1,4 à partir des études que nous avons mené. Le coût numérique de l'algorithme proposé est alors de l'ordre de $N_k(Nb_{reac})^2$ où N_k est le nombre d'itérations nécessaire pour converger. La convergence est assurée dans notre cas puisque, par définition, chaque élément de la diagonale est supérieur en module à la somme des autres éléments de la ligne :

$$\sum_{j=1}^{Nb_{reac}} \frac{Fc_{ji} + Fd_{ji}}{Q_{e,i}} \leq 1 \quad \text{et} \quad \tau_i^m \dot{D}_{k,i}^m \geq 0 \quad (6.38)$$

6.5 Introduction d'une distribution de temps de séjour

6.5.1 Problématique

Dans l'approche de réseau de réacteurs turbulents que nous venons de développer, les termes sources de NO et de CO sont déterminés à partir des états turbulents calculés au sein du réacteur. Toutefois, la décomposition de ces termes sources en une partie créatrice \dot{C}_k^m et une partie destructrice linéarisée \dot{D}_k^m fait évoluer le terme source net $\dot{\omega}_k^m$ en fonction de la fraction massique Y_k^m de l'espèce formée.

Le temps caractéristique qui est associé à ce terme source et qui est égal à $1/\dot{D}_k^m$ entre en compétition avec le temps de séjour moyen τ_i^m dans le réacteur comme le montre l'équation 6.36. Ainsi, suivant le temps de séjour τ_i passé dans le réacteur, l'espèce sera formée en plus ou moins grande quantité puisque le terme source net $\dot{\omega}_k^m$ ne devient nul que quand l'espèce a atteint son état d'équilibre égal à \dot{C}_k^m/\dot{D}_k^m .

Nous rappelons que dans chaque PSR, il existe en réalité une distribution continue des temps de séjour (DTS) qui s'étale sur de très grandes valeurs puisque la DTS théorique (équation 4.53) est une *exponentielle amortie* en un temps caractéristique égal au temps de séjour moyen τ_i^m dans le réacteur : $E_i(t) = e^{-t/\tau_i^m}/\tau_i^m$

La figure 6.17 illustre la forme de cette loi exponentielle pour divers temps de séjour τ .

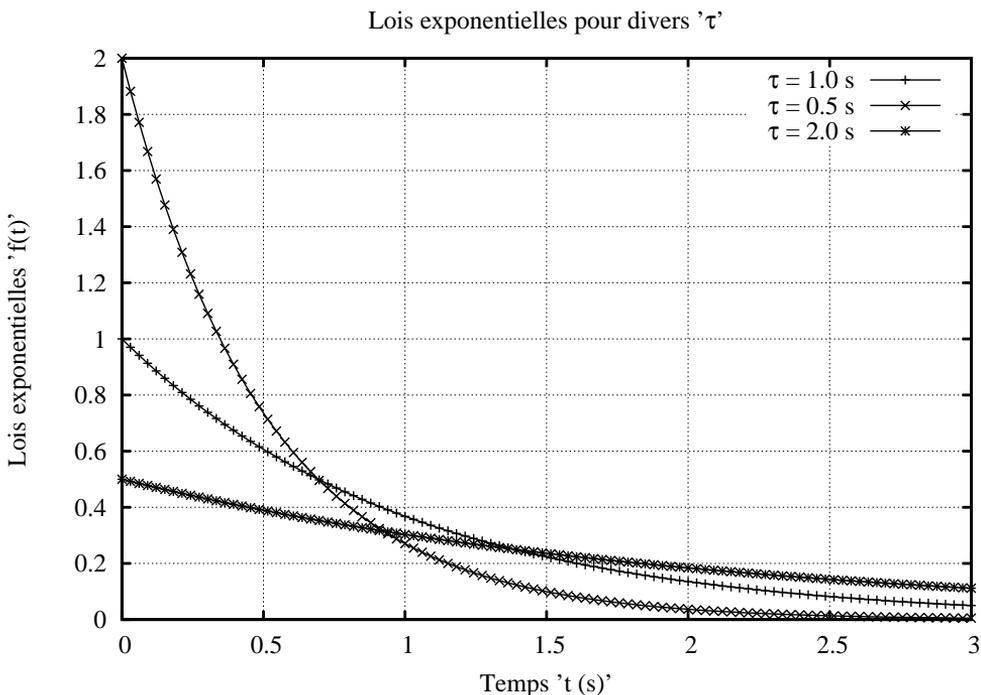


FIGURE 6.17 – Lois exponentielles pour divers temps de séjour moyen τ

L'asymptote $E(t) = 0$ est susceptible d'induire des valeurs pour Y_{NO} et Y_{CO} bien plus hautes que celles générées par l'intégration des termes sources net sur le seul temps de séjour moyen τ_i^m . De plus, comme nous l'avons remarqué précédemment, cette DTS est théorique et provient des propriétés de mélange macroscopique parfait du PSR. La DTS d'un réacteur réel impose une valeur nulle pour les temps de séjour nul comme l'illustre la figure 4.6 pour un ensemble de 'N' PSR en série.

La loi log-normale propose une valeur nulle pour des temps de séjour nuls et respecte ce critère d'admissibilité physique de la DTS. Cette fonction à 2 paramètres (m , s) présente de plus une forme mono-modale proche des DTS réalistes de la figure 4.6 proposées pour un système de N PSR en série. Son expression est donnée pour un réacteur i par :

$$E_i(t) = \frac{1}{s_i t \sqrt{2\pi}} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(t) - m_i}{s_i} \right)^2 \right] \quad (6.39)$$

L'allure de fonction est illustrée dans la figure 6.18 pour divers couples (m , s).

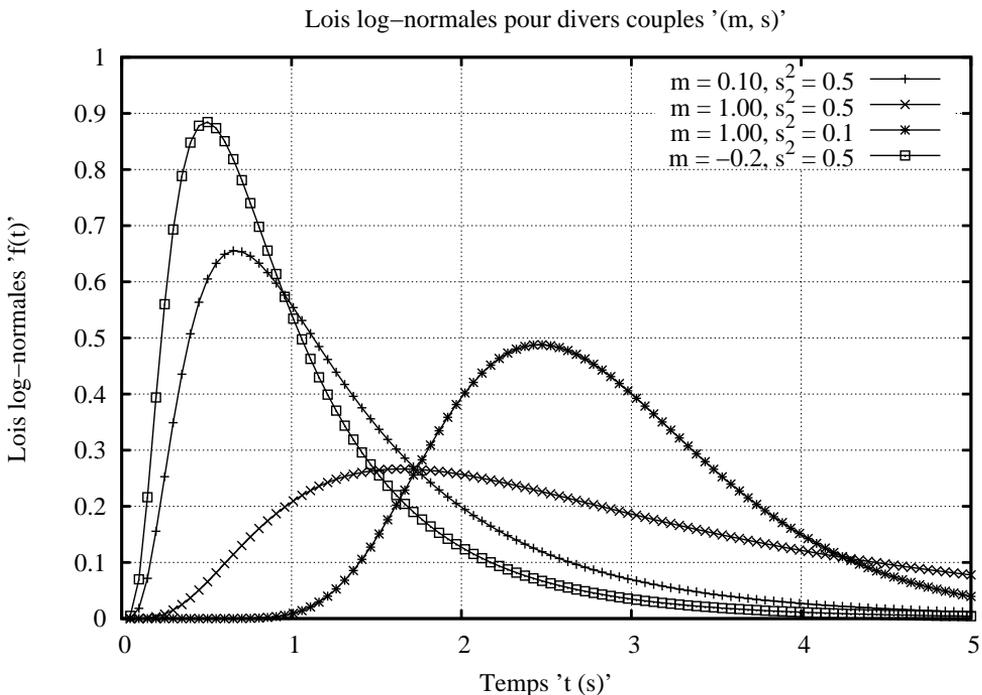


FIGURE 6.18 – Lois log-normales pour diverses valeurs des paramètres m et s

L'objectif est donc d'introduire cette dépendance à la DTS au sein de notre réseau de réacteurs turbulents en conservant des temps de calculs faibles dans l'optique d'une utilisation dynamique de l'outil numérique sur site en centrale. L'équation 6.36 rappelle de quelle manière l'espèce créée dépend du temps de séjour τ_i dans le réacteur.

6.5.2 Solution proposée et approche engagée

En raison des faibles temps de calculs nécessaires pour résoudre le réseau de réacteurs turbulents (équation 6.37) de l'ordre d'une seconde pour des réseaux de 400 réacteurs, il est possible d'envisager une série de calculs de réseaux de réacteurs turbulents pour lesquels on considère divers temps de séjour dans chaque réacteur i et non plus son seul temps de séjour moyen τ_i^m .

On propose d'imposer *une même forme de DTS au sein de tous les réacteurs* comme étant la loi théorique exponentielle du PSR ou la loi log-normale associée aux temps de séjour admissibles pour un réacteur réel. Une fois la forme de *DTS* choisie, on calcule la *DTS* de chaque réacteur en fonction de son temps de séjour moyen τ_i^m (pour la loi exponentielle) voire de sa variance des temps de séjour τ_i^v (pour la loi log-normale).

Comme le temps de séjour τ_i d'un réacteur i est indépendant de celui dans les autres réacteurs, il convient de générer le temps de séjour dans tous les réacteurs de manière *aléatoire*. La difficulté est de respecter la *DTS* de chaque réacteur car elle lui impose la probabilité de supporter un temps de séjour donné. Pour représenter la *DTS* dans chaque réacteur à partir d'un nombre N_{dts} de calculs du réseau complet, on recourt à un générateur de nombres semi-aléatoires dont la densité de probabilité de sortie respecte une forme *exponentielle* ou *loi normale* (voir figure 6.19) que l'on relie à la loi log-normale par simple changement de variable.

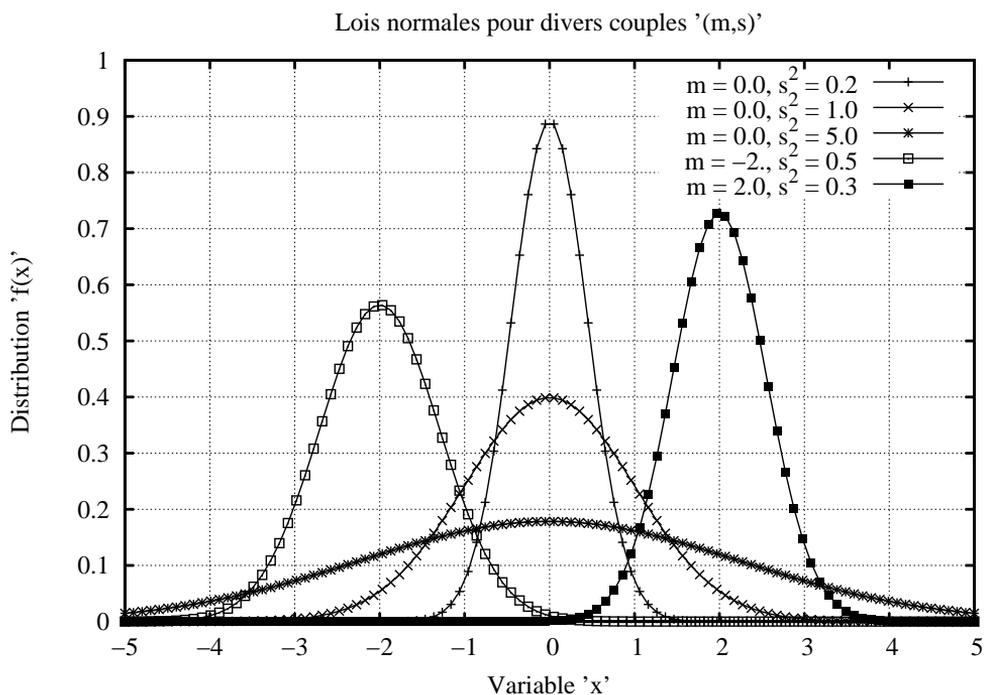


FIGURE 6.19 – Allure des fonctions normales pour divers moyennes m et variances s

Si la loi exponentielle du PSR est choisie pour le réacteur, un seul paramètre reste à déterminer pour définir la DTS : le *temps de séjour moyen* τ^m du réacteur. Il est alors possible de le calculer à partir des données CFD (volume V et débit masse entrant Q_e du réacteur) par le biais de la masse volumique ρ , elle-même définie par la composition, la pression et la température du réacteur.

Si la forme choisie pour la DTS est la loi log-normale, il nous faut dans ce cas disposer de 2 informations puisque la fonction comporte 2 paramètres m, s . L'idée est de déterminer les 2 paramètres en fonction du temps de séjour moyen τ^m et de sa *variance* τ^v ou de son second moment $(\tau^2)^m$ puisque par définition, on a : $\tau^v = (\tau^2)^m - (\tau^m)^2$.

L'obtention du second moment $(\tau^2)^m$ provient des équations résolues dans le calcul CFD pour les moments de l'âge fluide a . Pour exprimer les termes sources de ces équations, il faut revenir à la définition de l'âge fluide a dans sa formulation lagrangienne instantanée, c'est à dire en suivant la particule, initialement en $\underline{x} = \underline{x}_0$, de long de sa trajectoire au cours du temps t . Sa définition est ainsi donnée par l'équation 4.40.

Sous le formalisme eulérien moyenné de Code_Saturne (voir démonstration, partie 2, sous partie 4.2.3), le terme source de l'équation de $\bar{\rho}\tilde{a}$ est alors simplement la masse volumique moyenne : $\bar{\rho}$.

L'équation pour le second moment a^2 de l'âge fluide est alors simplement donné par :

$$\frac{d}{dt} [a^2(\underline{x}, t)] = 2a(\underline{x}, t) \quad (6.40)$$

En suivant le même développement que précédemment, le terme source de l'équation eulérienne moyennée pour $\bar{\rho}\tilde{a}^2$ est obtenu et il est égal à : $2\bar{\rho}\tilde{a}$.

Il est à noter qu'aucun autre terme source n'intervient dans l'équation de $\bar{\rho}\tilde{a}^2$. En effet, rattaché à une variance (celle de l'âge fluide), il serait légitime de chercher une terme dissipatif visant à diminuer la valeur de ce second moment afin de détruire la variance. En réalité, une telle dissipation ne serait pas physique puisque des particules entrant dans le domaine fluide à des âges différents *ne peuvent réduire leur écart d'âge originel*. En effet, une "vieille" particule ne peut rajeunir au contact d'une "jeune" mais peut vieillir à la même vitesse par homogénéisation.

Avec ces 2 informations sur la moyenne et la dispersion des âges dans chaque cellule (et donc chaque réacteur i par moyenne sur l'ensemble des cellules), nous obtenons l'expression des 2 moments de la DTS log-normale par :

$$\tau_i^m = \exp\left(m_i + \frac{s_i^2}{2}\right) \quad \text{et} \quad (\tau^2)_i^m = \exp\left[2\left(m_i + s_i^2\right)\right] \quad (6.41)$$

Après quelques manipulations, on obtient l'expression des paramètres m_i et s_i par :

$$s_i = \sqrt{\ln\left[\frac{(\tau^2)_i^m}{(\tau_i^m)^2}\right]} \quad \text{et} \quad m_i = \ln\left[\frac{(\tau_i^m)^2}{\sqrt{(\tau^2)_i^m}}\right] \quad (6.42)$$

La détermination du second moment $(\tau^2)^m$ passe par le calcul de l'âge moyen en sortie du réacteur $(a_s)^m$ et de son second moment associé $(a_s^2)^m$:

$$(a_s)^m = (a_e)^m + \tau^m \quad (6.43)$$

$$(a_s^2)^m = (a_e^2)^m + (\tau^2)^m + 2(a_e)^m \tau^m \quad (6.44)$$

On tire τ^m et $(\tau^2)^m$ de ces relations en notant que les moments de l'âge en entrée de chaque réacteur sont calculés grâce aux débits masses échangés entre réacteurs qui transportent les moments de l'âge fluide a issus du calcul CFD à l'échelle du réacteur. On écrit alors pour chaque réacteur i :

$$(a_{e,i})^m = \frac{1}{\sum_{j=1}^{Nb_{reac}} (Fc_{ji} + Fd_{ji})} \sum_{j=1}^{Nb_{reac}} (Fc_{ji} + Fd_{ji}) a_i^m \quad (6.45)$$

$$(a_{e,i}^2)^m = \frac{1}{\sum_{j=1}^{Nb_{reac}} (Fc_{ji} + Fd_{ji})} \sum_{j=1}^{Nb_{reac}} (Fc_{ji} + Fd_{ji}) (a_i^2)^m \quad (6.46)$$

L'expression finale pour le second moment $(\tau^2)^m$ dans chaque réacteur est :

$$(\tau^2)^m = (a_s^2)^m - (a_e^2)^m - 2(a_e)^m \tau^m \quad (6.47)$$

On détermine ainsi entièrement les caractéristiques de la loi log-normale présumée comme DTS physiquement admissible à travers l'expression de ces 2 paramètres m, s .

6.6 Résolution numérique du TRN à DTS

6.6.1 Résolution Monte-Carlo

Pour résoudre la dépendance des émissions de NO et de CO à la DTS de chaque réacteur pour l'ensemble du réseau, on emploie une méthode Monte-Carlo avec une seule variable : le temps de séjour τ_i de chaque réacteur i . Cette approche est envisageable car cette variable est indépendante au sein des différentes entités calculées (réacteurs).

Nous effectuons donc N_{dts} tirs avec des valeurs différentes des temps de séjour dans chaque réacteur i et nous obtenons une série de résultats $Y_{NO}^{(l)}$ et $Y_{CO}^{(l)}$ pour l'ensemble des tirs réalisés. Une moyenne simple arithmétique fournit la valeur moyenne de $Y_{NO,i}^m$ et $Y_{CO,i}^m$ dans chaque réacteur i du réseau à l'issu des N_{dts} tirs Monte-Carlo :

$$Y_{NO,i}^m = \frac{1}{N_{dts}} \sum_{l=1}^{N_{dts}} Y_{NO,i}^{(l)} \quad \text{et} \quad Y_{CO,i}^m = \frac{1}{N_{dts}} \sum_{l=1}^{N_{dts}} Y_{CO,i}^{(l)} \quad (6.48)$$

L'idée est d'obtenir le temps de séjour τ_i de chaque réacteur i au i^{me} tir en projetant des nombres aléatoirement générés entre 0 et 1 sur la loi *cumulée* (courbe monotone croissante) de la *DTS*. Comme l'illustre la figure 6.20, on récupère ainsi un vecteur de grandeurs dont les valeurs sont distribuées suivant la loi imposée.

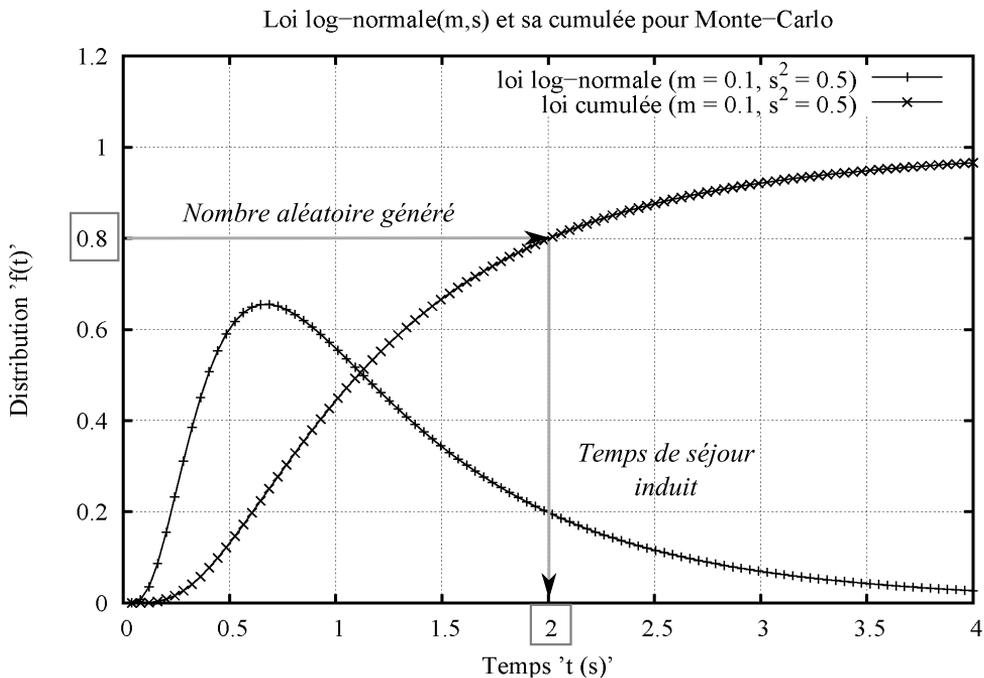


FIGURE 6.20 – Obtention du temps de séjour par projection sur la cumulée de la DTS

6.6.2 Génération de nombres aléatoires

En résumé, pour chaque tir Monte-Carlo, nous engendrons un vecteur de Nb_{reac} nombres aléatoires dont les valeurs de sortie respectent la densité de probabilité imposée. Le générateur de nombres "aléatoires distribués" que nous utilisons (code Fortran "zuffali.f" librement disponible sur internet) nous donne accès à 2 formes de densité de probabilité *réduite* : la loi *exponentielle réduite* (le temps de séjour τ vaut 1) et la loi *normale centrée réduite* (la moyenne m vaut 0 et la variance s vaut 1). Leurs expressions sont :

– Loi exponentielle réduite :

$$\phi(\zeta) = e^{-\zeta} \quad \text{avec} \quad \zeta = \frac{t}{\tau} \quad (6.49)$$

– Loi normale centrée réduite :

$$\phi(\zeta) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{\zeta^2}{2}} \quad \text{avec} \quad \zeta = \frac{\ln(t) - m}{s} \quad (6.50)$$

En notant comme ici $\phi(\zeta)$, la loi de densité de probabilité réduite choisie, on obtient sa loi cumulée par :

$$\Phi(x) = \int_0^x \phi(\zeta) d\zeta \quad (6.51)$$

Dès lors, on en déduit respectivement les lois cumulées pour l'exponentielle réduite et la normale centrée réduite :

$$\Phi(x) = 1 - e^{-x} \quad (6.52)$$

$$\Phi(x) = \frac{1}{2} \left[1 + \operatorname{erf} \left(\frac{x}{\sqrt{2}} \right) \right] \quad (6.53)$$

Après projection du nombre aléatoire y sur la fonction cumulée $y = \Phi(x)$ comme l'illustre la figure 6.20, on obtient par bijection une seule grandeur x dont la distribution possède la forme imposée.

Si l'obtention de x ne pose pas de difficultés majeures pour la loi exponentielle réduite cumulée (fonction inverse $x = \Phi^{-1}(y) = -\ln(1 - y(x))$), il n'en est pas de même pour la cumulée de la loi normale réduite centrée. Le programme "zuffali.f" emploie alors une méthode *Box-Muller* (William et al., 1992) pour disposer de nombres aléatoires distribués selon une loi normale centrée réduite.

En utilisant des nombres aléatoires x distribués selon une loi réduite, on peut l'appliquer à tous les réacteurs du réseau. Il convient ensuite d'assigner à chaque réacteur sa DTS propre notée $E(t)$ par un simple changement de variable $t = g(x)$ pour disposer du temps de séjour $\tau = t$ qu'il supportera pour ce tir.

Ce changement de variable requiert de rappeler que la loi cumulée fournit par définition la probabilité de trouver la variable X entre 0 (pour ces fonctions exponentielles nécessairement positives) et la valeur discrète x . On l'écrit également $P(\zeta < x)$:

$$\Phi(x) = \int_0^x \phi(\zeta) d\zeta = P(X \leq x) \quad (6.54)$$

Afin d'imposer une DTS exponentielle sous la forme normalisée $E(t) = e^{-t/\tau}/\tau$, le changement de variable à effectuer est : $X = \tau T$ avec X suivant une loi exponentielle réduite. En effet, on a dans ce cas :

$$\Phi(x) = \int_0^x e^{-\zeta} d\zeta = P(X \leq x) \quad (6.55)$$

$$\Phi(x) = P(\tau T \leq x) = P\left(T \leq \frac{x}{\tau}\right) = F\left(\frac{x}{\tau}\right) \quad (6.56)$$

Par définition, la densité de probabilité $\phi(x)$ est la dérivée de la loi cumulée $\Phi(x)$:

$$\phi(x) = \Phi'(x) = \frac{d}{dx} \left[F\left(\frac{x}{\tau}\right) \right] = \frac{1}{\tau} F'\left(\frac{x}{\tau}\right) = \frac{1}{\tau} \phi\left(\frac{x}{\tau}\right) \quad (6.57)$$

Finalement, on obtient bien la DTS exponentielle normalisée $E(t)$:

$$E(t) = \frac{1}{\tau} \phi\left(\frac{t}{\tau}\right) = \frac{1}{\tau} e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (6.58)$$

Si la forme choisie pour la DTS est la loi log-normale à 2 paramètres m, s , la forme normalisée $E(t)$ est alors donnée par :

$$E(t) = \frac{1}{s t \sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(t) - m}{s}\right)^2\right] \quad (6.59)$$

Le changement de variable pour revenir à une forme normalisée est : $X = e^{sT+m}$ avec X suivant une loi normale centrée réduite. En effet, on a dans ce cas :

$$\Phi(x) = \int_0^x \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{\zeta^2}{2}} d\zeta = P(X \leq x) \quad (6.60)$$

$$\Phi(x) = P\left(e^{sT+m} \leq x\right) = P\left(T \leq \frac{\ln(x) - m}{s}\right) = F\left(\frac{\ln(x) - m}{s}\right) \quad (6.61)$$

Par définition, la densité de probabilité $\phi(x)$ est la dérivée de la loi cumulée $\Phi(x)$:

$$\phi(x) = \Phi'(x) = \frac{d}{dx} \left[F\left(\frac{\ln(x) - m}{s}\right) \right] = \frac{1}{s x} F' \left(\frac{\ln(x) - m}{s} \right) = \frac{1}{s x} \phi \left(\frac{\ln(x) - m}{s} \right) \quad (6.62)$$

Finalement, on obtient bien la DTS exponentielle normalisée $E(t)$:

$$E(t) = \frac{1}{s t} \phi \left(\frac{\ln(t) - m}{s} \right) = \frac{1}{s t \sqrt{2\pi}} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(t) - m}{s} \right)^2 \right] \quad (6.63)$$

Ainsi, si les nombres aléatoires générés suivent les lois réduites $\phi(\zeta)$ alors les DTS normalisées $E(t)$ qui sont imposées dans chaque réacteur seront correctement représentées par l'ensemble des tirs Monte-Carlo sur les temps de séjour.

Nous nous sommes donc assurés de la convergence des nombres aléatoires distribués vers la DTS imposée pour un nombre croissant de tirs Monte-Carlo (10, 100 et 1 000) sur l'ensemble des réacteurs comme l'illustrent les figures 6.21 et 6.22.

Bien que nous ayons également testé le générateur de nombres semi-aléatoire distribués sur un grand nombre de tirs (10 000 au maximum), l'amélioration des résultats en termes de représentation de la DTS n'est plus vraiment pertinente au delà de 1 000 tirs. Comme le *temps de calcul est linéaire avec le nombre de tirs Monte-Carlo*, il y a peu d'intérêt à calculer l'ensemble du réseaux de réacteurs turbulents au delà d'un millier de tirs.

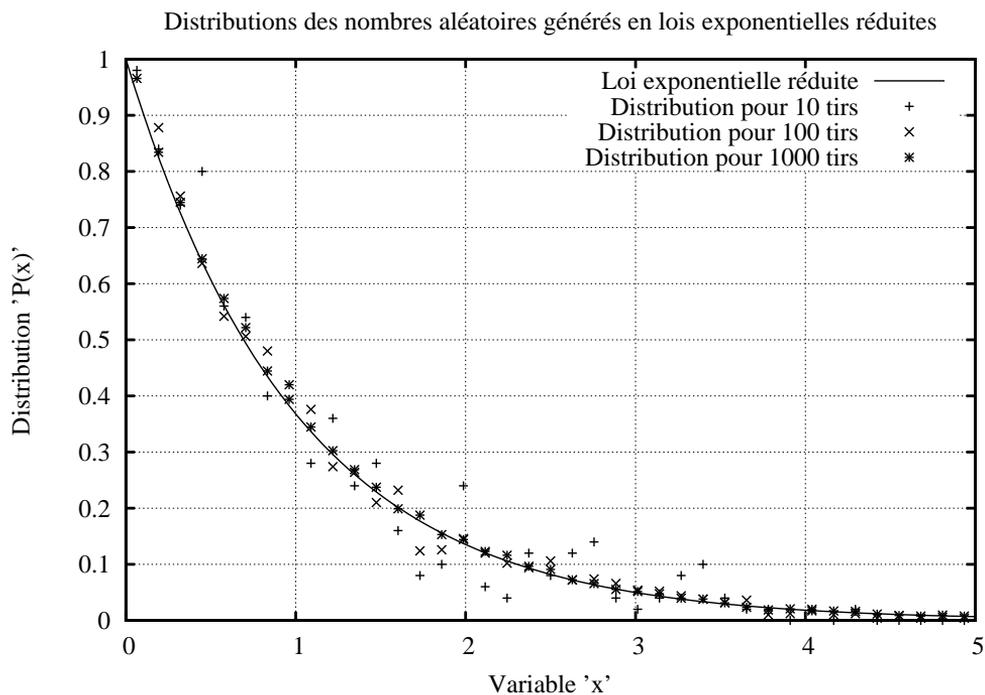


FIGURE 6.21 – Convergence des nombres générés vers la loi exponentielle réduite

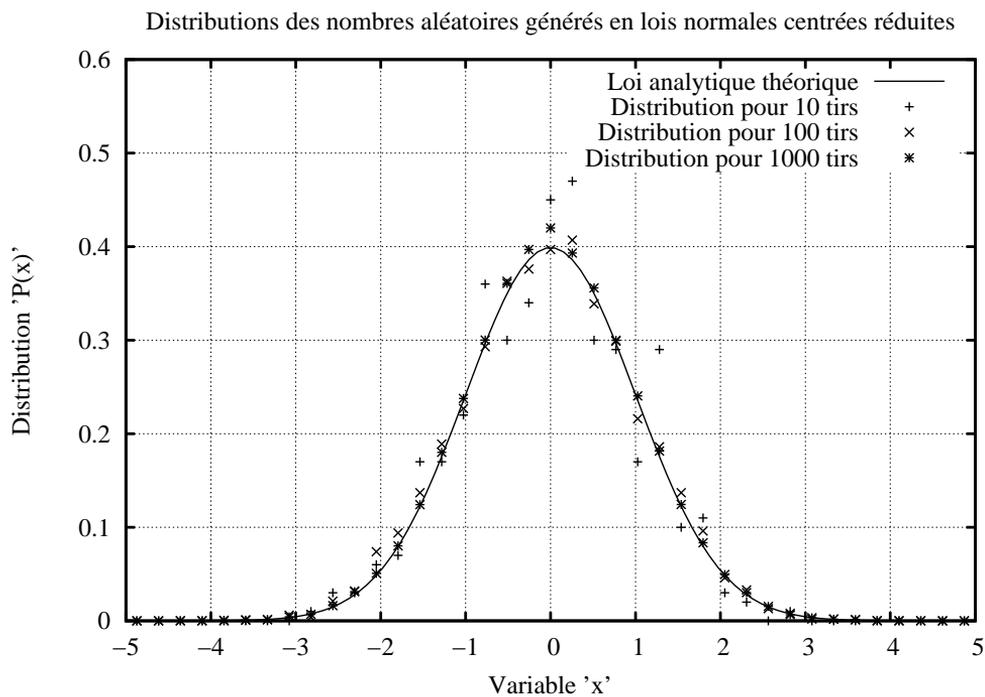


FIGURE 6.22 – Convergence des nombres générés vers la loi normale réduite centrée

Chapitre 7

Amélioration du modèle CFD

7.1 Représentation des états turbulents

Que ce soit dans le cadre de la modélisation CFD ou celle en réseaux de réacteurs turbulents, la représentation des états turbulents se traduit par la forme présumée pour $P(z, Y_f)$ ou plutôt $P(z, c)$.

Les études sur la combustion partiellement prémélangée menées à EDF depuis plusieurs années ont conduit au développement d'une *pdf* formée par 4 distributions de Dirac pour la dernière déclinaison du modèle LWP (Robin, 2007). Ce choix, justifié pour des raisons de temps de calcul, implique également certains désavantages liés au positionnement de ces états discrets et l'absence d'informations hors de ces points. Nous en présenterons les conséquences dans la troisième partie lors de l'analyse des résultats. Les moments résolus pour la fraction de mélange (z) et la variable réactive (ici Y_f) permettent d'envisager d'autres formes de *pdf* présumée afin de combler certaines lacunes du modèle LWP. L'enjeu est aussi d'apporter ces améliorations en conservant le travail de Robin (2007) sur les termes de dissipation pour les variances associées.

Dans la modélisation en réseaux de réacteurs turbulents, on dégénère l'écoulement et cette simplification entraîne une légère perte d'information. Comme cette modélisation couple une méthode à *pdf* avec des tabulations à chimie détaillée, elle est aisément transposable à l'ensemble des cellules du maillage CFD. Dès lors, le développement de ces nouveaux modèles sera exclusivement apporté à la modélisation CFD et nous délaisserons la modélisation en réseaux de réacteurs turbulents pour inclure directement la formation des polluants dans Code_Saturne.

Dans l'optique d'améliorer la représentation des états turbulents à travers la forme de la *pdf*, nous évaluons tout d'abord les défauts de la *pdf* à 4 pics de Dirac du modèle LWP. Nous rappelons que la construction de cette *pdf* définit 2 valeurs de z situé autour de la moyenne \bar{z} suivant la valeur de la variance \bar{z}'^2 .

Elle détermine ensuite 2 états Y_f sur chaque z dont l'avancement $c|z$ conditionné par z est donné par :

$$c|z = \frac{Y_f^{max}(z) - Y_f(z)}{Y_f^{max}(z) - Y_f^{min}(z)} \quad (7.1)$$

Fonction du domaine \mathcal{D} de définition de la pdf (voir figure 4.1), les valeurs extrêmes de $Y_f|z$ sont définies par :

$$Y_f^{max}(z) = z \quad \text{et} \quad Y_f^{min}(z) = \max\left(0, \frac{z - z_{st}}{1 - z_{st}}\right) \quad (7.2)$$

Les lacunes de cette *pdf* portent principalement sur :

1. La représentation du terme source local $\dot{\omega}$ et des états en $c|z$. En effet, le modèle LWP s'appuie sur une réaction unique dont la vitesse est donnée par une loi d'Arrhenius (équation 4.3). Les coefficients u_0/d , T_a et T^* sont arbitraires et fixés pour le cas étudié (ex : combustion du CH_4 à 1 bar). Rien ne permet d'affirmer a-priori que le calage fourni représente bien la réalité du terme source chimique. De plus, la *pdf* $P_z(c)$ conditionnée en z ne dispose d'informations qu'en 2 états localisés par 2 distributions de Dirac.
2. La représentation des états réactifs en z et leur mélange. En effet, le modèle LWP ne comporte que 2 états discrets en z sur lesquels sont calculées toutes les grandeurs physiques. La localisation de ces états est donc prépondérante et ne permet pas de représenter les phénomènes réactifs situés autour de la moyenne lorsque la variance de z est forte.

Ainsi, toutes les formes proposées pour $P(z, c)$ présentent une *description discrète des états* z et une *description continue des états* en $c|z$. Pour ce faire, on introduit $P(c|z)$, la *pdf* de c conditionnée en z qui est définie par la relation suivante :

$$P(z, c) = P(z) \cdot P(c|z) \quad (7.3)$$

La description discrète des états en z se traduit par l'emploi de distributions de Dirac $\delta(z - z_i^*)$ ici centré sur z_i^* . En notant α_i l'amplitude des N_β pics de Dirac en z , on écrit :

$$P(z, c) = \sum_{i=1}^{N_\beta} \alpha_i \delta(z - z_i) P_z(c|z) = \sum_{i=1}^{N_\beta} \alpha_i P_z(c|z_i) \quad (7.4)$$

Par conséquent, le travail de modélisation vise à définir la position z_i et l'amplitude α_i des états discrets en z ainsi que la forme continue de $P(c|z)$.

7.1.1 Amélioration de la *pdf* en $c|z$

Les travaux de Bray et al. (2006) mettent en avant la nécessité de considérer les effets de cinétique non infiniment rapide pour la combustion prémélangée. Ils comparent les taux de réaction pour différentes formes de $P(c)$ (distributions de Dirac ou fonction β) à des résultats DNS. Pour le cas limite des flammelettes ($S_c = \widetilde{c}''^2 / (\widetilde{c}(1 - \widetilde{c})) = 1$), ils montrent que la forme de la *pdf* n'a plus d'influence et que les 3 termes sources convergent vers le même résultat. En conclusion et pour le cas général, ils démontrent que les états intermédiaires en c peuvent être correctement prédits par les propriétés intrinsèques des flammes laminares non-étirées.

Partant de ces constats et de la philosophie de la méthode FPI (Gicquel, 1999), nous avons réalisé des calculs de flammes laminares à l'aide du programme PREMIX (Kee et al., 1989) en vue d'évaluer un terme source chimique local $\dot{\omega}$ réaliste remplaçant avantageusement la loi d'Arrhénius du modèle LWP.

En partant de la stoechiométrie pour nos différents mélanges réactifs ($CH_4 - Air$, $C_3H_8 - Air$ et *Gaz naturel - Air*), nous balayons le domaine d'inflammabilité par des calculs de flammes prémélangées pour 150 valeurs de z . Pour chaque z et à chaque x_j tabulé (flamme laminaire 1D), on calcule l'avancement c et le terme source chimique $\dot{\omega}(c)$.

A ce moment, il convient de rappeler que la dernière version du modèle LWP développé par Robin (2007) s'appuie sur une description de la *pdf* dans le domaine \mathcal{D} du plan (Y_f, z) . Les nouvelles fermetures proposées (Mura et al., 2007) sont donc valables pour ce couple de variables où Y_f est choisie comme variable d'avancement.

Bien que l'emploi de Y_f comme variable d'avancement soit très pédagogique (consommation du combustible, taux d'imbrûlés en sortie), nous savons que ce choix est inopportun lorsque l'on utilise une cinétique détaillée pour les raisons suivantes :

1. La cinétique continue à progresser bien après la dégradation du combustible.
2. La loi d'Arrhénius (équation 4.3) induit un terme source du premier ordre par rapport à l'avancement c qui rend le modèle LWP 4 pics extrêmement sensible à la position du pic proche de $c = 1$. Comme l'explique Robin (2007) dans les annexes de sa thèse, le clipping de $\widetilde{c}''^2|z$ à une valeur limite (typiquement *segregmax* = 0.99) permet d'assurer la combustion en imposant un terme source non nul.
3. Une non prise en compte du CO dans le terme source.

Dans le cadre de cette étude sur les flammes laminares prémélangées (1D) et en vue de conserver la dernière version du modèle LWP développée par (Robin, 2007), les travaux de Robin et Plion (article à paraître dans l'Académie des sciences) visent à définir les critères que doit respecter une variable d'avancement :

- Monotonie à la traversée de la flamme (définition d'une variable d'avancement).
- Prise de valeurs bornées par le domaine $\mathcal{D}(z, Y_f)$.

- Représentativité du taux de dégagement de chaleur dans le fluide réactif.
- Définition linéairement liée à la fraction massique des espèces majoritaires "combustibles" de manière à écrire aisément son équation de transport.

Ces contraintes conduisent à la construction de Y_h , nouvelle variable d'avancement basée sur les PCI (Pouvoir Calorifique Inférieur en MJ/kg) pour les espèces combustibles. On définit donc Y_h comme la combinaison linéaire des fractions massiques de K espèces "combustibles", pondérées par le ratio de leur pci_k sur celui du combustible (fuel) pci_f :

$$Y_h = \sum_{k=1}^K \frac{pci_k}{pci_f} Y_k \quad (7.5)$$

Pour le méthane, CH_4 , l'ensemble Ω_K des espèces choisies est composé du CH_4 et du CO ($K = 2$). Pour le gaz naturel, on considère en plus les espèces bicarbonées ($K = 7$) : $\Omega_K = \{CH_4, C_2H_6, C_3H_8, C_2H_2, C_3H_4, CO, H_2\}$. La présence du H_2 pose néanmoins de légers problèmes de monotonie à travers la flamme (effet de Lewis non unitaire).

Pour le mélange *Gaz naturel - Air* à 15 bars, on présente les fractions massiques de ces espèces et le Y_h en fonction de z dans les gaz brûlés (dernier point de la flamme laminaire) dans la figure 7.1.

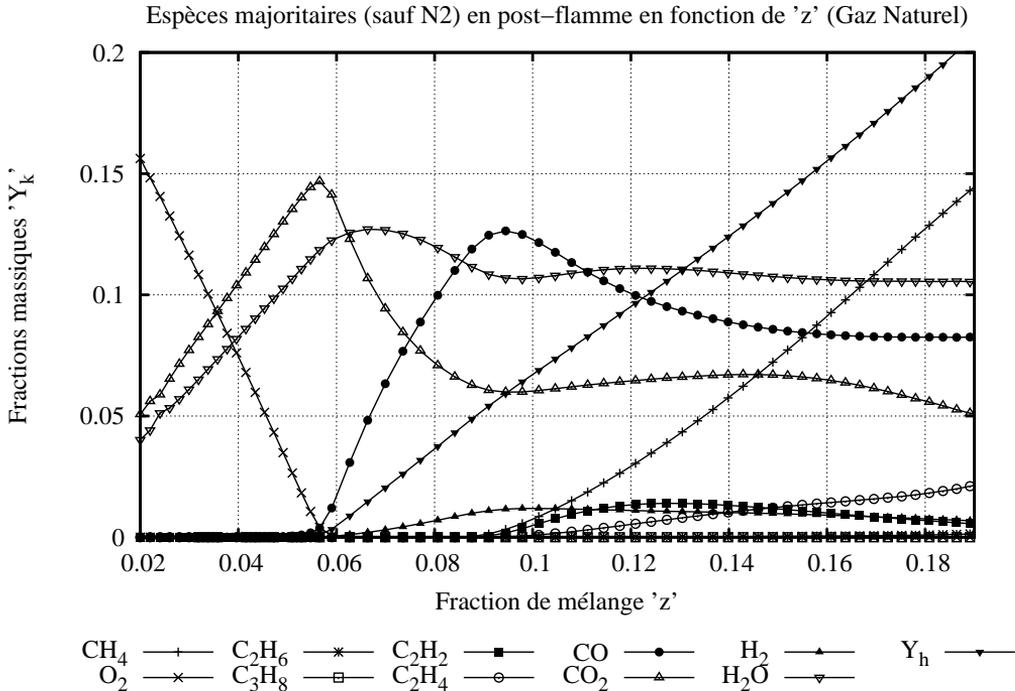


FIGURE 7.1 – *Espèces principales (sauf N₂) en post-flamme pour le gaz naturel*

L'analyse de la figure 7.1 illustre en premier lieu la complexité des réactions secondaires apparaissant en riche pour le gaz naturel (équilibre $CO - CO_2$, évolution des C_xH_y). Comme la variable Y_h possède son point d'inflexion en $z = z_{st}$ (ici $z_{st} = 0,0578$ pour le gaz naturel), on peut appliquer cette variable au modèle LWP sans restrictions puisque Y_h reste bien bornée par le domaine $\mathcal{D}(z, Y_f)$.

L'utilisation de Y_h présente de nombreux avantages et notamment celui d'offrir un taux de réaction du second ordre $\omega_z(c(Y_h))$ par rapport à c , plus représentatif de la cinétique chimique. Du fait de la définition de Y_h (équation 7.5), la définition de $\omega(Y_h)$ est :

$$\omega(Y_h) = \sum_{k=1}^K \frac{pci_k}{pci_f} \dot{\omega}_k \quad (7.6)$$

Dans Code_Saturne, on choisit de représenter le terme source $\omega_z(c(Y_h))$ de chaque z par une fonction $\beta_z(\bar{c}, \bar{c}''^2)$ dont les paramètres sont tabulés en fonction de z . Ainsi, pour chaque z , la forme de ces fonctions β est donnée par :

$$\beta_z(c(Y_h)) = d_{Y_h} c^{a_{Y_h}} (1 - c)^{b_{Y_h}} \quad (7.7)$$

Les figures 7.2 et 7.3 illustrent la représentation du terme source par les fonctions β .

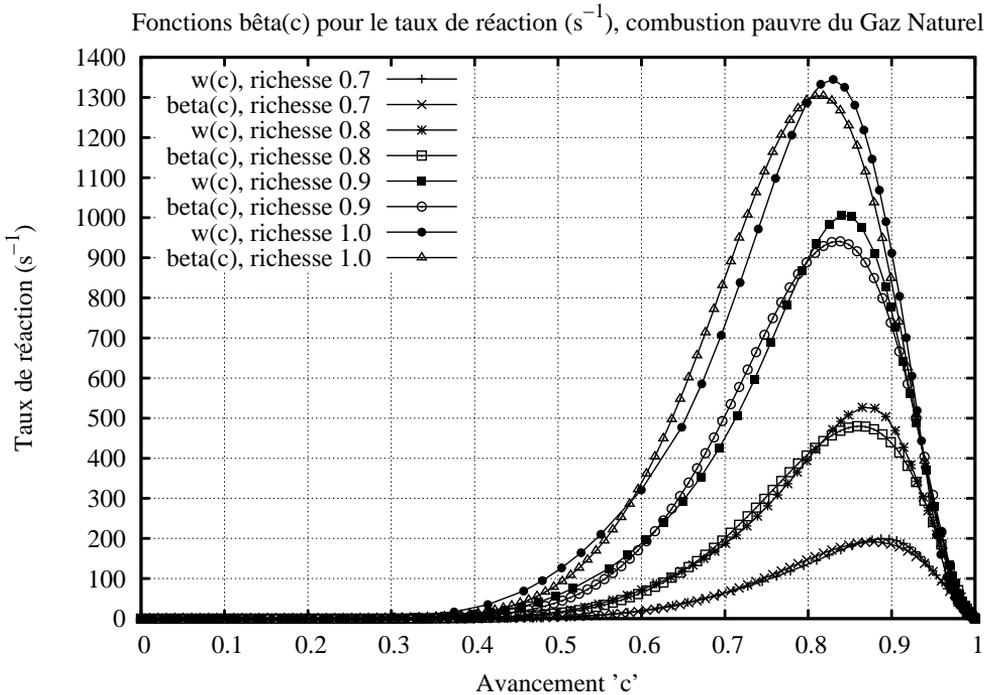


FIGURE 7.2 – Fonctions $\beta(c)$ ajustées sur $\omega_z(c)$ en pauvre (Gaz Naturel)

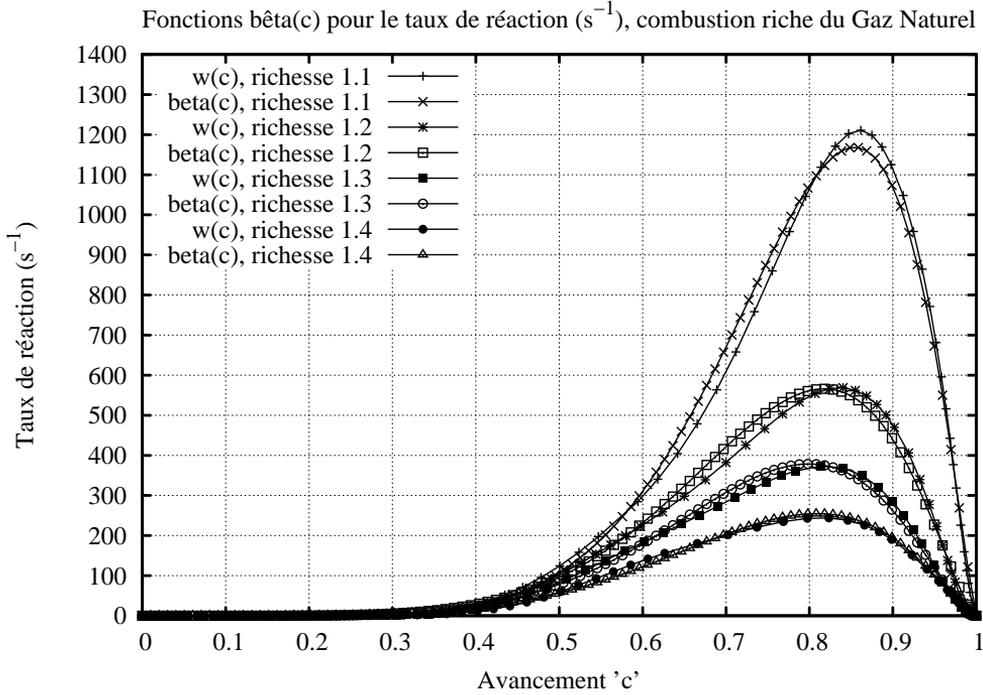


FIGURE 7.3 – Fonctions $\beta(c)$ ajustées sur $\omega_z(c)$ en riche (Gaz Naturel)

Afin de représenter au mieux le terme source $\omega_z(c)$, nous ajustons les paramètres a_z, b_z, d_z à l'aide d'une méthode des *moindres carrés* (voir détails en Annexe D). Pour chaque z , on minimise la fonctionnelle J définie sur les N_{pts} points du calcul PREMIX qui ont une abscisse x_j et un avancement c_j :

$$J = \sum_{j=1}^{N_{pts}} \left(\ln[\omega_z(c_j)] - \ln[\beta_z(c_j)] \right)^2 \quad \text{avec} \quad \beta_z(c_j) = d_{Y_h} c_j^{a_{Y_h}} (1 - c_j)^{b_{Y_h}} \quad (7.8)$$

La méthode des moindres carrés s'appliquant aux logarithmes des 2 fonctions, nous ne considérons que les valeurs $\omega_z(c_j)$ supérieures à 10 % du $\omega_z(c_j)$ maximum en vue d'obtenir une optimisation précise.

De plus, en traitant à part les deux cas limites où $S_c \rightarrow 0$ (dégénérescence en 1 pic sur la moyenne $\bar{c}|z$) où on calcule $\omega_z(c(Y_h))$ sur l'état moyen et le cas où $S_c \rightarrow 1$ (dégénérescence en 2 pic sur $c|z = 0$ et $c|z = 1$), on peut intégrer le terme source par l'association de 2 fonctions beta : une pour la pdf $\bar{P}(c|z)$ et une pour $\omega_z(c(Y_h))$.

En effet, l'expression du terme source chimique devient :

$$\bar{\omega}_z(c) = \int_0^1 d_{Y_h} c^{a_{Y_h}} (1 - c^{b_{Y_h}}) \bar{P}(c|z) dc \quad (7.9)$$

La figure 7.4 illustre la variation de ces paramètres avec z .

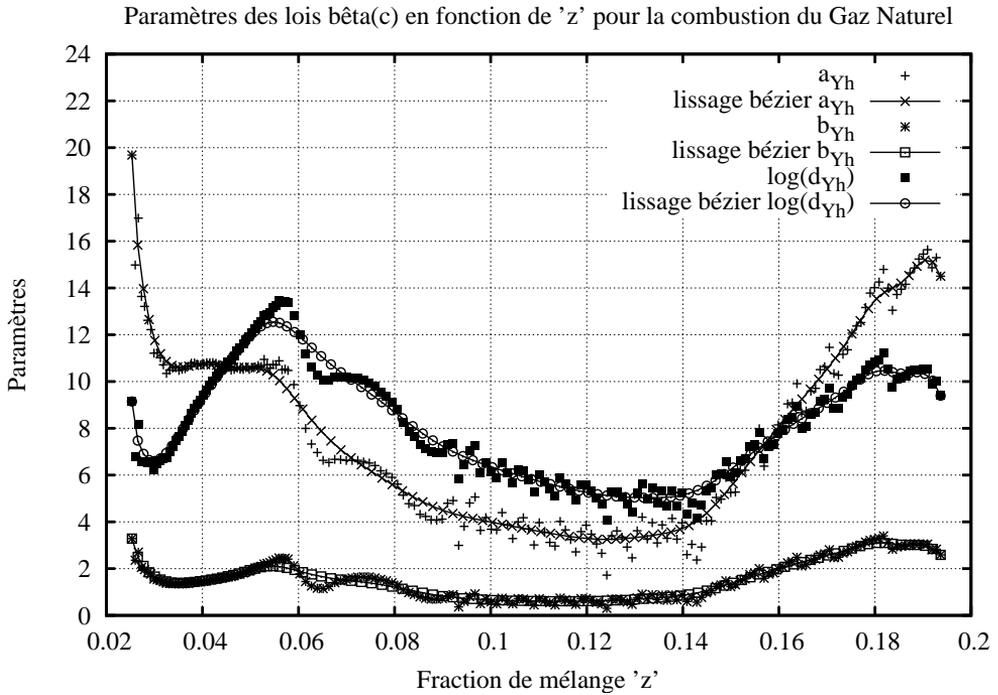


FIGURE 7.4 – Variation des paramètres des fonctions $\beta(c)$ avec z (Gaz Naturel)

Pour passer de $\dot{\omega}(Y_h)$ à $\dot{\omega}(c)$, il faut revenir à la définition de l'avancement c en fonction de Y_h et par simple linéarité on a :

$$c = \frac{Y_h^0 - Y_h}{Y_h^0 - Y_h^{eq}} \quad \text{et} \quad \dot{\omega}(c) = \frac{-\dot{\omega}(Y_h)}{Y_h^0 - Y_h^{eq}} \quad (7.10)$$

Et enfin :

$$\overline{\dot{\omega}_z}(c(Y_h)) = \frac{dY_h}{\mathcal{B}(a_{pdf}, b_{pdf})} \int_0^1 c^{a_{Y_h} + a_{pdf}} (1 - c^{b_{Y_h} + b_{pdf}}) dc \quad (7.11)$$

La norme de la fonction bêta est notée $\mathcal{B}(a_{pdf}, b_{pdf})$ et permet de la normaliser en pdf :

$$\mathcal{B}(a_{pdf}, b_{pdf}) = \int_0^1 c^{a_{pdf}} (1 - c^{b_{pdf}}) dc \quad (7.12)$$

L'intégration des termes sources de production de variance de $\widetilde{Y_h''^2}$ est réalisée de la même manière. Un algorithme d'intégration des fonction β est développé en utilisant la propriété de récurrence des fonctions β (voir détails en Annexe E). L'ensemble de ce travail sur $P(c|z)$ ne traite qu'un état en z et il faut maintenant définir la pdf en z .

7.1.2 Amélioration de la *pdf* en z

L'ensemble des modèles proposés ici pour $P(z)$ inclut un modèle de micromélange (terme dissipatif de l'équation de transport de \widetilde{z}''^2) qui est équivalent au modèle IEM. En effet, la fermeture du terme source de dissipation χ pour les fluctuations de scalaire passif, ici z , est une fermeture par relaxation linéaire qui fait tendre la variance vers 0 en un temps caractéristique proportionnel au temps turbulent k/ε .

◦ La première *pdf* en z proposée n'est autre que la distribution de Curl modifiée à 2 *pics de Dirac* en z du modèle LWP (présenté dans la seconde partie, sous-partie 2.1.2).

On écrit alors la position des 2 z en fonction de la variance \widetilde{z}''^2 par la relation :

$$z_1 = \widetilde{z} - \sqrt{\frac{1-\alpha}{\alpha}} \widetilde{z}''^2 \quad \text{et} \quad z_2 = \widetilde{z} + \sqrt{\frac{\alpha}{1-\alpha}} \widetilde{z}''^2 \quad (7.13)$$

Le coefficient α , amplitude du pic en z_1 est déterminé par l'hypothèse de *Curl modifiée* pour présenter le même moment d'ordre 3 qu'une fonction β ayant les deux mêmes premiers moments (détails en Annexe A).

◦ La seconde *pdf* proposée comporte 3 *pics de Dirac* en z et respecte au moins les 2 premiers moments résolus pour z . Une première définition, triviale, est fonction de la ségrégation en z nommée : $S_z = \widetilde{z}''^2 / (\widetilde{z}(1-\widetilde{z}))$.

On place ainsi 2 pics aux extrémités du domaine calculé et le troisième sur la moyenne :

$$z_1 = z_{min} \quad ; \quad z_2 = \widetilde{z} \quad \text{et} \quad z_3 = z_{max} \quad (7.14)$$

L'amplitude α_i des 3 pics est donné par (détails en Annexe F) :

$$\alpha_1 = (1-\widetilde{z})S_z \quad ; \quad \alpha_2 = 1-S_z \quad \text{et} \quad \alpha_3 = \widetilde{z}S_z \quad (7.15)$$

Pour respecter le troisième moment, on propose une seconde définition pour laquelle on calcule les valeurs de z adimensionnées et normalisées sur le domaine $[z_{min}, z_{max}]$:

$$\widetilde{Z} = \frac{\widetilde{z} - z_{min}}{z_{max} - z_{min}} \quad \text{et} \quad \widetilde{Z}''^2 = \frac{\widetilde{z}''^2}{(z_{max} - z_{min})^2} \quad (7.16)$$

Pour égaler celui de la fonction β associée, le troisième moment centré doit vérifier la définition suivante :

$$\widetilde{Z}''^3 = 2\widetilde{Z}''^2 \frac{1-2\widetilde{Z}}{\widetilde{Z}(1-\widetilde{Z}) + \widetilde{Z}''^2} \quad (7.17)$$

On recalcule alors les moments non normalisés d'ordre 3 :

$$\widetilde{z}''^3 = \widetilde{Z}''^3 (z_{max} - z_{min})^3 \quad \text{et} \quad \widetilde{z}^3 = \widetilde{z}^3 + 3\widetilde{z}\widetilde{z}''^2 + \widetilde{z}''^3 \quad (7.18)$$

On obtient enfin la position des pics en conservant les pics 1 et 3 sur les extrémités du domaine calculé en z et en plaçant le pic 2 de manière à respecter le troisième moment :

$$\bar{z}_1 = z_{min} \quad ; \quad \bar{z}_2 = \frac{\bar{z}^3 - \bar{z}^2 (z_{min} + z_{max}) + \bar{z} z_{min} z_{max}}{\bar{z}^2 - \bar{z} (z_{min} + z_{max}) + z_{min} z_{max}} \quad \text{et} \quad \bar{z}_3 = z_{max} \quad (7.19)$$

L'amplitude des 3 pics est alors donnée par :

$$\alpha_1 = + \frac{\bar{z} z_{max} + z_2 (\bar{z} - z_{max}) - \bar{z}^2}{(z_{max} - z_{min}) (z_{min} - z_2)} \quad (7.20)$$

$$\alpha_3 = - \frac{\bar{z} z_{min} + z_2 (\bar{z} - z_{min}) - \bar{z}^2}{(z_{max} - z_{min}) (z_{max} - z_2)} \quad (7.21)$$

$$\alpha_2 = 1 - \alpha_1 - \alpha_3 \quad (7.22)$$

o La troisième et dernière forme de *pdf* proposée comporte 4 pics de Dirac en z et respecte les 2 premiers moments résolus pour z . Elle s'exprime encore en fonction de la ségrégation en z : $S_z = \bar{z}''^2 / (\bar{z} (1 - \bar{z}))$.

Pour déterminer les 8 paramètres (positions et amplitudes), on place tout d'abord 2 pics sur les états initiaux non perturbés et extrêmes du domaine calculé en z . On obtient 3 relations supplémentaires grâce à la normalisation de la *pdf* (somme unitaire des amplitudes) et aux 2 premiers moments résolus pour z . Il reste 3 indéterminations à lever à l'aide d'un modèle par micromélange. Il est alors proposé de :

1. Supposer une proportion v' de fluides non mélangés placés aux extrémités et qui auront comme amplitudes respectives $v' (1 - \bar{z})$ et $(1 - v') (1 - \bar{z})$
2. Répartir la proportion $1 - v'$ de fluide mélangé entre du fluide provenant de l'entrée à z nul (oxydant) et du fluide provenant de l'entrée à z unitaire (combustible). On souhaite également que les amplitudes de ces pics se rapprochent quand les pics tendent à se rejoindre (à la moyenne, $S_z \rightarrow 0$) et qu'elles soient dans la proportion des pics associés aux états non mélangés quand elles s'écartent au maximum ($S_z \rightarrow 1$). Le pic pauvre aura donc pour amplitude $(1 - v') \alpha$ et le pic riche $(1 - v') (1 - \alpha)$ avec α variant linéairement entre 1/2 et $1 - \bar{z}$ en fonction de S_z ou de S_z^2 par la relation :

$$\alpha = \frac{1}{2} + S_z \left(\frac{1}{2} - \bar{z} \right) \quad \text{ou} \quad \frac{1}{2} + S_z^2 \left(\frac{1}{2} - \bar{z} \right) \quad (7.23)$$

3. Positionner les pics partiellement mélangés (respectivement $z_2 = \bar{z} - a$ et $z_3 = \bar{z} - b$) entre la borne représentant leur état d'origine et la moyenne en fonction de S_z . L'écart à la moyenne peut alors être proportionnel à S_z ou à sa racine carrée et se rapproche d'un écart type. La condition serait surdéterminante si elle était appliquée aux positions des 2 pics mélangés. En conséquence, on choisit d'appliquer

l'hypothèse au pic "pauvre" si l'écoulement est "pauvre" en moyenne et réciproquement. En réalité, on compare la moyenne à 0,5. L'autre pic est alors déterminé à partir de la condition sur la moyenne :

$$\bar{z} \leq \frac{1}{2} \Rightarrow a = \sqrt{S_z} \bar{z} \text{ ou } S_z \bar{z} \text{ et } b = \frac{\alpha}{1-\alpha} a \quad (7.24)$$

$$\bar{z} \geq \frac{1}{2} \Rightarrow b = \sqrt{S_z} (1-\bar{z}) \text{ ou } S_z (1-\bar{z}) \text{ et } a = \frac{1-\alpha}{\alpha} b \quad (7.25)$$

4. Déterminer l'amplitude v' commune aux états non mélangés grâce à la condition sur la variance de z :

$$v' = \frac{\bar{z}''^2 - a.b}{\bar{z}(1-\bar{z}) - a.b} \quad (7.26)$$

On constate que cette *pdf* en z est toujours réalisable (i.e. les pics sont positionnés à l'intérieur du domaine et leur amplitude est positive ou nulle). De même, la variation des paramètres est continue en fonction des moments résolus de z (C_0 et non C_1 autour de la valeur 1/2 pour la moyenne). Les états mélangés n'ayant pas à représenter la totalité de la variance sont moins écartés que dans le cas de la distribution de Curl. Par conséquent, quand la moyenne est dans le domaine d'inflammabilité, on dispose d'une meilleure représentation des phénomènes physiques existant à sa proximité.

En résumé, pour cette *pdf* à 4 pics de Dirac en z respectant \bar{z} et \bar{z}''^2 , on a :

$$z_1 = z_{min} \text{ avec } \alpha_1 = v' (1-\bar{z}) \quad (7.27)$$

$$z_2 = \bar{z} - a \text{ avec } \alpha_2 = (1-v') \alpha \quad (7.28)$$

$$z_3 = \bar{z} + b \text{ avec } \alpha_3 = (1-v') (1-\alpha) \quad (7.29)$$

$$z_4 = z_{max} \text{ avec } \alpha_4 = v' \bar{z} \quad (7.30)$$

7.1.3 Pdf complète $P(z, c)$

Pour déterminer complètement les formes présumées pour $P(z, c)$, il faut définir les paramètres de la fonction $\beta(c|z)$ à savoir l'avancement moyen $\bar{c}|z$ conditionné en z et la variance associée $\bar{c}''^2|z$.

En effet, si l'on résume, nous disposons dans chaque cellule du calcul CFD de 5 grandeurs résolues : \bar{z} , \bar{z}''^2 pour la fraction de mélange z , \bar{Y}_f , $\bar{Y}_f''^2$ pour la fraction massique Y_f et leur covariance $\bar{z}'' \bar{Y}_f''$. Les 2 premiers moments de z sont utilisés pour décrire $P(z)$ dont la forme n'est fonction que de \bar{z} et \bar{z}''^2 . Ainsi, nous utilisons les 3 grandeurs restantes pour répartir l'avancement et la variance de c conditionnés sur chaque z en respectant les valeurs moyennes résolues : \bar{Y}_f , $\bar{Y}_f''^2$ et $\bar{z}'' \bar{Y}_f''$.

Suivant les formes de $P(z)$, l'équation de la covariance est sur-déterminante. Elle ne sera employée que si le système nécessite une condition supplémentaire pour être fermé.

◦ Le modèle "*pdf2pz*" est basé sur la forme de $P(z)$ qui inclut 2 distributions de Dirac déterminées par l'hypothèse de Curl modifiée. La répartition des moyennes conditionnées $\widetilde{Y}_f|z$ et des variances associées $\widetilde{Y}_f''^2|z$ peut être donnée par l'équation 4.26 et les équations la précédant. On fait alors l'hypothèse que les ségrégations conditionnées $S_c|z$ sont égales. A partir des moyennes et variances de Y_f conditionnées en z , on en déduit $\widetilde{c}|z$ et $\widetilde{c}''^2|z$. Les 2 fonctions bêta localisées respectivement sur z_1 et z_2 sont alors définies. A la fin de sa thèse, Robin (2007) propose de remplacer cette hypothèse d'égalité sur les ségrégations conditionnées par une condition basée sur les temps chimiques.

On écrit alors la condition de respect de la variance $\widetilde{Y}_f''^2$:

$$\widetilde{Y}_f''^2 = \int_0^1 \int_0^1 (Y_f - \widetilde{Y}_f) P(z, Y_f) dz dY_f = \sum_{i=1}^{N_\beta} \alpha_i \widetilde{Y}_f''^2|z_i = \sum_{i=1}^{N_\beta} \alpha_i \widetilde{Y}_f^2|z_i - \widetilde{Y}_f^2 \quad (7.31)$$

On traduit l'hypothèse basée sur les temps chimiques par l'expression des variances de Y_f conditionnées sur z sous la forme :

$$\widetilde{Y}_f''^2|z_i = \frac{C_\tau}{\tau_c|z_i} \quad \text{avec} \quad (\tau_c|z_i)^{-1} = \frac{\dot{\omega}_{max}|z_i}{1 - c_{max}|z_i} \quad (7.32)$$

En assumant que le taux de réaction global $\dot{\omega}_{max}|z_i$ s'exprime sous la forme d'une fonction β à deux paramètres a_{Y_h} et b_{Y_h} définis précédemment, on obtient :

$$c_{max}|z_i = \frac{a_{Y_h}}{a_{Y_h} + b_{Y_h}}|z_i \quad \text{et} \quad \dot{\omega}_{max}|z_i = \beta(c_{max}|z_i) \quad (7.33)$$

Cette formulation engendre de larges écarts entre les variances conditionnées $\widetilde{c}''^2|z$ du fait de la forte dispersion des temps chimiques en fonction de z . Elle est toutefois plus justifiée physiquement que l'hypothèse d'égalité des ségrégations pour tous les z . En effet, plus la cinétique est rapide, plus la flamme est mince et plus on se rapproche d'un régime de flammelles dans lequel la ségrégation est maximale (états en $c = 0$ et $c = 1$). Comme le temps chimique $\tau_c|z_i$ est proportionnel à l'inverse du taux de réaction maximal $\dot{\omega}_{max}|z_i$, la ségrégation conditionnée sera grande lorsque $\tau_c|z$ sera petit.

La figure 7.5 schématise la forme de la *pdf* complète pour $\tau_c|z_1 > \tau_c|z_2$.

◦ Le modèle "*pdf3pz*" est basé sur la forme de $P(z)$ qui inclut 3 distributions de Dirac respectant au moins les 2 premiers moments de z . Dans les configurations que nous avons étudiées, on a $z_{min} = 0$ et $z_{max} = 1$. Ainsi, les pics en z_1 et en z_3 sont placés aux extrêmes du domaine en z très loin des limites d'inflammabilité, l'avancement cinétique $\widetilde{c}|z$ est alors nul même si la forme est théoriquement indéterminée avec $\widetilde{Y}_f|z = z$. En suivant la même logique que précédemment, la variance conditionnée $\widetilde{c}''^2|z$ est également nulle en ces points.

Le point localisé en z_2 comporte alors la majeure partie de l'information puisque l'on écrit la moyenne et la variance de Y_f conditionnée en z_2 par :

$$\widetilde{Y}_f|z_2 = \frac{1}{\alpha_2} (\widetilde{Y}_f - \alpha_1 \widetilde{Y}_f|z_1 - \alpha_3 \widetilde{Y}_f|z_3) \quad \text{et} \quad \widetilde{Y}_f''^2|z_2 = \frac{\widetilde{Y}_f''^2}{\alpha_2} \quad (7.34)$$

En comparaison de la *pdf* à 2 pics en z illustrée dans la figure 7.5, cette *pdf* à 3 pics en z ne comporte qu'une seule fonction β localisée sur z_2 et ne fait ainsi pas intervenir la covariance.

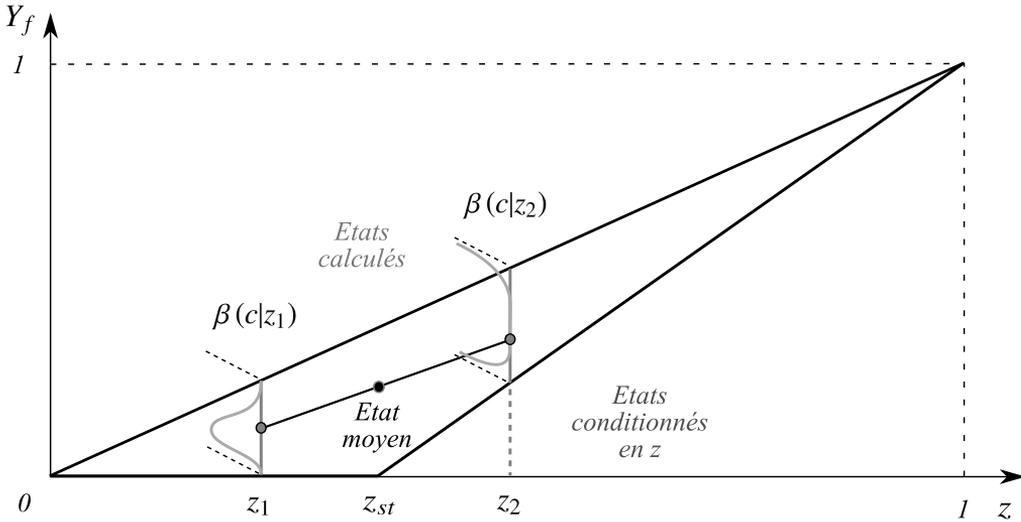


FIGURE 7.5 – Pdf à 2 pics de Dirac en z avec fonction $\beta(c|z)$ continue sur chaque z .

◦ Le modèle "*pdf4pz*" est basé sur la forme de $P(z)$ qui inclut 4 distributions de Dirac respectant les 2 premiers moments de z . Dans les configurations que nous avons étudiées, on a $z_{min} = 0$ et $z_{max} = 1$ qui déterminent une moyenne et une variance nulles pour c conditionnées sur z_1 et z_4 . Toutefois, dans un souci de généralisation au cas où z_1 et z_4 sont les bornes quelconques en z d'un domaine réactif, une méthode est proposée pour déterminer les moyennes de Y_f conditionnées en z dans le domaine triangulaire \mathcal{D} à partir des 2 informations restantes à savoir la moyenne \widetilde{Y}_f et la covariance $\widetilde{Y}_f''^2$.

Cette méthode utilise 2 arcs de paraboles construits à partir des suppositions suivantes :

1. On impose à l'avancement moyen conditionné $\widetilde{c}|z$ d'être nul pour les valeurs extrêmes de z (le combustible et l'oxydant pur sont supposés non réactifs).
2. On impose à la moyenne conditionnée $\widetilde{c}|z$ d'avoir pour dérivée aux bornes la droite passant par un point localisé sur z_{st} (point anguleux du domaine \mathcal{D}) qui est défini par la valeur $c|z_{st} = c_2$.
3. On impose à la moyenne conditionnée $\widetilde{c}|z$ d'avoir une valeur $c|z_{st} = c_3$ à la stoechiométrie où l'on considère que la réaction globale est la plus rapide provoquant ainsi l'avancement $c|z$ le plus important.

On décrit alors 2 arcs de paraboles qui se rejoignent à la stoechiométrie z_{st} . L'avancement conditionné moyen $\bar{c}|z$ peut également dégénérer pour se localiser sur la droite de combustion complète ($\bar{c}|z = 1$) ou la droite de mélange ($\bar{c}|z = 0$). Pour ce faire, on impose à c_2 et c_3 d'être compris entre 0 et 1.

Les paramètres de ces 2 arcs de paraboles sont linéairement reliés à ces 2 avancements particuliers si l'on intègre l'avancement conditionné $\bar{c}|z$ par pondération sur les états discrets en z afin de les comparer aux grandeurs moyennes calculées.

En utilisant une variable réactive qui soit nulle dans l'oxydant et unitaire dans le combustible (ex : Y_f ou Y_h), on traduit ces considérations en associant les valeurs Y_2 à l'avancement c_2 et Y_3 à l'avancement c_3 .

Dès lors, nous utiliserons de manière générique la variable $Y|z$ égale à Y_f ou Y_h suivant le formalisme choisi. Comme les $\bar{Y}|z$ appartiennent aux 2 arcs de paraboles respectivement pauvre (indice p) et riche (indice r), on écrit :

$$\bar{Y}|z = \sum_{i=1}^3 a_i(z) z^{i-1} \quad \text{avec} \quad a_i(z) = \begin{cases} a_{i,p} & \forall z \leq z_{st} \\ a_{i,r} & \forall z > z_{st} \end{cases} \quad (7.35)$$

De même, on traduit la dépendance linéaire des paramètres des paraboles aux avancements choisis Y_i par la relation :

$$a_i(z) = \sum_{j=1}^3 b_{ij}(z) Y_j \quad \text{avec} \quad Y_1 = 1 \quad \text{et} \quad b_{ij}(z) = \begin{cases} b_{ij,p} & \forall z \leq z_{st} \\ b_{ij,r} & \forall z > z_{st} \end{cases} \quad (7.36)$$

Couplée à la *pdf* discrète en z , l'intégration des moyennes conditionnées $\bar{Y}|z$, quadratiques par morceaux, est largement facilitée. La première relation est alors donnée par l'expression de la moyenne \bar{Y}_f (ou \bar{Y}_h) à partir des moyennes conditionnées $\bar{Y}_f|z$:

$$\begin{aligned} \bar{Y}_f &= \sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \bar{Y}_f|z_k = \sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \left[\sum_{i=1}^3 \left(\sum_{j=1}^3 b_{ij}(z) Y_j \right) z_k^{i-1} \right] \\ &= \sum_{i=1}^3 \left[\sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \left(\sum_{j=1}^3 b_{ij}(z_k) \right) z_k^{i-1} \right] Y_j \end{aligned} \quad (7.37)$$

La seconde relation est donnée par l'expression de la covariance $z'' \bar{Y}_f''$:

$$\begin{aligned} z'' \bar{Y}_f'' &= z \bar{Y}_f - \bar{z} \bar{Y}_f = \sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \bar{Y}_f|z_k - \bar{z} \bar{Y}_f = \sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \left[\sum_{i=1}^3 \left(\sum_{j=1}^3 b_{ij}(z) Y_j \right) z_k^i \right] - \bar{z} \bar{Y}_f \\ &= \sum_{i=1}^3 \left[\sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \left(\sum_{j=1}^3 b_{ij}(z_k) \right) z_k^i \right] Y_j - \bar{z} \bar{Y}_f \end{aligned} \quad (7.38)$$

En ramenant ces relations linéaires en Y_i sous la forme d'un système matriciel, on a :

$$\begin{bmatrix} A11 & A12 \\ A21 & A22 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} Y_2 \\ Y_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} B1 \\ B2 \end{bmatrix} \quad (7.39)$$

Comme nous considérons que $Y_1 = 1$, la partie linéaire en Y_1 est constante et va au second membre, les composantes du système s'expriment alors par :

$$\begin{aligned} A11 &= \sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \left(\sum_{j=1}^3 b_{2j}(z_k) \right) z_k^{i-1} \quad \text{et} \quad A12 = \sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \left(\sum_{j=1}^3 b_{3j}(z_k) \right) z_k^{i-1} \\ A21 &= \sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \left(\sum_{j=1}^3 b_{2j}(z_k) \right) z_k^i \quad \text{et} \quad A22 = \sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \left(\sum_{j=1}^3 b_{3j}(z_k) \right) z_k^i \\ B1 &= \widetilde{Y}_f - \sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \left(\sum_{j=1}^3 b_{1j}(z_k) \right) z_k^{i-1} \\ B2 &= \widetilde{z}'' \widetilde{Y}_f'' + \widetilde{z} \widetilde{Y}_f' - \sum_{k=1}^{N_\beta} \alpha_k \left(\sum_{j=1}^3 b_{1j}(z_k) \right) z_k^i \end{aligned}$$

Ce système de 2 équations à 2 inconnues (Y_2 et Y_3) est résolu par une méthode de Cramer (utilisée en Annexe D pour résoudre un système de dimension 3). Avec Y_2 et Y_3 , la *pdf* est complètement déterminée. Sa forme est alors illustrée en figure 7.6.

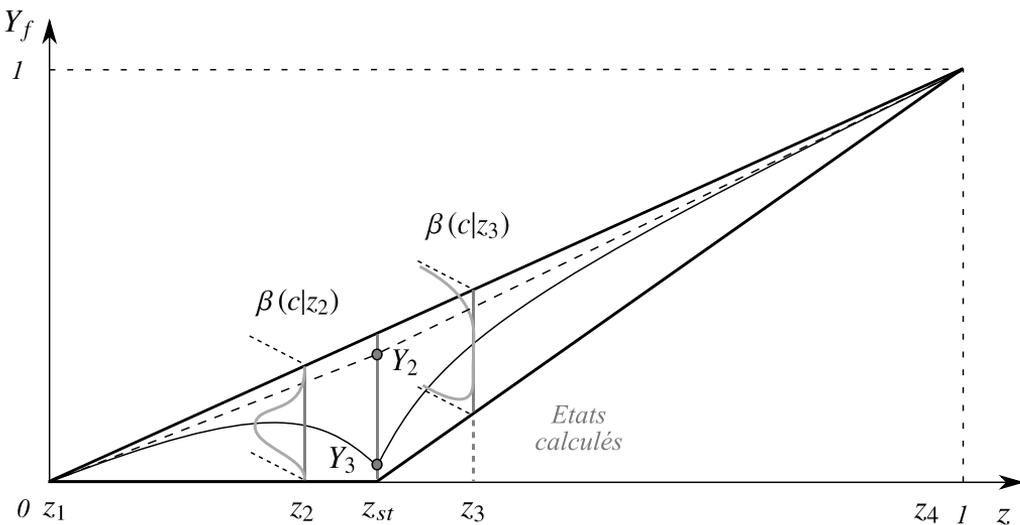


FIGURE 7.6 – Pdf à 4 pics de Dirac en z avec fonction $\beta(c|z)$ continue sur chaque z

7.2 Formation des polluants dans Code_Saturne

Pour introduire la formation du CO et surtout du NO dans la modélisation CFD de Code_Saturne, on résout une équation scalaire pour la fraction massique Y_k de chacune de ces 2 espèces. L'expression du terme source à assigner sur le volume V de chaque cellule du maillage CFD est : $\bar{\rho}V\widehat{\omega}_k$. Pour décrire le terme source moyen $\widehat{\omega}_k$ formant les espèces polluantes NO et CO , il faut coupler les nouveaux modèles de pdf présumées (" $pdf2pz$, $pdf3pz$ ou $pdf4pz$ ") avec les tabulations à cinétique détaillée.

Pour faciliter le couplage entre la pdf $P(c|z)$ (fonction $\beta|z$ continue) et les points tabulés (informations discrètes), nous n'utilisons *pas d'interpolation linéaire* comme cela était fait pour la modélisation en réseaux de réacteurs turbulents (pdf à 4 pics de Dirac). Pour chaque z_i de $P(z)$ appartenant à la tabulation PSR, nous choisissons le z tabulé le plus proche. Cette approche est justifiée en raison de la densité d'informations en z contenue dans le domaine réactif : 100 points sont tabulés en z entre les richesses $\phi_{min} = 0,4$ et $\phi_{max} = 2.5$ soit $z_{min} \approx 0,023$ et $z_{max} \approx 0,135$ pour le gaz naturel.

Une fois que le z tabulé est choisi pour représenter z_i , il faut définir la pondération β_j à assigner aux états discrets dont l'avancement est $c_j|z$. Comme présenté sur la figure 6.16, le nombre de points $c|z$ tabulés en avancement est fonction de z . Toutefois, nous disposons toujours d'une trentaine de points discrets. La pondération de la $P(c|z)$ est alors obtenue à partir des fonctions β *incomplètes* (William et al., 1992).

La définition classique de la fonction bêta à 2 paramètres a, b pour l'avancement $c|z$ est :

$$\beta(c) = (c|z)^{a-1} (1 - c|z)^{b-1} \quad (7.40)$$

La fonction *bêta incomplète* calculée au point discret $c_j|z$ est alors définie par :

$$\beta^{inc}(c_j|z) = \frac{1}{\mathcal{B}(a, b)} \int_0^{c_j|z} \beta(c) dc = \frac{1}{\mathcal{B}(a, b)} \int_0^{c_j|z} c^{a-1} (1 - c)^{b-1} dc \quad (7.41)$$

Mis à part pour le premier et le dernier point du vecteur de $c_j|z$, on calcule β_j par différence des fonctions β^{inc} qui sont calculées aux points $c_j^+|z = (c_j|z + c_{j+1}|z)/2$ et $c_j^-|z = (c_{j-1}|z + c_j|z)/2$ encadrant $c_j|z$. Finalement, on propose :

$$\beta_j = \beta^{inc}(c_j^+|z) - \beta^{inc}(c_j^-|z) = \frac{1}{\mathcal{B}(a, b)} \int_{c_j^-|z}^{c_j^+|z} \beta(c) dc \quad (7.42)$$

Comme dans la modélisation en réseaux de réacteurs turbulents, on limite l'évolution du NO thermique grâce à la tabulation OD(t) qui intervient lorsque $c|z \geq c_{lim_psr_OD}$. On impose toujours $c_{lim_psr_OD} = 0,999$ puisque les tabulations cinétique PSR et OD qui sont utilisées sont les mêmes.

La *pdf* $P(c|z)$ est continue et assure d'avoir des états où $c|z \geq c_lim_psr_0D$. Dès lors, on scinde le vecteur des $c_j|z$ par rapport à $c_lim_psr_0D$ et on obtient une fois encore 2 contributions pour le terme source moyen $\widetilde{\omega}_{NO}$:

- Une contribution constante ($c_j|z < c_lim_psr_0D$) issue de la tabulation PSR
- Une contribution évolutive ($c_j|z \geq c_lim_psr_0D$) issue de la tabulation 0D(t)

Si l'amplitude de la contribution évolutive est suffisante ($\beta_j^{evol} > \varepsilon = 10^{-8}$), on engendre une tabulation sommant les 2 contributions pour fournir le terme source de *NO* en fonction du Y_{NO} formé dans la cellule à partir des points tabulés en temps.

Pour la formation du *CO*, nous rappelons que seule la tabulation PSR intervient et que la correction temporelle issue de la tabulation 0D(t) n'est pas utilisée.

Pour faciliter la convergence du solveur numérique de *Code_Saturne* (Archembeau et al., 2004), on décompose encore le terme source moyen $\widetilde{\omega}_k$ en ses parties créatrice \widetilde{C}_k et destructrice $\widetilde{D}_k \cdot \widetilde{Y}_k$:

$$\widetilde{\omega}_k = \widetilde{C}_k - \widetilde{D}_k \cdot \widetilde{Y}_k \quad (7.43)$$

Pour bien représenter les temps caractéristiques ($\tau_k = 1/\widetilde{D}_k$) de formation de chaque état $c_j|z_i$ de la $P(z, c) = P(z) \cdot P(c|z)$ tout en considérant la valeur moyenne \widetilde{Y}_k de la cellule, on écrit :

$$\widetilde{C}_k = \sum_{i=1}^{N_\beta} \alpha_i \left[\sum_{j=1}^{N_{c|z_i}} \dot{C}_k(c_j|z_i) \right] \quad \text{et} \quad \widetilde{D}_k = \frac{1}{\widetilde{Y}_k} \sum_{i=1}^{N_\beta} \alpha_i \left[\sum_{j=1}^{N_{c|z_i}} \dot{D}_k(c_j|z_i) Y_k(c_j|z_i) \right] \quad (7.44)$$

La fraction massique moyenne \widetilde{Y}_k s'exprime par :

$$\widetilde{Y}_k = \sum_{i=1}^{N_\beta} \alpha_i \left[\sum_{j=1}^{N_{c|z_i}} Y_k(c_j|z_i) \right] \quad (7.45)$$

Pour limiter la formation du *NO* thermique, \widetilde{C}_{NO} et \widetilde{D}_{NO} sont donc tabulés en fonction de $\widetilde{Y}_{NO}(t)$ pour les différents points en temps t de la tabulation 0D. Le \widetilde{Y}_{NO} contenu dans chaque cellule à l'itération précédente détermine ainsi la valeur des termes sources \widetilde{C}_{NO} et \widetilde{D}_{NO} à assigner pour l'itération en cours.

L'expression complète du terme source requiert de définir la masse volumique moyenne $\bar{\rho}$ de la cellule à partir de la *pdf*. Avec l'avancement moyen $\bar{c}|z$ conditionné en z et les valeurs de $\rho_{gf}|z$ et de $\rho_{gb}|z$ dans les gaz frais et brûlés, nous obtenons la masse volumique moyenne par :

$$\bar{\rho} = \sum_{i=1}^{N_\beta} \alpha_i \left[(\rho_{gb}|z_i - \rho_{gf}|z_i) \bar{c}|z_i + \rho_{gf}|z_i \right] \quad (7.46)$$

Chapitre 8

Etudes par réseaux de réacteurs

8.1 Cas d'étude : Flamme M de Masri (Sandia)

8.1.1 Description du cas d'étude

Les travaux de thèse de Robin (2007) ont permis de valider le modèle LWP 4 pics, couplé au modèle $k - \varepsilon$, sur 2 configurations de combustion partiellement prémélangée :

1. Le banc d'essai ORACLES qui a été développé par Besson (2001) au LCD (Laboratoire de Combustion et Détonique, Poitiers). Les calculs numériques associés à cette validation sont publiés dans Robin et al. (2006).
2. Une flamme en V stabilisée par fil chaud dont l'installation expérimentale a été développée par Desgardin (2006) au CORIA (COMplexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie, Rouen). Les calculs numériques associés à cette validation sont publiés dans Robin et al. (2008).

Afin d'évaluer l'aptitude du modèle LWP à représenter les flammes de diffusion qui existent dans les chambres de combustion de TAC, nous avons entrepris de calculer une flamme de diffusion turbulente. En nous appuyant sur les travaux de Zurbach (1998), nous nous sommes orientés vers une flamme de diffusion turbulente méthane-air liftée (Masri et al., 1988).

Expérimentalement étudiée au sein des "SANDIA National laboratories" (USA), cette flamme liftée permet de représenter les interactions turbulence / cinétique chimique comme les phénomènes d'extinction locale. Pour la flamme M que nous simulons, la vitesse moyenne d'injection est de 55 m/s pour le méthane et de 15 m/s pour l'air.

La flamme est stabilisée par une injection de gaz brûlés stoechiométriques à 24 m/s. La température de ces gaz est de 2200 K ($z_{st} = 0,055066$ pour la combustion méthane-air).

Située entre l'injection de combustible et d'air, ces gaz brûlés fournissent la température et les radicaux nécessaires à l'inflammation des réactants. Le mélange des réactifs avec ces gaz chauds, et partiellement dissociés, garantit l'inflammation lors du contact entre réactifs froids (300 K). La figure 8.1 présente la configuration étudiée pour cette flamme de diffusion turbulente méthane-air.

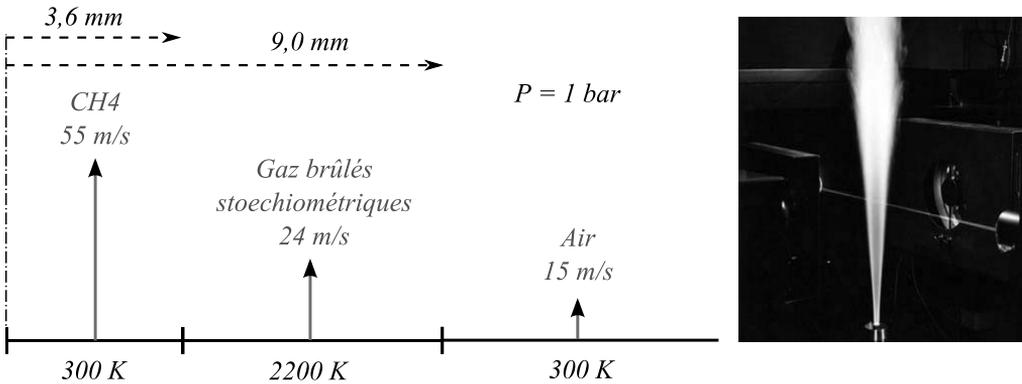


FIGURE 8.1 – Flamme (M) de diffusion turbulente méthane-air (Masri et al., 1988)

Pour cette étude, nous avons utilisé 2 maillages axisymétriques comportant respectivement 12 200 et 48 800 cellules régulières (hexahédres). Leurs dimensions sont données par : $r = 0,06\text{ m}$ et $y = 1,2\text{ m}$. Ils sont tous deux créés par une rotation de 1 degré ($2\pi/360$ radians) autour de y , la verticale ascendante selon laquelle on injecte les gaz.

Pour initier le calcul, nous remplissons le domaine fluide avec des gaz brûlés à la stoechiométrie. La vitesse de l'écoulement en entrée se chargera de repousser les gaz brûlés hors des zones réactives (trop riche en combustible ou trop dilué par l'air) et d'assurer l'allumage des zones stoechiométriques générées par l'inter-diffusion des réactants.

Pour les conditions aux limites, nous assignons une condition de symétrie sur l'axe y , une condition d'entrée / sortie libre pour la surface radiale externe ($r = r_{max} = 0,06\text{ m}$) et une condition de sortie en aval (section $y = y_{max} = 1,2\text{ m}$) pour cet écoulement subsonique à 1 bar.

Les conditions d'entrée de la vitesse sont de simples profils plats aux vitesses moyennes indiquées dans la figure 8.1. Les conditions aux limites pour k et ε sont calculées par les relations classiques de turbulence développée en conduite (Archambeau et al., 2004) :

$$k_{cond} = \frac{3}{2} U_{ref}^2 I t^2 \quad \text{et} \quad \varepsilon_{cond} = \frac{10 C_\mu^{0,75} k^{1,5}}{\kappa D_h} \quad \text{avec} \quad I t = \frac{\sqrt{u''^2}}{\bar{u}} \quad (8.1)$$

Dans la relation précédente, le carré de la vitesse de référence U_{ref}^2 est obtenu par sommation du carré des composantes \tilde{u}_i de la vitesse moyenne \tilde{u} . Ces relations font aussi intervenir le diamètre hydraulique D_h ainsi que les constantes de viscosité turbulente $C_\mu = 0,09$ et de Von Karman $\kappa = 0,42$.

L'intensité turbulente I_t est directement proportionnelle à la viscosité turbulente μ_t qui contrôle les phénomènes diffusifs. Ainsi, pour représenter au mieux la diffusion radiale du combustible le long de l'axe, un coefficient correctif est appliqué mais seulement à l'énergie turbulente d'entrée. On impose finalement : $k = 3k_{cond}$.

Enfin, pour chaque injection, les conditions aux limites imposées pour la fraction de mélange \tilde{z} sont également des profils plats à respectivement $\tilde{z} = 1$ (combustible pur), $\tilde{z} = \tilde{z}_{st}$ (gaz brûlés stoechiométriques) et $\tilde{z} = 0$ (air pur). Les variances et covariance de Y_f et z sont nulles en entrée.

La figure 8.2 illustre les 2 maillages proposés pour étudier la flamme de Masri.

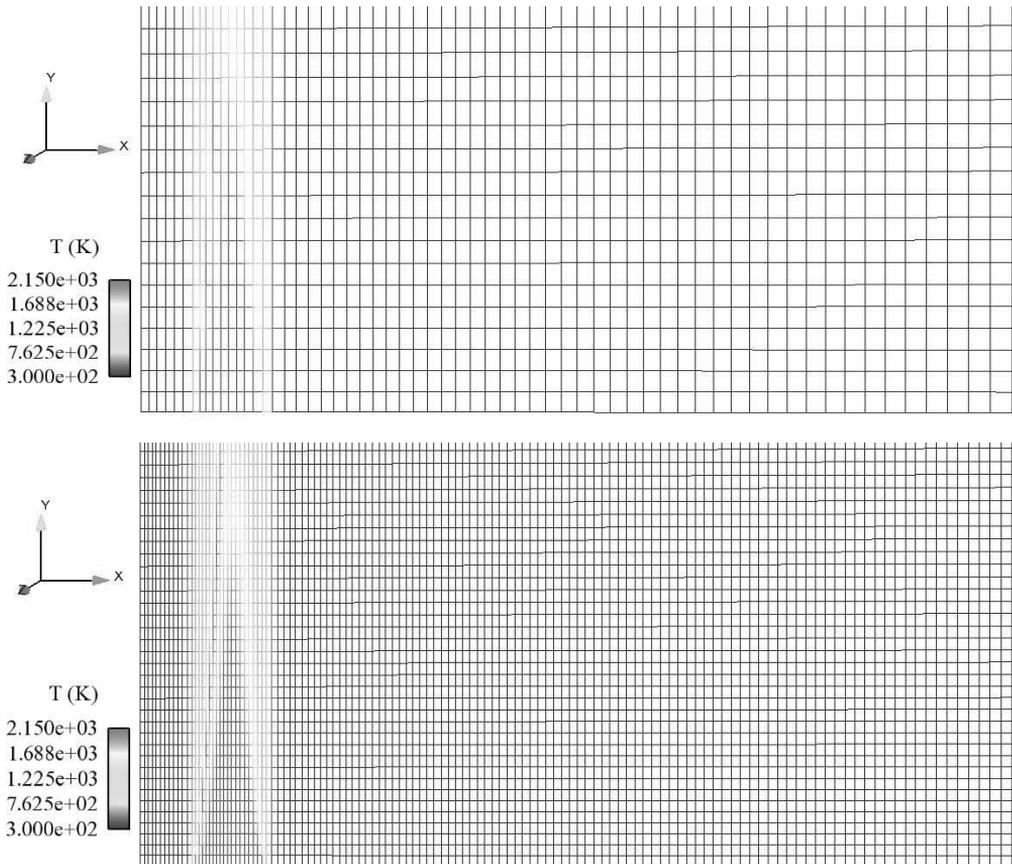


FIGURE 8.2 – Maillage grossier de 12 200 cellules (en haut) et raffiné de 48 800 cellules (en bas) pour l'étude de la flamme de Masri

Le maillage grossier de 12 200 cellules décrit l'injection de gaz brûlés et la zone de mélange à l'aide de 10 cellules (taille caractéristique de maille : 0,6 mm). Le maillage raffiné comporte des cellules 2 fois plus petites dans chaque direction et permet d'évaluer l'influence de la diffusion numérique sur les résultats.

8.1.2 Champs CFD et découpage

Dans l'optique de découper l'écoulement en réseau de réacteurs, nous présentons les champs scalaires de la fraction de mélange moyenne \bar{z} , de la température moyenne \bar{T} et de l'âge (fluide) moyen \bar{a} obtenus lors du calcul CFD avec le modèle LWP 4 pics dans sa dernière déclinaison (Robin, 2007).

En effet, dans l'étude de définition des critères de découpage (chapitre 4, sous-partie 4.2), nous avons souligné que la représentation de la diffusion transverse à la direction du jet nécessite un découpage suivant l'âge fluide moyen \bar{a} en un nombre N_a d'intervalles. Dans cet écoulement à direction privilégiée (direction y du jet prépondérante sur les 2 autres), ce découpage dans le champ d'âge fluide est équivalent à un découpage géométrique puisque le long du jet l'âge fluide croît régulièrement.

Ces champs CFD moyens pour la fraction de mélange z , la température T et l'âge fluide a sont présentés sur la figure 8.3. Afin d'illustrer le découpage, on visualise également l'interaction entre la fraction de mélange z et une dizaine d'iso-contours pour l'âge.

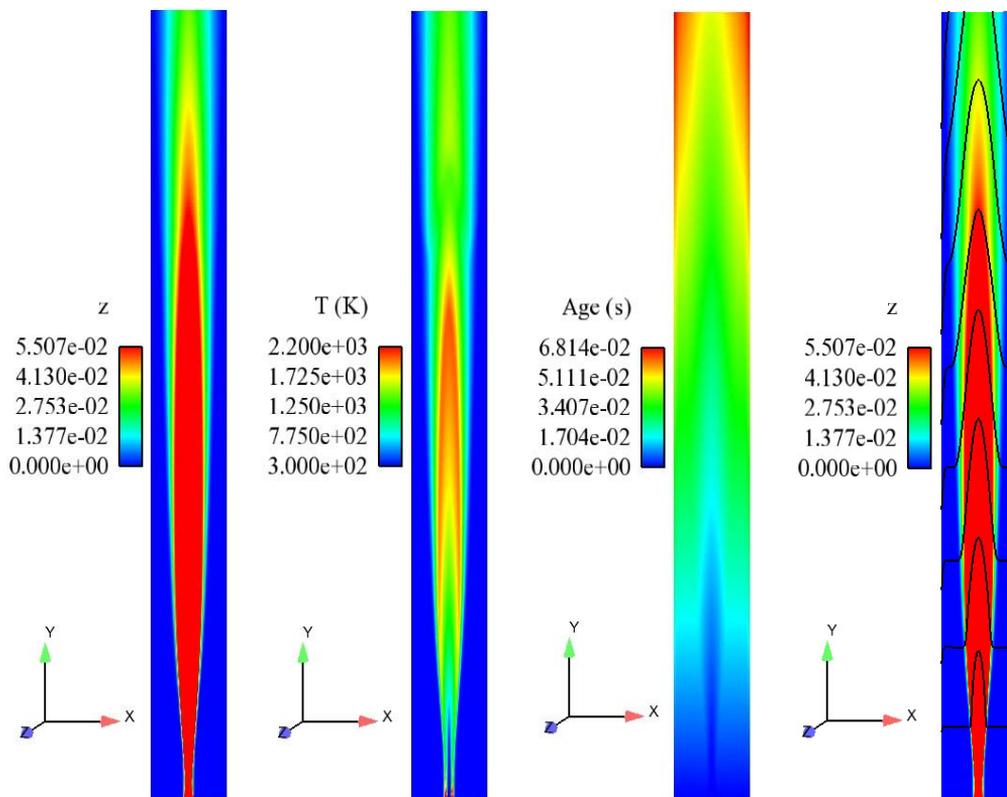


FIGURE 8.3 – Champs CFD moyens pour la flamme de Masri (maillage raffiné). De gauche à droite : La fraction de mélange z , la température T , l'âge (fluide) a et l'interaction de la fraction de mélange et d'une dizaine d'iso-contours pour l'âge

Pour dissocier les zones réactives des zones inertes contenant soit trop de combustible ou d'air, nous rappelons que le découpage dans l'espace chimique est raffiné autour de la stoechiométrie ($z_{st} = 0,055066$ pour la combustion méthane-air) à l'aide d'une loi géométrique. Cette loi, basée sur la température adiabatique, est fonction de 2 paramètres K (le ratio du plus grand au plus petit intervalle vaut K^2) et ΔT_{imp} (l'ordre de grandeur des écarts de température imposée). Ce découpage en température est ensuite transformé en une loi de coupe sur z contenant N_z intervalles.

Enfin, pour distinguer les zones de même richesse ϕ mais d'avancement différents, on impose le nombre d'intervalles de coupe en avancement N_c qui est linéairement relié à la température dans le modèle LWP (écoulement adiabatique, unique réaction globale).

Dès lors, une étude de sensibilité au nombre de réacteurs est réalisée. En raffinant la loi de coupe sur l'âge a , la fraction de mélange z ou l'avancement cinétique c , on évalue leur influence sur la représentation de l'écoulement. On remarque aussi que le nombre de réacteurs du réseau est inférieur au produit des nombres (N_i) d'intervalles de coupe. En effet, il se peut qu'aucune cellule ne respecte toutes les contraintes imposées sur a , z et c . Si l'intersection des encadrements pour a , z et c est vide, le réacteur n'existe pas.

Réseaux analysés	N_a	N_z	N_c	Facteur d'étude
RN 143	5	10	4	Potentiel d'un faible nombre de réacteurs
RN 212	10	10	4	Représentation axiale raffinée
RN 375	20	20	5	Représentation axiale et transverse raffinées

TABLE 8.1 – Découpage réalisé sur la flamme de Masri

Comme la modélisation en réseaux de réacteurs tire un maximum d'informations du calcul CFD, elle est par conséquent soumise aux lacunes des modèles associés (LWP). Une première étape consiste donc à valider autant que possible les résultats CFD par comparaison aux mesures expérimentales de Masri et al. (1988).

8.1.3 Validation de l'écoulement turbulent (calcul CFD)

Notre premier objectif est d'évaluer la pertinence du maillage grossier dans la représentation de l'écoulement en comparant les champs scalaires obtenus pour les 2 maillages étudiés. Les profils axiaux de fraction de mélange moyenne \bar{z} (scalaire passif) et de température moyenne \bar{T} (scalaire réactif) sont ainsi confrontés dans la figure 8.4 pour le maillage grossier (12 200 cellules) et pour le maillage raffiné (48 800 cellules).

Les résultats présentés sur la figure 8.4 montrent une très bonne cohérence des profils axiaux de \bar{z} et de \bar{T} . Ceci soutient l'hypothèse que le maillage grossier peut suffire à la représentation de l'écoulement moyen. Sur ces profils axiaux, on retrouve bien une décroissance régulière de \bar{z} du fait de la diffusion progressive du combustible et de l'oxydant le long du jet mais on remarque que l'évolution de \bar{T} présente un étrange comportement bimodal (deux maxima le long de l'axe).

Nous expliquerons plus loin l'origine de cette bimodalité de la température moyenne sur l'axe en confrontant les résultats CFD avec ceux des réseaux de réacteurs.

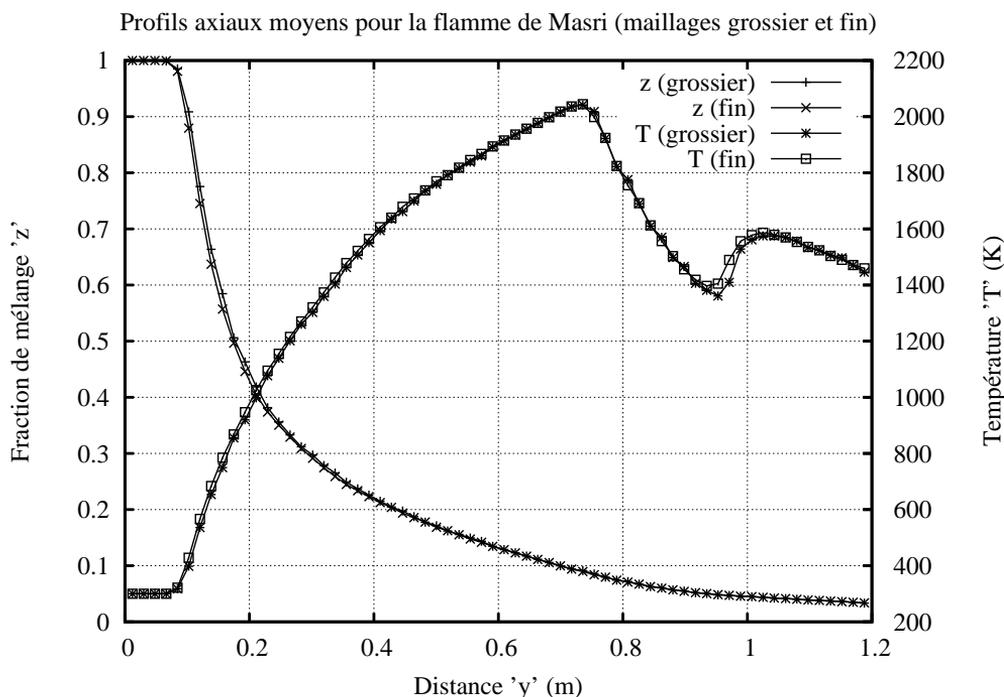


FIGURE 8.4 – Profils axiaux de fraction de mélange moyenne \tilde{z} et de température moyenne \tilde{T} pour les maillages grossier et raffiné.

De plus, en raison de la réaction unique et globale du modèle LWP ne tenant pas compte des espèces intermédiaires (CO , H_2), la température ne semble pas être une grandeur de validation pertinente. En effet, pour représenter l'écoulement ou les états turbulents (pdf) à l'aide des réseaux de réacteurs, deux champs CFD prévalent : le champ de fraction de mélange moyenne \tilde{z} et celui de la variance associée \tilde{z}''^2 .

Sur les figures 8.5 et 8.6, nous comparons l'évolution axiale des profils radiaux de \tilde{z} et \tilde{z}''^2 pour les maillages grossier et raffiné.

Les profils de \tilde{z} et \tilde{z}''^2 montrent encore une très bonne cohérence entre les résultats des maillages grossier et raffiné. Ils soutiennent la pertinence du maillage grossier et valident la convergence en maillage.

Sur la figure 8.5, on observe pour les 2 maillages l'étalement des profils de \tilde{z} (diffusion transversale à la direction du jet suivant y). La figure 8.6 souligne quant à elle la dissipation de la variance \tilde{z}''^2 en raison de la diminution des gradients $\partial\tilde{z}/\partial r$ où r est le rayon (décroissance du terme de production de variance).

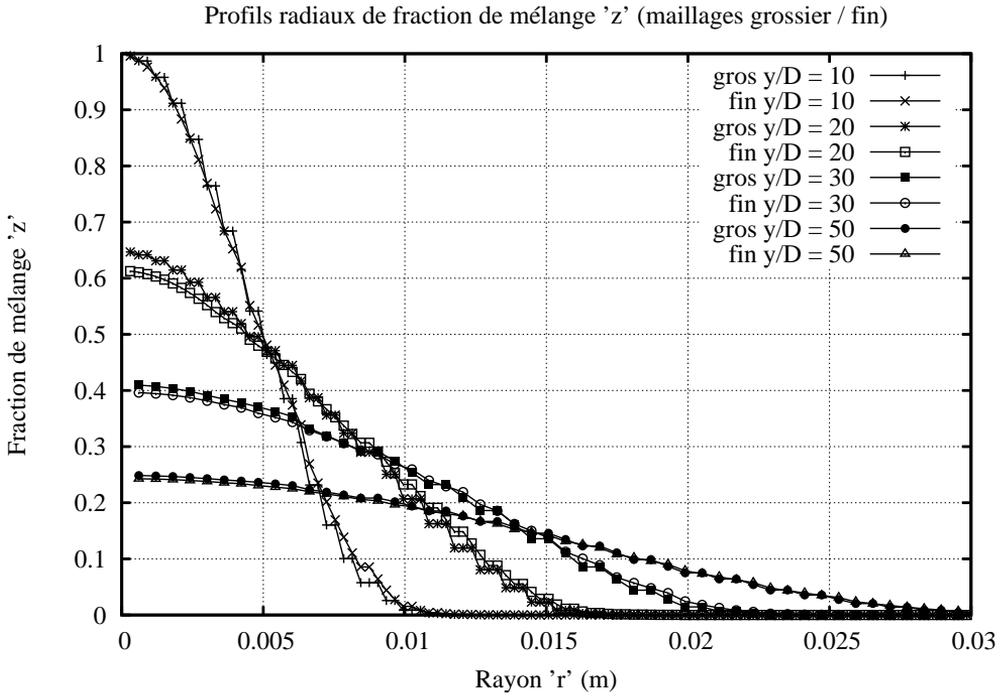


FIGURE 8.5 – Profils radiaux de \bar{z} pour les maillages grossier et raffiné.

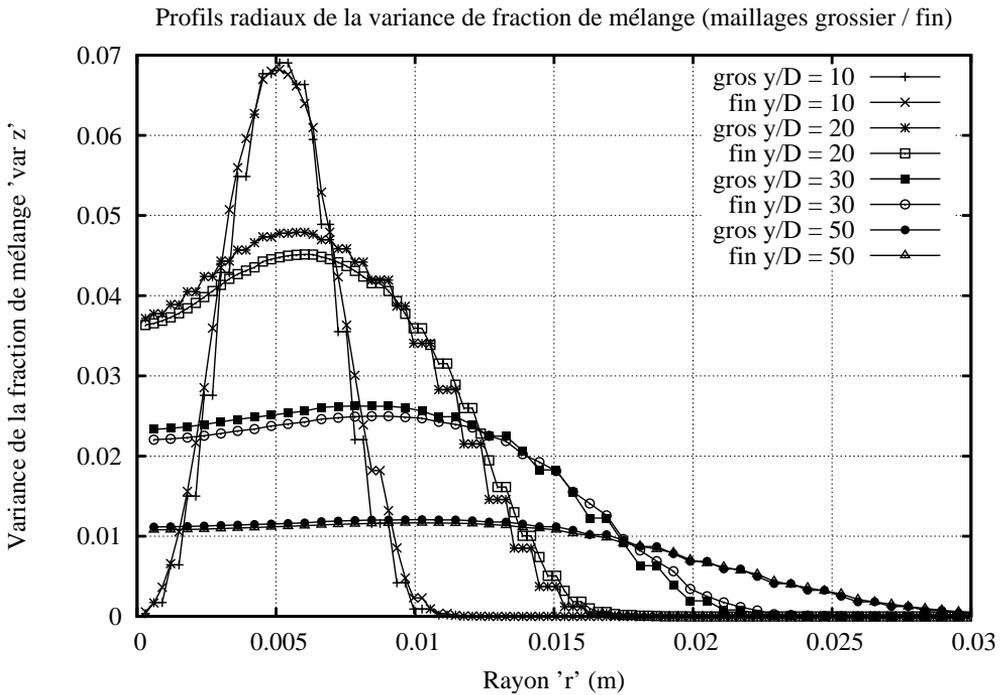


FIGURE 8.6 – Profils radiaux de $\overline{z'^2}$ pour les maillages grossier et raffiné.

Du fait de la convergence en maillage, nous comparons les mesures expérimentales réalisées par Masri et al. (1988) aux profils radiaux obtenus pour le maillage grossier qui est 4 fois moins coûteux en temps de calcul que le maillage raffiné. Nous nous plaçons le long du jet aux hauteurs : $y = 10D$, $y = 30D$ et $y = 50D$ avec $D = 7,2\text{mm}$ pour le diamètre d'injection du méthane.

Comme l'illustre la figure 8.7, l'évolution décroissante de \tilde{z} le long de l'axe y du jet qui est mesurée est correctement représentée par les résultats numériques tant au niveau des maxima atteints que des tendances. Malgré les légers écarts visibles notamment pour $y = 30D$, nous pouvons dire que le calcul CFD est validé en terme de représentation de l'écoulement puisque \tilde{z} est un scalaire passif, simplement convecté et diffusé par le fluide en mouvement.

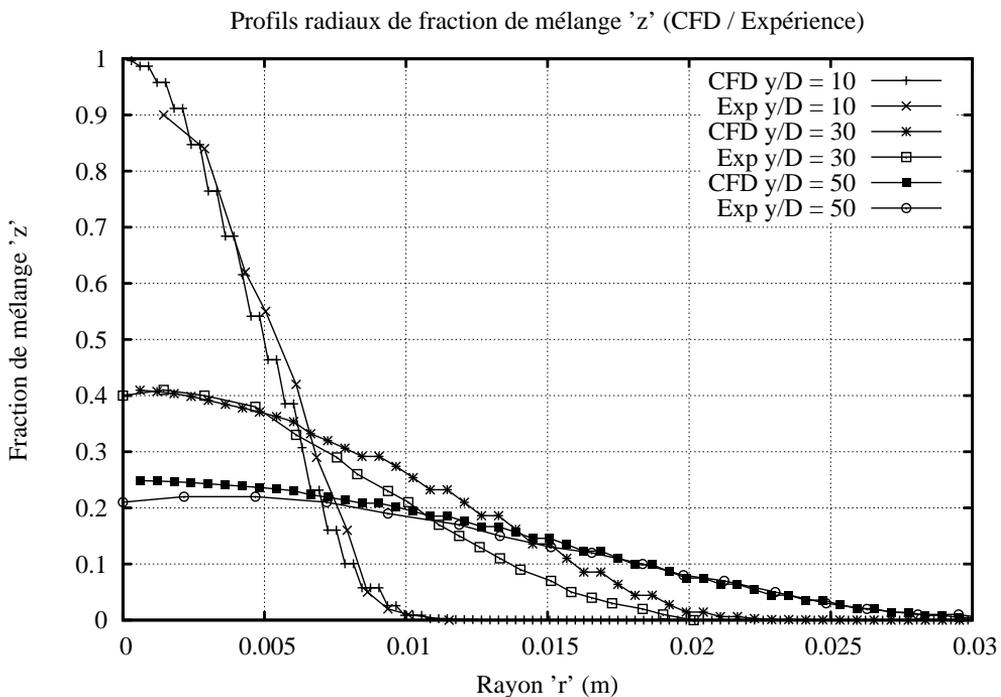


FIGURE 8.7 – Profils radiaux expérimentaux et numériques de \tilde{z} .

La figure 8.8 présente l'évolution des profils radiaux de \tilde{z}''^2 . Les tendances sont bien prédites par le calcul CFD. En revanche, on constate que les maxima numériques sont deux fois plus élevés que les valeurs expérimentales. Même s'il est difficile de quantifier expérimentalement les grandeurs fluctuantes, cet écart ne peut être attribué seulement aux incertitudes de mesure.

Sur la figure 8.8, les mesures expérimentales sont multipliées par deux pour mettre en avant la bonne représentation des tendances. Un examen approfondi soulève toutefois un léger décalage radial dans la position des maxima entre les mesures et le calcul CFD.

Malgré un contrôle rigoureux des valeurs expérimentales (conversion de valeurs 'rms' en variance de z) et malgré l'introduction de profils complexes en entrée pour la vitesse $v(r)$ ou la fraction de mélange moyenne $\bar{z}(r)$ dans l'optique d'atténuer les gradients $\partial\bar{z}/\partial r$, ce facteur 2 subsiste et nous n'avons pas réussi à l'expliquer à ce jour.

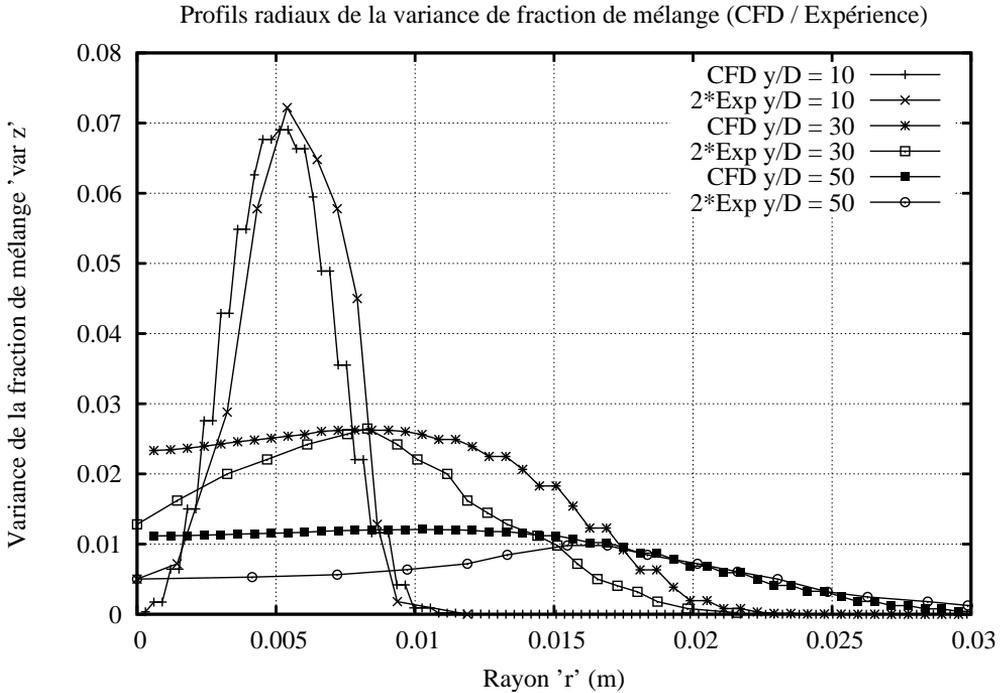


FIGURE 8.8 – Profils radiaux expérimentaux et numériques de $\overline{z''^2}$.

Ainsi, nous ne pouvons que constater une lacune du calcul CFD qui semble surévaluer la variance de z d'un facteur 2.

8.1.4 Validation de l'écoulement turbulent (réseaux de réacteurs)

La validation des modèles de réseaux de réacteurs évalue la pertinence des matrices de flux masse convectifs et diffusifs (respectivement Fc_{ij} et Fd_{ij}) dans la représentation de l'écoulement turbulent issu du calcul CFD.

Pour ce faire, on cherche tout d'abord à comparer les champs de scalaires passifs obtenus pour le réseau de réacteurs chimiques (CRN : Chemical Reactor Network) et le calcul CFD. Le champ moyen de fraction de mélange \bar{z} du calcul CFD a été validé par comparaison aux mesures expérimentales. Il sert maintenant de référence au réseau de réacteurs qui simplifie l'écoulement turbulent du calcul CFD.

L'idée est alors de définir une fraction de mélange moyenne z_m à partir de la composition complexe (53 espèces du schéma GRI 3.0) de chaque réacteur chimique.

Le bilan de l'atome de carbone C , uniquement présent dans le combustible en entrée du domaine fluide par le biais du méthane (CH_4) injecté est alors utilisé pour définir cette variable z . On calcule pour cela la fraction massique de carbone Y_C dans le combustible par une somme sur les N_{esp} espèces χ_k pondérée par le nombre n_{kC} de carbone dans chaque espèce. Avec M_C , la masse molaire de l'élément carbone, on écrit :

$$Y_C = \sum_{k=1}^{N_{esp}} n_{kC} \frac{M_C}{M_k} Y_k \quad (8.2)$$

Avec M_f , la masse molaire du combustible ("fuel"), la normalisation de z_m impose :

$$z_m = \frac{M_f}{M_C} Y_C \quad (8.3)$$

Dès lors, on confronte les profils axiaux de fraction de mélange z provenant du calcul CFD (\bar{z}) et des modèles réseaux de réacteurs chimiques (z_m) dans la figure 8.9. Afin d'évaluer le nombre optimal de réacteurs à imposer pour assurer une représentation suffisante de l'écoulement turbulent, on effectue une succincte étude de sensibilité au nombre de réacteurs dans laquelle on raffine les divers lois de coupe (voir tableau 8.1). Leurs profils axiaux respectifs sont exposés en figure 8.9.

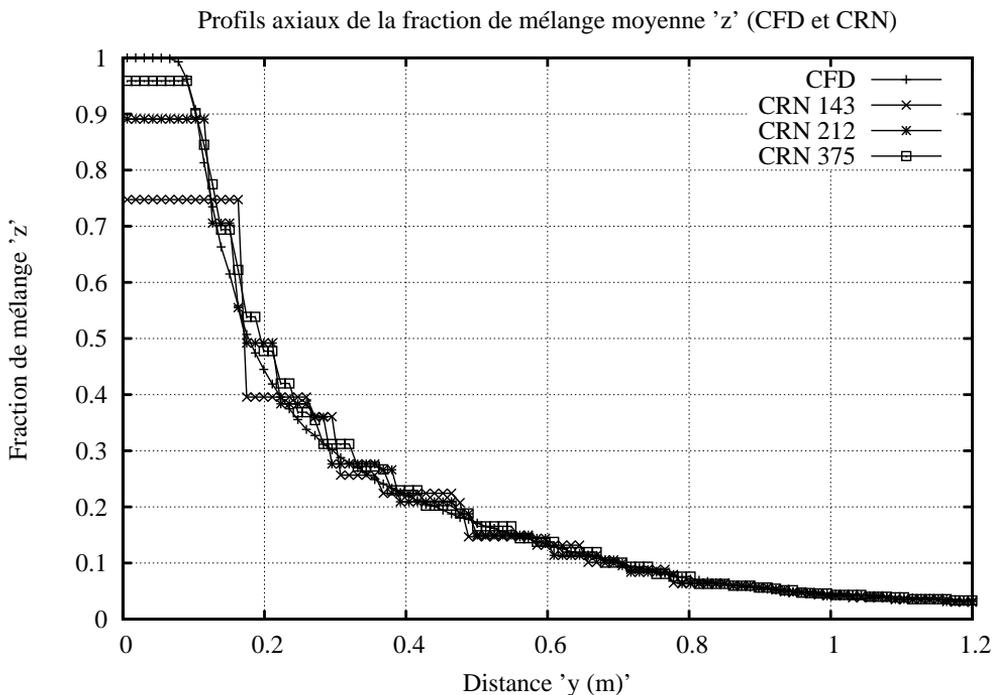


FIGURE 8.9 – Profils axiaux de fraction de mélange z pour le calcul CFD et 3 réseaux contenant respectivement 143, 212 et 375 réacteurs chimiques.

La figure 8.9 démontre que malgré la simplification de l'écoulement turbulent en un réseau de réacteurs, le transport de scalaires passifs est correctement réalisé. On peut donc estimer que la topologie globale de l'écoulement est bien représentée et on valide le calcul des matrices de flux de masses ($F_{c_{ij}}$ et $F_{d_{ij}}$). En effet, on observe une réelle convergence des courbes CRN vers le calcul CFD lorsque le nombre de réacteurs augmente. La présence de "paliers" sur les courbes CRN provient de l'hypothèse d'homogénéité parfaite des réacteurs (une seule grandeur sur tout le volume).

On note par contre que l'intégrale sous les courbes CRN n'est pas équivalente à celle du calcul CFD. Les plus faibles valeurs des paliers pour le CRN proviennent en réalité d'une diffusion axiale plus importante que dans le calcul CFD (effet de moyenne due à l'hypothèse d'homogénéité parfaite des réacteurs). Ceci rend le CRN légèrement plus diffusif que le calcul CFD et permet de conserver le flux de masse entre le calcul CFD et les CRN. Ceci explique pourquoi les maxima des courbes CRN n'atteignent pas 1. On observe que raffiner le découpage, notamment dans le champ de fraction de mélange z , permet de rapprocher le maximum du CRN de celui du calcul CFD.

Dans cet écoulement où la diffusion à travers les iso- z prédomine, il convient en effet de raffiner le découpage selon z afin de capturer la physique diffusif et de respecter les gradients qui en sont à l'origine. Le CRN_375 dispose donc d'une meilleure représentation de l'écoulement. Toutefois, en comparant la courbe du CRN_212 et du CRN_143, on comprend que raffiner le champ d'âge fluide a permet également de mieux discrétiser cet écoulement globalement unidirectionnel (flamme jet) par une succession de réacteurs en cascade.

Dès lors, le CRN_212 semble être un bon compromis "représentation de l'écoulement / temps de calcul" puisque le nombre de réacteurs est linéaire avec le nombre de calculs de PSR par itération. Ainsi, même si le nombre d'itérations reste quasiment constant, le temps de calcul croît avec le nombre de réacteurs. Le tableau 8.2 en atteste puisqu'il présente les temps de calculs et le nombre d'itérations nécessaires à la convergence des 3 réseaux de réacteurs chimiques étudiés pour la flamme de Masri.

Réseaux analysés	N_a	N_z	N_c	Nb d'itérations	Tps de calcul
CRN 143	5	10	4	60	337 s
CRN 212	10	10	4	64	535 s
CRN 375	20	20	5	59	812 s

TABLE 8.2 – Temps de calcul et nombre d'itérations pour les 3 CRN (flamme de Masri)

L'objectif suivant est de montrer que si les champs de scalaires passifs (ici, z) issus des CRN sont cohérents avec ceux du calcul CFD, il n'en est pas de même pour les champs des scalaires réactifs tels que la température T . Les scalaires réactifs évoluent lors du transport (convectif et diffusif) par les flux de masse échangés entre réacteurs mais dépendent aussi et surtout de la modélisation du terme source chimique. De ce point de vue, le calcul CFD et la modélisation par CRN diffèrent.

La figure 8.10 illustre les différences de modélisation entre le CRN et le calcul CFD à travers les champs moyens de température.

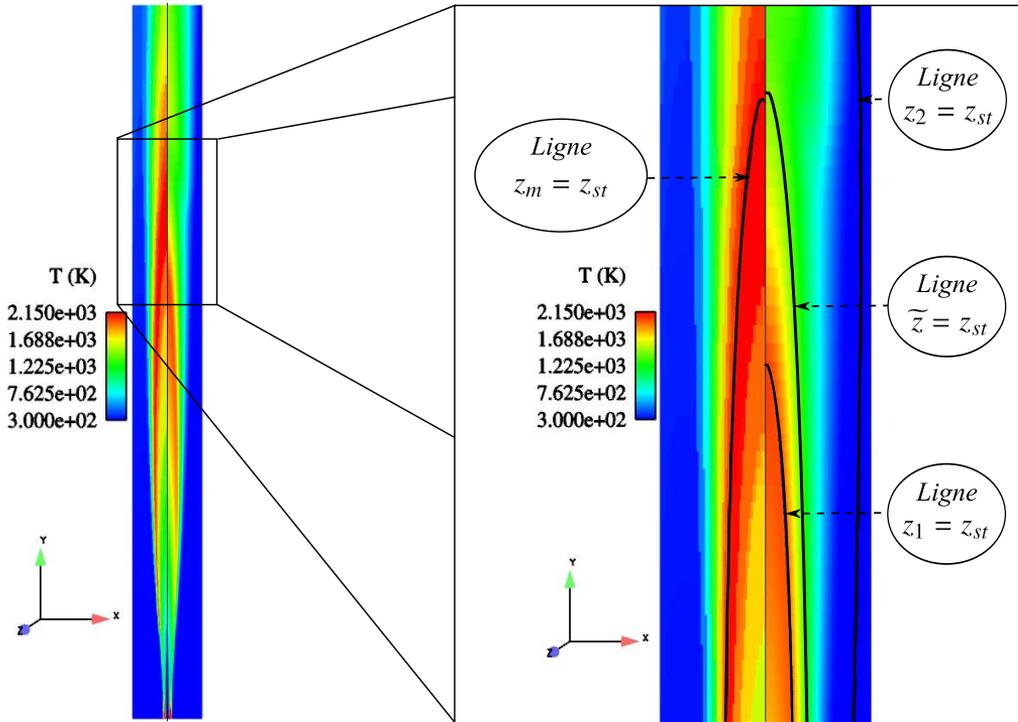


FIGURE 8.10 – Champs moyens de température T pour le CRN_212 (à gauche) et le calcul CFD (à droite). Dans le zoom, on rajoute les lignes stoechiométriques pour \tilde{z} ainsi que pour z_m , z_1 et z_2 de la pdf $P(z, Y_f)$ du modèle LWP 4 pics (Robin et al., 2008).

La partie gauche de la figure 8.10 met en avant un décalage des flammes représentées par les modélisations CFD et CRN. D'un côté, le CRN ne considère que l'information moyenne mais inclut une cinétique détaillée. De l'autre, le calcul CFD tient compte des fluctuations turbulentes mais n'utilise qu'une cinétique globale limitée à une seule réaction pour l'oxydation des hydrocarbures (C_nH_m).

En rappelant que les 2 modélisations possèdent des champs de z moyens équivalents (voir les profils axiaux de la figure 8.9), ces flammes de diffusion devraient en théorie se localiser autour des lignes stoechiométriques $\tilde{z} = z_{st}$ pour le calcul CFD et $z_m = z_{st}$ pour le CRN. L'équivalence des champs moyens de z devraient se reporter sur les champs moyens de T pour ces 2 flammes. On note cependant que la flamme du calcul CFD est située en amont de son homologue par rapport à l'écoulement, comme si la flamme CFD se positionnait dans la zone riche du champ \tilde{z} .

Ainsi, nous avons tout d'abord pensé que la cinétique globale du modèle CFD était en cause puisque l'influence du CO est négligé. La réaction globale ne tient pas compte en effet de la formation du CO et ne traite que CO_2 et H_2O comme produits de combustion.

Par conséquent, le modèle CFD a tendance à surestimer le terme source en riche en raison d'une température plus élevée (pas de dissociations $CO_2 \rightarrow CO$). Comme la flamme de diffusion se situe là où le taux de réaction est le plus élevé, le décalage de la flamme dans la zone riche de z moyen aurait pu être expliqué.

Cependant, le zoom en partie droite de la figure 8.10 appuie une autre explication qui met en cause non pas la cinétique globale du calcul CFD mais la représentation des états turbulents à savoir la forme de $P(z, Y_f)$ donnée par le modèle LWP 4 pics.

En effet, le CRN, qui ne tient compte que de l'état moyen, positionne correctement sa flamme de diffusion turbulente autour de la ligne stoechiométrique de z_m . En comparant la ligne stoechiométrique de z_m à celle de \tilde{z} , on observe qu'elles sont équivalentes. On prouve ainsi que la flamme de diffusion du calcul CFD est générée en amont de la ligne $\tilde{z} = z_{st}$ et non pas autour de celle-ci comme elle devrait l'être en théorie.

En réalité, dans le calcul CFD, la flamme de diffusion se localise bien autour d'une ligne stoechiométrique qui n'est pas celle de \tilde{z} mais celle de l'état turbulent z_1 calculé par la *pdf*. En nous aidant de la figure 8.11 qui illustre le comportement de la $P(z, Y_f)$ pour la flamme de Masri, nous allons expliquer ce phénomène.

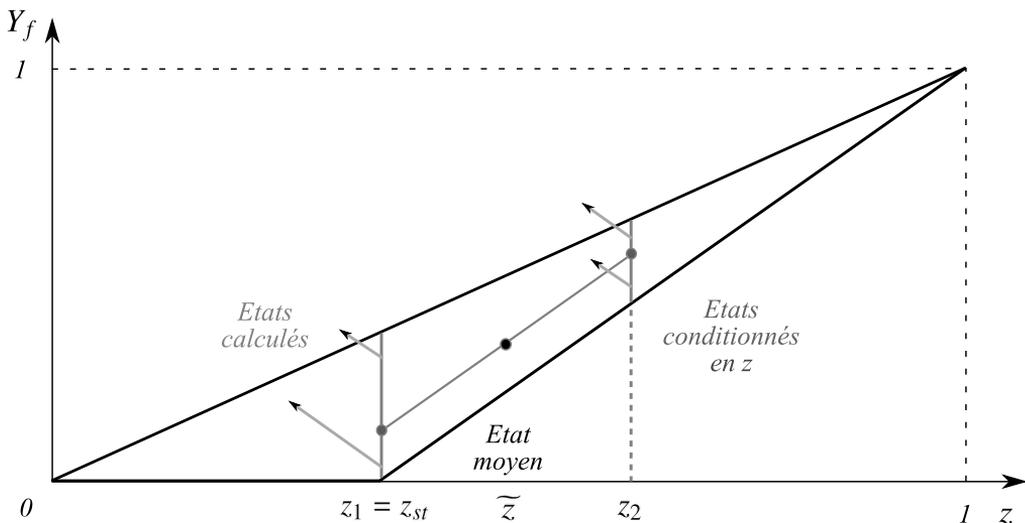


FIGURE 8.11 – Lacune de modélisation de la *pdf* $P(z, Y_f)$ (flamme de Masri)

Si les fluctuations turbulentes sont suffisantes, la forme présumée de $P(z, Y_f)$ calcule deux états z_1 et z_2 qui se distinguent de l'état moyen \tilde{z} . Leurs lignes stoechiométriques respectives ne se confondent donc pas comme le montre la figure 8.10.

Ne calculant l'information qu'autour de ces 2 états discrets z_1 et z_2 , cette *pdf* induit un terme source moyen maximal qui est localisé autour de la ligne stoechiométrique du champ z_1 . Comme les flammes de diffusion ne possèdent pas de dynamique propre, elles se localisent autour des taux de réaction les plus élevés.

La flamme de diffusion du calcul CFD se situe par conséquent autour de la ligne $z_1 = z_{st}$ qui appartient à la zone riche du champ \tilde{z} comme le montre la figure 8.11. En effet, lorsque l'écoulement est riche en moyenne ($\tilde{z} < z_{st}$), l'état z_1 est alors le plus proche de la stoechiométrie ($z_1 \rightarrow z_{st}$) et engendre le terme source moyen maximal qui va permettre de stabiliser la flamme.

Cet effet existe également lorsque l'écoulement est pauvre en moyenne ($\tilde{z} > z_{st}$). L'état turbulent z_2 se rapproche de la stoechiométrie et engendre son terme source maximum autour de la ligne $z_2 = z_{st}$. Toutefois, la pondération imposée par $P(z, Y_f)$, vise à réduire l'amplitude des distributions de Dirac en z_2 et atténue son effet.

Ce défaut de modélisation de la pdf $P(z, Y_f)$ du modèle LWP provoque des incohérences physiques comme le comportement bimodal (deux maxima) de la température CFD sur l'axe (voir figure 8.4). La figure 8.12 souligne cette aberration physique en présentant les profils axiaux de température moyenne pour le CRN et le calcul CFD.

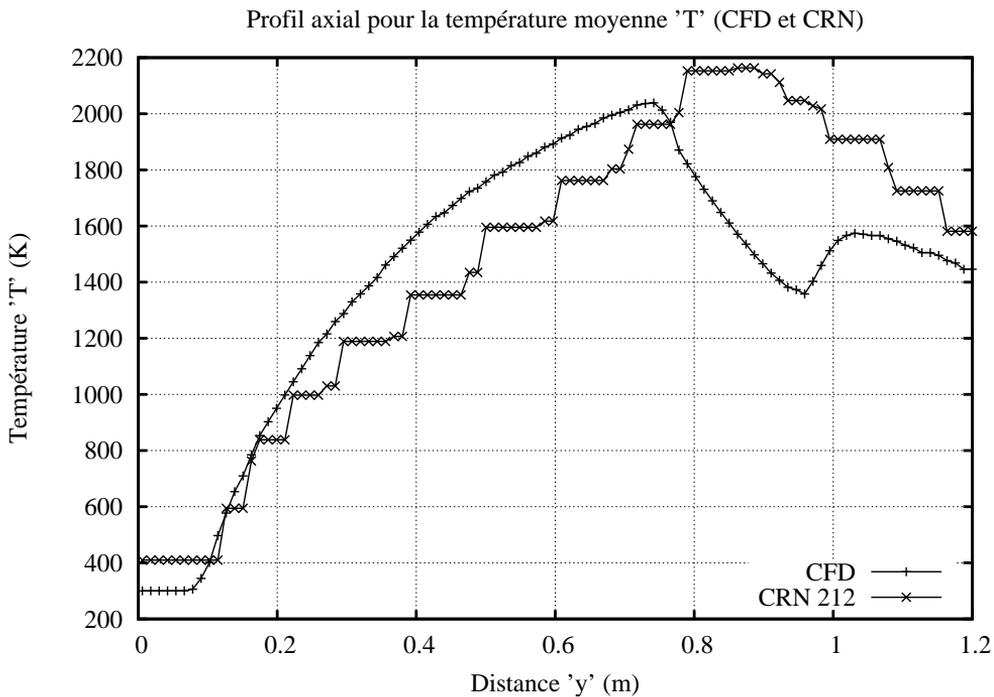


FIGURE 8.12 – Profils axiaux de température obtenus avec le CRN et le calcul CFD (Flamme de Masri).

La pdf $P(z, Y_f)$ induit 2 maxima de température qui correspondent aux lignes stoechiométriques pour z_1 et z_2 autour desquelles les taux de réaction (et donc les avancements réactionnels) sont maximaux. Physiquement le long de l'axe, la dilution progressive du jet de combustible par l'air environnant fait croître la température jusqu'à son maximum situé autour de la stoechiométrie ($\tilde{z} = z_{st}$). La température décroît ensuite de manière monotone et impose une forme mono-modale pour le profil axial de température.

Contrairement au calcul CFD et au delà de la présence de "paliers" due à l'hypothèse de mélange parfait sur le volume des réacteurs, le CRN présente quant à lui une évolution mono-modale et réaliste du profil axial de température. On note que le maximum de la température du CRN est supérieur à celui du calcul CFD puisque la pondération de la *pdf* limite le terme source du calcul CFD. La position des maxima souligne également le décalage axial des flammes prédites par le CRN et le calcul CFD.

8.1.5 Prédictions de NO et de CO (réseaux de réacteurs)

Précédemment, nous avons mis en évidence un défaut de représentation des états turbulents par la *pdf* du modèle LWP. Comme la modélisation par réseaux de réacteurs turbulents (TRN) utilise la même forme de *pdf*, elle hérite de ce défaut. Les prédictions de *NO* et de *CO*, très dépendantes de *z* en seront fortement affectés. Ainsi, les résultats obtenus à l'aide des réseaux de réacteurs chimiques (CRN) ou des réseaux de réacteurs turbulents (TRN) diffèrent comme le montre la figure 8.13.

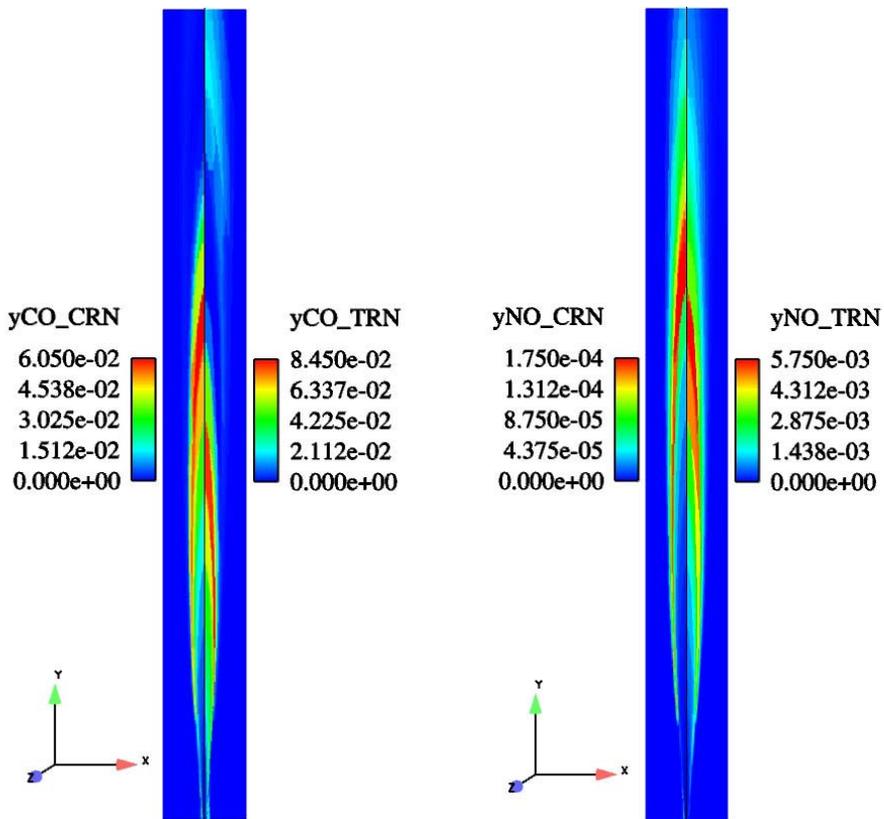


FIGURE 8.13 – Champs de Y_{CO} et de Y_{NO} pour le CRN et le TRN (Flamme de Masri).

Le CRN ne considère que l'état moyen z_m et en conséquence, le *CO* est formé en amont de la ligne stoechiométrique $z_m = z_{st}$, du côté riche de l'écoulement moyen.

Le NO est quant à lui formé autour de la ligne stoechiométrique $z_m = z_{st}$, légèrement côté pauvre. La modélisation par CRN assure de plus une évolution axiale mono-modale pour le NO et le CO .

Le TRN tient compte des fluctuations turbulentes ($\overline{z'^2} \neq 0$) mais ne calcule les grandeurs physiques que sur les 2 états discrets z_1 et z_2 de la *pdf*. Ainsi, les termes sources moyens pour NO et CO ne seront calculés qu'en fonction des lignes stoechiométriques pour ces 2 états turbulents soient : $z_1 = z_{st}$ et $z_2 = z_{st}$.

Comme la majeure partie de la variance du réacteur provient de la variance de sous-maille contenue dans chaque cellule CFD, la *pdf* du réacteur ressemble de très près à celle des cellules qui le constitue. Dès lors, si les lignes stoechiométriques $\tilde{z} = z_{st}$, $z_1 = z_{st}$ et $z_2 = z_{st}$ du calcul CFD ne coïncident pas, il en sera de même pour le TRN. De plus, même si on normalise la variable d'avancement pour passer de $P(z, Y_f)$ à $P(z, c)$, la *pdf* en z reste inchangée.

En conséquence, dans le TRN, le CO est formé dans les zones riches des 2 états z_1 et z_2 , en amont de leurs lignes stoechiométriques respectives si l'on considère la direction de l'écoulement. C'est pourquoi, on observe sur l'axe y une bimodalité du CO généré par le TRN même si la faible amplitude de l'état z_2 atténue la seconde formation de CO qui est localisée en haut du maillage.

Il convient d'appliquer le même raisonnement au NO calculé par le TRN. Ce dernier est majoritairement formé dans la zone stoechiométrique, côté légèrement pauvre, de l'état z_1 . La ligne stoechiométrique de l'état z_2 est très proche du bord du maillage pour le calcul CFD (voir figure 8.10). Ceci explique pourquoi on ne voit pas apparaître une seconde zone de formation de NO , liée à z_2 , en aval de la première associée à z_1 . Il est néanmoins légitime de penser que le NO présente lui aussi un comportement irréaliste (multi-modal) le long de l'axe y .

Le défaut de la *pdf* en z du modèle LWP qui est ici porté à l'échelle du réacteur et non plus celle de la cellule CFD, impose également un décalage des champs de NO et de CO entre les 2 modélisations par réseaux de réacteurs (CRN et TRN) comme le montre la figure 8.13.

Comme ces modélisations par réseaux de réacteurs chimiques (CRN) ou turbulents (TRN) inclut une cinétique détaillée et disposent des mêmes termes sources locaux pour le NO et le CO , seule la *pdf* peut être mise en cause.

Développé et validé sur des configurations de combustion partiellement prémélangée où la richesse du mélange appartenait au domaine d'inflammabilité (banc Oracles du LCD, flamme en V du Coria), le modèle LWP 4 pics (Robin et al., 2008) et sa *pdf* présentent ici une forte limitation dans la représentation des flammes de diffusion turbulentes en terme de température et de prédiction des émissions polluantes.

8.2 Description du cas d'étude : Tube à flamme industriel

8.2.1 Description du cas d'étude

A l'image des champs Y_{CO} et Y_{NO} de , le même décalage existe entre les champs issus du CRN et du réseau de réacteurs turbulents (TRN) qu'entre le CRN et le calcul CFD. L'origine étant exactement la même (lacune de la pdf $P(z, c)$), elle justifie les études réalisées dans l'optique d'amélioration de la représentation des états turbulents à travers la forme de $P(z, c)$.

Toutefois, cette forme de la pdf $P(z, Y_f)$ (ou $P(z, c)$) pourrait être capable de représenter l'écoulement réactif partiellement prémélangé d'une configuration industrielle réaliste. En effet, la sur-estimation de la variance de z accentuée peut être un défaut mineur de la pdf $P(z, Y_f)$ dans le cas de cette pure flamme non prémélangée. Il convient donc de tester les capacités des modèles proposés (calcul CFD, CRN et TRN) sur le cas d'un tube à flamme industriel.

La figure 8.14 décrit la topologie complexe de l'écoulement turbulent réactif qui siège dans le tube à flamme industriel étudié.

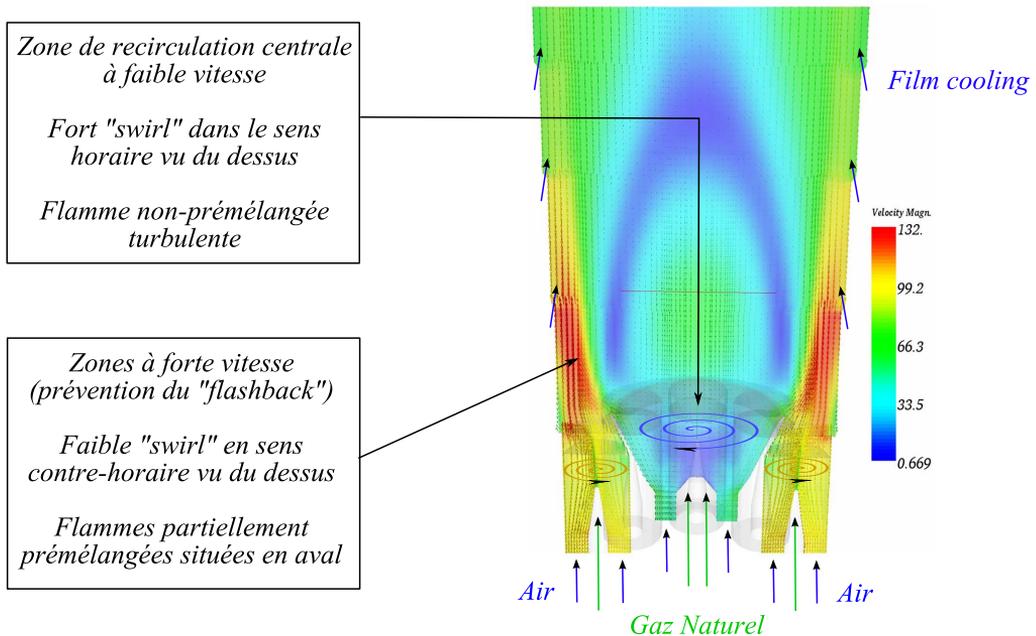


FIGURE 8.14 – Écoulement turbulent réactif dans le tube à flamme industriel étudié.

La TAC associée à cette étude intègre 16 tubes à flammes comme celui-ci placés en anneau autour de l'axe de la turbine. Chaque tube contient 9 injecteurs de gaz naturel (un injecteur central et 8 injecteurs périphériques). Chaque injecteur est entouré par un écoulement d'air mis plus ou moins fortement en rotation (swirl).

La figure 8.14 met en lumière la complexité de l'écoulement au sein de ce tube à flamme où cohabitent des zones à faibles vitesses (zone de recirculation centrale) et des écoulements plus rapides permettant de prévenir le retour de flamme ("flashback"). De plus, les rotations imposées à ces flux tournent en sens inverse afin d'améliorer leur mélange à la jonction des affluents.

La zone centrale fortement "swirlée" induit un écoulement peu vélocé qui permet de stabiliser une flamme non-prémélangée dite "pilote". L'objet de cette flamme est notamment d'entretenir les flammes partiellement prémélangées générées en aval des 8 injecteurs périphériques. La flamme pilote ensemece l'écoulement en radicaux libres aptes à dégrader le combustible provenant des injecteurs périphériques et à initier les réactions chimiques nécessaires à l'allumage des flammes partiellement prémélangées.

Le maillage associé à cette géométrie complexe a été défini et nous a été fourni au début de la thèse. Ce maillage contient 235 000 cellules hexaédriques et est illustré sur la figure 8.15.

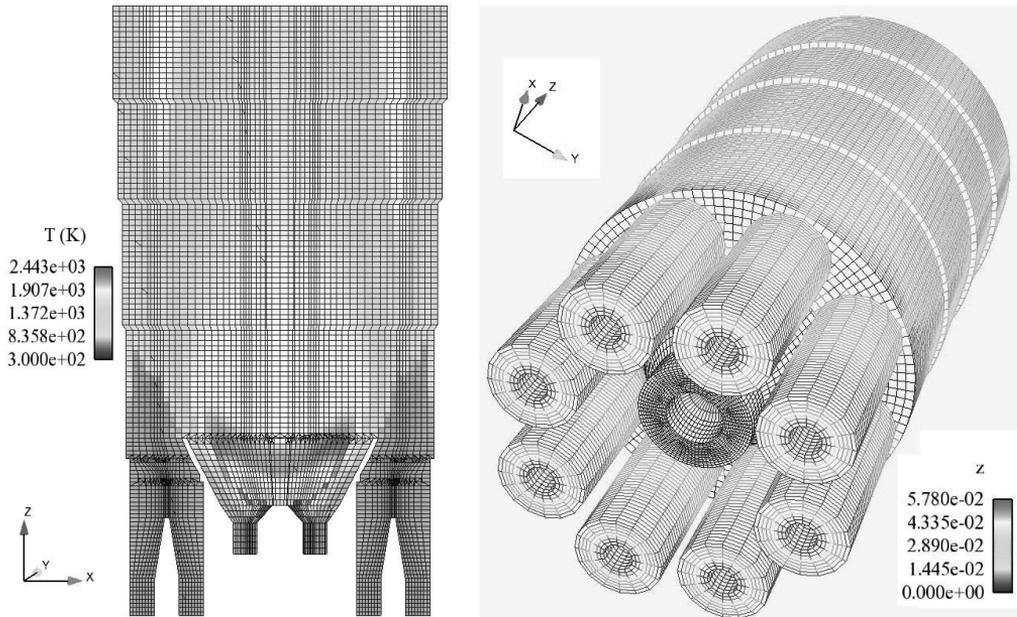


FIGURE 8.15 – Maillage de 235 000 cellules pour l'étude de l'écoulement turbulent réactif du tube à flamme industriel.

Compromis entre la description de l'écoulement et le nombre de cellules, ce maillage ne permet pas de représenter les phénomènes d'injection puisque les trous d'injection du gaz naturel ont des sections 3 à 4 fois plus petites que la surface caractéristique des faces de maille dont l'ordre de grandeur est 0,5 cm. Le diamètre des 4 trous d'injection de chaque injecteur périphérique est de 3,5 mm et les 8 trous de l'injecteur central sont encore plus petits (2,5 mm de diamètre). De même pour des raisons de confidentialité industrielle, les dimensions exactes de ce tube à flamme ne seront pas données.

On peut toutefois donner les ordres de grandeur dimensionnels de longueur (50 cm) et de circonférence (30 cm) pour le tube à flamme étudié.

En plus de la complexité géométrique, ce cas d'étude industriel impose des conditions d'écoulement délicates à prendre en compte qui rajoutent aux difficultés de modélisation du problème académique précédent (flamme jet méthane - air) :

1. La pression n'est plus la pression atmosphérique mais dépasse 15 bars à la sortie des compresseurs pour 100 % de la charge en combustible.
2. La température de l'air en entrée n'est plus de 300 K mais atteint 687 K à la sortie des compresseurs pour 100 % de la charge en combustible.
3. Le combustible injecté est un mélange d'espèces chimiques contenant 3 hydrocarbures (CH_4 , C_2H_6 et C_3H_8) majoritaires.
4. L'écoulement n'est plus quasi-unidirectionnel et ne peut pas être simplifié par une symétrie de révolution. En effet, les swirls contra-rotatifs engendrent un mouvement tridimensionnel et génèrent des zones de recirculation.

Ces contraintes ont dû être prises en compte lors de la construction des tabulations chimiques pour le NO , le CO ou encore lors du calcul des termes sources pour la variable réactive Y_h à partir de calculs de flammes laminares 1D à chimie détaillée.

De surcroît, si la répartition des débits de combustible sur les différents injecteurs est connue, il n'en est pas de même pour la répartition de l'air d'entrée sur ces injecteurs. Un calcul CFD préalable de l'écoulement dans le carter enveloppant le tube à flamme est donc requis pour déterminer les conditions aux limites d'entrée pour l'air injecté dans le tube à flamme comme l'illustre la figure 8.16.

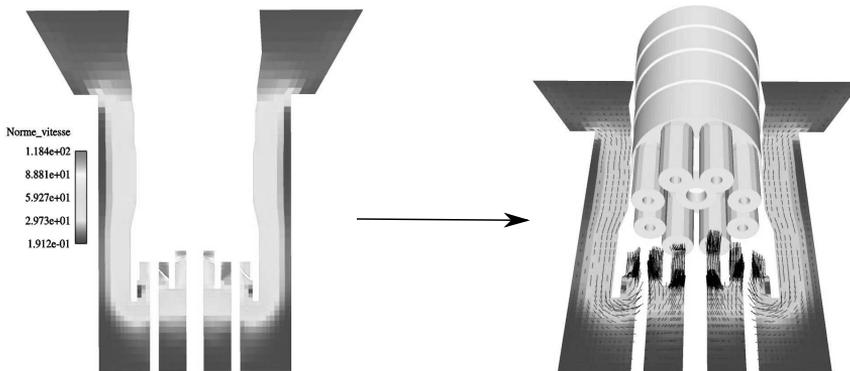


FIGURE 8.16 – Calcul de l'écoulement turbulent dans le carter en amont du tube à flamme. Détermination des conditions aux limites pour l'air en entrée du tube à flamme.

Contenant 86 200 cellules, le maillage du carter est raffiné près des injecteurs et les aubes de "swirl" sont toutes représentées. Ce maillage considère également les pertes de charge induites par les sections de passage des cannes d'injection.

Les aubes sont vrillées et ont une inclinaison moyenne par rapport à l'axe z (axe parallèle à l'axe de symétrie de chaque injecteur) de respectivement 40° pour l'injecteur central et 15° pour les 8 injecteurs périphériques. En résumé, l'écoulement d'air en entrée de chaque injecteur est profilé sur 3 dimensions comme l'image la figure 8.17.

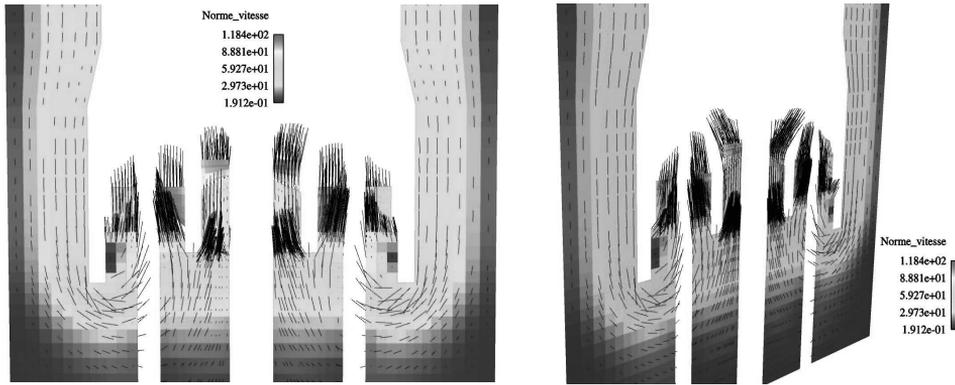


FIGURE 8.17 – Allure des vecteurs vitesses \underline{u} en sortie des aubages du carter.

En imposant la pression sur toute la section de sortie du carter, on obtient un écoulement fortement subsonique ($Ma < 0.3$) en entrée du tube à flamme. A titre informatif, les vitesses d'air en entrée avoisinent les 90 m/s et la répartition d'air entre l'injecteur central et les 8 injecteurs périphériques est environ $15\% / 85\%$ du débit masse total traversant chaque tube à flamme et cela quel que soit le taux de charge de la TAC.

En raison de la richesse d'informations fournies par ce calcul "amont", nous avons tabulé pour chaque facette de sortie du carter les 3 composantes du vecteur vitesse \underline{u} ainsi que les conditions aux limites turbulentes par k et ε .

Le positionnement des flammes partiellement prémélangées est très dépendant du mélange entre l'air et le combustible le long des filets fluides issus de chaque injecteur périphérique. Dès lors, pour combler les lacunes du maillage et simuler l'effet d'injection du combustible dans l'air "swirlé" par les multiples trous de chaque injecteur périphérique, nous imposons :

1. Une rampe de richesse ϕ sous la forme d'une fonction $z = f(r)$ dont la valeur maximale en $r = 0$ vaut 3 fois la richesse moyenne calculée à partir des débits massiques.
2. Un profil de variance associé à cette rampe de richesse en prenant la moitié de la variance maximale, soit : $\widetilde{z''^2} = 0,5\widetilde{z}(1 - \widetilde{z})$.

Pour les autres conditions aux limites d'entrée ("film cooling", injections d'air en fond de chambre), des profils plats sont imposés. Il en est de même pour la température qui vaut respectivement 300 K dans le combustible et 687 K dans l'air.

Enfin, une pression de 15 bars est imposée sur la section de sortie du tube à flamme.

8.2.2 Champs CFD et découpage

Comme précédemment, nous présentons les champs scalaires ayant trait au découpage de l'écoulement en réseau de réacteurs. Le calcul CFD est toujours basé sur le modèle LWP 4 pics dans sa dernière déclinaison (Robin, 2007). Les champs de la fraction de mélange moyenne \bar{z} , de la température moyenne \bar{T} et de l'âge (fluide) moyen \bar{a} sont ainsi présentés sur la figure 8.18.

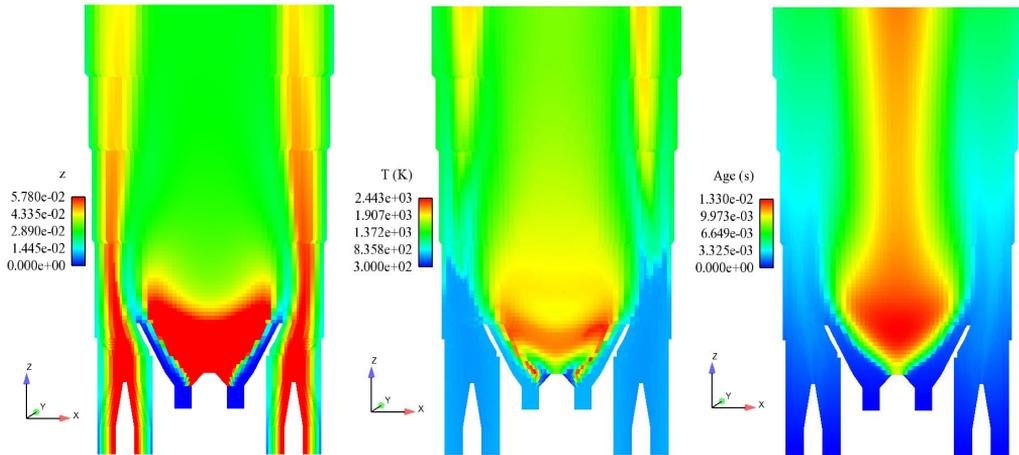


FIGURE 8.18 – Champs CFD moyens pour le tube à flamme industriel. De gauche à droite : La fraction de mélange z , la température T et l'âge (fluide) a .

Dans la figure 8.19, nous y rajoutons le champ du traceur fluide Tr afin de concrétiser la notion de *quadrillage fluide* par l'interaction du champ d'âge a et de quelques iso- Tr .

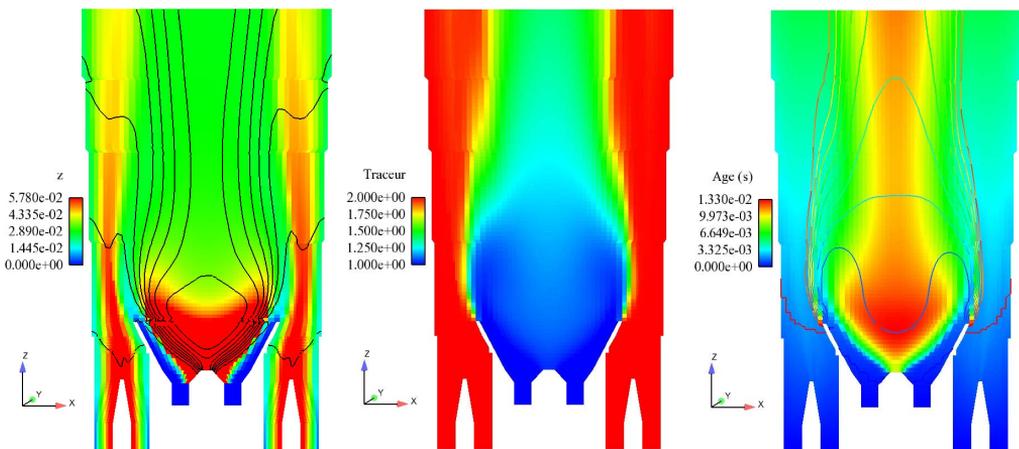


FIGURE 8.19 – Champs CFD moyens pour le tube à flamme industriel. De gauche à droite : L'interaction de z avec les iso-contours de l'âge a , le traceur Tr et son interaction avec l'âge (quadrillage fluide) par le biais de quelques iso-contours.

L'expérience acquise lors de l'étude de l'écoulement quasi-unidirectionnel de la flamme de Masri nous indique que l'écoulement à fortes vitesses issu des injecteurs périphériques doit être découpé en insistant sur le découpage en âge a . Toutefois, dans la zone de recirculation, l'âge fluide a prend des valeurs très élevées et le découpage en âge à adopter serait alors trop détaillé et inadapté.

On distingue alors 2 zones d'écoulement dans le tube à flamme suivant qu'il provienne de l'injecteur central (indice c) ou des injecteurs périphériques (indice p). A l'aide du champ de traceur Tr et des débits masse, on définit la valeur de coupe Tr_c à 1,87. Cette valeur est par ailleurs quasiment constante quelle que soit la charge de la TAC.

On adapte ainsi le découpage en âge à la topologie de la zone étudiée et pour la zone de recirculation, le champ de traceur Tr est encore utilisé pour définir le *quadrillage fluide* et garantir une connexité suffisante des réacteurs dans cette zone.

Sans détailler l'étude de sensibilité, nous réitérons notre étude sur le nombre de réacteurs aptes à décrire l'écoulement pour espérer capturer les émissions de NOx et de CO en sortie du tube à flamme. La tableau 8.3 en résume les principaux éléments.

Réseaux analysés	N_a^c	N_{Tr}^c	N_a^p	N_z	N_c	Facteur d'étude
RN 110	4	2	8	8	3	Découpage grossier (en z et c)
RN 236	6	3	10	14	4	Découpage chimique (z et c) raffiné
RN 369	10	5	15	14	4	Découpage raffiné (en z , c et a)

TABLE 8.3 – *Découpage réalisé pour le tube à flamme industriel*

8.2.3 Validation des prédictions de NO et CO (réseaux de réacteurs)

Une fois encore, nous vérifions la pertinence du découpage en comparant les résultats donnés par les réseaux de réacteurs chimiques (CRN) au calcul CFD pour le transport des scalaires passifs (champ de z) et le calcul des scalaires réactifs (champ de T).

Ces comparaisons ne portent en effet que sur les CRN puisque les réseaux de réacteurs turbulents (TRN) n'appliquent qu'une opération de moyenne aux champs CFD de z moyen. De plus, il ne donnent pas accès au champ de température puisque seules les équations d'évolution de Y_{NO} et de Y_{CO} sont considérées contrairement aux CRN où la composition chimique complète est résolue.

Toutefois, nous rappelons que le découpage simplifiant l'écoulement en un réseau de réacteurs et que les matrices Fc_{ij} et Fd_{ij} exprimant les flux de masse échangés entre réacteurs sont communs aux modélisations CRN et TRN.

Dès lors, si le champ de z moyen du calcul CFD est correctement représenté par le CRN qui contient déjà l'effet de moyenne infligée au calcul CFD par la modélisation en TRN, nous validerons l'opération de moyenne pour les 2 approches "RN".

La figure 8.20 compare ces champs de z (z_m pour les CRN, \tilde{z} pour le calcul CFD) en bornant leurs échelles respectives à la stoechiométrie pour la combustion du gaz naturel avec l'air : $z_{st} = 0,0578$.

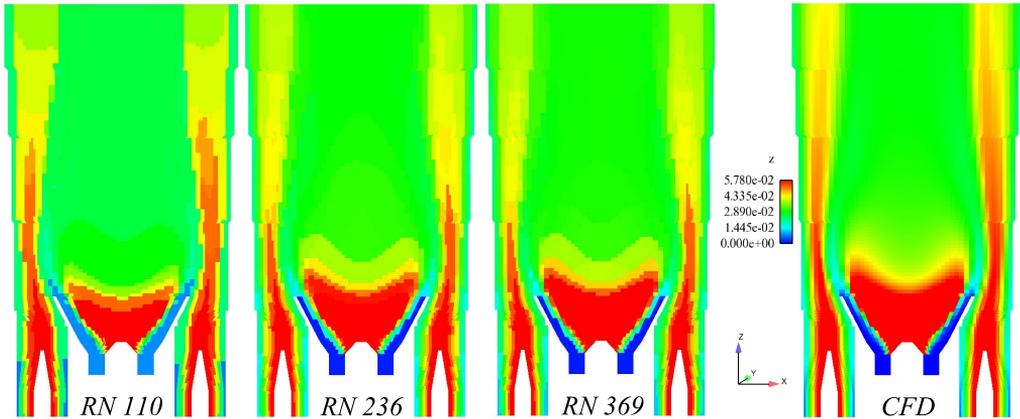


FIGURE 8.20 – Convergence des champs moyens de z pour les 3 CRN vers le calcul CFD dans l'étude du tube à flamme industriel.

Sur la figure 8.20, on observe la convergence des champs RN de z vers le calcul CFD pour un nombre croissant de réacteurs. Ainsi, on note une forte amélioration dans la représentation de z , notamment dans la zone centrale, entre le RN_110 et le RN_236 dont le découpage chimique est raffiné (N_z et N_c sont plus élevés). L'évolution entre les RN_236 et le RN_369 est quant à elle bien moins flagrante et semble dénoter un manque d'influence du découpage raffiné en âge a .

Toutefois, pour mieux juger de la pertinence du découpage, on présente également les champs de température T (scalaire réactif) dans la figure 8.21.

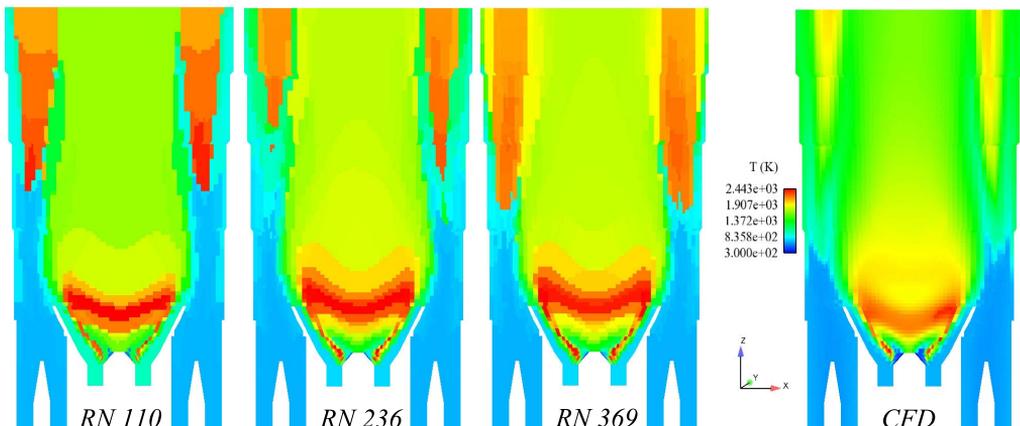


FIGURE 8.21 – Convergence des champs moyens de T pour les 3 CRN vers le calcul CFD dans l'étude du tube à flamme industriel.

En possession de ces champs de scalaires réactifs, nous pouvons en premier point observer le réel impact du découpage physique dans le champ d'âge fluide. En effet, si le champ de z est quasiment équivalent entre les RN_236 et RN_369, la position et la forme des flammes partiellement prémélangées est bien mieux décrite dans le RN_369 en terme de température. La prédiction des NOx en sera affectée.

En ce qui concerne le RN_110, son apparente bonne représentation du champ de z dans la zone périphérique est un artifice visuel dû en réalité à l'effet de moyenne du découpage grossier. Les réacteurs riches situés dans les filets amont des injecteurs périphériques propagent leur forte richesse en aval car ils s'étendent sur un large volume. En aval des filets fluides périphériques près de la sortie, les réacteurs subissent ce même effet et accueillent cette fois-ci une richesse bien plus faible que celle du calcul CFD.

De même, le bon positionnement apparent de la flamme de diffusion dans la zone centrale du RN_110 par rapport au calcul CFD est un cumul de coïncidences. En effet, d'un côté, la flamme de diffusion du RN_110 est localisée autour de la ligne stoechiométrique pour z_m qui est moins étendue que pour les autres RN. De l'autre côté, la flamme du calcul CFD est encore positionnée dans la zone riche de \tilde{z} et non pas autour de sa ligne stoechiométrique (défaut de $P(z, Y_f)$) comme le montre la figure 8.22

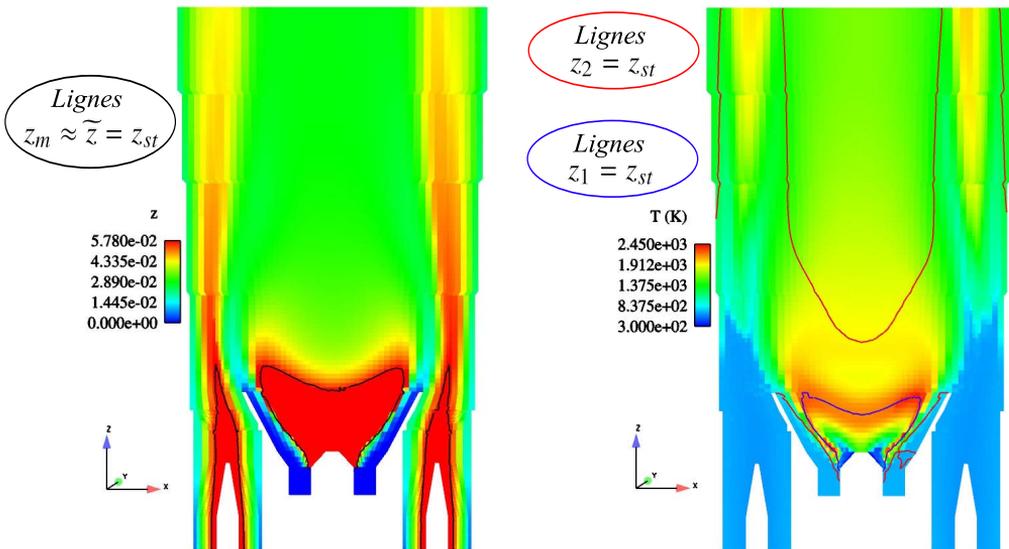


FIGURE 8.22 – Positionnement des flammes du calcul CFD par rapport aux lignes stoechiométriques pour \tilde{z} , z_1 et z_2 calculés par la pdf $P(z, Y_f)$.

Malgré une richesse moyenne faible, le calcul CFD engendre des flammes partiellement prémélangées. L'existence de particules fluides dans le domaine d'inflammabilité est à la fois un effet du défaut de mélange en entrée (impact des CL) et une aptitude du modèle LWP. Néanmoins, une richesse faible ne signifie pas hors du domaine d'inflammabilité qui est étendu par le préchauffage de l'air et la pression. L'écoulement moyen est pauvre ($\tilde{z} < z_{st}$) : z_2 est alors le plus près de la stoechiométrie z_{st} et brûle en riche ($z_2 > z_{st}$).

Malgré nos espoirs, le défaut de la pdf $P(z, Y_f)$ impacte également de manière notable le calcul de cet écoulement industriel. Les champs de Y_{NO} et de Y_{CO} prédits par les modèles de réseaux de réacteurs turbulents (TRN) en sont donc affectés comme l'illustrent les figures 8.23 et 8.24 qui les comparent aux champs associés pour les réseaux de réacteurs chimiques (CRN). Ces résultats sont tirés du réseau de 369 réacteurs.

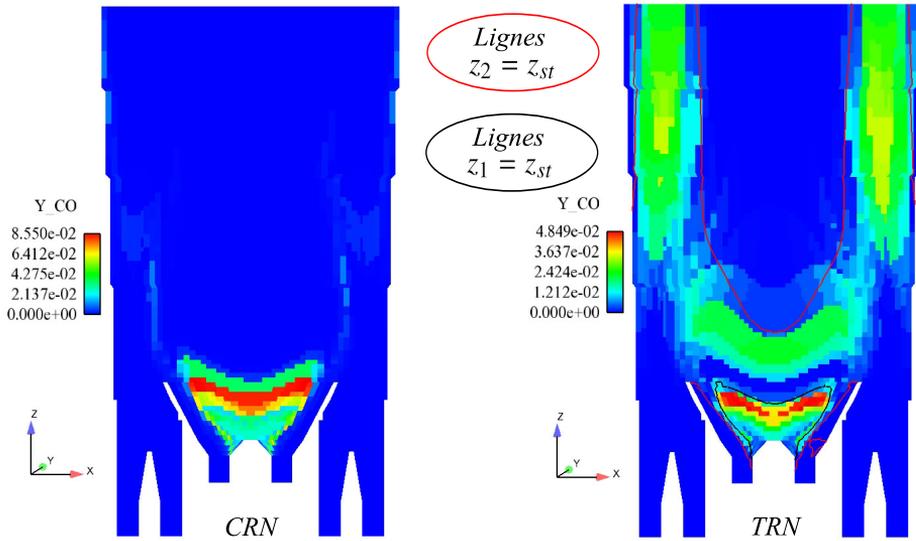


FIGURE 8.23 – Champs de Y_{CO} prédits par le CRN et le TRN dans le tube à flamme.

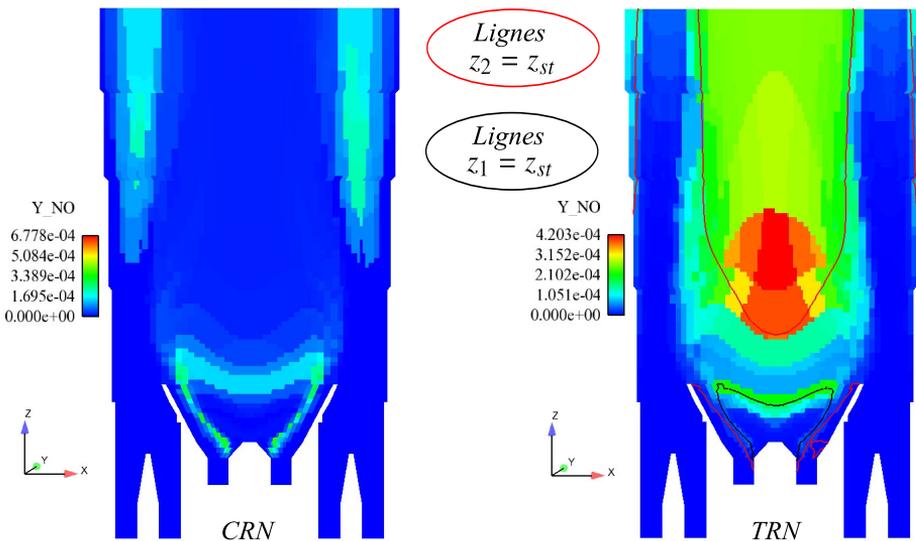


FIGURE 8.24 – Champs de Y_{NO} prédits par le CRN et le TRN dans le tube à flamme.

Comme pour la flamme de Masri, le CO est formé du côté riche de l'état moyen z_m pour le CRN et dans les zones riches des états z_1 et z_2 pour le TRN (voir figure 8.23).

Pour la formation du NO , le problème est identique comme le montre la figure 8.24.

Le NO est formé près de la stoechiométrie légèrement côté pauvre vis-à-vis de l'état moyen z_m pour le CRN et vis-à-vis des champs z_1 et z_2 pour le TRN.

Les émissions de CO et de NO prédites par les 2 approches de réseaux de réacteurs sont regroupés dans le tableau et l'émission de NO est comparé à la valeur mesurée sur site.

Approches	expérimentale	modèle CRN_369	modèle TRN_369
NO (ppmvd)	42	40	140
CO (ppmvd)	n.m.	534	2 439

TABLE 8.4 – Emissions prédites de NO et de CO . Comparaison à la valeur mesurée.

En raison de la pdf $P(z, c)$ du modèle LWP et de ses défauts, les émissions prédites par le TRN sur-évaluent les résultats du CRN d'un facteur supérieur à 5 pour le CO et supérieur à 3 pour le NO . Cette modélisation, censée améliorer la représentation des états turbulents dans les réacteurs, fournit ici des résultats bien médiocres comparés au CRN. Elle dépend en réalité très fortement de la forme de la pdf $P(z, c)$ et de la précision du calcul CFD à partir duquel elle tire toute information.

Le CRN réussit en effet à prédire les émissions mesurées de NO avec une grande précision (moins de 5 % d'erreur). Numériquement, le modèle de CRN traite le CO et le NO comme toutes les espèces chimiques du schéma détaillé GRI 3.0. On peut donc raisonnablement admettre que les émissions de CO sont également bien prédites même si la valeur expérimentale fait défaut (non mesurée).

Par conséquent, à ce point du mémoire, de tous les modèles proposés le *CRN_369* semble pouvoir la meilleure description de l'écoulement tant par la position ou par la représentation des flammes qu'en terme de prédiction des émissions polluantes.

De plus, le modèle de CRN nécessite un temps de calcul raisonnable (inférieur à 20 minutes) comme l'atteste le tableau 8.5 présentant le nombre d'itérations à convergence et le temps de calcul associé pour les modèles de CRN et de TRN.

Réseaux	Nb ité (CRN)	Tps calcul (CRN)	Nb ité (TRN)	Tps calcul (TRN)
RN 110	108	475 s	344	« 1 s
RN 236	55	569 s	126	< 1 s
RN 369	57	909 s	123	≈ 1 s

TABLE 8.5 – Temps de calcul et nombre d'itérations pour les 3 RN (tube à flamme)

Les faibles temps de calcul des TRN nous ont conduits à évaluer l'influence qu'aurait l'introduction d'une distribution de temps de séjour dans chaque réacteur sur les émissions prédites par le modèle de réacteurs turbulents.

8.2.4 Etude de sensibilité au temps de séjour (TRN)

Pour réaliser l'étude de sensibilité au temps de séjour, nous choisissons tout d'abord la forme de la DTS qui est imposée à tous les réacteurs turbulents (exponentielle ou log-normale). De même, nous contrôlons le nombre de tirs de la méthode Monte-Carlo chargée de résoudre cette dépendance des émissions polluantes à la DTS.

Les résultats numériques (émissions et temps de calcul) qui ont été obtenus pour le réseau de 369 réacteurs turbulents sont regroupés au sein du tableau 8.6.

Nb tirs Monte-Carlo	<i>NO</i> émis	<i>CO</i> émis	Temps de calcul
DTS exponentielle			
10 tirs	128,5 ppmvd	1 623,0 ppmvd	12 s
100 tirs	135,0 ppmvd	1 734,6 ppmvd	125 s
1 000 tirs	134,4 ppmvd	1 750,5 ppmvd	1 268 s
10 000 tirs	135,2 ppmvd	1 751,2 ppmvd	12 311 s
DTS log-normale			
10 tirs	138,6 ppmvd	1 787,2 ppmvd	12 s
100 tirs	133,8 ppmvd	1 833,6 ppmvd	127 s
1 000 tirs	134,5 ppmvd	1 850,3 ppmvd	1 223 s
10 000 tirs	135,3 ppmvd	1 854,0 ppmvd	11 431 s

TABLE 8.6 – Etude de sensibilité des émissions du TRN au temps de séjour (DTS)

Nous rappelons tout d'abord que les émissions de *NO* et de *CO* étaient respectivement de 140,0 ppmvd et 2439,0 ppmvd pour le TRN_369 sans prise en compte de DTS (intégration numérique sur le seul temps de séjour moyen des réacteurs). Ces résultats présentent une apparente indépendance du *NO* à la prise en compte de DTS dans chaque réacteur contrairement au *CO* qui évolue largement avec l'introduction d'une DTS.

Le terme source de *CO* dans chaque réacteur est fixé par la pdf $P(z, c)$ et ne dépend pas du temps de séjour. Toutefois, lors de l'intégration, le temps de séjour détermine la fraction massique engendrée dans le réacteur. Dès lors, même si la forme de la DTS respecte la moyenne (temps de séjour moyen), ces fonctions dissymétriques (courbes en figures 6.17 et 6.18 de la partie II) possèdent un maximum antérieur à la moyenne. Par conséquent, la probabilité d'avoir des temps de séjour inférieurs à la valeur moyenne est très élevée et la fraction massique générée sera moindre comme on l'observe.

La DTS exponentielle est maximale en $t = 0$ s et produit donc moins de *CO* (1750 ppmvd) que la fonction log-normale représentant une DTS physiquement admissible et dont le maximum se situe autour d'un temps de temps de séjour non nul. Ses émissions de *CO* sont donc plus élevées (1850 ppmvd).

On sait également qu'une augmentation du nombre de tirs affine la représentation de la DTS et accroît la chance de disposer de grands temps de séjour puisque les 2 fonctions ont des queues de distributions infinies (asymptote en $E(t) = 0$).

Lorsque la DTS est bien représentée (plus de 100 tirs), on constate une légère croissance des émissions de CO avec le nombre de tirs. Toutefois, l'effet des queues de distributions est faible pour le CO qui, à grand temps de séjour, a déjà rejoint son état d'équilibre.

La plupart de ces phénomènes n'ont pas d'effet sur le NO dont le terme source est fonction du temps de séjour. En effet, la résolution itérative du TRN a pour but d'adapter le terme source $\dot{\omega}_{NO}$ en fonction du Y_{NO} dans chaque réacteur. Le Y_{NO} croît presque linéairement en fonction du temps jusqu'à l'équilibre. La fonction $\dot{\omega}_{NO} = f(Y_{NO})$ tend à créer toujours plus de NO ($d\dot{\omega}_{NO}/dt > 0$) pour les faibles temps de séjour et cherche à réduire la formation de NO pour les larges temps de séjour ($d\dot{\omega}_{NO}/dt < 0$) comme l'illustre la figure 6.10 de la partie II.

Ainsi, cette forme de la fonction $\dot{\omega}_{NO}(t)$ tend à faire converger le NO vers une valeur moyenne quel que soit le temps de séjour calculé et la forme de DTS imposée. La convergence des résultats des DTS exponentielle et log-normale (135,2 ppmvd) pour 10 000 tirs Monte-Carlo est ainsi expliquée. Le faible écart à la valeur de 140 ppmvd obtenu par le TRN sans DTS provient probablement de l'écart du temps de séjour moyen effectif du réacteur et de sa valeur discrète évalué par le nombre de tirs Monte-Carlo.

En conclusion, nous pouvons toutefois affirmer qu'introduire une DTS dans chaque réacteur agit peu sur les émissions de NO et que la représentation des états turbulents (forme de la pdf $P(z, c)$) possède un impact beaucoup plus important.

La modélisation par TRN utilisant la pdf présumée issu du modèle LWP montre ici ses limites et une amélioration de la forme de $P(z, c)$ est requise pour espérer prédire les émissions polluantes par le biais de cette approche.

8.2.5 Etude de sensibilité à l'hygrométrie (CRN)

En se concentrant désormais sur le potentiel prédictif de la modélisation par CRN (réseaux de réacteurs chimiques idéaux), nous évaluons l'impact d'un changement d'hygrométrie dans l'air de combustion.

L'humidité relative de l'air est la masse d'eau contenue dans l'air par rapport à la masse qu'elle contiendrait à saturation lorsque sa pression partielle p_{H_2O} devient égale à la pression de vapeur saturante p_{sat} . Cette pression de vapeur saturante est donnée par la relation de Clapeyron :

$$\ln\left(\frac{p_{sat}}{P_0}\right) = \frac{MLv}{R} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T}\right) \quad (8.4)$$

La température de l'air en entrée de la TAC (avant les compresseurs et la chambre de combustion) est de 298 K. La pression P_0 et la température T_0 valent respectivement 1 013 mbars et 373 K (ébullition de l'eau). La chaleur latente de vaporisation de l'eau, Lv ($= 2,26 \cdot 10^6$ J/kg), conduit alors à : $p_{sat} = 37,3$ mbars.

L'hygrométrie ϕ est alors donnée en pourcentage par :

$$\varphi = \frac{p_{H_2O}}{p_{sat}} \times 100 \quad \text{avec} \quad p_{H_2O} = X_{H_2O} \cdot P \quad (\text{loi de Dalton}) \quad (8.5)$$

Avec cette définition de l'hygrométrie, de la loi de Dalton et de $P = P_0$, nous en déduisons l'expression de la fraction massique $Y_{H_2O}^{air}$ d'eau dans l'air en entrée de la TAC :

$$Y_{H_2O}^{air}(\varphi) = \frac{\varphi}{100} \frac{M_{H_2O}}{M_{air}} \exp \left[-\frac{M_{H_2O} \cdot Lv_{H_2O}}{R} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (8.6)$$

En supposant qu'il n'y ait aucune perte d'eau ni injection de gaz brûlés dans la TAC avant la chambre de combustion (fuites, formation de gouttelettes...), on obtient ainsi l'expression de la fraction massique d'eau Y_{H_2O} à injecter en entrée de la chambre de combustion et donc du CRN :

$$Y_{H_2O} = Y_{air} \cdot Y_{H_2O}^{air} \quad (8.7)$$

Pour 100 % d'hygrométrie, $Y_{H_2O}^{air}$ vaut 0,022986. Pour les hygrométries intermédiaires, les valeurs de $Y_{H_2O}^{air}$ s'obtiennent par linéarité avec φ .

Les résultats de cette étude sont résumés dans le tableau 8.7.

Hygro. φ	NO émis	CO émis	NOx émis	T_{sortie}	Tps calcul
0 %	40,5 ppmvd	534,5 ppmvd	42,8 ppmvd	1 658,1 K	909 s
25 %	37,6 ppmvd	528,9 ppmvd	39,8 ppmvd	1 649,1 K	992 s
50 %	35,2 ppmvd	592,4 ppmvd	37,3 ppmvd	1 653,1 K	991 s
75 %	32,8 ppmvd	667,1 ppmvd	34,8 ppmvd	1 647,9 K	887 s
100 %	30,6 ppmvd	655,8 ppmvd	32,5 ppmvd	1 644,1 K	902 s

TABLE 8.7 – Etude de sensibilité des émissions du CRN à l'hygrométrie φ

L'effet de la vapeur d'eau sur le CO est le résultat de deux influences opposées. D'un côté, la réduction des températures (effet thermique due à la forte la capacité calorifique de l'eau) ralentit toutes les cinétiques. De l'autre, H_2O catalyse l'oxydation du CO (effet chimique formant des OH recyclés) en admettant que la vapeur d'eau "atmosphérique" ait un impact non négligeable vis-à-vis de l'eau formée par combustion.

L'évolution des émissions de NO (ou des NOx en incluant le NO_2 et le N_2O) varie de manière monotone. Ainsi, un air plus humide tend à réduire la formation de NO en soulignant que les valeurs comparées sont normalisées sur sec (ppmvd pour *dry*). Ceci est en accord avec nos attentes puisque certaines technologies de réduction primaire des NOx utilisent l'injection d'eau dans la chambre de combustion pour diminuer la température des flammes et réduire la formation du NO thermique.

8.2.6 Etude de sensibilité au combustible (CRN)

Pour démontrer encore le potentiel de la modélisation par CRN, nous avons réalisé une succincte étude de la sensibilité des émissions polluantes au combustible.

Dans l'optique de ne pas relancer un calcul CFD complet de l'écoulement réactif, nous avons conservé l'intégralité du réseau (CRN_369) en terme de représentation simplifiée des flux de masse. Par souci de cohérence, nous avons ainsi défini les nouvelles compositions de combustible *en conservant le même pouvoir calorifique inférieur (PCI)*, responsable de la dilatation thermique agissant sur l'écoulement. Bien que d'autres contraintes, techniques (indice de Wobbe pour l'injection) ou stratégiques (coût d'achat du combustible, disponibilité et durabilité des réserves) interviennent dans le choix d'un combustible de substitution, nous ne considérerons que cet aspect ayant trait à la puissance fournie par la TAC.

Les compositions en fraction molaires X_k (ou volumiques) de cette étude de sensibilité au combustible sont reportées dans le tableau 8.8 et pour information, la composition de référence (gaz naturel) possède un PCI de 49,488 MJ / kg.

Espèce χ_k	PCI (MJ/kg)	X_k Référence	X_k Test 1	X_k Test 2	X_k Test 3
H_2	120,97	0,0	0,0	0,9065	0,8782
N_2	0,0	0,0	0,0060	0,0935	0,0890
CH_4	50,009	0,8900	0,9940	0,0	0,0
C_2H_6	47,794	0,0890	0,0	0,0	0,0265
C_3H_8	46,357	0,0210	0,0	0,0	0,0063

TABLE 8.8 – Compositions des combustibles testés durant l'étude de sensibilité

Ces compositions de "test" remplacent le gaz naturel (composition de référence). Après pondération par la fraction massique de combustible du calcul CFD, elles sont ainsi assignées comme conditions aux limites et conditions initiales du calcul de CRN.

Les résultats numériques de l'étude sont rassemblés dans le tableau 8.9.

Composition	NO émis	CO émis	NO_x émis	T_{sortie}	Tps calcul
Référence	40,5 ppmvd	534,5 ppmvd	42,8 ppmvd	1 658 K	909 s
Test 1	36,1 ppmvd	540,5 ppmvd	38,1 ppmvd	1 642 K	1 082 s
Test 2	6,40 ppmvd	0,000 ppmvd	6,60 ppmvd	1 601 K	1 090 s
Test 3	7,40 ppmvd	127,2 ppmvd	7,70 ppmvd	1 627 K	1 761 s

TABLE 8.9 – Etude de sensibilité des émissions du CRN à la composition du combustible

La première composition (test 1) a pour but d'évaluer l'impact des C2 et C3 (composés bi- et tri- carbonés) sur la formation de NO_x en les remplaçant par du méthane. La deuxième composition (test 2) tente d'extraire l'influence du NO précoce en étudiant l'impact d'un combustible sans atome de carbone (H_2 remplace CH_4).

Enfin, la troisième composition (test 3) analyse l'effet d'une substitution du CH_4 par H_2 dans la composition de référence en gardant la même fraction massique des C_2 et C_3 .

Pour mieux comprendre la signification de ces résultats, il est nécessaire de visualiser les champs de température T de la figure 8.25 et les champs de NO de la figure 8.26 pour les 3 compositions "test".

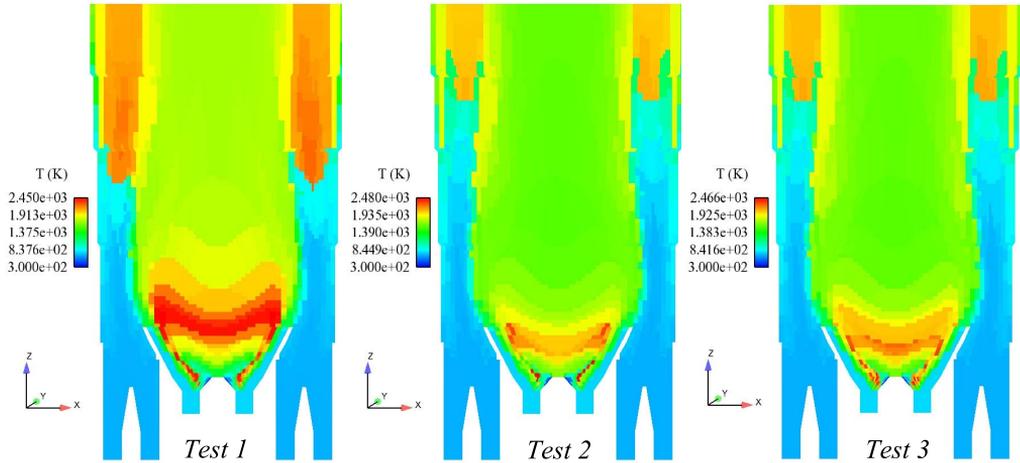


FIGURE 8.25 – Champs de T prédits par le CRN pour les 3 compositions "test".

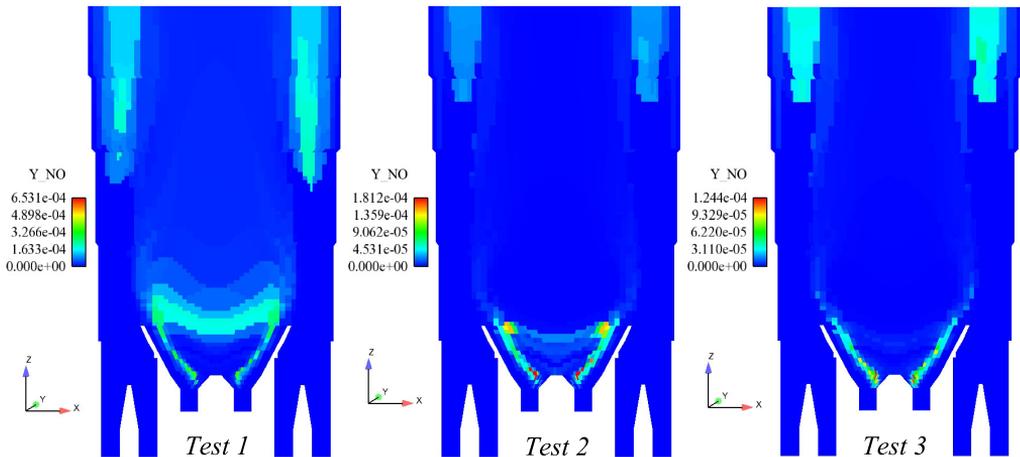


FIGURE 8.26 – Champs de Y_{NO} prédits par le CRN pour les 3 compositions "test".

La première composition démontre l'influence des espèces bi- et tri- carbonés dans le positionnement des flammes partiellement prémélangées. En effet, en absence des C_2 et C_3 , la vitesse de flamme chute légèrement et décale ces flammes vers l'aval de quelques cm. Les taux de réaction étant plus faibles, l'avancement cinétique est moindre et la température de sortie diminue de 1 658 K à 1 642 K. On observe alors une chute des émissions de NO_x d'environ 10 % puisque l'on passe de 42 à 38 ppmvd.

Les 2 autres compositions sont plus difficiles à analyser et sont relativement proches. L'ajout des C2 et C3 dans la composition test 3 induit encore une légère augmentation du taux de réaction visible notamment pour la flamme de diffusion centrale et par l'élévation de la température de sortie (1 627 K au lieu de 1 601 K sans les C2 et C3). On élève alors les émissions de NO_x d'une unité en ppmvd.

La comparaison des compositions test 1 et 2 est plus complexe. En effet, pour respecter l'égalité des PCI entre les 2 combustibles, on impose une très forte dilution du dihydrogène par l'azote.

En effet, si la composition volumique ne le transcrit pas, la faible masse molaire de l'hydrogène induit une composition massique relativement faible de 0,4091. On injecte ainsi plus de N_2 en masse que de H_2 . Cette dilution agit directement sur les flammes partiellement prémélangées dont l'initiation est retardée par la forte présence d'inertes. Largement repoussées en aval, elles induisent en sortie une très faible valeur de NO , qui, en absence de carbone, est essentiellement formé par le mécanisme Zel'dovitch.

En raison de cette dilution et des changements induits sur la position des flammes, il est difficile de juger l'importance du NO précoce dans les émissions de NO_x en sortie.

8.2.7 Etude de sensibilité à la charge (CRN)

L'étude de sensibilité des émissions polluantes à la charge de la TAC nécessite un travail plus poussé que les études précédentes pour lesquelles nous conservons comme base de calcul le RN_369, calculé pour 100 % de la charge.

Baisser la charge de la TAC revient à réduire la quantité de combustible injectée. La puissance thermique délivrée aux turbines diminue le régime de rotation des compresseurs qui abaisse la pression ainsi que la température de l'air en entrée de la chambre de combustion. Dans ce cas, toutes les conditions aux limites changent et il faut réaliser de nouveaux calculs CFD d'écoulements, notamment dans le carter en amont du tube à flamme pour déterminer la répartition d'air sur les injecteurs. La répartition des débits de combustible est quant à elle fournie par les essais de réception chargés de mesurer les émissions de NO_x . Enfin, il faut adapter les constantes cinétiques de la loi d'Arrhénius pour la réaction globale du modèle LWP afin de représenter la dépendance du terme source réactionnel à la pression.

Si la température du combustible, T_{comb} , reste inchangée (300 K), on définit par contre les grandeurs qui vont être modifiées par la baisse de charge :

- P , la pression de l'écoulement dans la chambre de combustion,
- T_{air} , la température de l'air en entrée de la chambre,
- Q_{air} , le débit massique total d'air en entrée des injecteurs,
- $R_{air}^{c/(c+p)}$, la répartition massique de l'air total sur l'injecteur central,

- Q_{comb} , le débit massique total de combustible en entrée des injecteurs,
- $R_{comb}^{c/(c+p)}$, la répartition massique du combustible total sur l'injecteur central

Le tableau 8.10 résume alors les conditions aux limites des 3 charges où les émissions de NO_x ont été mesurées (essais de réception sur site).

Charge	P	T_{air}	Q_{air}	$R_{air}^{c/(c+p)}$	Q_{comb}	$R_{comb}^{c/(c+p)}$
100 %	15,0 bars	687 K	21,20 kg/s	15,03 %	0,63758 kg/s	9,11 %
75 %	11,5 bars	661 K	18,28 kg/s	15,04 %	0,50625 kg/s	17,08 %
50 %	8,7 bars	645 K	14,48 kg/s	15,05 %	0,37498 kg/s	18,82 %

TABLE 8.10 – Conditions aux limites pour les 3 cas de charge étudiés

Au delà des baisses de pression et de température pour l'air, on remarque que la répartition du débit d'air entre les injecteurs reste quasiment constante (15 % / 85 %) pour les 3 cas de charge. Ceci provient du fait que les pertes de charge singulières, générées par les aubes vrillées de chaque injecteur, diminuent ensemble avec la réduction de débits et la baisse des vitesses de passage. Dès lors, même si le débit massique total est réduit, la répartition de l'air entre l'injecteur central et les injecteurs périphériques restent quasiment inchangée.

Il n'en est pas de même pour la répartition du combustible, ordonnée par l'opérateur sur site. En effet, pour conserver une bonne stabilité de flamme dans la chambre de combustion et assurer l'allumage à faible charge, il est usuel d'enrichir la flamme "pilote" non-prémélangée issu de l'injecteur central au détriment des injecteurs périphériques. On observe donc une forte augmentation du débit combustible vers l'injecteur central recevant plus de 17 % du débit massique total à faible charge contre seulement 9 % pour la charge maximale.

Les résultats numériques de l'étude sont rassemblées dans le tableau 8.11.

Charge	NO émis	CO émis	NO_x émis	NO_x mesurés	T_{sortie}
100 %	40,5 ppmvd	534,5 ppmvd	42,8 ppmvd	44,0 ppmvd	1 658 K
75 %	12,5 ppmvd	1 608 ppmvd	14,6 ppmvd	40,0 ppmvd	1 579 K
50 %	10,5 ppmvd	1 890 ppmvd	12,9 ppmvd	14,5 ppmvd	1 500 K

TABLE 8.11 – Etude de sensibilité des émissions du CRN à la charge de la TAC

La diminution de la température d'air en entrée de la chambre, cumulée à la chute de pression (taux de réaction réduits), abaisse la température de sortie de 80 K pour 75 % de la charge et de 150 K pour 50 % de la charge. Avec la réduction du débit masse total traversant la chambre, cette réduction d'enthalpie diminue la puissance fournie par les turbines. On augmente également la durée de vie des aubages qui ne fonctionnent plus à leur limite technologique (tenue mécanique des matériaux) en raison de cette baisse de température.

On note ensuite que l'enrichissement de la flamme "pilote" non-prémélangée multiplie les émissions de CO par plus d'un facteur 3 à faible charge. L'augmentation en volume des zones riches en aval de l'injecteur central en est la cause.

Ainsi, on présente sur la figure 8.27 les champs de températures de ces 3 cas de charge.

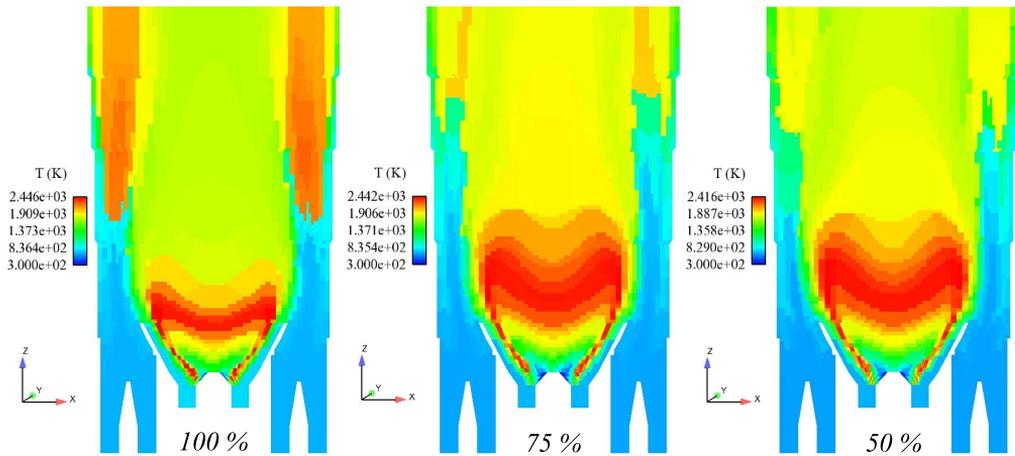


FIGURE 8.27 – Champs de T prédits par le CRN pour les 3 cas de charge

A faible charge, la répartition du combustible accroît fortement la surface de ligne stoechiométrique $z_m = z_{st}$ dans la zone centrale. Par contre, les injecteurs périphériques ne présentent plus de zones où $z_m > z_{st}$ et cette ligne de seuil disparaît comme le montre figure 8.28 présentant les champs de NO associés à ces 3 cas de charge.

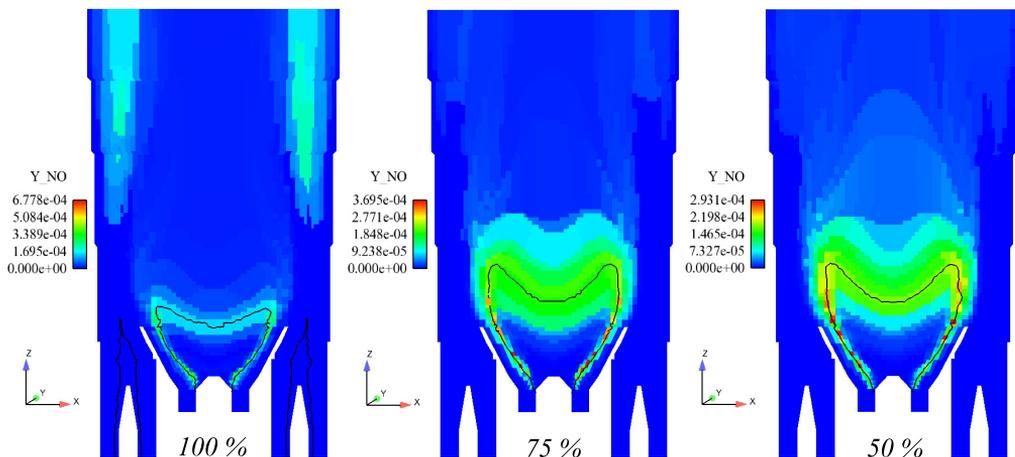


FIGURE 8.28 – Champs de Y_{NO} prédits par le CRN pour les 3 cas de charge

Pour information, les temps de calculs nécessaires à la convergence des CRN varient légèrement pour ces différents cas de charge mais restent en dessous des 20 minutes. On a respectivement 909 s pour 100 % de la charge, 1 148 s à 75 % et 1 007 s à 50 %.

Dès lors, malgré l'augmentation du NO créé par la flamme non-prémélangée centrale, cette chute de richesse dans les injecteurs périphériques réduit les émissions de NOx d'environ 40 ppmvd à une seule dizaine de ppmvd.

La comparaison aux valeurs expérimentales illustre une très bonne prédiction des NOx émis pour la charge maximale (44 ppmvd mesurés contre 42,8 ppmvd prédits). Il est toutefois important de noter que cette valeur est obtenue par ajustement des conditions aux limites afin de représenter le mélange entre l'air et le combustible en aval des injecteurs périphériques. Ce mélange est le principal responsable du positionnement des flammes partiellement prémélangées.

Pour évaluer les réelles capacités prédictives de la modélisation CRN, les conditions d'entrée pour \bar{z} et sa variance \bar{z}''^2 ont été conservées pour les autres cas de charge. En effet, même si le CRN ne considère que l'information moyenne (\bar{z}), l'effet des conditions aux limites sur \bar{z}''^2 intervient sur le mélange entre l'air et le combustible en aval des injecteurs périphériques. La position des flammes sera donc modifiée et la topologie des réacteurs générés par le découpage aussi. Hélas, la prédiction à faible charge s'en trouve détériorée puisqu'à 50 %, 12,9 ppmvd sont prédits contre 20 ppmvd mesurés. L'écart le plus important intervient à 75 % puisque émissions de NOx sont mesurés à 40 ppmvd contre 14,5 ppmvd prédits. Le sens de variation est néanmoins correct.

Ces écarts, limitant la validation du modèle de CRN, sont toutefois à relativiser avec les très faibles valeurs d'émissions mesurées et l'abondance d'inconnues essentielles qui ont été remplacées par des calculs CFD dépendant d'hypothèses fortes.

En effet, il serait intéressant d'introduire une meilleure description de la dispersion du combustible dans les injecteurs périphériques actuellement représentée par une rampe de richesse ϕ dans le calcul CFD. De même, les températures d'air en entrée de la chambre sont obtenues à l'aide d'un code de calcul basé sur de simples relations thermodynamiques qui estiment l'élévation de température dans les étages compresseurs lors d'une transformation polytropique.

A l'issue des études de sensibilité que nous venons de présenter, il apparaît que la modélisation par CRN reste supérieure à la modélisation par TRN en terme de prédiction des émissions de NO . Cette hiérarchie sera respectée tant que la représentation des états turbulents (*pdf*) ne sera pas améliorée.

Ces constats nous conduisent naturellement à tester les nouveaux modèles développés pour le calcul CFD. Ces modèles visent à améliorer d'une part la représentation des états turbulents par la pdf $P(z, Y_h)$ et d'autre part la représentation de la cinétique chimique par le terme source pour la variable réactive Y_h . Le prochain et dernier chapitre s'attache à évaluer l'impact de ces améliorations pour le cas d'une flamme méthane-air de laboratoire et pour notre tube à flamme industriel.

Chapitre 9

Etude des nouveaux modèles CFD

9.1 Description du cas d'étude : Flamme COCORICO

Les nouveaux modèles de combustion turbulente, en particulier le modèle $pdf4pz$ qui inclut des expressions pour $\tilde{Y}|z$ sous la forme d'arcs de parabole, ont été développés pour "2 entrées", une pour le combustible et une autre pour l'oxydant. Pour représenter aussi bien les flammes non-prémélangées que partiellement prémélangées ou parfaitement prémélangées, ces modèles supposent le mélange du combustible et de l'air avant qu'il ne réagissent ensemble. La pdf présumée ne peut donc pas représenter un écoulement contenant une injection de gaz brûlés en plus de ces 2 entrées. En effet, la forme de la pdf l'empêche d'avoir en 2 z très proches des états d'avancement moyens très différents. De plus, il faudrait changer la répartition de la variance d'avancement pour tenir compte de l'évolution préalable des gaz de la flamme pilote. L'hypothèse de proportionnalité au temps chimiques ne tient plus.

Dès lors, la flamme de Masri est délaissée au profit d'une autre flamme méthane-air, mieux documentée et disposant de nombreuses mesures. Cette flamme, développée par F. Baillot au CORIA (COMplexe de Recherche Interprofessionel en Aérothermochimie, Rouen), a été fortement étudiée par A. Wyzgolik (2008) durant sa thèse. Dans le cadre du programme CoCoRiCo (Comité pour la Coordination des Recherches Industrielles en Combustion) co-signé par le CORIA et les entreprises Air Liquide, EDF et Gaz de France, cette configuration expérimentale a été définie pour discriminer l'aptitude des modèles à prédire la stabilité des flammes.

Bien que l'effet d'un champ acoustique sur la stabilisation ait été étudié, nous n'utiliserons que les mesures sans effet acoustique. La particularité de cette flamme est qu'elle supporte une zone d'hystérésis au sein de laquelle 2 états peuvent exister : soit la flamme est accrochée aux bords du brûleur, soit elle est suspendue en aval dans l'écoulement à l'aide de mécanismes complexes d'interaction entre les structures tourbillonnaires et la cinétique chimique.

La figure 9.1 schématise le dispositif expérimental associé à cette flamme méthane-air non-prémélangée et décrit les conditions d'injection pour le combustible et l'air qui l'entoure par des écoulements coaxiaux.

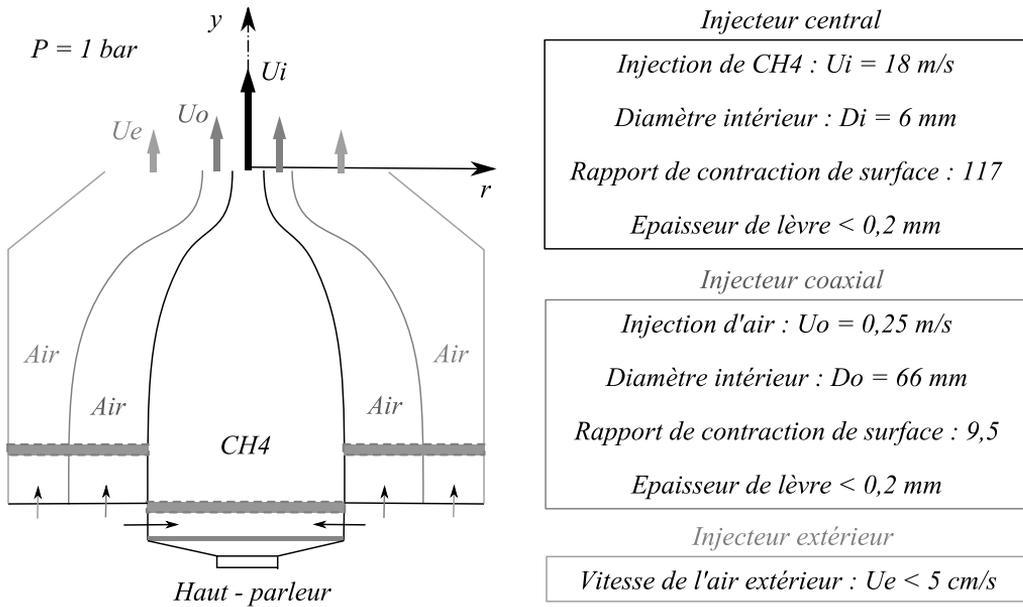


FIGURE 9.1 – Brûleur "Cocorico". Flamme méthane-air à jets coaxiaux

La forme profilée de ce brûleur permet de contrôler et aussi de limiter les fluctuations turbulentes à la sortie des injecteurs. Les flèches en bas du dispositif représentent l'injection des gouttelles d'huile nécessaires à l'obtention de mesures de vitesses par PIV (Particule Image Velocity) ou par LDA (Laser Doppler Anemometry). Si besoin, on peut forcer acoustiquement l'écoulement à l'aide du haut parleur situé en bas du dispositif.

Par définition de la zone d'hystérésis, la flamme peut y être accrochée ou suspendue. Pour la flamme suspendue, la topologie fine de l'écoulement doit être considérée.

La vitesse d'injection de l'air coaxial est un élément prépondérant dans le mécanisme de stabilisation de la flamme suspendue. Wyzgolik et Baillot (2008) expliquent en effet que la morphologie de la flamme est différente suivant la région où la stabilisation est effective. Le long du cône potentiel du jet de méthane, la flamme présente une base laminaire lobée, conséquence d'une interaction forte entre son extrémité propagative et des tourbillons contra-rotatifs structurés issus d'instabilités secondaires. En aval, dans la région intermédiaire qui s'étend au delà du cône potentiel, la flamme suspendue présente une base turbulente et plissée. Elle se stabilise sur des structures tourbillonnaires non ordonnées participant à la transition turbulente de l'écoulement.

Le point de fonctionnement choisi appartient à la zone d'hystérésis et place la flamme suspendue avant la convergence des couches limites dans une zone de turbulence non établie (Wyzgolik, 2008). On impose donc : $U_i = 18 \text{ m/s}$ et $U_o = 0,25 \text{ m/s}$.

La figure 9.2 illustre cette zone d'hystérésis pour la flamme "Cocorico"

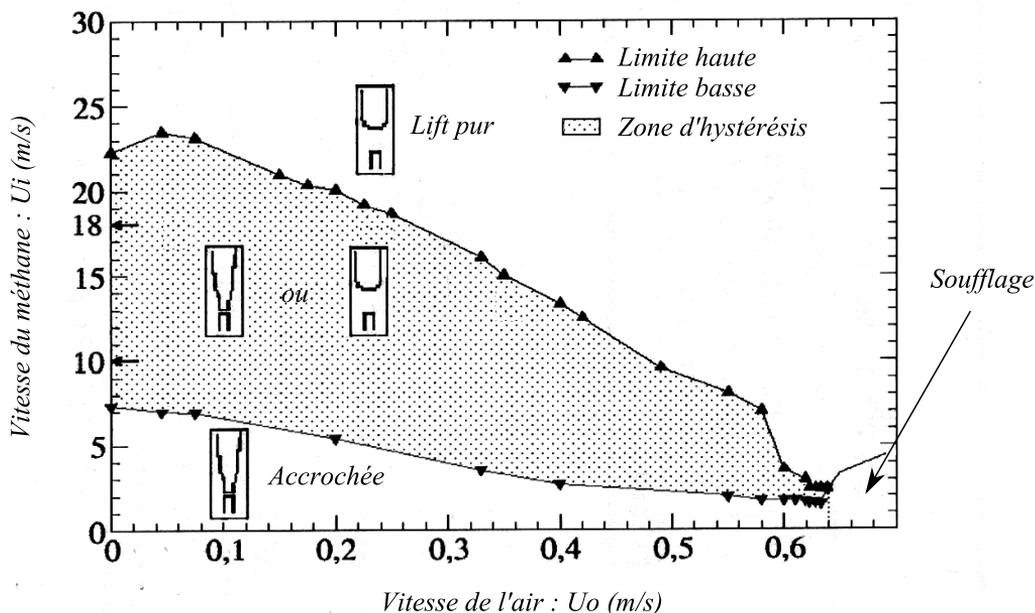


FIGURE 9.2 – Zone d'hystérésis de la flamme "accrochée - suspendue" (Wyzgolik, 2008)

La figure 9.2 tirée de Wyzgolik et Baillot (2008) présente la zone d'hystérésis en terme de vitesses d'injection du méthane U_i et de l'air U_o . On remarque que cette zone où les 2 solutions de flamme existent (accrochée et suspendue) s'étale sur environ 18 m/s pour le jet de CH_4 . L'influence du jet d'air coaxial est par contre soulignée par les faibles écarts absolus de la vitesse d'injection d'air qui varie de seulement 0,6 m/s entre l'accrochage et le soufflage en considérant $U_i = 10$ m/s.

Pour capturer la physique de cette flamme, il est nécessaire de raffiner le maillage dans la zone de cône potentiel formée par les jets de méthane (U_i) et d'air (U_o). De surcroît, l'épaisseur de la lèvre, bien que faible, joue sûrement un rôle important dans l'obtention de la solution accrochée. C'est pourquoi, le maillage que nous utilisons a été construit de manière à disposer de plusieurs (au moins 2) mailles dans l'épaisseur de la lèvre de l'injecteur central ($e < 0,2\text{mm}$).

Le maillage utilisé est non-structuré et contient 120 000 cellules prismatiques (à base triangulaire). Généré avec le logiciel Gmsh, ce maillage est raffiné dans la direction privilégiée imposée par la couche de mélange des flux d'oxydant et de combustible. En effet, l'inter-diffusion des réactants est la physique prépondérante à représenter. Il est donc légitime de raffiner cette zone pour limiter les effets de diffusion numérique.

Enfin, bien que la physique de stabilisation de cette flamme liftée soit tri-dimensionnelle, nous utilisons un maillage axisymétrique pour des raisons de temps de calcul et d'espace mémoire en espérant tout de même capter une partie de la physique de cette flamme.

La figure 9.3 illustre le maillage axisymétrique que nous avons utilisé pour calculer cette flamme méthane - air suspendue.

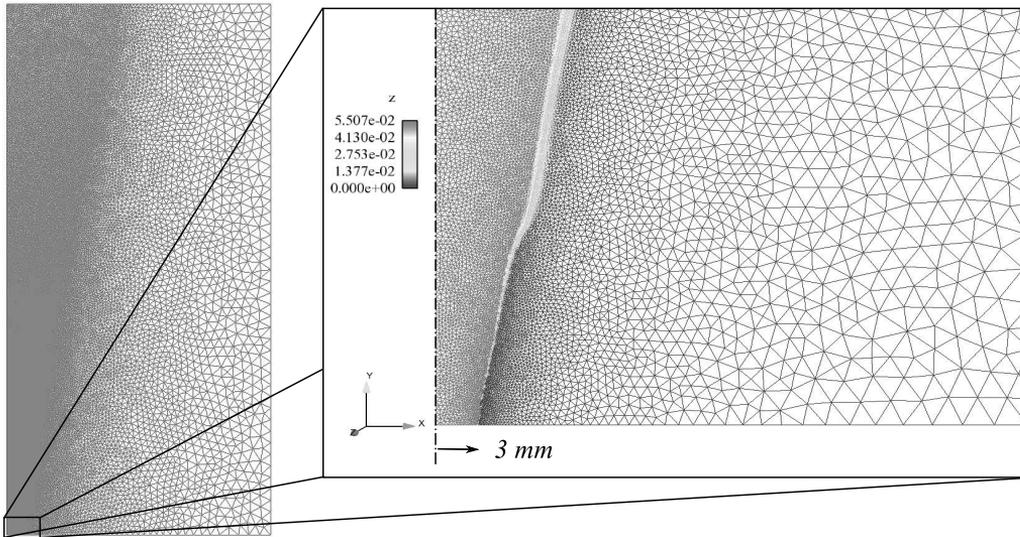


FIGURE 9.3 – Maillage de 120 000 cellules prismatiques pour la flamme "Cocorico"

Ce maillage est borné en hauteur par $y = y_{max} = 1,4\text{ m}$ (section de sortie) et en rayon par $r = r_{max} = 0,7\text{ m}$ en vue de limiter l'influence de la condition limite extérieure sur la flamme. La pression imposée est de 1 bar.

Au delà de la condition de symétrie sur l'axe, les conditions aux limites appliquées pour l'injection d'air et de méthane utilisent des profils plats pour la fraction de mélange moyenne \bar{z} et pour la variable réactive Y_h ($\bar{Y}_h = \bar{z}$).

De même, les variances $\widetilde{Y_h''^2}$, $\widetilde{z''^2}$ et la covariance $\widetilde{z''Y_h''}$ sont imposées à 0 sur toute la section d'entrée. De plus, comme nous résolvons désormais une équation de transport pour Y_{NO} et pour Y_{CO} , nous définissons leurs valeurs en entrée comme nulles puisqu'aucune injection de gaz brûlés n'intervient dans cette configuration.

Les conditions d'entrée pour la vitesse \underline{u} sont quant à elles ajustées afin de retrouver les profils radiaux mesurés au plus près de la section de sortie des injecteurs en $y = 3\text{ mm}$. Ces profils intègrent de plus une zone de vitesse nulle entre l'injection de méthane et d'air primaire dans l'optique de représenter l'effet visqueux induit par la lèvre du brûleur. L'éventuel effet thermique d'accrochage de la flamme par conduction thermique entre la flamme et cette même lèvre d'injecteur n'est pas considérée et sur toute la section de sortie, la température imposée est de 300 K.

Enfin, les niveaux de turbulence en entrée pour k et ε (turbulence non développée en raison du convergent) sont ajustés en vue de représenter aux mieux les profils mesurés dans la section $y = 3\text{ mm}$.

9.2 Validation des nouveaux modèles (Flamme COCORICO)

9.2.1 Comparaison des nouveaux modèles

Le premier objectif de cette validation est de confronter les différents modèles proposés (*LWP 4 pics*, *pdf2pz*, *pdf3pz* et *pdf4pz*) en vue de converger vers le meilleur modèle dont les prédictions seront comparées aux mesures expérimentales.

Pour discriminer les modèles inadéquats, nous présentons en figure 9.4 les champs moyens de température T et les lignes stoechiométriques pour les états réactifs en z des *pdf* $P(z, Y_h)$ associées.

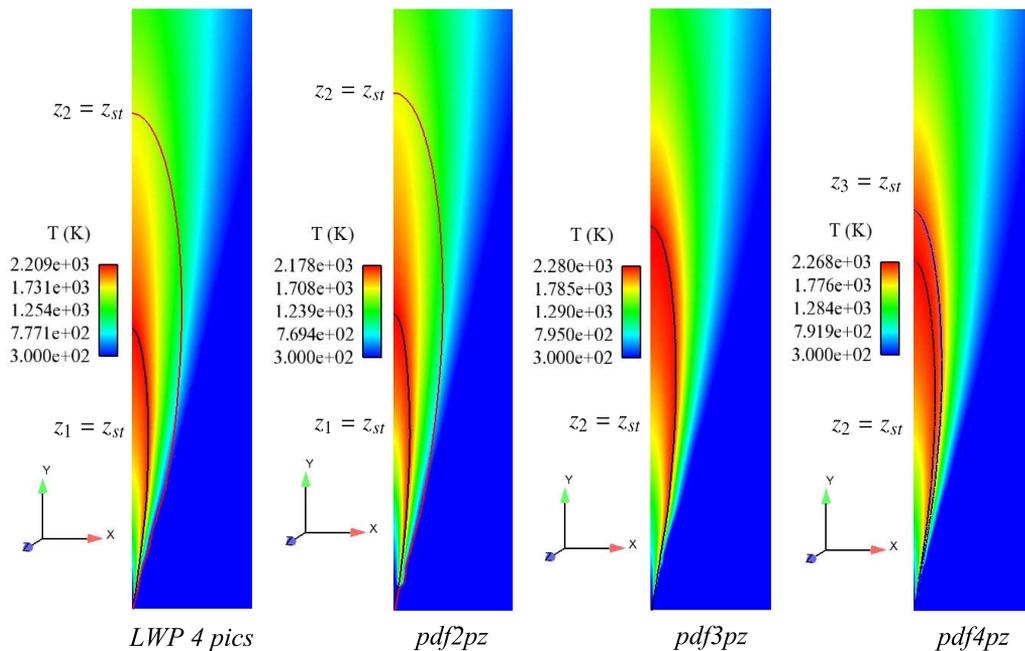


FIGURE 9.4 – Champs CFD moyens de température T pour la flamme "Cocorico"

Nous rappelons ici les propriétés essentielles des *pdf* en z pour les différents modèles développés. Le modèle *pdf2pz* possède 2 états discrets z_1 et z_2 placés de chaque côté de la moyenne \bar{z} de façon à respecter une distribution de Curl modifiée (voir détails en Annexe A). Le modèle *pdf3pz* inclut 3 états discrets en z dont seul l'état z_2 est réactif et appartient au domaine d'inflammabilité puisque l'on impose $z_1 = z_{min}$ et $z_3 = z_{max}$. Enfin, le modèle *pdf4pz* inclut 4 états discrets en z dont seulement 2 (z_2 et z_3) sont réactifs et situés près de l'état moyen \bar{z} puisqu'on impose $z_1 = z_{min} = 0$ et $z_4 = z_{max} = 1$.

On compare tout d'abord le modèle LWP 4 pics (Robin et al., 2008) avec le modèle *pdf2pz* qui dispose de la même *pdf* en z (hypothèse de Curl modifiée). Les 2 modèles induisent des états z_1 et z_2 comparables étant données leurs lignes stoechiométriques.

Ces modèles soulignent également le positionnement de la flamme autour de la ligne stoechiométrique de l'état z_1 ($z_1 = z_{st}$), défaut déjà constaté sur la flamme de Masri. On rappelle que l'amélioration du modèle *pdf2pz* ne porte pas sur la *pdf* en z mais sur la représentation des états en $c|z$ par le biais d'une fonction $\beta(c(Y_h))$ continue. Dans le modèle LWP, on sur-estime le terme source chimique par une loi d'Arrhénius recalée. Dans le modèle *pdf2pz*, le terme source $\dot{\omega}_z(c(Y_h))$ est mieux calculé à l'aide d'une fonction bêta. Comme la vitesse de flamme est proportionnelle à la racine carrée du terme source maximum, si l'on surévalue sa valeur, on permet à la flamme de remonter dans l'écoulement.

Sur la figure 9.4, on remarque ensuite que la flamme est bien mieux positionnée vis-à-vis de l'état moyen \tilde{z} dans les 2 derniers modèles dont la *pdf* en z représente des états plus proche de \tilde{z} . En effet, en plaçant 2 états sur les bornes extrêmes en z c'est à dire $z_1 = z_{min}$ et $z_3 = z_{max}$ pour le modèle *pdf3pz* et $z_1 = z_{min}$ et $z_4 = z_{max}$ pour le modèle *pdf4pz*, on "absorbe" la majeure partie de la variance en z .

Ainsi, les états réactifs (z_2 pour le modèle *pdf3pz*, z_2 et z_3 pour le modèle *pdf4pz*) sont très proches de la moyenne \tilde{z} . On constate en effet que les lignes stoechiométriques de z_2 et z_3 pour le modèle *pdf4pz* sont bien moins écartées l'une de l'autre que les lignes stoechiométriques pour les états z_1 et z_2 du modèle *pdf2pz*.

Pour les nouveaux modèles (*pdf2pz*, *pdf3pz* et *pdf4pz*), le terme source chimique est correctement représenté à l'aide d'une cinétique détaillée (calculs de flammes laminaires 1D pour tabuler le terme source $\dot{\omega}_z(c(Y_h))$). L'interaction de la cinétique chimique et de l'écoulement turbulent est mieux capturée par la représentation continue des états en $c|z$ et la description réaliste du terme source chimique pour la variable réactive Y_h .

Dès lors, l'apport de chaque modèle réside non plus dans la cinétique chimique mais dans la forme de la *pdf* en z qu'il propose.

La tableau 9.1 compare ainsi les hauteurs prédites par les 4 modèles CFD pour les mêmes conditions de calcul. Ces hauteurs de flammes sont moyennes (calcul RANS) et définies par le maximum du terme source moyen. On rappelle que le point de fonctionnement choisi impose $U_i = 18 \text{ m/s}$ et $U_o = 0,25 \text{ m/s}$. Pour obtenir les résultats du tableau 9.1, de simples profils plats à la vitesse d'injection moyenne ont été imposés.

Modèles	<i>LWP 4 pics</i>	<i>pdf2pz</i>	<i>pdf3pz</i>	<i>pdf4pz</i>
Hauteur de flamme	16,2 mm	58,4 mm	28,5 mm	22,0 mm

TABLE 9.1 – Hauteurs de flammes prédites selon les modèles CFD adoptés

Il convient également de préciser que malgré la finesse du maillage utilisé, il n'est pas possible d'accrocher la flamme sur les lèvres du brûleur. On constate que pour des conditions de flamme parfaitement accrochée (ex : $U_i = 5 \text{ m/s}$ et $U_o = 0.1 \text{ m/s}$), la hauteur prédite est de l'ordre de 25 mm. Ainsi, ne pouvant prédire que des flammes suspendues, nous ne considérerons que les mesures portant sur la flamme liftée.

Du fait de la loi d'Arrhénius du modèle LWP, le terme source est surévalué et la flamme se situe à une hauteur de 16,2 mm. Avec la même pdf en z , le modèle $pdf2pz$ qui introduit une meilleure représentation des états turbulents et du terme source ($2 \beta(c)$ couplées) induit une flamme qui est suspendue loin en aval dans l'écoulement à 58,4 mm de la section d'injection.

Bien qu'ayant la même représentation du terme source chimique, les 2 autres modèles ($pdf3pz$ et $pdf4pz$) induisent une amplitude plus forte pour le ou les pics réactifs car la variance en z est "absorbée" par les pics extrêmes situés en 0 et 1. Le terme source moyen est donc plus élevé et permet de situer la flamme plus en amont.

En réalité, la position verticale instantanée de la flamme liftée oscille largement comme l'illustre la figure 9.5 présentant son évolution sur une courte durée (Wyzgolik, 2008).

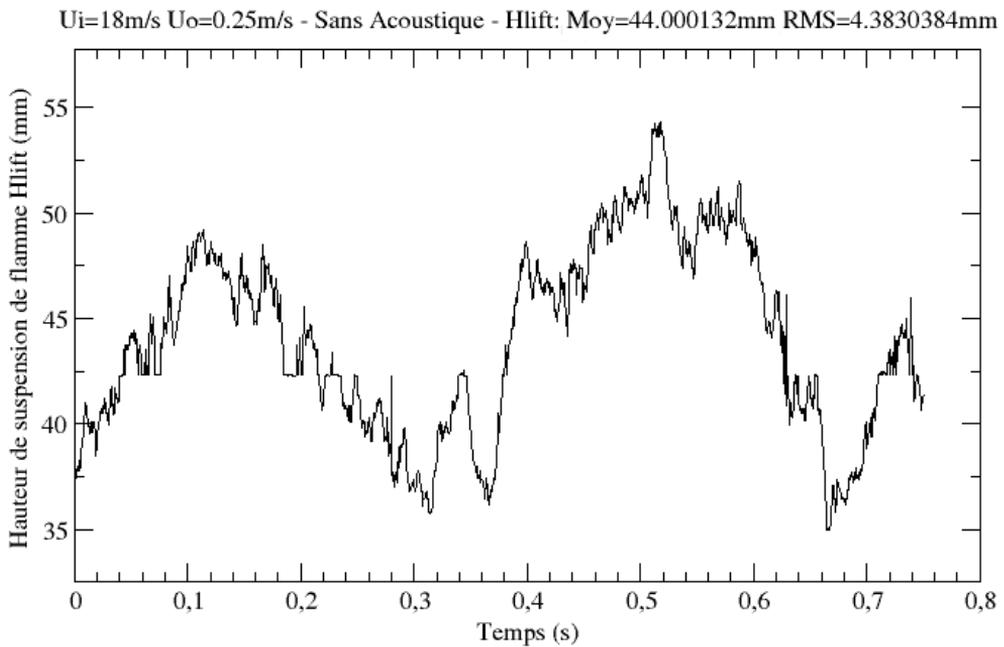


FIGURE 9.5 – Evolution de la hauteur de la flamme "Cocorico" (Wyzgolik, 2008)

Avec des temps d'intégration suffisamment longs pour obtenir des statistiques, la hauteur moyenne expérimentale de la flamme liftée, basée sur la maximum d'émission du radical CH , est d'environ 40 mm. On observe ainsi qu'en fonction de la forme de pdf en z , la hauteur de flamme prédite encadrent la valeur expérimentale.

Afin de confronter les prédictions numériques aux valeurs expérimentales, nous affinons notre comparaison des 4 modèles en confrontant leurs résultats en terme d'évolution axiale pour la température T et Y_{NO} . En effet, lors des études réalisées sur la flamme de Masri, nous avons constaté un étrange comportement bimodal de la température sur l'axe y , suivant lequel on injecte les gaz. L'existence d'une telle bimodalité, physiquement irréaliste, discriminerait dans l'instant le modèle étudié.

Sur la figure 9.6, on présente donc les profils axiaux de température T et de Y_{NO} pour les modèles LWP 4 pics et $pdf2pz$. On observe 2 ruptures de pente en $y = 0,65 m$ et $y = 1,2 m$ pour la température du fait de l'existence de 2 termes sources réactifs, localisés autour des lignes stoechiométriques de z_1 et z_2 . Même s'il n'apparaît pas réellement de bimodalité de la température, la pdf en z de ces 2 modèles induit toujours deux dégagements de chaleur successifs. Ce comportement n'est pas physique puisque la dilution par l'air impose en théorie un seul maximum pour la température axiale.

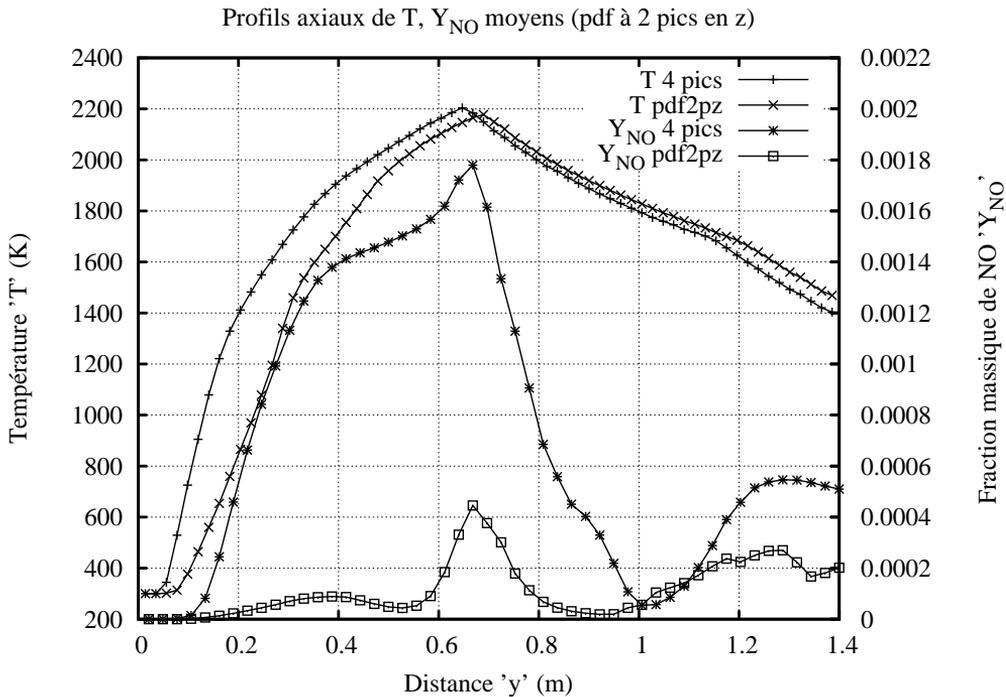


FIGURE 9.6 – Profils axiaux de T et Y_{NO} (modèles CFD avec pdf à 2 états en z)

En examinant l'évolution du NO dans les 2 modèles, on note la présence de 3 maxima par courbe, respectivement placés en $y = 0,4 m$, $y = 0,67 m$ et $y = 1,23 m$. Les deux derniers maxima coïncident avec les ruptures de pente de la température. Ils sont associés aux 2 dégagements de chaleurs situés autour des lignes stoechiométriques pour z_1 et z_2 et génèrent du NO thermique en raison de leur haute température. Comme le NO est formé autour de la stoechiométrie, côté pauvre, on constate également un léger décalage en aval des 2 derniers maxima de NO par rapport à ceux de la température. Le premier maximum, situé dans la zone riche de l'état turbulent z_1 est associé à la formation du NO précoce ($y = 0,4 m$).

La représentation continue des états en cz (modèle $pdf2pz$) atténue fortement les maxima de NO car l'amplitude des états à forte création de NO est limitée. Enfin, les différences de hauteurs de lift entre le modèle LWP sur-évaluant le terme source et le modèle $pdf2pz$ transparaît par le léger décalage axial des courbes de température.

L'amélioration de la *pdf* en z par les 2 définitions du modèle *pdf3pz* est présentée en figure 9.7 en rappelant que, suivant sa définition, la *pdf* en z peut être "trivialement" exprimée en fonction de la ségrégation S_z ou de manière à respecter le même 3^{ème} moment qu'une fonction β par une expression plus complexe.

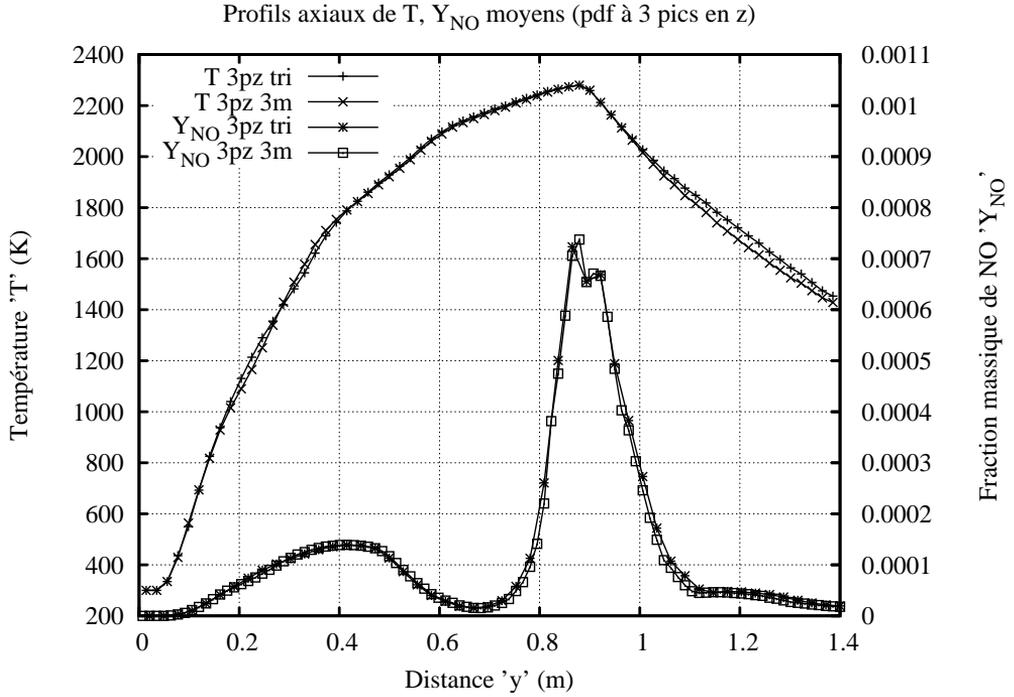


FIGURE 9.7 – Profils axiaux de T et Y_{NO} (modèles CFD avec *pdf* à 3 états en z)

En comparant l'allure des courbes, on remarque en premier lieu la très forte similitude qui relie les 2 définitions du modèle *pdf3pz* tant pour la température que le *NO*. Par rapport aux modèles avec *pdf* à 2 pics en z , l'absence d'une seconde rupture de pente et la décroissance plus prononcée de la température après son maximum mettent en exergue l'existence d'un unique pic réactif. Sa position, $y(T_{max}) = 0,87$ contre $y(T_{max}) = 0,65$ pour les modèles LWP et *pdf2pz*, est située plus en aval dans l'écoulement et devient ainsi plus cohérente avec l'état moyen \tilde{z} et sa ligne stoechiométrique.

Le premier maximum de *NO* situé en riche dans l'écoulement moyen \tilde{z} est associé à l'intégration du *NO* précoce. En effet, lorsque que la *pdf* en $c|z$ prendra une forme favorisant l'amplitude d'états à forte production de *NO*, la montée du *NO* intervient. Puis, plus en aval, l'élévation de température illustre une augmentation de l'avancement et fait basculer le modèle vers le mécanisme de *Zel'dovitch*. Le comportement curieux observé autour de la température maximale provient sûrement du traitement particulier assigné aux états à fort avancement cinétique (couplage des tabulations PSR-0D lorsque les états portant $c|z > 0,999$ deviennent représentatifs).

Le modèle $pdf3pz$ propose un comportement réaliste du NO dans les gaz brûlés en aval du maximum de température puisqu'il n'existe plus de troisième maximum pour le profil de NO . N'ayant qu'un seul pic réactif, on ne génère plus de seconde zone de création pour le NO thermique.

Toutefois, ce modèle $pdf3pz$ malgré les améliorations qu'il apporte, ne tient pas compte de l'information de covariance $z''Y_h''$ dans la définition de sa pdf contrairement aux modèles avec pdf à 4 pics en z . Ainsi pour évaluer enfin le meilleur modèle, on propose de confronter les 2 définitions du modèle $pdf4pz$. Nous rappelons que l'écart à la moyenne des états réactifs z_2 et z_3 dans la pdf en z peut être linéairement relié à $\sqrt{S_z}$ ou à S_z . Le paramètre α de pondération entre les états réactifs varie alors de façon linéaire avec respectivement S_z ou S_z^2 comme indiqué dans la figure 9.8.

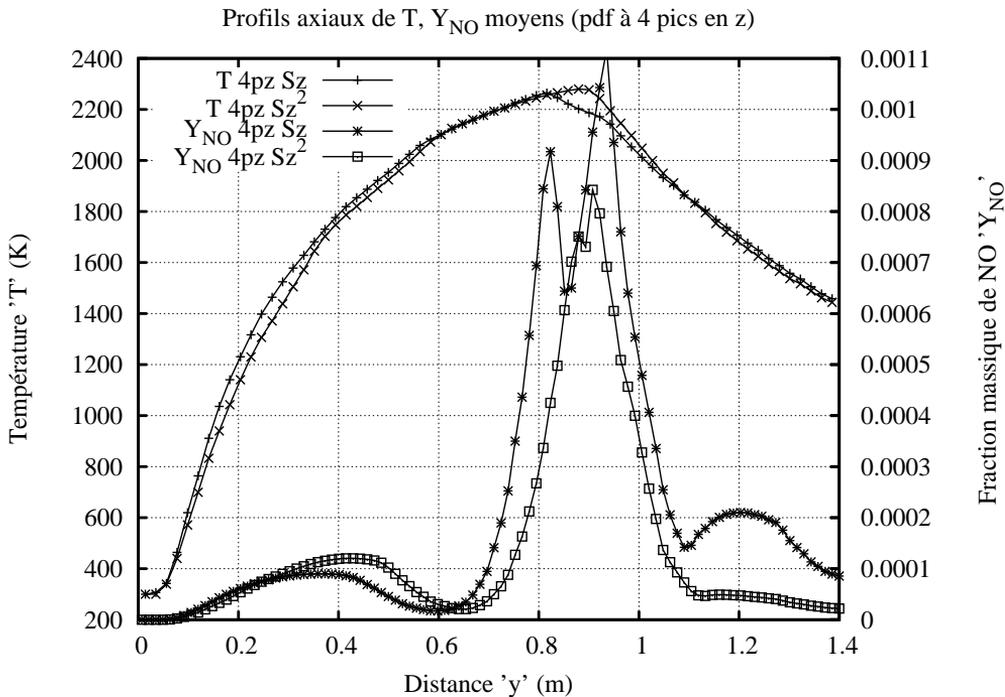


FIGURE 9.8 – Profils axiaux de T et Y_{NO} (modèles CFD avec pdf à 4 états en z)

A l'image du modèle $pdf3pz$, la température axiale présente un comportement monomodale et réaliste. Toutefois, les 2 définitions du modèle $pdf4pz$ se distinguent cette fois ci, notamment par l'allure du profil axial pour Y_{NO} . Lorsque α dépend de S_z (et non pas de S_z^2), on observe un écart plus important entre les lignes stoechiométriques des états réactifs en z_2 et z_3 . Cachée par les phénomènes de diffusion sur le profil de température, cet écart engendre une très forte bi-modalité du profil en NO autour de la stoechiométrie. De plus, on retrouve un troisième maximum de NO non réaliste. Ainsi, c'est le modèle $pdf4pz$ où α est linéaire en S_z^2 qui sera confronté aux mesures expérimentales.

9.2.2 Confrontation du modèle *pdf4pz* aux mesures

Le modèle *pdf4pz* intègre en effet l'information de covariance $\overline{z''Y_h''}$ tout en restant proche des modèles *pdf3pz* dont les profils axiaux de *NO* restent pertinents. Ainsi, nous présentons en figure 9.9 les champs CFD de température moyenne T , de Y_{NO} et de Y_{CO} prédits par le modèle *pdf4pz* pour cette flamme méthane-air non-prémélangée.

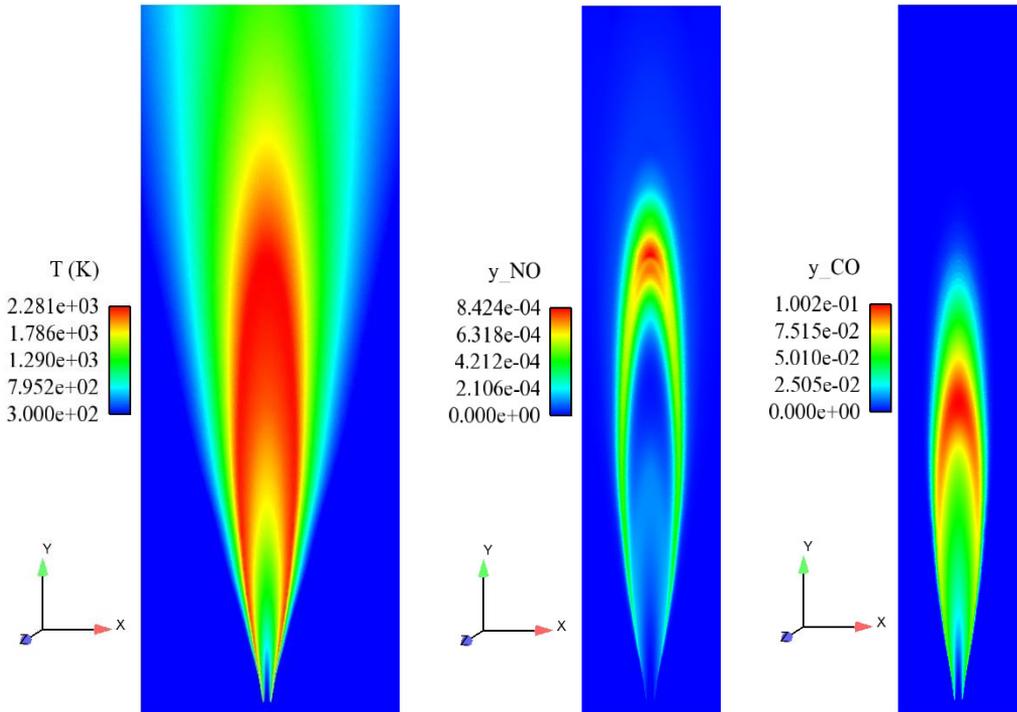


FIGURE 9.9 – Champs de T , Y_{NO} et Y_{CO} pour la flamme "Cocorico" (modèle *pdf4pz*)

Sur la figure 9.9, on observe la formation du *CO* dans la partie riche de la flamme avant d'atteindre la stoechiométrie. Le *NO* est majoritairement formé plus en aval, près de la stoechiométrie et légèrement du côté pauvre lorsque le jet de méthane a été fortement appauvri par l'apport d'air environnant. Ce comportement du modèle est réaliste et les maxima de *NO* et de *CO* sont cohérents l'un par rapport à l'autre (rapport 100 environ).

Pour aller un peu plus loin dans les capacités du modèle *pdf4pz*, nous avons testé sa sensibilité à la vitesse d'injection d'air U_o , élément prépondérant dans la stabilisation de cette flamme. En effet, une faible modification de U_o conduit à des larges modifications des structures secondaires qui assurent la stabilisation de la flamme à travers les faibles vitesses induites aux extrémités des filaments tourbillonnaires (Wyzgolik, 2008).

Il est ainsi possible de capturer différentes natures pour la flamme liftée avec le modèle *pdf4pz*. Pour cela, nous fixons respectivement $U_o = 0,25 \text{ m/s}$ et $U_o = 0,4 \text{ m/s}$ en conservant $U_i = 18 \text{ m/s}$.

Le tableau 9.2 propose alors de comparer les hauteurs moyennes de flamme entre les statistiques expérimentales et les valeurs prédites par le modèle *pdf4pz* en imposant des profils plats aux vitesses moyennes indiquées.

Approches	Expérimentale	Modèle <i>pdf4pz</i> (1)	Modèle <i>pdf4pz</i> (2)
Injection du CH_4 (U_i)	18 m/s	18 m/s	18 m/s
Injection de l'air (U_o)	0,25 m/s	0,25 m/s	0,4 m/s
Hauteur de flamme	39,3 mm	25,5 mm	35,5 mm

TABLE 9.2 – Hauteurs de flammes prédites (modèle *pdf4pz*) et mesurées

Pour ces conditions aux limites globales (profils de vitesse $v(r)$ plats), la hauteur de flamme prédite (35,5 mm) est proche de valeur moyenne mesurée (39,3 mm). La pertinence de cette prédiction est encore renforcée par l'examen de la densité de probabilité ("*pdf*") présentée en figure 9.10 pour un ensemble de mesures sans acoustique.

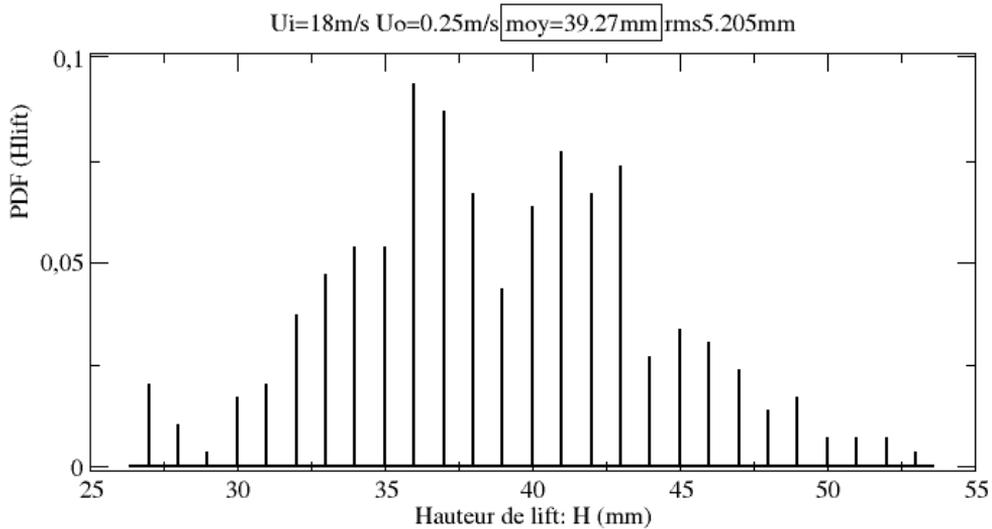
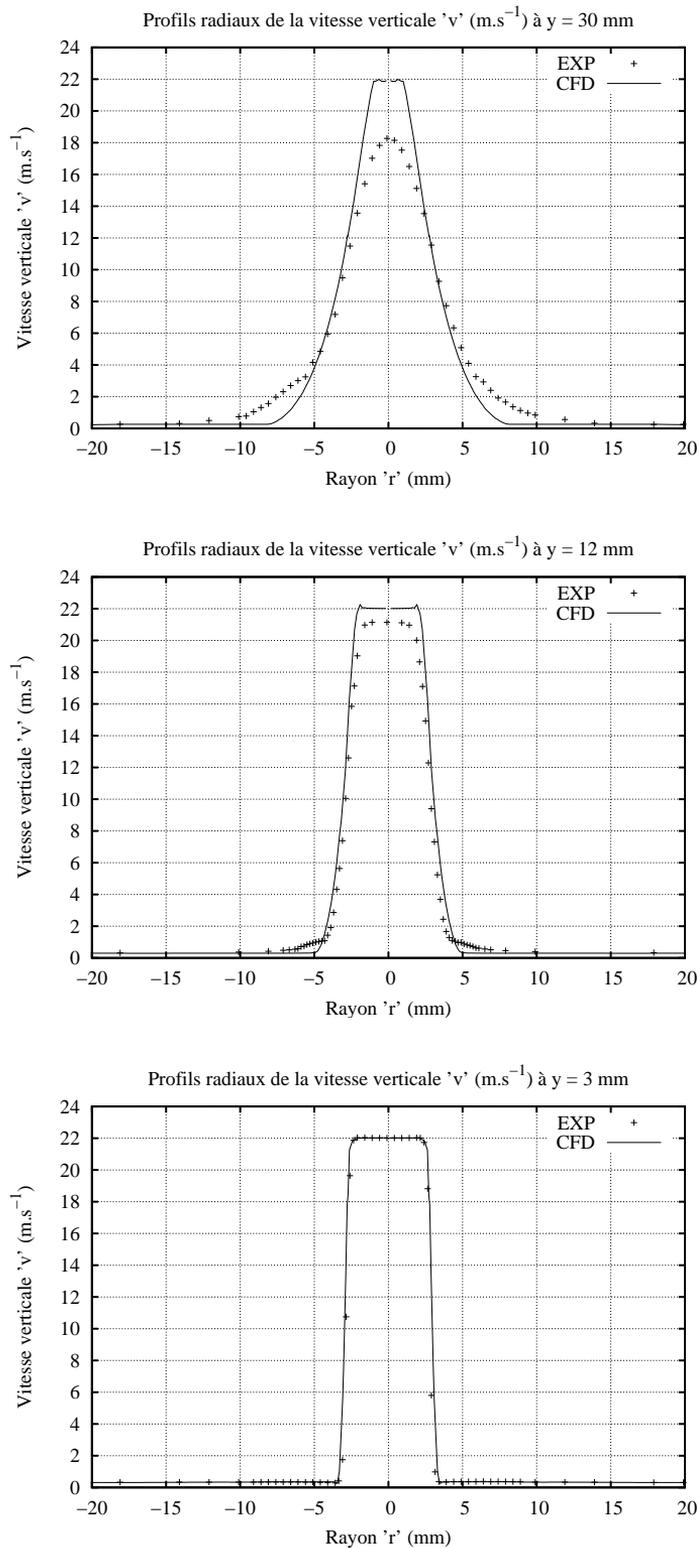


FIGURE 9.10 – Pdf de la hauteur de la flamme "Cocorico" (Wyzgolik, 2008)

La hauteur de lift de 35,5 mm, prédite pour $U_o = 0,4 \text{ m/s}$ correspond alors à un des 2 maxima de la *pdf* expérimentale, quant à elle établie pour $U_o = 0,25 \text{ m/s}$.

Par un ajustement des conditions aux limites pour la vitesse \underline{u} (profil $v(r)$ imposé) et la turbulence (k et ε), on affine les prédictions du modèle CFD par rapport à l'expérience.

Dès lors, le calcul CFD est relancé pour $U_o = 0,25 \text{ m/s}$ et les résultats numériques sont confrontés aux mesures expérimentales pour la solution décrochée. Les évolutions des profils radiaux de vitesse verticale $v = \underline{u} \cdot \underline{y}$ (figure 9.11) et d'énergie cinétique turbulente k (9.12) sont ainsi comparées. Pour permettre une meilleure compréhension, ces graphiques sont agencés dans le sens de l'écoulement (y croissant) en fonction de leur position de mesure.

FIGURE 9.11 – Profils radiaux de la vitesse verticale $v(r)$ (modèle pdf4pz)

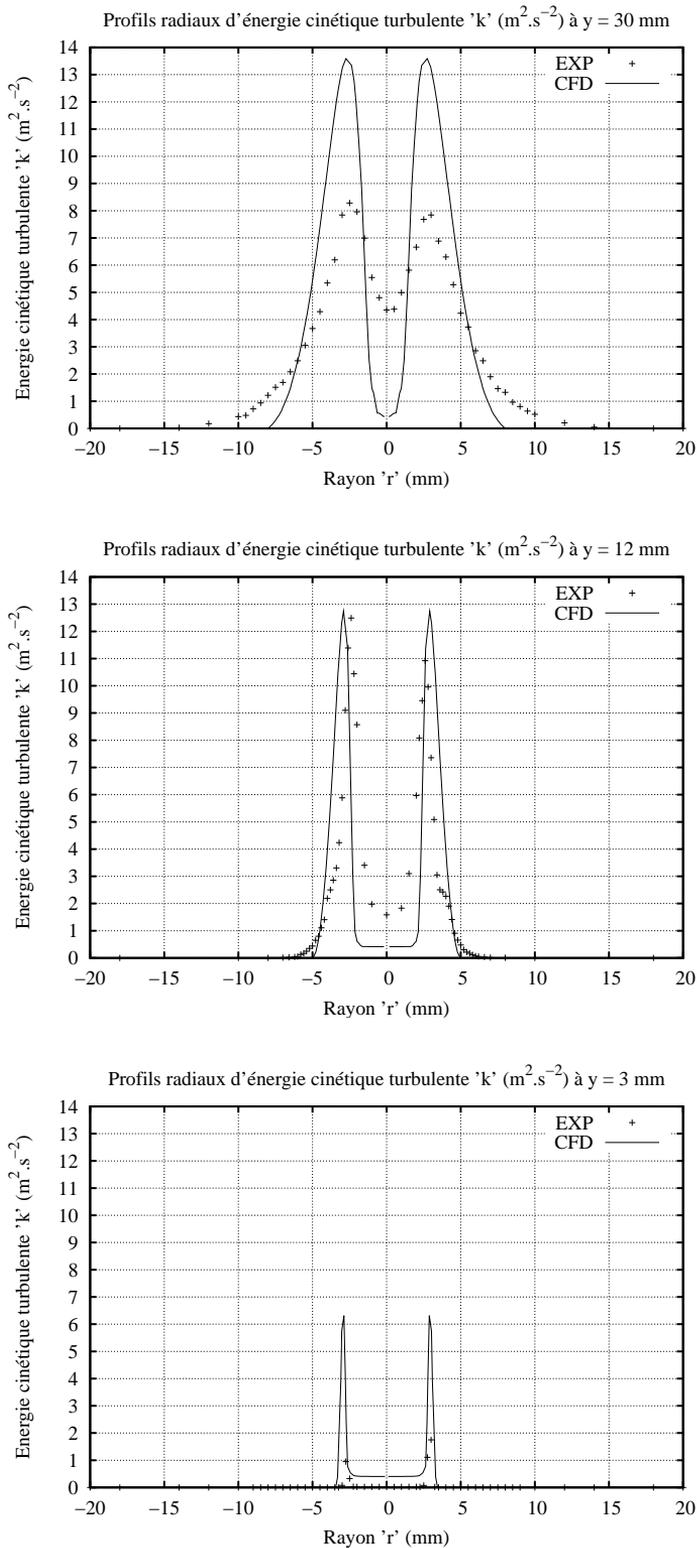


FIGURE 9.12 – Profils radiaux d'énergie cinétique turbulente $k(r)$ (modèle pdf4pz)

Les profils de vitesse verticale $v(r)$ présentent une bonne cohérence. On remarque tout de même un affaissement plus rapide des maxima pour les valeurs expérimentales. Le modèle numérique semble ainsi produire une diffusion radiale plus faible pour la quantité de mouvement (entraînement moindre de l'air coaxial par le jet de méthane).

En observant les profils radiaux $k(r)$ pour l'énergie cinétique turbulente, on note une surévaluation des valeurs expérimentales en $y = 3\text{mm}$ et $y = 30\text{mm}$. Le profil à $y = 12\text{mm}$ présente une corrélation tout à fait acceptable et présente ainsi le décalage axial entre les lieux de formation des fluctuations turbulentes dans le calcul CFD et l'expérience. On souligne encore une fois un évasement supérieur des profils mesurés.

Avec ces conditions aux limites affinées pour $U_i = 18\text{ m/s}$ et $U_o = 0,25\text{ m/s}$, la flamme calculée est alors **liftée à 42,6 mm** au dessus de l'injecteur ce qui correspond au second maximum de la *pdf* mesurée (deuxième état le plus probable). Cette prédiction est en bon accord avec l'expérience dont la hauteur de lift moyenne est de 39,3 mm.

Pour la solution décrochée, Wyzgolik et Baillot (2008) montrent également que la nature de la flamme liftée change avec une faible modification de la vitesse d'air U_o . Dans la figure 9.13, on observe de forts changements de nature de la flamme liftée pour de faibles modification de la vitesse d'air U_o (passage de 0,25 m/s à 0,4 m/s) et cela même sans affiner les conditions aux limites (profils plats à la vitesse d'injection moyenne).

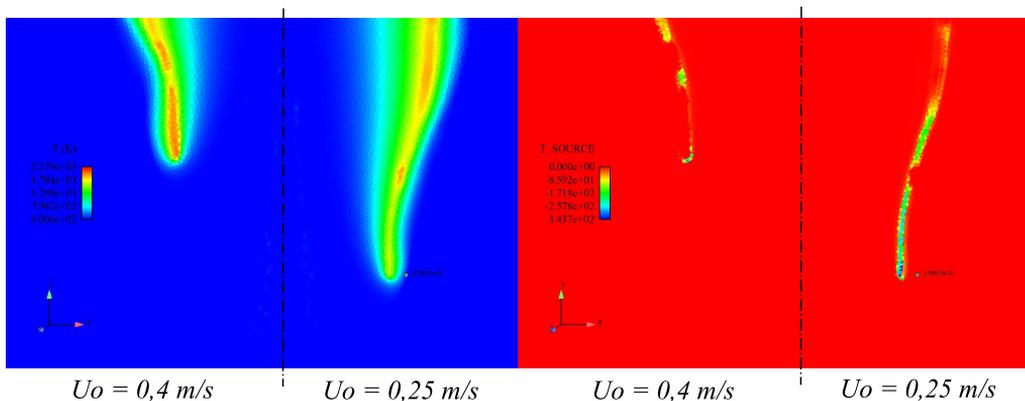


FIGURE 9.13 – Changement de nature de la flamme liftée pour de faibles écarts de la vitesse d'air U_o . Zoom des champs moyen de température T (à gauche) et de terme source chimique (à droite) pour les 2 solutions prédites avec le modèle *pdf4pz*.

Sur la partie gauche de la figure 9.13, la flamme liftée semble plus épaisse et présente à sa base une température plus élevée (avancement cinétique supérieur). Si le terme source de la flamme de droite est globalement plus fort, il est aussi moins étendu spatialement et ne présente pas de forme en croissant de lune tourné vers les zones pauvres moins réactives contrairement à la flamme liftée de gauche.

Ce dernier constat appuie la pertinence du modèle *pdf4pz* dans la représentation des flammes non-prémélangées liftées.

9.3 Validation des nouveaux modèles (Tube à flamme)

Suite à l'étude de ces nouveaux modèles pour le cas académique de cette flamme méthane non-prémélangée, nous portons maintenant ces nouveaux modèles sur l'étude de notre tube à flamme industriel.

De même que pour la flamme "Cocorico", nous présentons en figure 9.14 les champs moyens de température T obtenus par les modèles $pdf2pz$, $pdf3pz$ (définition respectant le 3^{ème} moment) et $pdf4pz$ (définition relié à S_z) ainsi que les lignes stoichiométriques des états réactifs en z pour les pdf $P(z, Y_h)$ associées. Ces champs sont à confronter au champ de température prédit par le modèle LWP 4 pics de la figure 8.22.

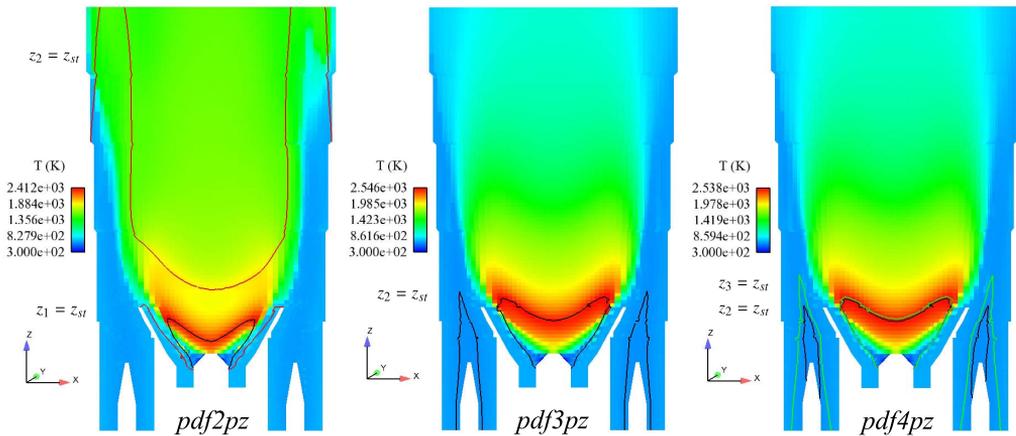


FIGURE 9.14 – Nouveaux champs CFD de température moyenne T pour le tube à flamme

Pour analyser l'ensemble des résultats fournis par ces nouveaux modèles, on présente également les champs de Y_{NO} associés dans la figure 9.15.

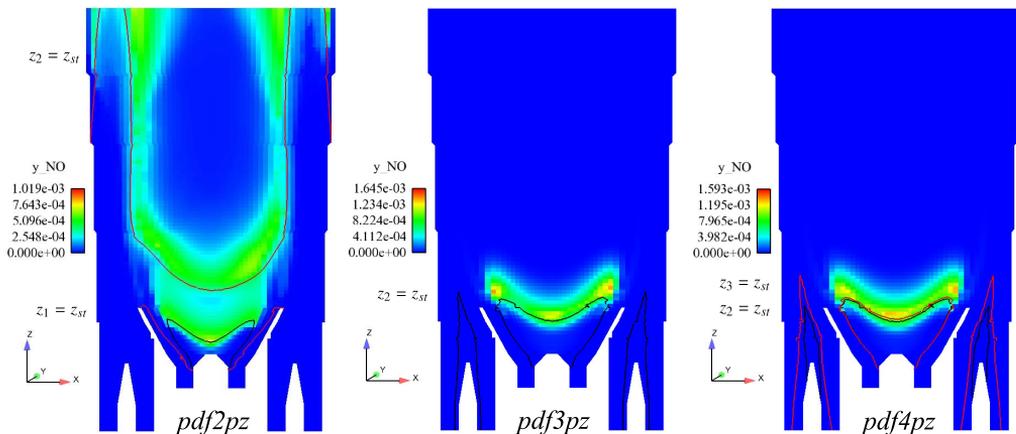


FIGURE 9.15 – Nouveaux champs CFD moyens pour Y_{NO} dans le tube à flamme

En comparant le champ de température du modèle LWP 4 pics (figure 8.22) et celui du modèle $pdf2pz$ (figure 9.14), on remarque leurs différences, d'autant plus notables que les 2 modèles partagent la même pdf en z . Dans le modèle $pdf2pz$ n'est plus surévalué par la loi d'Arrhénius du modèle LWP et par conséquent les flammes partiellement prémélangées sont pratiquement repoussées dans la section de sortie. Le terme source moyen est désormais calculé à partir d'une cinétique détaillée (tabulation de calculs de flammes laminaires 1D) mais il n'est pas assez fort pour induire une vitesse de flamme capable de remonter l'écoulement. Pourtant, la richesse de cette zone permettrait la stabilisation puisque les flammes sont situées dans la zone riche $z_2 > z_{st}$ de l'état z_2 , à l'intérieur des lignes stoechiométriques $z_2 = z_{st}$. Comme les 2 modèles ont la même pdf en z , on ne peut accuser l'amplitude de l'état z_2 de diminuer le terme source moyen. L'écart provient donc de la représentation du terme source chimique local.

Les champs de température des modèles $pdf3pz$ et $pdf4pz$ soutiennent cette hypothèse puisqu'ils ne maintiennent que de la flamme pilote non-prémélangée. Toutefois, ces 2 modèles proposent des états réactifs (z_2 et z_3) plus proches de la moyenne \bar{z} et placent donc les flammes partiellement prémélangées dans des zones pauvres de l'écoulement. Le fait que le terme source réactionnel soit surévalué aurait pu expliquer le non-maintien des flammes dans cette zone. Néanmoins, la non-stabilisation des flammes partiellement prémélangées provient en réalité d'un problème d'allumage. En effet, malgré une flamme "pilote" plus ample que celle du modèle $pdf2pz$, les gaz brûlés n'arrivent pas à diffuser suffisamment vers les jets de combustible issus des injecteurs périphériques. Ainsi, les flammes ne sont pas initiées car l'avancement cinétique $c|z$ est trop faible pour que le terme réactionnel $\omega_z(c(Y_h))$ devienne conséquent.

L'analyse des champs de NO conclut une fois encore que le NO est formé dans les zones stoechiométriques des états en z de la $pdf P(z, Y_h)$. Il varie donc avec la position des lignes stoechiométriques pour les états réactifs des différents modèles.

En rappelant qu'à 100 % de la charge, la valeur mesurée pour le NO est de 42 ppmvd et que la température maximale admissible pour les aubes de turbine est de 1700 K, nous donnons dans le tableau 9.3 un récapitulatif des grandeurs prédites en sortie du tube à flamme par les différents modèles du calcul CFD.

Modèles	<i>LWP 4 pics</i>	<i>pdf2pz</i>	<i>pdf3pz</i>	<i>pdf4pz</i>
NO émis	236,7 ppmvd	251,1 ppmvd	3,7 ppmvd	4,1 ppmvd
CO émis	1 002,8 ppmvd	1 039,9 ppmvd	1 014,1 ppmvd	1 007,2 ppmvd
T° de sortie	1 401,3 K	1 196,5 K	798,5 K	801,3 K
Imbrûlés	33,3 %	54,6 %	87,8 %	87,3 %

TABLE 9.3 – Prédications des différents modèles CFD en sortie du tube à flamme

Les forts taux d'imbûlés en sortie proviennent de la non combustion ou de la combustion partielle des filets fluides issus des injecteurs périphériques. Cette lacune de modélisation semble subsister puisque malgré les nombreux efforts portés vers le modèle LWP depuis plus de 4 ans, les taux d'imbrûlés restent supérieurs à 30 %.

En effet, ce modèle a vu l'amélioration des fermetures pour les termes dissipatifs dans les équations de transport de $\overline{Y_f''^2}$ et $\overline{Y_h'' z''}$ (Robin et al., 2008). Dans nos travaux, nous avons ensuite introduit une *pdf* $P(z, Y_h)$ présumée plus pertinente qui contient une description continue des états en $c|z$ et permet également d'utiliser un terme source réactif réaliste ($\omega_z(c)$) issu de calculs avec cinétique chimique détaillée.

Sur l'ensemble des nouveaux modèles (*pdf2pz*, *pdf3pz* et *pdf4pz*), on arrive toutefois à encadrer (4 ppmvd - 250 ppmvd) la valeur d'émission mesurée (44 ppmvd) pour le *NO*. Si les flammes partiellement prémélangées étaient entretenues par l'apport de gaz brûlés provenant de la flamme pilote, les modèles *pdf3pz* et *pdf4pz* induiraient une augmentation intéressante des émissions de *NO* en sortie.

Ainsi, si on force artificiellement l'allumage et le maintien des flammes partiellement prémélangées en imposant $c|z = 0,6$ au sein des filets fluides provenant des injecteurs périphériques, on parvient à des résultats prometteurs. La hauteur d'allumage imposée provient du modèle de réseaux de réacteurs chimiques (CRN_369) ayant prédits au mieux les émissions en sortie. La figure 9.16 compare les meilleurs champs prédits par le CRN_369 et par le modèle *pdf4pz* (fonction de S_z) pour le calcul CFD.

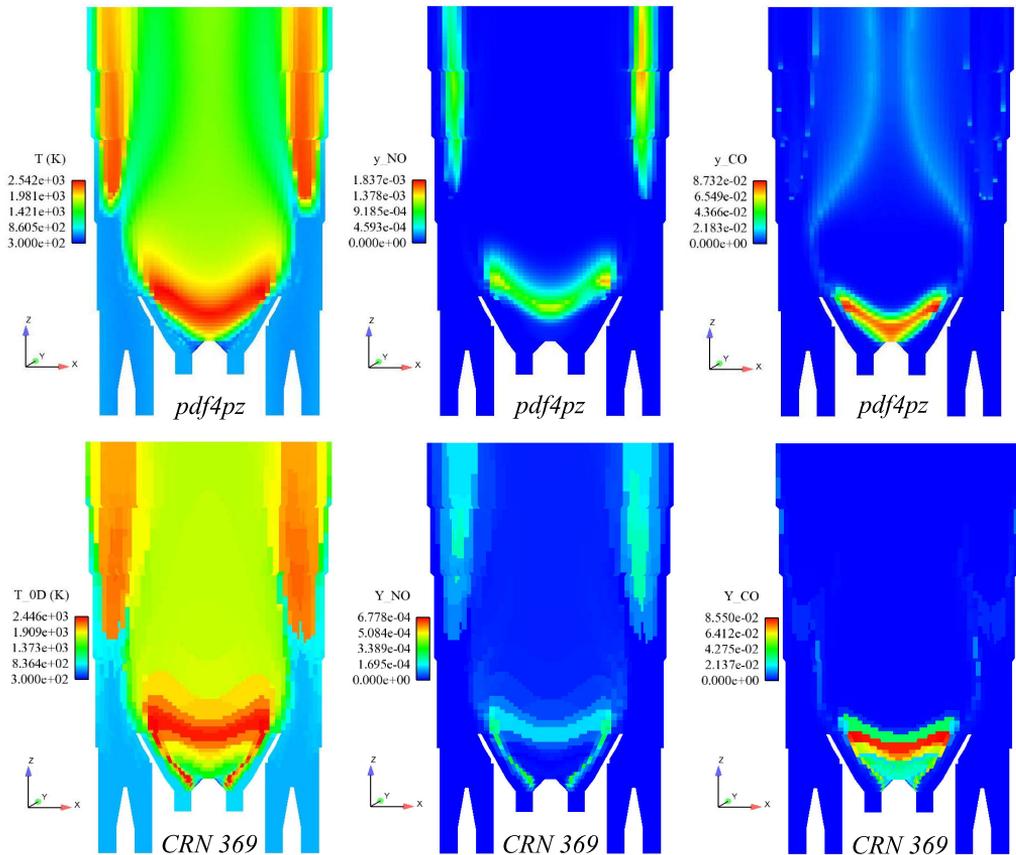


FIGURE 9.16 – Confrontation des meilleurs champs CFD et CRN pour le tube à flamme

Sur la figure 9.16, on constate une forte similitude des champs de température T , de NO et de CO entre les modélisations CFD et réseau de réacteurs chimiques (CRN_369). On retrouve en effet une forme incurvée de la flamme "pilote" non-prémélangée qui est due au fort mouvement de swirl qu'elle accueille. De même, grâce à l'allumage artificiel imposé dans le calcul CFD, les flammes partiellement prémélangées sont placées à même hauteur et présentent la même forme effilée. Les différences notables sur l'accrochage de la flamme non-prémélangée pour le CRN_369 proviennent du fait que les CRN_369 a été défini (découpage) à partir d'un calcul CFD utilisant le modèle LWP 4 pics qui sur-estime largement le taux de réaction (expression par une loi d'Arrhénius).

En ce qui concerne les champs associés pour le NO et le CO , on note également une bonne corrélation visuelle entre les 2 approches.

Dès lors, à l'aide de cet allumage artificiel, on teste les 4 modèles les plus pertinents pour le calcul CFD en raison de leur *pdf* en z améliorée. Le choix s'est donc porté vers les 2 définitions du modèle *pdf3pz* (expression triviale fonction de S_z ou respectant le 3^{ème} moment d'une bêta ayant les mêmes 2 premiers moments) et vers les 2 définitions du modèle *pdf4pz* (α , la pondération des états réactifs est linéaire avec S_z ou S_z^2).

Le tableau 9.4 résume les prédictions des meilleurs modèles CFD et du CRN_369 en sortie du tube à flamme.

Grandeurs en sortie	NO émis	CO émis	T° moyenne
<i>pdf3pz</i> (triviale S_z)	35,2 ppmvd	1 806,0 ppmvd	1 238,5 K
<i>pdf3pz</i> (3 ^{ème} moment)	35,4 ppmvd	1 811,2 ppmvd	1 238,6 K
<i>pdf4pz</i> (avec $\alpha \propto S_z$)	66,8 ppmvd	1 627,8 ppmvd	1 301,7 K
<i>pdf4pz</i> (avec $\alpha \propto S_z^2$)	44,9 ppmvd	1 815,1 ppmvd	1 243,1 K
CRN_369	40,5 ppmvd	534,5 ppmvd	1 658,1 K

TABLE 9.4 – Grandeurs prédites en sortie du tube à flamme par les différents modèles du calcul CFD et par le réseau de réacteurs chimiques idéaux de 369 réacteurs

On constate un écart de 400 K entre les températures CRN et CFD, probablement dû à un effet de la réaction globale (fort taux d'imbrûlés en sortie). Bien que le calcul de la température soit découplé de celui des espèces (CO et NO) et n'ait pas d'influence directe, les modèles CFD sur-estiment également les émissions de CO d'un facteur 3 par rapport au CRN. Nous soulignons en revanche la bonne prédiction des émissions de NO en sortie, notamment pour le modèle *pdf4pz* (avec $\alpha \propto S_z^2$). Il convient alors de rappeler que le NO dispose d'un traitement physique et numérique particulier (tabulation mixte PSR-0D effective lorsque $c|z > 0,999$) qui permet d'expliquer les écarts de prédiction avec le CO entre le CRN et les modèles CFD.

Ces résultats mettent en avant le potentiel prédictif des nouveaux modèles CFD en termes d'émissions de NO même si le CRN_369 fait toujours office de référence de par la composition chimique complète qu'il inclut et par la capacité de prédiction qu'elle lui confère.

Conclusion

Inscrit dans le cadre d'une thèse CIFRE, ce mémoire propose diverses approches de modélisation pour la combustion du gaz naturel dans les centrales thermiques et en particulier celles utilisées par l'exploitant EDF. Afin d'aider l'opérateur à optimiser le fonctionnement de la TAC (Turbine A Combustion), on étudie les phénomènes locaux liés à la formation des espèces polluantes (NO_x et CO) dont l'émission est réglementée sous peine de pénalités financières.

La *première partie* du mémoire vise à sélectionner l'approche de modélisation la plus adéquate pour le problème industriel sous-jacent. Une étude bibliographique évalue les différents modèles de combustion turbulente aptes à prédire la formation des NO_x en phase gazeuse. Pour traiter l'apparition de ces espèces minoritaires, un couplage entre l'écoulement turbulent et une cinétique chimique détaillée est requis. La modélisation s'oriente alors vers une approche "réseau de réacteurs" qui fournit des prédictions tout à fait pertinentes (moins de 5% d'erreur) par rapport aux mesures et conserve des temps de calcul raisonnables (moins d'une demi-heure). Un déploiement dynamique en centrale pourrait être envisageable à court-terme.

En *seconde partie*, la modélisation de la formation des polluants est abordée. La plupart des modèles de "réseaux de réacteurs" qui existent dans la littérature sont engendrés à la suite d'un calcul CFD. Réalisé en post-traitement du fait de la faible influence des espèces minoritaires sur l'écoulement, le découpage des champs CFD en réseaux de réacteurs s'appuie sur différents critères. Nous considérons d'une part les paramètres jouant sur la formation des NO_x (découpage chimique en fraction de mélange z et en avancement réactionnel c) et d'autre part la topologie de l'écoulement (suivi des lignes de courant grâce à "l'âge fluide" et l'emploi de traceurs). L'écoulement turbulent est alors simplifié en un ensemble de zones s'échangeant des flux de masse par convection et diffusion. Contrairement aux modèles proposés dans la littérature, notre approche de réseaux de réacteurs chimiques idéaux (CRN pour "Chemical Reactor Network") calcule la température des réacteurs avec la composition détaillée et ne fige pas une valeur issue du calcul CFD. L'évolution de la température dans chaque réacteur est par ailleurs employée comme critère de convergence de la méthode de résolution itérative associée au CRN. Les réseaux de réacteurs chimiques idéaux (CRN) ne considèrent qu'un état moyen par réacteur et ne tiennent pas compte des fluctuations turbulentes autour de leur valeur moyenne.

Les modèles de TRN ("Turbulent Reactor Network") tentent de combler cette lacune en introduisant une densité de probabilité (*pdf* pour "probability density function") afin de représenter plusieurs états turbulents au sein de chaque réacteur. La *pdf* à 4 pics de Dirac du modèle LWP est portée à l'échelle du réacteur. Il faut alors définir en plus des valeurs moyennes (z_m, Y_f^m) des variances (z_v, Y_f^v) et une covariance ($Y_f z$)^{cov} dans chaque réacteur. Ces dernières grandeurs contiennent 2 contributions, les fluctuations de sous-maille dans chaque cellule dominant largement les écarts entre les cellules. La *pdf* pondère ensuite une tabulation des termes sources chimiques pour le *NO* et le *CO* construite à partir de calculs à chimie détaillée (calculs de réacteurs chimiques idéaux ouverts "PSR" ou non "Batch"). Les faibles temps de calcul associés à la résolution des modèles de TRN permettent l'introduction d'une distribution de temps de séjour (DTS) dans chaque réacteur. Une méthode Monte-Carlo est alors développée pour résoudre le réseau complet sur un ensemble de tirs afin d'évaluer l'impact de cette physique sur les émissions de *NO* et de *CO* en sortie de la TAC. Une faible dépendance est trouvée pour le *NO* émis en sortie puisque son terme source s'adapte au temps de séjour et conduit à une valeur moyenne proche de celle induite au temps de séjour moyen. En effet, pour les faibles temps de séjour, la croissance linéaire du *NO* avec le temps ne lui permet pas d'approcher son état d'équilibre en TAC. Pour une pression de 15 bars (100 % de la charge), le temps de séjour moyen ne dépasse pas 15 ms dans le tube à flamme étudié.

A la fin du mémoire, la représentation de l'écoulement turbulent par le découpage en réseau zonal est validée pour la flamme de Masri. Une lacune des modèles de TRN est néanmoins mise en lumière pour la simulation des flammes non-prémélangées et met en défaut la forme présumée de la *pdf*. En dépit de cette découverte, le potentiel prédictif des 2 approches de réseaux de réacteurs (CRN et TRN) est comparé. La confrontation aux mesures expérimentales soulignent la pertinence des modèles de CRN n'incluant pourtant pas les fluctuations turbulentes contrairement aux modèles de TRN. Des études de sensibilité des émissions de *NOx* aux variations de combustible, d'hygrométrie et de charge sont menées à l'aide du CRN qui intègre une composition chimique détaillée. Le développement des nouveaux modèles CFD de combustion turbulente améliore la représentation des états turbulents (*pdf* continue en $c|z$ et meilleur positionnement des états discrets en z) et du terme source chimique (tabulation de fonction $\beta(z)$). Couplés à l'introduction des tabulations à chimie détaillée dans le calcul CFD, ils donnent accès à une prédiction des émissions de *NO* et *CO* dans Code_Saturne. De plus, ils permettent de mieux simuler les phénomènes physiques complexes des flammes non-prémélangées (changement de nature de la flamme décrochée). Les résultats prédisent par ailleurs une bonne hauteur de la flamme décrochée comparée aux mesures expérimentales. Enfin, pour la configuration industrielle du tube à flamme de TAC, ils induisent des prédictions de *NOx* équivalentes aux modèles de CRN malgré le fort taux d'imbrûlés qui subsiste en sortie du tube à flamme.

Nos premières conclusions portent sur le potentiel prédictif des 2 modèles de réseaux de réacteurs (CRN et TRN). Les diverses études de sensibilité réalisées permettent de synthétiser leurs points communs et leurs divergences.

Ces 2 approches ont une base commune. Les CRN (réseaux de réacteurs chimiques idéaux) et TRN (réseaux de réacteurs turbulents) s'appuient sur le même découpage (même nombre et même topologie de réacteurs). Ils partagent le même écoulement simplifié à travers les flux convectifs (matrice Fc_{ij}) et diffusifs (matrice Fd_{ij}) qui sont échangés entre réacteurs. Ces 2 modèles induisent les mêmes champs pour la fraction de mélange moyenne z_m notamment responsable du positionnement des flammes. En effet, le TRN n'applique qu'une opération de moyenne sur le calcul CFD afin d'obtenir z_m sur le volume du réacteur. Enfin, ces 2 approches utilisent une cinétique détaillée pour calculer les termes sources de formation du NO et du CO .

Par contre, si le CRN transporte la composition chimique complète (53 espèces), il ne considère que l'état moyen de chaque réacteur. Le TRN propose d'introduire une description des états turbulents dans chaque réacteur mais nécessite l'expression des seconds moments statistiques pour z et Y_f . Largement dépendante du calcul CFD et de la forme de la *pdf* présumée, cette modélisation se limite à la résolution de Y_{NO} et Y_{CO} .

Le tableau suivant établit un récapitulatif des caractéristiques de chaque modélisation par réseaux de réacteurs.

Caractéristiques	Modélisation CRN	Modélisation TRN
Sensibilité à la DTS	non	oui
Tps calcul moyen	1000 s	1 s (ou \propto nb tirs MC)
Sensibilité à l'hygrométrie	oui	non
Sensibilité au combustible	oui	non
Sensibilité à la charge	oui	non
Fluctuations turbulentes	non	oui
Calcul "détaillé" de T	oui	non
Prédiction des NOx	pertinente	fonction de la <i>pdf</i>

Sous réserve de transporter l'enthalpie H et la fraction massique Y_k de chaque espèce χ_k afin de garantir l'adiabaticité des réacteurs, la modélisation par CRN *reste la meilleure des 2 approches pour la prédiction des émissions polluantes*. Elle donne également accès à une évaluation pertinente de la température et des imbrûlés éventuels à l'aide de la composition chimique complète qu'elle inclut. De réelles études de sensibilité deviennent envisageables (variabilité du combustible ou de l'hygrométrie, modification de la charge) et dans des temps de calcul raisonnables (moins de 20 minutes).

La modélisation par TRN permet quant à elle d'évaluer l'impact de la distribution des temps de séjour sur les émissions polluantes. Ce couplage reste une première approche mais "isole" les espèces formées (NO ou CO) aux différents temps de séjour par une résolution Monte-Carlo à tirs discrets. En réalité, les zones de recirculation de chaque réacteur font interagir les particules créées pour de longs de temps de séjour avec celles provenant de l'entrée et dont l'âge est faible. Il serait intéressant d'étudier l'influence de ce mélange sur la formation des émissions polluantes. En vue d'évaluer les effets de catalyse, il serait envisageable de tabuler d'autres espèces en plus du NO et du CO avec

toutefois les conséquences associées pour l'intégration numérique (ex : taille mémoire croissante des tabulations cinétiques). Toutefois, le potentiel prédictif des modèles de TRN est bien plus dépendant de la représentation des états turbulents (forme présumée de la *pdf*) que de la précision des tabulations chimiques. Cette dépendance du TRN au calcul CFD et la prépondérance des effets de sous-maille dans chaque réacteur nous ont conduit à développer les modèles du calcul CFD.

En effet, même si le découpage en réseau de réacteurs est pertinent notamment grâce à la définition d'un quadrillage fluide décrivant la topologie de l'écoulement (prise en compte des lignes de courant), il n'en reste pas moins une simplification. Ainsi, même en introduisant des lois de coupe plus complexes (ex : loi géométrique pour le traceur fluide interagissant avec l'âge fluide), il ne peut rivaliser avec l'écoulement turbulent prédit par le maillage complet.

Par conséquent, toutes les améliorations du calcul CFD impacteront les prédictions en aval d'une éventuelle modélisation par TRN. Nous avons donc également contribué à l'amélioration du modèle LWP suite aux travaux déjà réalisés, notamment sur les termes de dissipation des équations de variance de z et Y_f . Nous avons ainsi introduit une forme de la *pdf* qui propose des états discrets en z mieux positionnés dans le domaine réactif et une description continue des états en $c|z$ à l'aide d'une fonction β . Couplé à la *pdf* présumée, le terme source chimique est désormais défini à l'aide d'une autre fonction $\beta(c)$ ajustée à partir de calculs 1D de flammes à cinétique détaillée. Il donne accès à un taux de réaction réaliste en comparaison de la loi d'Arrhénius semi-empirique qui était initialement proposée dans le modèle LWP.

Ces efforts de modélisation ont permis la représentation de phénomènes complexes. La hauteur de flamme moyenne d'une flamme non-prémélangée liftée est correctement prédite. Pour affiner encore les capacités prédictives du calcul CFD, il pourrait être envisageable de substituer une forme continue en z (ex : fonction β) aux états discrets actuels (4 distributions de Dirac au maximum). Toutefois, même si la forme présumée pour l'avancement moyen $\bar{c}|z$, conditionné en z , le permettrait (arcs de paraboles continues par morceaux sur z), cette solution serait numériquement très coûteuse (intégration d'une *pdf jointe* $\bar{P}(z, c)$ dense dont le couplage est assuré par la covariance des fonctions β en z et $c|z$).

Enfin, l'introduction des tabulations des termes sources de NO et de CO directement dans Code_Saturne démontre le potentiel des nouveaux modèles pour la prédiction des émissions polluantes. Pour le tube à flamme étudié, ils conduisent à des estimations pertinentes pour les NO_x émis en comparaison des mesures. Comme la précision de la *pdf* est désormais accrue, il serait intéressant de coupler les calculs de PSR, adaptés aux flammes fortement épaissies et les calculs de flammes laminares 1D qui restent valables en cas de fortes ségrégations (régime de flammelettes). Ainsi, le calcul CFD disposerait d'une modélisation fine de la physique locale que ce soit pour le terme source chimique ou la formation des polluants (NO et CO) dans les turbines à combustion.

Bibliographie

- Archambeau, F., Nechitoua, N., Sakiz, M., 2004. *Code saturne : a finite volume code for turbulent flows - industrial applications*. International Journal of Finite Volumes 1, télécharger Code_Saturne (Version 1.3.2).
- Barrère, M., Prud'homme, R., 1973. *Equations fondamentales de l'aérothermochimie*. Masson, Paris.
- Bass, C. A., Barat, R. B., 2003. *Simulation of a toroidal jet-stirred combustor using a partially stirred reactor model with detailed kinetic mechanisms*. Combustion and Flame 135, 249 – 259.
- Benedetto, D., Pasini, S., Falcitelli, M., La Marca, C., Tognotti, L., 2000. *Nox emission prediction from 3-d complete modelling to reactor network analysis*. Combustion Science and Technology 153, 279 – 294.
- Besson, M., 2001. Etude expérimentale d'une zone de combustion en écoulement turbulent stabilisé par un élargissement brusque symétrique. Ph.D. thesis, Université de Poitiers (ENSMA).
- Bodenstein, M., Lutkemeyer, H., 1924. *Quasi-steady state assumption*. Z. Physics and Chemistry 114.
- Boree, J., Karmel, D., 2004. Cours de turbulence et de combustion turbulente. ENSMA, 3^{ème} année, Poitiers.
- Borghia, R., 1988. *Turbulent combustion modelling*. Progress in Energy and Combustion Sciences 14 (245 - 292).
- Borghia, R., Destriau, M., 1998. *Combustion and Flames, chemical and physical principles*. Editions TECHNIP.
- Boussinesq, J., 1877. *Essai sur la théorie des eaux courantes*. Académie des sciences, Paris 23 (1), 252 – 260.
- Bray, K., 1995. *Turbulent Reactive Flows*. Academic Press.
- Bray, K., Champion, M., Libby, P., Swaminathan, N., 2006. *Finite rate chemistry and presumed pdf models for premixed combustion*. Combustion and Flame 146, 665 – 673.

- Bray, K., Domingo, P., Vervisch, L., 2005. *Role of the progress variable in models for partially premixed turbulent combustion*. Combustion and Flame 141 (4), 431 – 437.
- Bray, K., Peters, N., 1994. *Turbulents reacting flows*. Academic Press London, Ch. Laminar flamelets in turbulent flames, pp. 63 – 113.
- Burke, P., Schumann, T., 1928. *Diffusion flame*. Industrial Engineering Chemistry 20, 998 – 1004.
- Candel, S., Poinot, T., 1990. *Flame stretch and the balance equation for the flame area*. Combustion, science and technology 70, 1 – 15.
- Cant, R., Pope, S., Bray, K., 1990. Modelling of flamelet surface to volume ratio in turbulent premixed combustion. In : The 23th Symposium International on Combustion. The Combustion Institute, Orleans, pp. 809 – 815.
- Champion, M., Libby, P., 2003. *The influence of a thermally active wall on premixed turbulent combustion*. Combustion Science and Technology 175, 2015 – 2060.
- Chassaing, P., 2000. *Turbulence en mécanique des fluides. Analyse du phénomène dans une perspective de modélisation à l'usage de l'ingénieur*. Editions Cépadués.
- Cheng, W., Diring, J., 1991. Numerical modelling of si engine combustion with a flame sheet model. In : 910268, S. (Ed.), International Congress and Exposition. Detroit.
- Choi, C.R. Huh, K., 1998. *Development of a coherent flamelet model for spark ignited turbulent premixed flame in a close vessel*. Combustion and Flame 114 (3/4), 336 – 348.
- Cleary, M., Kronenburg, A., 2007a. *Hybrid multiple mapping conditioning on passive and reactive scalars*. Combustion and Flame 151, 623 – 638.
- Cleary, M., Kronenburg, A., 2007b. *Multiple mapping conditioning for extinction and reignition in turbulent diffusion flames*. Proceedings of the Combustion Institute 31, 1497 – 1505.
- Curl, R., 1963. *Disperse phase mixing. theory and effects in simple reactors*. AIChEJ 175 (9).
- Damköhler, G., 1940. *Influence of turbulence on flame velocity in gaseous mixtures*. ZH Electrochem 46, 601.
- Darabiha, N., 1999. Cinétique et modélisation des polluants. In : Modélisation et simulation de la combustion. Collège de Polytechnique.
- De Soete, G., 1989. *Cinétique de formation des polluants gazeux dus à la combustion. un exemple type : l'oxyde et le protoxyde d'azote*. Pollution Atmosphérique 31 (122), 176 – 183.

- Desgardin, O., 2006. Effets des hétérogénéités de richesse sur la structure locale des flammes turbulentes. Ph.D. thesis, Université de Rouen (INSA).
- Dopazo, C., 1973. Non-isothermal turbulent reactive flows : stochastic approaches. Ph.D. thesis, University of New York, Stony Brook.
- Duclos, J., Veynante, D., Poinso, T., 1993. *A comparison of flamelet models for premixed turbulent combustion*. Combustion and Flame 95 (1/2), 101 – 108.
- Dumand, C., 2005. Mélange et combustion dans les petits volumes : Applications aux microsystèmes énergétiques. Ph.D. thesis, ONERA, Département DEFA, Palaiseau.
- Ehrhardt, K., Tokan, M., Jansohn, P., Teare, J. D., Beér, J. M., G., S., Leuckel, W., 1998. *Modeling of nox reburning in a pilot scale furnace using detailed reaction kinetics*. Combustion Science and Technology 136, 333 – 347.
- Ehrhardt, K. R., 1993. Development of a hybrid model for the prediction of nitric oxides emissions of furnaces. Energy lab. report, M.I.T., Massachusetts Institute of Technology, Boston, USA.
- Etheridge, D., Steele, L., Langenfelds, R., Francey, R., Barnola, J.-M., Morgan, V., 1998. *Historical CO₂ records from the Law Dome DE08, DE08-2, and DSS ice cores*. In Trends : A Compendium of Data on Global Change, carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, U.S. Department of Energy, Oak Ridge, Tenn., U.S.A.
- Falcitelli, M., Pasini, S., Rossi, N., Tognotti, L., 2002a. *Cfd + reactor network analysis : an integrated methodology for the modeling and optimisation of industrial systems for energy saving and pollution reduction*. Applied Thermal Engineering 22 (8), 971 – 979.
- Falcitelli, M., Pasini, S., Tognotti, L., 2002b. *Modelling practical combustion systems and predicting nox emissions with an integrated cfd based approach*. Computers and Chemical Engineering 26 (9), 1171 – 1183.
- Falcitelli, M., Tognotti, L., Pasini, S., 2002c. *An algorithm for extracting chemical reactor network models from cfd simulation of industrial combustion systems*. Combustion Science and Technology 174 (11-2), 27 – 42.
- Faravelli, T., Bua, L., Frassoldati, A., Tognotti, L., Ranzi, E., 2001. *A new procedure for predicting nox emission from furnaces*. Computers and Chemical Engineering 25, 613 – 618.
- Fenimore, C., 1971. Formation of nitric oxide in premixed hydrocarbon flames. In : Thirteenth Symposium (International) on Combustion. pp. 373 – 379.
- Fernández-Tarrazo, E., Sánchez, A., Liñán, A., Williams, F., 2006. *A simple one-step chemistry model for partially premixed hydrocarbon combustion*. Combustion and Flame 147, 32 – 38.

- Fichet, V., Kanniche, M., Plion, P., Gicquel, O., June 2007. Modeling natural gas turbulent combustion in gas turbine : Coupling 3d combustion simulations with chemical reactor network for advanced nox predictions. In : 15th IFRF's Members' Conference : Combustion in efficient and environmentally acceptable manner. IFRF, Pisa.
- Fiorina, B., Gicquel, O., Vervisch, L., Carpentier, S., Darabiha, N., 2005a. *Approximating the chemical structure of partially premixed and diffusion counterflow flames using fpi flamelet tabulation*. Combustion and Flame 140 (3), 147 – 160.
- Fiorina, B., Gicquel, O., Vervisch, L., Carpentier, S., Darabiha, N., 2005b. *Premixed turbulent combustion modeling using tabulated detailed chemistry and pdf*. Proceedings of the Combustion Institute 30, 867 – 874.
- Frassoldati, A., Frigerio, S., Colombo, E., Inzoli, F., Faravelli, T., June 2005. *Determination of nox emissions from strong swirling confined flames with an integrated cfd-based procedure*. Chemical Engineering Science 60 (11), 2851 – 2869.
- Gicquel, O., Décembre 1999. Développement d'une nouvelle méthode de réduction des schémas cinétiques : Application au méthane. Ph.D. thesis, Ecole centrale des arts et manufactures, Châtenay-Malabry, FRANCE.
- Gicquel, O., Darabiha, N., Thevenin, D., 2000. *Laminar premixed hydrogen / air counterflow flame simulation using flame prolongation of ildm with differential diffusion*. Proceedings of Combustion Institute 28, 1901 – 1908.
- Glarborg, P., Kee, R. J., J.F., G., Miller, J. A., 1986. Psr : A fortran program for modeling well-stirred-reactors. Sandia Report SAND86-8209 UC-4, Sandia National Laboratories, Livermore.
- Gonçalves dos Santos, R., Janvier 2007. Simulation aux grandes échelles de la combustion turbulente avec prise en compte du rayonnement thermique. Ph.D. thesis, Ecole Centrale Paris - Laboratoire EM2C.
- Jimenez, J., 2002. Engineering Turbulence Modelling and Experiments 5.
- Jones, P., Mann, M., 2004. *Climate over past millenia*. Reviews of Geophysics 42 (RG2002).
- Jones, P., Parker, D., Osborn, T., Briffa, K., 2006. *Global and hemispheric temperature anomalies—land and marine instrumental records*. In Trends : A Compendium of Data on Global Change, carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, U.S. Department of Energy, Oak Ridge, Tenn., U.S.A.
- Kanniche, M., Janvier 1990. Modèles de turbulence au second ordre : écoulements complexes ou stratifiés. Ph.D. thesis, Laboratoire National d'Hydraulique EDF R&D.
- Kee, R. J., Rupley, F., Miller, J. A., 1989. Chemkin ii : A fortran chemical kinetics package for the analysis of gas phase chemical kinetics. Sandia Report SAND89-8009B UC-706, Sandia National Laboratories, Livermore.

- Kerstein, A., 1988. *A linear eddy model for turbulent scalar transport and mixing*. Combustion Science and Technology 60 (391 - 421).
- Klimenko, A., Bilger, R., 1999. *The conditional moment closure approach*. Progress of Energy and Combustion Sciences 25 (6), 595 – 687.
- Klimenko, A., Pope, S., 2003. *The modeling of turbulent reactive flows based on multiple mapping conditioning*. Physics of Fluids 15 (7), 1907 – 1925.
- Kollmann, W., 1989. *The pdf approach for turbulent flows*. Theoretical and Computational Fluid Dynamics 1 (285 - 349).
- Kolmogorov, A., 1941. *Dissipation of energy in a locally isotropic turbulence*. Doklady Akad. Nauk USSR 32, 141, traduction anglaise dans : American Mathematical Society Translations, 1958, series 2, Vol. 8, p. 87, Providence R.I.
- Lam, S., Goussis, D., 1994. *The csp method for simplifying kinetics*. International Journal of Chemical Kinetics 26, 461 – 486.
- Lauder, B., Spalding, D., 1974. *The numerical computation of turbulent flows*. Computational Methods in Applied Mechanical Engineering 3 (269 - 289).
- Lepage, V., Septembre 2000. *Elaboration d'une méthode de réduction des schémas cinétiques détaillés. application aux mécanismes de combustion du gaz naturel et du n-décane*. Ph.D. thesis, Université (Pierre & Marie Curie) Paris VI.
- Libby, P., Williams, F., 2000. *Presumed pdf analysis of partially premixed turbulent combustion*. Combustion Science and Technology 161, 351 – 390.
- Luche, J., Novembre 2003. *Obtention de modèles cinétiques réduits de combustion. application aux mécanismes du kérosène*. Ph.D. thesis, Université d'Orléans.
- Maas, U., Pope, S., 1992a. *Implementation of simplified chemical kinetics based on low-dimensional manifolds*. Proceedings of the Combustion Institute 24, 719 – 729.
- Maas, U., Pope, S., 1992b. *Simplifying chemical kinetics : Intrinsic low-dimensional manifolds in composition space*. Combustion and Flame 88, 239 – 264.
- Magnussen, B., Hjertager, B., 1976. *On the mathematical modeling of turbulent combustion with special emphasis on soot formation and combustion*. In : 16th Symposium International on Combustion. The Combustion Institute, Pittsburgh, pp. 719 – 729.
- Mancini, M., Schwöppe, P., Weber, R., June 2007a. *Investigations on the modeling assumptions for nox emissions calculations in mild combustion of natural gas*. In : Combustion in an efficient and environmentally acceptable manner, 15th IFRF Members Conference. International Flame Research Foundation, Pisa, Italy.
- Mancini, M., Schwöppe, P., Weber, R., 2007b. *Predictions of nox emissions in mild / flameless combustion*. In : Energietechnik, V. B. G. (Ed.), 23 Deutscher Flammentag Verbrennung und Feuerung. p. 331.

- Mancini, M., Schwöppe, P., Weber, R., Orsino, S., 2007c. *On mathematical modelling of flameless combustion*. Combustion and Flame 150, 54 – 59.
- Masri, A., Bilger, R., Dibble, R., 1988. *Turbulent nonpremixed flames of methane near extinction : Mean structure from raman measurements*. Combustion and Flame (71), 245 – 266.
- Mauviot, G., 2007. Développement d'une modélisation phénoménologique des chambres de combustion à moteur piston. réduction de modèle physique 3d dans la perspective d'une intégration dans un outil de simulation système. Ph.D. thesis, Ecole Centrale Paris / Institut Français du Pétrole, IFP Rueil Malmaison (92).
- Meneveau, C., Poinso, T., 1991. *Stretching and quenching of flamelets in premixed turbulent combustion*. Combustion and Flame 86 (311 - 332).
- Mizobuchi, Y., Tachibana, S., Shinjo, J., Ogawa, S., Takeno, T., 2002. Numerical analysis on hydrogen-air flame. In : Proceedings of the Combustion Institute. CFD Technology Center National Aerospace Laboratory of Japan.
- Moss, J., Bray, K., Libby, P., 1977. *A unified statistical model for premixed turbulent combustion*. Acta Astroautica 4, 291 – 319.
- Mura, A., Borghi, R., 2004. *Introducing a new partial pdf approach for turbulent combustion modeling*. Combustion and Flame 136 (3), 377 – 382.
- Mura, A., Demoulin, F. X., 2004. Iem-lmse and intermediate closures of micromixing and their influence in the context of hcci combustion. ICMM 2004 conference, Torus Press, coming soon in Journal of Chemicals physics.
- Mura, A., Galzin, F., Borghi, R., 2003. *A unified pdf-flamelet model for turbulent premixed combustion*. Combustion Science and Technology 175 (9), 1573 – 1609.
- Mura, A., Robin, V., Champion, M., 2007. *Modeling of scalar dissipation in partially premixed turbulent flames*. Combustion and Flame 149 (1-2), 217 – 224.
- Mura, A., Strozzi, C., 2005. Etude de l'évolution des taux de productions moyens dans un réacteur imparfaitement mélangé. influence des temps de séjour et de mélange pour différentes représentations du mélange moléculaire. 17ème Congrès Français de Mécanique, Troyes, FRANCE.
- Oijen, J., Lammers, F., De Goey, L., 2001. *Modeling of complex premixed burner systems by using flamelet-generated manifolds*. Combustion and Flame 127 (3), 2124 – 2134.
- Pauwels, J., 2006. Formation des polluants en combustion. implications atmosphériques. Ecole de combustion du CNRS, Groupe Français de Combustion, Anglet, France.
- Peters, N., 1985. *Numerical simulation of combustion phenomena*. Vol. 241. Springer

- Verlag, Berlin, Ch. Numerical and asymptotic analysis of systematically reduced reaction schemes for hydrocarbon flames, pp. 90 – 109.
- Peters, N., 1991. *Reducing mechanisms*. Vol. 384. Springer-Verlag, Ch. Reduced kinetic mechanisms and asymptotic approximations for methane-air flames, lecture notes in physics.
- Peters, N., 1999. *The turbulent burning velocity for large-scale and small-scale turbulence*. Journal of Fluid Mechanics 384, 107 – 132.
- Plion, P., 2004. Modification de la distribution de curl. Note interne h-i81/03/21/p, EDF R&D, Chatou, France, département MFTT.
- Poinsot, T., Veynante, D., 2005. *Theoretical and Numerical Combustion*, 2nd Edition. Edwards Incorporated.
- Pope, S., 1985. *Pdf methods for turbulent reacting flows*. Progress in Energy and Combustion Sciences 11, 119 – 195.
- Pope, S., 1988. *The evolution of surface in turbulence*. International Journal of Engineering Sciences 26 (5), 445 – 469.
- Pope, S., 1991. *Mapping closure for turbulent mixing and reaction*. Theoretical and Computational Fluid Dynamics 2, 255 – 270.
- Pope, S., 1997. *Computational efficient implementation of combustion chemistry using in-situ adaptative tabulation*. Combustion Theory and Modelling 1, 43 – 63.
- Pope, S., 2000. *Turbulent Flows*. Cambridge University Press.
- Prasad, R., Gore, J., 1999. *An evaluation of flame surface density models for turbulent premixed jet flames*. Combustion and Flame 116 (1/2), 1 – 14.
- Ranzi, E., Gaffuri, P., Faravelli, T., Dagaut, P., 1995. *A wide range modeling study of n-heptane oxidation*. Combustion and Flame 103, 91 – 106.
- Ren, R., Pope, S. B., 2004. *An investigation of the performance of turbulent mixing models*. Combustion and Flame 136, 208 – 216.
- Ribert, G., Champion, M., Plion, P., 2004. *Modeling turbulent reactive flows with variable equivalence ratio : Application to the calculation of a reactive shear layer*. Combustion Science and Technology 176 (5-6), 907 – 923.
- Robin, V., Décembre 2007. Contribution à la modélisation des écoulements turbulents réactifs partiellement prémélangés. Ph.D. thesis, Université de Poitiers, ENSMA, Poitiers.
- Robin, V., Mura, A., Champion, M., Desgardin, O., Renou, B., Boukhalfa, M., 2008. *Experimental and numerical analysis of stratified turbulent v-shaped flames*. Combustion and Flame 153 (1-2), 288 – 315.

- Robin, V., Mura, A., Champion, M., Plion, P., 2006. *A multi dirac presumed pdf model for turbulent reactive flow with variable equivalence ratio*. Combustion Science and Technology 118 (10-11), 1843 – 1870.
- Rullaud, M., Juin 2004. Modélisation de la combustion turbulente via une méthode de tabulation de la cinétique détaillée couplée à des fonctions densités de probabilité. application aux foyers aéronautiques. Ph.D. thesis, INSA Rouen, Rouen, France.
- Selle, L., 2002. Simulation aux grandes échelles de la combustion dans une turbine à gaz industrielle. Ph.D. thesis, CERFACS, Toulouse.
- Selle, L., Lartigue, G., Poinso, T., Koch, R. Schildmacher, K., Krebs, W., Prade, B., K. P., Veynante, D., 2004. *Compressible large eddy simulation of turbulent combustion in complex geometry on unstructured meshes*. Combustion and Flame 137, 489 – 505.
- Singh, R., 1990. Combustion in gas turbine - part i - combustor types and design. Vol. 1 of *Lecture Series 1990 - 02*. Von Karman Institute, Rhode-Saint-Genèse, Belgium.
- Skoth-Rasmussen, M., Holm-Christensen, O., Østberg, M., Christensen, T., Johannesen, T., Jensen, A.D. ad Glarborg, P., Livbjerg, H., 2004. *Post-processing of detailed chemical kinetics mechanisms onto cfd simulations*. Computers and Chemical Engineering 28, 2351 – 2361.
- Spalding, D., 1971. Mixing and chemical reaction in steady confined turbulent flames. In : 13th Symposium International on Combustion. The Combustion Institute, Pittsburgh, pp. 649 – 657.
- Truelove, J., 1987. *Discrete-ordinate solutions of radiation transport equation*. Journal of Heat Transfert 109, 1048 – 1051.
- Tsai, K., Fox, R., 1998. *The bmc / giem model for micromixing in non-premixed turbulent reacting flows*. Industrial Engineering Chemistry Res.
- Turanyi, T., 1990. *Review - sensitivity analysis of complex kinetics systems. tools and applications*. Journal of Mathematical Chemistry 5, 203 – 248.
- Vervisch, L., 1991. Modélisation de flammes de diffusion turbulente avec prise en compte de l'interaction entre les effets thermo-chimiques et turbulents. Ph.D. thesis, Ecole Centrale Paris, Laboratoire National d'Hydraulique EDF R&D.
- Vervisch, L., Bidaux, E., Bray, K., Kollmann, W., 1995. *Surface density function in premixed turbulent combustion modeling, similarities between probability density function and flame surface approach*. Physics of Fluids 7 (10), 2496 – 2503.
- Veynante, D., 2006. Structures des flammes laminaires. Ecole de combustion du CNRS, Groupe Français de Combustion, Anglet, France.
- Villermaux, J., 1986. *Encyclopedia of Fluid Mechanics*. Ch. Micromixing phenomena in stirred reactor, p. 707.

- Villermaux, J., 1993. *Génie de la réaction chimique*, 2nd Edition. Génie des procédés de L'Ecole de Nancy.
- Vulis, 1961. *Thermal regimes of combustion*. McGraw-Hill.
- Westbrook, C. K., Dryer, F. L., 1984. *Simplified reaction mechanisms for the oxidation of hydrocarbon fuels in flames*. *Combustion Science and Technology* 27, 31 – 43.
- William, H. P., Brian, P. F., Saul, A. T., William, T. V., 1992. *Numerical recipes in Fortran 77, The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press, Ch. 7 - Random Numbers, p. 279.
- Williams, F., 1985. *Combustion Theory*, 2nd Edition. Addison-Wesley.
- Wyzgolik, A., 2008. Stabilisation d'une flamme non-prémélangée dans un écoulement de jets coaxiaux. effets d'un champ acoustique. Ph.D. thesis, Université de Rouen - CORIA.
- Wyzgolik, A., Baillot, F., 2008. Response of the non-premixed lifted flame to coaxial jet jet mixing layers. In : *Proceeding of the 31st Symposium on Combustion*, Heidelberg.
- Zel'dovich, Y., Sadvnikov, P., Frank-Kamenetskii, D., 1947. Oxydation of nitrogen in combustion. Tech. rep., Academy of Sciences of the USSR, Moscow.
- Zurbach, S., Janvier 1998. Modélisation de la combustion turbulente non-prémélangée avec prise en compte d'une cinétique chimique détaillée. Ph.D. thesis, Ecole centrale des arts et manufactures, Châtenay-Malabry, FRANCE.

Annexe A

Distribution de Curl modifiée

L'hypothèse de Curl est utilisée pour déterminer l'amplitude α des distributions de Dirac associées à 2 états ϕ_1 et ϕ_2 d'un même milieu réactif. L'intermittence du milieu entre ces 2 états est implicitement admise et se traduit pour toute grandeur $\phi \in [\phi_{min}, \phi_{max}]$ appartenant au milieu par la pdf $\tilde{P}(\phi)$:

$$\tilde{P}(\phi) = \alpha \delta(\phi - \phi_1) + (1 - \alpha) \delta(\phi - \phi_2) \quad (\text{A.1})$$

Les distributions de Dirac facilitent l'intégration et induisent des expressions simples pour les différents moments de ϕ . Sa moyenne $\tilde{\phi}$ est donnée par :

$$\begin{aligned} \tilde{\phi} &= \int_{\phi_{min}}^{\phi_{max}} \phi \tilde{P}(\phi) d\phi = \int_{\phi_{min}}^{\phi_{max}} \phi (\alpha \delta(\phi - \phi_1) + (1 - \alpha) \delta(\phi - \phi_2)) d\phi \\ &= \alpha \phi_1 + (1 - \alpha) \phi_2 \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

$$\begin{aligned} \tilde{\phi}^2 &= \int_{\phi_{min}}^{\phi_{max}} \phi^2 \tilde{P}(\phi) d\phi = \int_{\phi_{min}}^{\phi_{max}} \phi^2 (\alpha \delta(\phi - \phi_1) + (1 - \alpha) \delta(\phi - \phi_2)) d\phi \\ \tilde{\phi}^2 &= \alpha \phi_1^2 + (1 - \alpha) \phi_2^2 \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

Par définition de la variance $\overline{\phi''^2}$ quelle que soit la forme de $\tilde{P}(\phi)$, on a : $\overline{\phi''^2} = \tilde{\phi}^2 - \tilde{\phi}^2$. Nous en déduisons l'expression de la variance de $\overline{\phi''^2}$:

$$\begin{aligned} \overline{\phi''^2} &= \alpha \phi_1^2 + (1 - \alpha) \phi_2^2 - (\alpha \phi_1 + (1 - \alpha) \phi_2)^2 \\ &= \alpha \phi_1^2 + (1 - \alpha) \phi_2^2 - (\alpha^2 \phi_1^2 + 2\alpha(1 - \alpha)\phi_1\phi_2 + (1 - \alpha)^2 \phi_2^2) \\ &= \alpha \phi_1^2 (1 - \alpha) + (1 - \alpha) \phi_2^2 (1 - (1 - \alpha)) - 2\alpha(1 - \alpha)\phi_1\phi_2 \\ &= \alpha(1 - \alpha) [\phi_1^2 - 2\phi_1\phi_2 + \phi_2^2] \\ &= \alpha(1 - \alpha) [\phi_1 - \phi_2]^2 = \alpha(1 - \alpha) [\phi_2 - \phi_1]^2 \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

Ainsi, la résolution des équations de transport pour $\bar{\phi}$ et $\bar{\phi}''^2$ donnent accès à la valeur des états ϕ_1 et ϕ_2 (système de 2 équations à 2 inconnues) par le développement suivant.

En partant de l'équation pour la variance $\bar{\phi}''^2$ et en multipliant chaque membre par $\alpha/(1-\alpha)$, on obtient ϕ_2 :

$$\begin{aligned}
 \bar{\phi}''^2 &= \alpha(1-\alpha)[\phi_2 - \phi_1]^2 \\
 \left(\frac{\alpha}{1-\alpha}\right)\bar{\phi}''^2 &= \alpha^2[\phi_2 - \phi_1]^2 \\
 \alpha[\phi_2 - \phi_1] &= \sqrt{\frac{\alpha}{1-\alpha}\bar{\phi}''^2} \\
 \alpha\phi_2 &= \alpha\phi_1 + \sqrt{\frac{\alpha}{1-\alpha}\bar{\phi}''^2} \\
 \alpha\phi_2 + (1-\alpha)\phi_2 &= \alpha\phi_1 + (1-\alpha)\phi_2 + \sqrt{\frac{\alpha}{1-\alpha}\bar{\phi}''^2} \\
 \phi_2 &= \bar{\phi} + \sqrt{\frac{\alpha}{1-\alpha}\bar{\phi}''^2} \tag{A.5}
 \end{aligned}$$

De manière identique, en multipliant l'équation de la variance $\bar{\phi}''^2$ par $(1-\alpha)/\alpha$, on trouve ϕ_1 :

$$\begin{aligned}
 \bar{\phi}''^2 &= \alpha(1-\alpha)[\phi_2 - \phi_1]^2 \\
 \left(\frac{1-\alpha}{\alpha}\right)\bar{\phi}''^2 &= (1-\alpha)^2[\phi_2 - \phi_1]^2 \\
 (1-\alpha)[\phi_2 - \phi_1] &= \sqrt{\frac{1-\alpha}{\alpha}\bar{\phi}''^2} \\
 (1-\alpha)\phi_2 &= (1-\alpha)\phi_1 + \sqrt{\frac{1-\alpha}{\alpha}\bar{\phi}''^2} \\
 \alpha\phi_1 + (1-\alpha)\phi_1 &= \alpha\phi_1 + (1-\alpha)\phi_2 - \sqrt{\frac{1-\alpha}{\alpha}\bar{\phi}''^2} \\
 \phi_1 &= \bar{\phi} - \sqrt{\frac{1-\alpha}{\alpha}\bar{\phi}''^2} \tag{A.6}
 \end{aligned}$$

Ces expressions ne trouvent évidemment d'utilité que si le coefficient de pondération α est déterminé. C'est là où intervient l'hypothèse d'une distribution de Curl.

Issue du génie chimique, l'hypothèse de Curl porte sur les amplitudes H_1 et H_2 des distributions de Dirac représentant les 2 états d'un même milieu. Etant à l'origine 2 phases liquides qui interagissent par émulsification, l'amplitude de chaque pic représente la masse de chaque phase et n'évolue pas. En supposant que les échanges à l'interface sont limitants (mélange rapide au sein de chaque état), le flux de masse est symétrique. Le flux net est donc négligeable (soluté) et l'amplitude des 2 états est alors donné par : $H_1 = \bar{H}$ et $H_2 = 1 - H_1 = 1 - \bar{H}$.

Cette hypothèse est tout à fait satisfaisante dans le contexte de l'extraction liquide-liquide où elle a été élaborée. Toutefois, on peut douter de son sens physique pour la description des mélanges gazeux où nous tentons de l'appliquer. Cette distribution permet en effet l'existence d'états proches ayant des amplitudes très différentes lors de la convergence des états vers la moyenne $\bar{\phi}$ pour les faibles variances $\bar{\phi}''^2$. Par exemple, si on a $\bar{\phi} = \bar{z}$ avec une moyenne stoechiométrique $\bar{z} = z_{st}$ ($z_{st} = 0,0578$ pour la combustion aérobie du gaz naturel) et une faible variance ($\bar{\phi}''^2 \rightarrow 0$), on a $H_1 = \bar{z} = 0,0578$ et on constate alors que $H_2 = 1 - \bar{z} = 0,9422$.

On cherche alors une nouvelle relation permettant de contraindre l'évolution du coefficient α lors du processus de mélange. Pour les faibles variances, les amplitudes α et $1 - \alpha$ doivent converger l'une et l'autre vers $1/2$ pour s'accorder avec la convergence des états ϕ_1 et ϕ_2 vers la moyenne.

Prescrire une amplitude α variant des équations de Curl à forte variance vers $1/2$ à faible variance n'est pas toujours réalisable. On pourrait proposer une évolution linéaire entre les 2 cas de ségrégations extrêmes, par exemple :

$$\alpha = \frac{1}{2} + \left(\bar{\phi} - \frac{1}{2} \right) \frac{\bar{\phi}''^2}{\bar{\phi}(1 - \bar{\phi})} \quad (\text{A.7})$$

On choisit de représenter un moment supplémentaire pour la distribution. Dès lors, l'expression du troisième moment $\bar{\phi}''^3$ conduit à une équation du second degré pour α . Quelle que soit la forme de $\bar{P}(\phi)$, sa définition donne : $\bar{\phi}''^3 = \bar{\phi}^3 - 3\bar{\phi}\bar{\phi}''^2 - \bar{\phi}^3$.

Ainsi, pour notre pdf $\bar{P}(\phi)$, on obtient une relation pour $\bar{\phi}^3$. Epaulée des expressions de ϕ_1 et ϕ_2 , on détermine l'équation du second degré pour α :

$$\begin{aligned} \bar{\phi}^3 &= \alpha\phi_1^3 + (1 - \alpha)\phi_2^3 = \bar{\phi}''^3 + 3\bar{\phi}\bar{\phi}''^2 + \bar{\phi}^3 \\ &= \alpha \left(\bar{\phi} - \sqrt{\frac{1 - \alpha}{\alpha}} \bar{\phi}''^2 \right)^3 + (1 - \alpha) \left(\bar{\phi} + \sqrt{\frac{\alpha}{1 - \alpha}} \bar{\phi}''^2 \right)^3 \\ &= \alpha \left[\bar{\phi}^3 - 3\bar{\phi}^2 \sqrt{\frac{1 - \alpha}{\alpha}} \bar{\phi}''^2 + 3\bar{\phi} \left(\frac{1 - \alpha}{\alpha} \bar{\phi}''^2 \right) - \left(\frac{1 - \alpha}{\alpha} \bar{\phi}''^2 \right)^{3/2} \right] + \\ &\quad (1 - \alpha) \left[\bar{\phi}^3 + 3\bar{\phi}^2 \sqrt{\frac{\alpha}{1 - \alpha}} \bar{\phi}''^2 + 3\bar{\phi} \left(\frac{\alpha}{1 - \alpha} \bar{\phi}''^2 \right) + \left(\frac{\alpha}{1 - \alpha} \bar{\phi}''^2 \right)^{3/2} \right] \\ &= \bar{\phi}^3 + 3\bar{\phi}^2 \left[\sqrt{\alpha(1 - \alpha)} \bar{\phi}''^2 - \sqrt{\alpha(1 - \alpha)} \bar{\phi}''^2 \right] + 3\bar{\phi}\bar{\phi}''^2 + \\ &\quad \bar{\phi}''^2^{3/2} \left[\frac{\alpha^{3/2}}{(1 - \alpha)^{1/2}} - \frac{(1 - \alpha)^{3/2}}{\alpha^{1/2}} \right] \end{aligned}$$

En reprenant l'égalité de la première ligne avec l'expression de $\widetilde{\phi}^3$ pour notre pdf $\widetilde{P}(\phi)$, on simplifie les 2 membres :

$$\begin{aligned}\widetilde{\phi}''^3 + 3\widetilde{\phi}\widetilde{\phi}''^2 + \widetilde{\phi}^3 &= \widetilde{\phi}^3 + 3\widetilde{\phi}^2 \left[\sqrt{\alpha(1-\alpha)}\widetilde{\phi}''^2 - \sqrt{\alpha(1-\alpha)}\widetilde{\phi}''^2 \right] + 3\widetilde{\phi}\widetilde{\phi}''^2 \\ &\quad + \widetilde{\phi}''^2{}^{3/2} \left[\frac{\alpha^{3/2}}{(1-\alpha)^{1/2}} - \frac{(1-\alpha)^{3/2}}{\alpha^{1/2}} \right] \\ \widetilde{\phi}''^3 &= \widetilde{\phi}''^2{}^{3/2} \left[\frac{\alpha^{3/2}}{(1-\alpha)^{1/2}} - \frac{(1-\alpha)^{3/2}}{\alpha^{1/2}} \right]\end{aligned}$$

En factorisant ensuite le membre de droite par $\sqrt{\alpha(1-\alpha)}$, on trouve :

$$\begin{aligned}\frac{\widetilde{\phi}''^3}{\widetilde{\phi}''^2{}^{3/2}} &= \sqrt{\alpha(1-\alpha)} \left(\frac{\alpha}{1-\alpha} - \frac{1-\alpha}{\alpha} \right) \\ \frac{\widetilde{\phi}''^3}{\widetilde{\phi}''^2{}^{3/2}} &= \sqrt{\alpha(1-\alpha)} \left(\frac{\alpha^2 - (1-\alpha)^2}{\alpha(1-\alpha)} \right) \\ \frac{\widetilde{\phi}''^3}{\widetilde{\phi}''^2{}^{3/2}} &= \frac{2\alpha - 1}{\sqrt{\alpha(1-\alpha)}} \\ \alpha(1-\alpha) \frac{\widetilde{\phi}''^3{}^2}{\widetilde{\phi}''^2{}^3} &= (2\alpha - 1)^2 \\ (\alpha - \alpha^2) \frac{\widetilde{\phi}''^3{}^2}{\widetilde{\phi}''^2{}^3} &= 4\alpha^2 - 4\alpha + 1 \\ 0 &= \left(4 + \frac{\widetilde{\phi}''^3{}^2}{\widetilde{\phi}''^2{}^3} \right) \alpha^2 - \left(4 + \frac{\widetilde{\phi}''^3{}^2}{\widetilde{\phi}''^2{}^3} \right) \alpha + 1\end{aligned}$$

On obtient au final l'équation du second degré pour α :

$$\left(4 + \frac{\widetilde{\phi}''^3{}^2}{\widetilde{\phi}''^2{}^3} \right) \alpha^2 - \left(4 + \frac{\widetilde{\phi}''^3{}^2}{\widetilde{\phi}''^2{}^3} \right) \alpha + 1 = 0 \quad (\text{A.8})$$

Pour exprimer le discriminant Δ et les racines $\alpha_{1,2}$ de cette équation, nous l'écrivons :

$$C\alpha^2 - C\alpha + 1 = 0 \quad \text{avec} \quad C = \left(4 + \frac{\widetilde{\phi}''^3{}^2}{\widetilde{\phi}''^2{}^3} \right) \quad (\text{A.9})$$

Dès lors, le discriminant est toujours positif et vaut : $\Delta = C^2 - 4C = C(C - 4)$.

Les racines $\alpha_{1,2}$ deviennent donc :

$$\begin{aligned}
 \alpha_{1,2} &= \frac{C \pm \sqrt{C(C-4)}}{2C} = \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\frac{C-4}{C}} \\
 &= \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\overline{\phi''^3}^2 / \overline{\phi''^2}^3}{(4\overline{\phi''^2}^3 + \overline{\phi''^3}^2) / \overline{\phi''^2}^3}} \\
 &= \frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\overline{\phi''^3}^2}{4\overline{\phi''^2}^3 + \overline{\phi''^3}^2}} \tag{A.10}
 \end{aligned}$$

La valeur de α est donnée par la racine positive qui est fonction de la valeur moyenne $\overline{\phi}$.

Pour contraindre l'évolution de α à respecter les phénomènes de mélange gazeux, l'idée est d'obliger la *pdf* $\overline{P}(\phi)$ à disposer des mêmes premiers moments (jusqu'au 3^{ième}) qu'une fonction β , connue pour bien représenter les effets de mélange.

Le moment centré d'ordre 3, noté $\overline{\phi''^3}$ est également donné par : $\overline{\phi''^3} = \overline{\phi}^3 - 3\overline{\phi}\overline{\phi}^2 + 2\overline{\phi}^3$. Pour notre *pdf* $\overline{P}(\phi)$, cette expression devient :

$$\begin{aligned}
 \overline{\phi''^3} &= (\alpha\phi_1^3 + (1-\alpha)\phi_2^3) - 3[(\alpha\phi_1 + (1-\alpha)\phi_2)(\alpha\phi_1^2 + (1-\alpha)\phi_2^2)] \\
 &\quad + 2(\alpha\phi_1 + (1-\alpha)\phi_2)^3 \\
 &= \alpha\phi_1^3 + (1-\alpha)\phi_2^3 - 3[\alpha^2\phi_1^3 + \alpha(1-\alpha)(\phi_1^2\phi_2 + \phi_1\phi_2^2) + (1-\alpha)^2\phi_2^3] \\
 &\quad + 2[\alpha^3\phi_1^3 + 3\alpha(1-\alpha)(\alpha\phi_1^2\phi_2 + (1-\alpha)\phi_1\phi_2^2) + (1-\alpha)^3\phi_2^3] \\
 &= \phi_1^3(\alpha - 3\alpha^2 + 2\alpha^3) + \phi_1^2\phi_2[-3\alpha(1-\alpha) + 6\alpha^2(1-\alpha)] \\
 &\quad + \phi_1\phi_2^2[-3\alpha(1-\alpha) + 6\alpha(1-\alpha)^2] + \phi_2^3[(1-\alpha) - 3(1-\alpha)^2 + 2(1-\alpha)^3] \\
 &= -\phi_1^3[\alpha(1-\alpha)(2\alpha-1)] + 3\phi_1^2\phi_2[\alpha(1-\alpha)(2\alpha-1)] \\
 &\quad - 3\phi_1\phi_2^2[\alpha(1-\alpha)(1-2(1-\alpha))] + \phi_2^3[(1-\alpha)(1-3(1-\alpha)+2(1-\alpha)^2)] \\
 &= -\phi_1^3[\alpha(1-\alpha)(2\alpha-1)] + 3\phi_1^2\phi_2[\alpha(1-\alpha)(2\alpha-1)] \\
 &\quad - 3\phi_1\phi_2^2[\alpha(1-\alpha)(2\alpha-1)] + \phi_2^3[(1-\alpha)(1-3+3\alpha+2-4\alpha+2\alpha^2)] \\
 &= -\phi_1^3[\alpha(1-\alpha)(2\alpha-1)] + 3\phi_1^2\phi_2[\alpha(1-\alpha)(2\alpha-1)] \\
 &\quad - 3\phi_1\phi_2^2[\alpha(1-\alpha)(2\alpha-1)] + \phi_2^3[\alpha(1-\alpha)(2\alpha-1)] \\
 &= \alpha(1-\alpha)(2\alpha-1)(\phi_2 - \phi_1)^3 \tag{A.11}
 \end{aligned}$$

Pour définir α , racine de l'équation du second degré, nous remplaçons cette expression de $\overline{\phi''^3}$ dépendant de α par l'expression du même moment pour une *pdf* β qui s'exprime en fonction de ses moments d'ordre inférieur.

La fonction β , dont les propriétés sont définies en détails dans l'Annexe D, est valable pour des variables comprises en 0 et 1.

Ainsi, pour l'utiliser dans le cadre de notre variable $\phi \in [\phi_{min}, \phi_{max}]$, nous l'écrivons :

$$\beta(\phi, a, b) = \left(\frac{\phi - \phi_{min}}{\phi_{max} - \phi_{min}} \right)^{a-1} \left(\frac{\phi_{max} - \phi}{\phi_{max} - \phi_{min}} \right)^{b-1} \quad (\text{A.12})$$

Pour devenir une véritable *pdf*, la fonction β doit être normalisée. Ainsi, nous définissons la variable normalisée Φ par :

$$\Phi = \left(\frac{\phi - \phi_{min}}{\phi_{max} - \phi_{min}} \right) \quad (\text{A.13})$$

Ainsi, on obtient :

$$\begin{aligned} \beta(\phi, a, b) &= \Phi^{a-1} \left(\frac{\phi_{max} - \phi_{min} + \phi_{min} - \phi}{\phi_{max} - \phi_{min}} \right)^{b-1} \\ &= \Phi^{a-1} (1 - \Phi)^{b-1} = \beta'(\Phi, a, b) \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

La norme $\mathcal{B}'(a, b)$ de $\beta'(\Phi, a, b)$ est alors donnée par :

$$\mathcal{B}'(a, b) = \int_0^1 \beta'(\Phi, a, b) d\Phi \quad (\text{A.15})$$

La *pdf* associée à la fonction β s'exprime par :

$$\widetilde{P}_\beta(\Phi) = \frac{\beta'(\Phi, a, b)}{\mathcal{B}'(a, b)} \quad (\text{A.16})$$

Comme on le montre dans l'Annexe D, les paramètres a et b sont alors fonction des premiers moments de Φ qui s'expriment aisément en fonction de ceux de ϕ par linéarité de l'opérateur de moyenne :

$$\begin{aligned} \widetilde{\Phi} &= \frac{\widetilde{\phi} - \phi_{min}}{\phi_{max} - \phi_{min}} \quad (\text{A.17}) \\ \widetilde{\Phi''^2} &= \widetilde{\Phi^2} - \widetilde{\Phi}^2 = \frac{\widetilde{\phi^2} - 2\widetilde{\phi}\phi_{min} + \phi_{min}^2}{(\phi_{max} - \phi_{min})^2} - \left(\frac{\widetilde{\phi} - \phi_{min}}{\phi_{max} - \phi_{min}} \right)^2 \\ &= \frac{\widetilde{\phi^2} - 2\widetilde{\phi}\phi_{min} + \phi_{min}^2 - \widetilde{\phi}^2 + 2\widetilde{\phi}\phi_{min} - \phi_{min}^2}{(\phi_{max} - \phi_{min})^2} = \frac{\widetilde{\phi^2} - \widetilde{\phi}^2}{(\phi_{max} - \phi_{min})^2} \\ &= \frac{\widetilde{\phi''^2}}{(\phi_{max} - \phi_{min})^2} \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

On remarque alors que les moments centrés d'une variable ϕ quelconque sont reliés aux moments centrés de sa variable normalisée associée Φ et ceci quel que soit l'ordre des moments. On a en effet :

$$\widetilde{\Phi''^n} = \frac{\widetilde{z''^n}}{(\phi_{max} - \phi_{min})^n} \quad (\text{A.19})$$

On utilise alors la *propriété de récurrence des fonctions bêta* largement détaillée dans l'Annexe D. Cette propriété s'écrit dans notre cas :

$$\mathcal{B}'(a+1, b) = \frac{a}{a+b} \mathcal{B}'(a, b) \quad (\text{A.20})$$

Elle permet d'établir (voir Annexe D), les relations suivantes :

$$\widetilde{\Phi} = \frac{a}{a+b} \quad (\text{A.21})$$

$$\widetilde{\Phi}^2 = \frac{a+1}{a+b+1} \widetilde{\Phi} \quad (\text{A.22})$$

$$\widetilde{\Phi}^3 = \frac{a+2}{a+b+2} \widetilde{\Phi}^2 \quad (\text{A.23})$$

Pour $\widetilde{P}_\beta(\Phi)$, le troisième moment est encore donné par : $\widetilde{\Phi}''^3 = \widetilde{\Phi}^3 - 3\widetilde{\Phi}\widetilde{\Phi}''^2 - \widetilde{\Phi}^3$. En utilisant la relation de récurrence, on écrit :

$$\widetilde{\Phi}''^3 = \frac{a+2}{a+b+2} \widetilde{\Phi}^2 - 3\widetilde{\Phi}\widetilde{\Phi}''^2 - \widetilde{\Phi}^3 \quad (\text{A.24})$$

Les paramètres a et b de la fonction β s'expriment en fonction de la ségrégation S donnée par le rapport de la variance sur sa valeur maximale. Ainsi, pour la variable normalisée Φ ou pour la variable $\phi \in [\phi_{\min}, \phi_{\max}]$, cela donne :

$$\begin{aligned} S_\Phi &= \frac{\widetilde{\Phi}''^2}{\widetilde{\Phi}(1-\widetilde{\Phi})} = \frac{\widetilde{\phi}''^2}{(\phi_{\max} - \phi_{\min})^2} \left(\frac{\widetilde{\phi} - \phi_{\min}}{\phi_{\max} - \phi_{\min}} \right)^{-1} \left(\frac{\phi_{\max} - \phi_{\min} - \widetilde{\phi} + \phi_{\min}}{\phi_{\max} - \phi_{\min}} \right)^{-1} \\ &= \frac{\widetilde{\phi}''^2}{(\phi_{\max} - \phi_{\min})^2} \frac{(\phi_{\max} - \phi_{\min})^2}{(\phi_{\max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{\min})} = \frac{\widetilde{\phi}''^2}{(\phi_{\max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{\min})} = S_\phi \quad (\text{A.25}) \end{aligned}$$

Les ségrégations S_Φ et S_ϕ étant égales, nous conservons la notation S et nous obtenons ainsi pour la fonction $\beta(\Phi, a, b)$:

$$\begin{aligned} a+2 &= \widetilde{\Phi} \left(\frac{1}{S} - 1 \right) + 2 = \frac{\widetilde{\Phi}(1-S) + 2S}{S} \\ a+b+2 &= \widetilde{\Phi} \left(\frac{1}{S} - 1 \right) + (1-\widetilde{\Phi}) \left(\frac{1}{S} - 1 \right) + 2 = \left(\frac{1}{S} - 1 \right) + 2 = \frac{1+S}{S} \\ \frac{a+2}{a+b+2} &= \frac{\widetilde{\Phi}(1-S) + 2S}{1+S} \quad (\text{A.26}) \end{aligned}$$

L'expression du troisième moment $\widetilde{\Phi}''^3$ devient donc :

$$\begin{aligned}
\widetilde{\Phi}''^3 &= \frac{\widetilde{\Phi}(1-S) + 2S}{1+S} \widetilde{\Phi}^2 - 3\widetilde{\Phi}\widetilde{\Phi}''^2 - \widetilde{\Phi}^3 \\
&= \frac{1}{1+S} \left[(\widetilde{\Phi}(1-S) + 2S) (\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}^2) - 3(1+S)\widetilde{\Phi}\widetilde{\Phi}''^2 - (1+S)\widetilde{\Phi}^3 \right] \\
&= \frac{1}{1+S} \left[\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} - S\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} + 2S\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}^3 - S\widetilde{\Phi}^3 + 2S\widetilde{\Phi}^2 \right] \\
&\quad + \frac{1}{1+S} \left[-3\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} - 3S\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} - \widetilde{\Phi}^3 - S\widetilde{\Phi}^3 \right] \\
&= \frac{1}{1+S} \left[-2\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} - 4S\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} + 2S\widetilde{\Phi}''^2 - 2S\widetilde{\Phi}^3 + 2S\widetilde{\Phi}^2 \right] \\
&= \frac{2}{1+S} \left[-\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} - 2S\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} + S\widetilde{\Phi}''^2 - S\widetilde{\Phi}^3 + S\widetilde{\Phi}^2 \right] \\
&= \frac{2}{1+S} \left[S \left(\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}^2 - 2\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} - \widetilde{\Phi}^3 \right) - \widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} \right] \tag{A.27}
\end{aligned}$$

En continuant le développement pour la variable Φ , on a :

$$\begin{aligned}
\widetilde{\Phi}''^3 &= \frac{2}{1+S} \left[S \left(\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}^2 - 2\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} - \widetilde{\Phi}^3 \right) - \widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} \right] \\
&= \frac{2\widetilde{\Phi}(1-\widetilde{\Phi})}{\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}(1-\widetilde{\Phi})} \left[\frac{\widetilde{\Phi}''^2}{\widetilde{\Phi}(1-\widetilde{\Phi})} \left(\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}^2 - 2\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} - \widetilde{\Phi}^3 \right) - \widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} \right] \\
&= \frac{2\widetilde{\Phi}''^2}{\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}(1-\widetilde{\Phi})} \left[\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}^2 - 2\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} - \widetilde{\Phi}^3 - \widetilde{\Phi}^2(1-\widetilde{\Phi}) \right] \\
&= \frac{2\widetilde{\Phi}''^2}{\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}(1-\widetilde{\Phi})} \left[\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}^2 - 2\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} - \widetilde{\Phi}^3 - \widetilde{\Phi}^2 + \widetilde{\Phi}^3 \right] \\
&= \frac{2\widetilde{\Phi}''^2}{\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}(1-\widetilde{\Phi})} \left[\widetilde{\Phi}''^2(1-2\widetilde{\Phi}) + \widetilde{\Phi}^2 - \widetilde{\Phi}^2 - \widetilde{\Phi}^3 + \widetilde{\Phi}^3 \right] \\
&= \frac{2\widetilde{\Phi}''^2(1-2\widetilde{\Phi})}{\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}(1-\widetilde{\Phi})} \tag{A.28}
\end{aligned}$$

Enfin, nous voulons exprimer ce moment centré d'ordre 3 pour la variable ϕ afin de l'injecter dans l'expression de α qui disposera alors d'une évolution représentant mieux la physique des mélanges gazeux. On écrit :

$$\widetilde{\Phi}''^3 = \frac{2}{1+S} \left[S \left(\widetilde{\Phi}''^2 + \widetilde{\Phi}^2 - 2\widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} - \widetilde{\Phi}^3 \right) - \widetilde{\Phi}''^2\widetilde{\Phi} \right] \tag{A.29}$$

On obtient ensuite :

$$\begin{aligned} \frac{\widetilde{\phi}''^3}{(\phi_{max} - \phi_{min})^3} &= \frac{2}{1+S} \left[S \left(\frac{\widetilde{\phi}''^2}{(\phi_{max} - \phi_{min})^2} + \frac{(\widetilde{\phi} - \phi_{min})^2}{(\phi_{max} - \phi_{min})^2} \right) \right] \\ &\quad - \frac{2}{1+S} \left[S \left(2 \frac{\widetilde{\phi}''^2}{(\phi_{max} - \phi_{min})^2} \frac{\widetilde{\phi} - \phi_{min}}{\phi_{max} - \phi_{min}} + \frac{(\widetilde{\phi} - \phi_{min})^3}{(\phi_{max} - \phi_{min})^3} \right) \right] \\ &\quad - \frac{2}{1+S} \left[\frac{\widetilde{\phi}''^2}{(\phi_{max} - \phi_{min})^2} \frac{\widetilde{\phi} - \phi_{min}}{\phi_{max} - \phi_{min}} \right] \end{aligned}$$

La simplification par $(\phi_{max} - \phi_{min})^3$ induit :

$$\begin{aligned} \widetilde{\phi}''^3 &= \frac{2}{1+S} \left[S (\phi_{max} - \phi_{min}) (\widetilde{\phi}''^2 + (\widetilde{\phi} - \phi_{min})^2) \right] \\ &\quad - \frac{2}{1+S} \left[S \left(2 \widetilde{\phi}''^2 (\widetilde{\phi} - \phi_{min}) + (\widetilde{\phi} - \phi_{min})^3 \right) + \widetilde{\phi}''^2 (\widetilde{\phi} - \phi_{min}) \right] \\ &= \frac{2}{1+S} \left[\widetilde{\phi}''^2 (S [\phi_{max} - \phi_{min} - 2(\widetilde{\phi} - \phi_{min})] - \widetilde{\phi} + \phi_{min}) \right] \\ &\quad + \frac{2}{1+S} \left[S (\widetilde{\phi} - \phi_{min})^2 (\phi_{max} - \phi_{min} - \widetilde{\phi} + \phi_{min}) \right] \end{aligned}$$

Par élimination, il vient ensuite :

$$\widetilde{\phi}''^3 = \frac{2}{1+S} \left[\widetilde{\phi}''^2 (S [\phi_{max} + \phi_{min} - 2\widetilde{\phi}] - \widetilde{\phi} + \phi_{min}) + S (\widetilde{\phi} - \phi_{min})^2 (\phi_{max} - \widetilde{\phi}) \right]$$

En introduisant l'expression de S pour la variable ϕ , on trouve :

$$\begin{aligned} \widetilde{\phi}''^3 &= \frac{2(\phi_{max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{min})}{(\phi_{max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{min}) + \widetilde{\phi}''^2} \left[\widetilde{\phi}''^2 \left(\frac{\widetilde{\phi}''^2}{(\phi_{max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{min})} [\phi_{max} + \phi_{min} - 2\widetilde{\phi}] - \widetilde{\phi} + \phi_{min} \right) \right] \\ &\quad + \frac{2(\phi_{max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{min})}{(\phi_{max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{min}) + \widetilde{\phi}''^2} \left[\frac{\widetilde{\phi}''^2}{(\phi_{max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{min})} (\widetilde{\phi} - \phi_{min})^2 (\phi_{max} - \widetilde{\phi}) \right] \end{aligned}$$

En simplifiant numérateur et dénominateur puis en factorisant par $\widetilde{\phi}''^2$, on obtient :

$$\begin{aligned} \widetilde{\phi}''^3 &= \frac{2\widetilde{\phi}''^2}{(\phi_{max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{min}) + \widetilde{\phi}''^2} \left[\widetilde{\phi}''^2 [\phi_{max} + \phi_{min} - 2\widetilde{\phi}] - (\phi_{max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{min})^2 \right] \\ &\quad + \frac{2\widetilde{\phi}''^2}{(\phi_{max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{min}) + \widetilde{\phi}''^2} (\widetilde{\phi} - \phi_{min})^2 (\phi_{max} - \widetilde{\phi}) \\ &= \frac{2\widetilde{\phi}''^2}{(\phi_{max} - \widetilde{\phi})(\widetilde{\phi} - \phi_{min}) + \widetilde{\phi}''^2} \left(\widetilde{\phi}''^2 [\phi_{max} + \phi_{min} - 2\widetilde{\phi} + 0] \right) \end{aligned} \tag{A.30}$$

On obtient finalement l'expression de $\overline{\phi''^3}$ par :

$$\overline{\phi''^3} = \frac{2\overline{\phi''^2}^2 (\phi_{max} + \phi_{min} - 2\overline{\phi})}{(\phi_{max} - \overline{\phi})(\overline{\phi} - \phi_{min}) + \overline{\phi''^2}} \quad (\text{A.31})$$

En utilisant cette formule dans l'expression de α , on obtient une évolution cohérente avec la physique des mélanges gazeux puisque α et $1 - \alpha$ convergent l'un et l'autre vers 1/2 quand la variance $\overline{\phi''^2}$ décroît et que ϕ_1 et ϕ_2 se rapproche de la moyenne $\overline{\phi}$.

Annexe B

DTS des réacteurs chimiques

Lorsque 2 filets de fluide véhiculant des débits Q_1 et Q_2 se mélangent, ils donnent naissance à un filet de fluide véhiculant le débit $Q_1 + Q_2$. Le processus de mélange à l'intérieur d'un réacteur chimique est un processus linéaire. Par conséquent, la fraction massique $Y_k^s(t)$ d'une espèce non-réactive χ_k (traceur fluide) en sortie du réacteur peut être interprétée comme la réponse d'un *système linéaire* à une injection $Y_k^e(t)$ de forme quelconque en entrée. En supposant que les signaux d'entrée, $Y_k^e(t)$, et de sortie, $Y_k^s(t)$, sont normés, on écrit :

$$\int_0^{\infty} Y_k^e(t) dt = \int_0^{\infty} Y_k^s(t) dt = 1 \quad (\text{B.1})$$

Pour un signal d'entrée $Y_k^e(t)$ de forme quelconque, le signal de sortie $Y_k^s(t)$ est donné par le *produit de convolution* de $Y_k^e(t)$ et de la fonction de transfert du système linéaire qui n'est autre que la DTS du réacteur notée $E(t)$. On obtient :

$$Y_k^s(t) = \int_0^{\infty} Y_k^e(t^*) E(t - t^*) dt^* = Y_k^e(t) * E(t) \quad (\text{B.2})$$

Comme $Y_k^e(t) = \delta(t)$ est l'élément neutre du produit de convolution, la DTS du réacteur est égale à la réponse impulsionnelle du système linéaire associé :

$$Y_k^s(t) = Y_k^e(t) * E(t) = \delta(t) * E(t) = E(t) \quad (\text{B.3})$$

Le PFR (Plug Flow Reactor), réacteur idéal 1D, transporte toutes les particules de son entrée à la même vitesse vers sa sortie. Ainsi, la DTS est un simple retard pur dont le décalage temporel est le temps de séjour moyen τ . On a donc :

$$E(t) = \delta(t - \tau) \quad (\text{B.4})$$

Le PSR (Perfectly Stirred Reactor), réacteur idéal 0D, mélange et disperse de manière parfaitement homogène les particules de son entrée sur l'ensemble de son volume. Pour exprimer sa DTS, il faut utiliser la *méthode des traceurs*.

La méthode des traceurs consiste à "marquer" les particules en entrée du réacteur et à suivre leur histoire jusqu'à la sortie. En les dénombrant dans le courant de sortie en fonction du temps, on obtient la DTS du réacteur. Cette méthode expérimentale peut être reliée au calcul théorique si on explique qu'imposer un pic de Dirac $\delta(t)$ en entrée du réacteur pour la fraction massique Y_k^e du traceur non-réactif χ_k a pour effet de remplir instantanément le réacteur avec une masse $m = \rho V$ où ρ est la masse volumique du fluide et V , le volume du réacteur.

Transportée par le débit masse (stationnaire) \dot{m} que supporte le PSR, la quantité de traceur (en masse) qui est sortie du réacteur entre $t = 0$ et l'instant t est celle dont le temps de séjour est inférieur à t , soit :

$$\int_0^t \dot{m} Y_k(t^*) dt^* = \rho V \int_0^t E(t^*) dt^* \quad (\text{B.5})$$

On obtient ainsi une expression de la DTS en fonction de $Y_k(t)$:

$$E(t) = \frac{\dot{m} Y_k(t)}{\rho V} = \frac{1}{\tau} Y_k(t) \quad \text{avec} \quad \tau = \frac{\rho V}{\dot{m}} \quad (\text{B.6})$$

L'évolution de $Y_k(t)$ est donnée par l'équation de transport instationnaire du PSR pour la fraction massique Y_k d'une espèce χ_k . On a :

$$\rho V \frac{dY_k(t)}{dt} = \dot{m} (Y_k^e(t) - Y_k(t)) + V M_k \dot{\omega}_k(t) \quad (\text{B.7})$$

Puisque le signal d'entrée est un pic de Dirac centré sur $t = 0$, on a : $Y_k^e(t) = 0, \forall t > 0$. Le traceur fluide étant un inerte, on a aussi : $\dot{\omega}_k(t) = 0, \forall t \geq 0$. L'équation devient donc :

$$\rho V \frac{dY_k(t)}{dt} + \dot{m} Y_k(t) = 0 \quad (\text{B.8})$$

C'est l'équation d'un système linéaire du premier ordre dont l'intégration donne :

$$\begin{aligned} \frac{dY_k(t)}{dt} &= -\frac{1}{\tau} Y_k(t) \\ d \ln[Y_k(t)] &= -\frac{1}{\tau} dt \\ Y_k(t) &= e^{-t/\tau} \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

Comme $E(t) = Y_k(t)/\tau$, on obtient finalement l'expression de la DTS dans un PSR :

$$E(t) = \frac{e^{-t/\tau}}{\tau} \quad (\text{B.10})$$

Maintenant, nous cherchons à déterminer la DTS d'un système de N PSR en série grâce aux *transformées de Laplace*. Nous noterons donc $\mathcal{Y}_k^e(p)$, $\mathcal{Y}_k^s(p)$ et $\mathcal{E}(p)$ les transformées de Laplace respectivement associées aux signaux d'entrée $Y_k^e(t)$, de sortie $Y_k^s(t)$ et à la fonction de transfert du réacteur $E(t)$. Elles sont définies par :

$$\mathcal{Y}_k^e(p) = \int_0^{\infty} e^{-pt} Y_k^e(t) dt \quad (\text{B.11})$$

$$\mathcal{Y}_k^s(p) = \int_0^{\infty} e^{-pt} Y_k^s(t) dt \quad (\text{B.12})$$

$$\mathcal{E}(p) = \int_0^{\infty} e^{-pt} E(t) dt \quad (\text{B.13})$$

En appliquant cette transformation de Laplace au produit de convolution $Y_k^e(t) * E(t)$, on trouve la relation suivante :

$$\mathcal{Y}_k^s(p) = \mathcal{Y}_k^e(p) \cdot \mathcal{E}(p) \quad (\text{B.14})$$

On écrit alors l'équation d'évolution transitoire pour la fraction massique $Y_k^{(j)}$ du traceur χ_k contenu dans le réacteur j de la série de N PSR :

$$(\rho V)^{(j)} \frac{dY_k^{(j)}(t)}{dt} = \dot{m}^{(j)} (Y_k^{(j-1)}(t) - Y_k^{(j)}(t)) \quad (\text{B.15})$$

Grâce aux propriétés (linéarité, dérivation) des transformées de Laplace, on a :

$$p \mathcal{Y}_k^{(j)}(p) = \dot{m}^{(j)} (\mathcal{Y}_k^{(j-1)}(p) - \mathcal{Y}_k^{(j)}(p)) \quad (\text{B.16})$$

On constate alors que le même débit massique \dot{m} traverse les N PSR en série : $\dot{m}^{(j)} = \dot{m}$, $\forall j \in \{1, N\}$. On suppose alors que tous les réacteurs ont la même masse $m^{(j)} = (\rho V)^{(j)}$. La masse totale m du système est alors uniformément répartie sur chaque réacteur dont la masse est m/N . De même, le temps de séjour moyen total τ est égal à la somme des $(\rho V)^{(j)}$. On a donc : $\tau = \rho V / \dot{m} = m / \dot{m} = Nm^{(j)} / \dot{m} = N\tau^{(j)}$.

L'équation d'évolution dans le PSR j devient donc :

$$p \mathcal{Y}_k^{(j)}(p) = \frac{N}{\tau} (\mathcal{Y}_k^{(j-1)}(p) - \mathcal{Y}_k^{(j)}(p)) \quad (\text{B.17})$$

On écrit la fonction de transfert $\mathcal{E}^{(j)}(p)$ de chaque réacteur j par :

$$\mathcal{E}^{(j)}(p) = \frac{\mathcal{Y}_k^{(j)}(p)}{\mathcal{Y}_k^{(j-1)}(p)} = \frac{N/\tau}{p + N/\tau} = \frac{1}{1 + p\tau/N} \quad (\text{B.18})$$

De proche en proche, on trouve cette fonction de transfert $\mathcal{E}^{(j)}(p)$. A chaque étape j , on utilise la propriété des transformées de Laplace sur le produit de convolution. Cette récurrence sur les N PSR induit :

$$\mathcal{Y}_k^N(p) = \prod_{j=1}^N \frac{\mathcal{Y}_k^{(j)}(p)}{\mathcal{Y}_k^{(j-1)}(p)} \mathcal{Y}_k^0(p) = \prod_{j=1}^N \mathcal{E}^{(j)}(p) \mathcal{Y}_k^0(p) = \prod_{j=1}^N \frac{1}{1 + p\tau/N} \mathcal{Y}_k^0(p) \quad (\text{B.19})$$

Comme l'entrée du système de N PSR en série est $\mathcal{Y}_k^0(p)$, et que sa sortie est $\mathcal{Y}_k^N(p)$, la fonction de transfert du système en série est :

$$\mathcal{E}(p) = \frac{\mathcal{Y}_k^N(p)}{\mathcal{Y}_k^0(p)} = \frac{1}{(1 + p\tau/N)^N} = \frac{1}{\tau^N/N^N (p + N/\tau)^N} = \frac{N^N}{\tau^N} \frac{1}{(p + N/\tau)^N} \quad (\text{B.20})$$

Sous cette dernière forme, on trouve aisément l'équivalent temporel $E(t)$ de $\mathcal{E}(p)$ dans les tables usuelles de transformées de Laplace inverses :

$$E(t) = \left(\frac{N}{\tau}\right)^N \frac{t^{N-1} e^{-Nt/\tau}}{(N-1)!} \quad (\text{B.21})$$

Annexe C

Evolution de T dans un PSR

En considérant un écoulement stationnaire en entrée d'un PSR (le débit masse \dot{m} est constant), l'évolution des grandeurs physiques (T, ρ, Y_k) est déduite des équations de conservation de la masse (fraction massique Y_k des espèces) et de l'énergie (enthalpie massique totale H en $J.kg^{-1}$) que nous écrivons (Kee et al., 1989) :

$$\rho V \frac{dY_k}{dt} = \dot{m} (Y_k^e - Y_k) + V M_k \dot{\omega}_k \quad (C.1)$$

$$\rho V \frac{dH}{dt} = \dot{m} (H_e - H) - P_{th} \quad (C.2)$$

Dans les équations ci-dessus, M_k est la masse molaire de l'espèce χ_k , P_{th} représente les pertes thermiques aux parois et h_k , l'enthalpie massique (en $J.kg^{-1}$) de l'espèce χ_k .

Pour un PSR isobare ($P = cste$), l'enthalpie massique H du mélange n'est fonction que de la température et de la fraction massique des espèces : $H(T, Y_k)$.

Par dérivation de H en fonction de ses variables T et Y_k , on écrit :

$$\frac{dH}{dt} = \frac{\partial H}{\partial T} \frac{dT}{dt} + \sum_{k=1}^{N_{esp}} \frac{\partial H}{\partial Y_k} \frac{dY_k}{dt} \quad (C.3)$$

La définition de H pour un mélange s'écrit à partir de l'enthalpie massique h_k de chaque espèce χ_k par :

$$H = \sum_{k=1}^{N_{esp}} Y_k h_k \quad avec \quad h_k = h_k^0 + \int_{T_0}^T C p_k(T^*) dT^* \quad (C.4)$$

On rajoute également la définition de la capacité calorifique massique C_p :

$$C_p = \left. \frac{\partial h}{\partial T} \right|_{P=cst} = \sum_{k=1}^{N_{esp}} Y_k C p_k \quad (C.5)$$

Ces définitions supplémentaires donnent :

$$\frac{dH}{dt} = C_p \frac{dT}{dt} + \sum_{k=1}^{N_{esp}} h_k \frac{dY_k}{dt} \quad (C.6)$$

Par linéarité de l'opérateur de sommation, on obtient :

$$\rho V C_p \frac{dT}{dt} = \rho V \frac{dH}{dt} - \sum_{k=1}^{N_{esp}} h_k \rho V \frac{dY_k}{dt} \quad (C.7)$$

En exprimant les variations temporelles par les bilans de conservation, on écrit :

$$\rho V C_p \frac{dT}{dt} = \dot{m} (H_e - H) - P_{th} - \sum_{k=1}^{N_{esp}} h_k \left[\dot{m} (Y_k^e - Y_k) + V M_k \dot{\omega}_k \right] \quad (C.8)$$

La définition de l'enthalpie du mélange en entrée et dans le PSR induit :

$$\rho V C_p \frac{dT}{dt} = \dot{m} \left(\sum_{k=1}^{N_{esp}} Y_k^e h_k^e - \sum_{k=1}^{N_{esp}} Y_k h_k \right) - \sum_{k=1}^{N_{esp}} h_k \left[\dot{m} (Y_k^e - Y_k) + V M_k \dot{\omega}_k \right] - P_{th} \quad (C.9)$$

En découpant la dernière somme puis en factorisant par \dot{m} et en regroupant les termes sous le signe somme, on a :

$$\rho V C_p \frac{dT}{dt} = \dot{m} \sum_{k=1}^{N_{esp}} \left[Y_k^e h_k^e - Y_k h_k - h_k (Y_k^e - Y_k) \right] + V \sum_{k=1}^{N_{esp}} h_k M_k \dot{\omega}_k - P_{th} \quad (C.10)$$

Par simplification des termes sous le premier signe somme, on trouve enfin l'équation finale d'évolution de la température dans un PSR :

$$\rho V C_p \frac{dT}{dt} = \dot{m} \sum_{k=1}^{N_{esp}} Y_{k,p}^e (h_k^e - h_k) - V \sum_{k=1}^{N_{esp}} h_k M_k \dot{\omega}_k - P_{th} \quad (C.11)$$

Annexe D

Méthode des moindres carrés

En considérant m couples de valeurs $[x_j, y_j]$, l'objectif de cette méthode d'optimisation analytique est de trouver une fonction $F(x)$ qui approche au mieux la fonction $y(x)$.

Pour appliquer les développements généraux qui vont suivre à notre cas d'étude avec les notations du corps de texte, il faut associer les m couples de valeurs $[x_j, y_j]$ aux N_{pts} points discrets d'abscisses x_j calculés par PREMIX. Par conséquent, les m couples considérés seront $[c_j, \ln[\hat{\omega}_z(c_j)]]$ et $y(x)$ deviendra $\ln[\hat{\omega}_z(c)]$. De même, la fonction d'approximation $y(x)$ sera remplacée par $\ln[\beta_z(c)]$.

Pour revenir à la formulation générale de la méthode des moindres carrés, on écrit la fonction d'approximation $F(x)$ sous la forme d'une somme pondérée de n termes :

$$F(x) = \sum_{i=1}^n a_i f_i(x) \quad (\text{D.1})$$

La fonctionnelle J à minimiser se définit sur l'ensemble des points discrets x_j par :

$$J = \sum_{j=1}^m [y(x_j) - F(x_j)]^2 \quad (\text{D.2})$$

En cherchant $F(x)$ sous la forme d'une somme pondérée de n monômes f_i (termes d'un polynôme), le problème se ramène à la détermination des coefficients de pondération a_i . On substitue son expression à $F(x_j)$ dans celle de J :

$$J = \sum_{j=1}^m \left[y(x_j) - \sum_{i=1}^n a_i f_i(x_j) \right]^2 \quad (\text{D.3})$$

Dans l'optique de déterminer les coefficients de pondération a_i , nous développons J .

On écrit ainsi le développement suivant :

$$\begin{aligned}
 J &= \sum_{j=1}^m [y(x_j)]^2 - 2 \sum_{j=1}^m y(x_j) \sum_{i=1}^n a_i f_i(x_j) + \sum_{j=1}^m \left[\sum_{i=1}^n a_i f_i(x_j) \right]^2 \\
 J &= \sum_{j=1}^m [y(x_j)]^2 - 2 \sum_{j=1}^m \sum_{i=1}^n a_i y(x_j) \cdot f_i(x_j) + \sum_{j=1}^m \left[\sum_{i=1}^n a_i f_i(x_j) \right]^2 \\
 J &= \sum_{j=1}^m [y(x_j)]^2 - 2 \sum_{i=1}^n a_i \sum_{j=1}^m y(x_j) \cdot f_i(x_j) + \sum_{j=1}^m \left[\sum_{i=1}^n a_i f_i(x_j) \right]^2 \\
 J &= \sum_{j=1}^m [y(x_j)]^2 - 2 \sum_{i=1}^n a_i \sum_{j=1}^m y(x_j) \cdot f_i(x_j) \\
 &\quad + \sum_{j=1}^m \sum_{i=1}^n a_i f_i(x_j) \cdot \left[\sum_{k=1}^n a_k f_k(x_j) \right] \\
 J &= \sum_{j=1}^m [y(x_j)]^2 - 2 \sum_{i=1}^n a_i \sum_{j=1}^m y(x_j) \cdot f_i(x_j) \\
 &\quad + \sum_{j=1}^m \left(\sum_{i=1}^n a_i^2 [f_i(x_j)]^2 + \sum_{i=1}^n a_i f_i(x_j) \left[\sum_{k \neq i}^n a_k f_k(x_j) \right] \right) \\
 J &= \sum_{j=1}^m [y(x_j)]^2 - 2 \sum_{i=1}^n a_i \sum_{j=1}^m y(x_j) \cdot f_i(x_j) \\
 &\quad + \sum_{i=1}^n a_i^2 \sum_{j=1}^m [f_i(x_j)]^2 \\
 &\quad + \sum_{i=1}^n a_i \sum_{k \neq i}^n a_k \sum_{j=1}^m f_i(x_j) \cdot f_k(x_j)
 \end{aligned}$$

Comme la solution vise un optimum de J , on veut atteindre $dJ = 0$. On cherche donc à annuler simultanément toutes les dérivées partielles de $J(a_i)$:

$$dJ(a_i) = \sum_{i=1}^n \frac{\partial J}{\partial a_i} da_i \quad (\text{D.4})$$

Pour chaque i , le calcul de la dérivée donne :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial J}{\partial a_i} &= 0 - 2 \sum_{j=1}^m y(x_j) \cdot f_i(x_j) + 2a_i \sum_{j=1}^m [f_i(x_j)]^2 \\
 &\quad + 2 \sum_{k \neq i}^n a_k \sum_{j=1}^m f_i(x_j) \cdot f_k(x_j)
 \end{aligned} \quad (\text{D.5})$$

La solution de l'optimisation $dJ = 0$ passe donc par la résolution d'un système de n équations linéaires où chaque ligne i vérifie la relation :

$$\sum_{j=1}^m y(x_j) \cdot f_i(x_j) = a_i \sum_{j=1}^m [f_i(x_j)]^2 + \sum_{k \neq i}^n a_k \sum_{j=1}^m f_i(x_j) \cdot f_k(x_j) \quad (D.6)$$

L'ensemble des inconnues $\{a_1, a_2, \dots, a_k, \dots, a_n\}$ se regroupe sous forme de vecteur et l'on construit ainsi le système linéaire associé aux relations précédentes dans le but d'annuler simultanément toutes les dérivées. Pour des raisons de lisibilité, les sommes sur j (allant de 1 à m) sont contractées :

$$\begin{bmatrix} \sum_j f_1^2(x_j) & \cdot & \sum_j [f_1 \cdot f_k](x_j) & \cdot & \sum_j [f_1 \cdot f_n](x_j) \\ \sum_j f_i^2(x_j) & \cdot & \sum_j [f_i \cdot f_k](x_j) & \cdot & \sum_j [f_i \cdot f_n](x_j) \\ \sum_j f_n^2(x_j) & \cdot & \sum_j [f_n \cdot f_k](x_j) & \cdot & \sum_j f_m^2(x_j) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} a_1 \\ \cdot \\ a_k \\ \cdot \\ a_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \sum_j y_j \cdot f_1(x_j) \\ \cdot \\ \sum_j y_j \cdot f_i(x_j) \\ \cdot \\ \sum_j y_j \cdot f_n(x_j) \end{bmatrix}$$

Ce système est en général bien conditionné et se résout aisément à l'aide des méthodes classiques de résolution des systèmes linéaires (Factorisation LU, Jacobi, Gauss Seidel).

Pour revenir à notre cas d'étude, la fonction d'approximation $F(x)$ est la fonction $\ln[\beta_z(c)]$ avec $\beta_z(c) = d_{Y_h} c^{a_{Y_h}} (1-c)^{b_{Y_h}}$. L'utilisation du logarithme permet d'exprimer la fonction bêta sous la forme d'une somme de $n = 3$ termes :

$$F(x) = \sum_{i=1}^n a_i f_i(x) \rightarrow \ln[\beta_z(c)] = \ln(d_{Y_h}) + a_{Y_h} \ln(c) + b_{Y_h} \ln(1-c) \quad (D.7)$$

Le formalisme général induit donc : $f_1(c) = \ln(c)$, $f_2(c) = \ln(1-c)$ et $f_3(c) = 1$.

En substituant y_j par $\ln[\hat{\omega}_z(c_j)]$, on obtient le système [3,3] à résoudre pour notre cas d'étude. En raison de la faible dimension ($n = 3$) de la matrice associée, nous utilisons une simple méthode de Cramer pour la résolution numérique de : $A_{ik} \cdot a_k = B_k$

Avec une matrice A_{ik} et un vecteur B_k donnés par :

$$A_{ik} = \begin{bmatrix} A_{11} = \sum_j f_1^2(x_j) & A_{12} = \sum_j [f_1 \cdot f_k](x_j) & A_{13} = \sum_j [f_1 \cdot f_n](x_j) \\ A_{21} = \sum_j f_i^2(x_j) & A_{22} = \sum_j [f_i \cdot f_k](x_j) & A_{23} = \sum_j [f_i \cdot f_n](x_j) \\ A_{31} = \sum_j f_n^2(x_j) & A_{32} = \sum_j [f_n \cdot f_k](x_j) & A_{33} = \sum_j f_m^2(x_j) \end{bmatrix} \quad (D.8)$$

$$B_k = \begin{bmatrix} B_1 = \sum_j y_j \cdot f_1(x_j) \\ B_2 = \sum_j y_j \cdot f_i(x_j) \\ B_3 = \sum_j y_j \cdot f_n(x_j) \end{bmatrix} \quad (D.9)$$

La résolution impose de calculer le déterminant de la matrice A et celui des 3 matrices de Cramer associées que nous notons A_l . Ces matrices A_l sont définies depuis A en substituant la $l^{\text{ième}}$ colonne par le vecteur B_k du second membre. On écrit ainsi :

$$A_l = (A_{li,k}) \quad \text{avec} \quad A_{li,k} = \begin{cases} A_{ik} & \text{si } l \neq j \\ B_k & \text{si } l = j \end{cases} \quad (\text{D.10})$$

Dès lors, si la matrice A est inversible ($\det(A) \neq 0$), on obtient les composantes du vecteur solution a_k par :

$$a_1 = \det(A_1) / \det(A) \quad a_2 = \det(A_2) / \det(A) \quad a_3 = \det(A_3) / \det(A) \quad (\text{D.11})$$

Avec les déterminants des matrices respectives donnés par :

$$\begin{aligned} \det(A) &= +A_{11}A_{22}A_{33} + A_{21}A_{32}A_{13} + A_{31}A_{12}A_{23} \\ &\quad - A_{11}A_{32}A_{23} - A_{21}A_{12}A_{33} - A_{31}A_{22}A_{13} \end{aligned} \quad (\text{D.12})$$

$$\begin{aligned} \det(A_1) &= +B_1A_{22}A_{33} + B_2A_{32}A_{13} + B_3A_{12}A_{23} \\ &\quad - B_1A_{32}A_{23} - B_2A_{12}A_{33} - B_3A_{22}A_{13} \end{aligned} \quad (\text{D.13})$$

$$\begin{aligned} \det(A_2) &= +A_{11}B_2A_{33} + A_{21}B_3A_{13} + A_{31}B_1A_{23} \\ &\quad - A_{11}B_3A_{23} - A_{21}B_1A_{33} - A_{31}B_2A_{13} \end{aligned} \quad (\text{D.14})$$

$$\begin{aligned} \det(A_3) &= +A_{11}A_{22}B_3 + A_{21}A_{32}B_1 + A_{31}A_{12}B_2 \\ &\quad - A_{11}A_{32}B_2 - A_{21}A_{12}B_3 - A_{31}A_{22}B_1 \end{aligned} \quad (\text{D.15})$$

Nous obtenons enfin les paramètres a_{Y_h} , b_{Y_h} et d_{Y_h} de la fonction $\beta_z(c)$ par :

$$a_{Y_h} = a_1, \quad b_{Y_h} = a_2 \quad \text{et} \quad d_{Y_h} = \exp(a_3) \quad (\text{D.16})$$

Annexe E

Récurrance des fonctions β

La fonction bêta notée β appartient à la famille des fonctions mathématiques "spéciales". Dépendant de 2 paramètres a et b et pour un scalaire quelconque ϕ , elle est définie de manière rigoureuse par :

$$\beta(\phi, a, b) = \phi^{a-1} (1 - \phi)^{b-1} \quad (\text{E.1})$$

Appartenant à l'intervalle $[0, 1]$, elle est souvent utilisée comme *pdf* présumée pour la fraction de mélange ($\phi = z$) ou l'avancement réactionnel ($\phi = c$). Elle doit alors être normalisée. Sa norme $\mathcal{B}(a, b)$ est donnée par :

$$\mathcal{B}(a, b) = \int_0^1 \beta(\phi, a, b) d\phi = \int_0^1 \phi^{a-1} (1 - \phi)^{b-1} d\phi \quad (\text{E.2})$$

Bien qu'étant une fonction scalaire, cette norme $\mathcal{B}(a, b)$ est souvent appelée "fonction beta" et cette intégrale est reliée aux fonctions Γ de Bessel par :

$$\mathcal{B}(a, b) = \int_0^1 \beta(\phi, a, b) d\phi = \frac{\Gamma(a)\Gamma(b)}{\Gamma(a+b)} \quad (\text{E.3})$$

En rappelant que la fonction Γ de Bessel ne dépend que d'un paramètre d et s'exprime pour un scalaire quelconque ϕ par :

$$\Gamma(d) = \int_0^{+\infty} \phi^{d-1} e^{-\phi} d\phi \quad (\text{E.4})$$

La fonction Γ a pour vocation de prolonger la notion de *factorielle* ($x!$) aux nombres réels ($x \in \mathbb{R}$) et non plus seulement entiers ($x \in \mathbb{N}$).

Cette fonction présente une propriété très intéressante appelée *propriété de récurrence*. En effet, par définition, elle impose :

$$\Gamma(d+1) = d.\Gamma(d) \quad (\text{E.5})$$

Cette propriété mathématique, qui permet notamment d'écrire $\Gamma(n+1) = n!$, se propage à la fonction $\mathcal{B}(a, b)$ et donne :

$$\mathcal{B}(a+1, b) = \frac{\Gamma(a+1)\Gamma(b)}{\Gamma(a+b+1)} = \frac{a\Gamma(a)\Gamma(b)}{(a+b)\Gamma(a+b)} = \frac{a}{a+b}\mathcal{B}(a, b) \quad (\text{E.6})$$

On montre également que $\mathcal{B}(a, b)$ est symétrique par :

$$\mathcal{B}(b, a) = \frac{\Gamma(b)\Gamma(a)}{\Gamma(b+a)} = \frac{\Gamma(a)\Gamma(b)}{\Gamma(a+b)} = \mathcal{B}(a, b) \quad (\text{E.7})$$

Pour appliquer cette propriété de récurrence à notre cas d'étude, on rappelle que la fonction bêta est utilisée pour représenter l'avancement $c|z$ de chaque état discret z pour la pdf $P(z, c) = P(z) \cdot P(c|z)$. Ainsi, $P(c|z)$ est définie par :

$$P(c|z) = \frac{\beta(c|z, a, b)}{\mathcal{B}(a, b)} \quad (\text{E.8})$$

En tant que pdf présumée, la fonction bêta est donc déterminée par les premiers moments de $c|z$ à savoir la moyenne $\bar{c}|z$ et la variance $\widetilde{c''^2}|z$. En utilisant l'expression de $P(c|z)$, on obtient tout d'abord la moyenne par :

$$\begin{aligned} \bar{c}|z &= \int_0^1 c|z P(c|z) dc = \int_0^1 c|z \frac{\beta(c|z, b, a)}{\mathcal{B}(a, b)} dc \\ &= \int_0^1 \frac{\beta(c|z+1, a, b)}{\mathcal{B}(a, b)} dc = \frac{\mathcal{B}(a+1, b)}{\mathcal{B}(a, b)} = \frac{a}{a+b} \end{aligned} \quad (\text{E.9})$$

De même, on obtient la variance en exprimant le second moment $\widetilde{c^2}|z$ par :

$$\begin{aligned} \widetilde{c^2}|z = \widetilde{c''^2}|z + (\bar{c}|z)^2 &= \int_0^1 (c|z)^2 P(c|z) dc = \int_0^1 (c|z)^2 \frac{\beta(c|z, b, a)}{\mathcal{B}(a, b)} dc \\ &= \int_0^1 \frac{\beta(c|z+2, a, b)}{\mathcal{B}(a, b)} dc = \frac{\mathcal{B}(a+2, b)}{\mathcal{B}(a, b)} \\ &= \frac{\mathcal{B}(a+2, b)}{\mathcal{B}(a, b)} = \frac{\mathcal{B}(a+2, b)\mathcal{B}(a+1, b)}{\mathcal{B}(a+1, b)\mathcal{B}(a, b)} \\ &= \frac{a+1}{a+b+1} \bar{c}|z \end{aligned} \quad (\text{E.10})$$

On définit alors la ségrégation $S_{c|z}$ conditionnée en z par :

$$S_{c|z} = \frac{\widetilde{c''^2}|z}{\bar{c}|z(1-\bar{c}|z)} \quad (\text{E.11})$$

Par l'introduction de $S_{c|z}$, on exprime alors le second moment sous la forme :

$$\widetilde{c^2}|z = \widetilde{c''^2}|z + (\bar{c}|z)^2 = S_{c|z}(\bar{c}|z(1-\bar{c}|z)) + (\bar{c}|z)^2 \quad (\text{E.12})$$

Dès lors, on obtient l'expression des paramètres a et b de la fonction bêta à partir des moments de $c|z$ en écrivant :

$$\begin{aligned}\widetilde{c^2|z} &= \left(S_{c|z}(1 - \widetilde{c|z}) + (\widetilde{c|z}) \right) \widetilde{c|z} = \frac{a+1}{a+b+1} \widetilde{c|z} \\ S_{c|z}(1 - \widetilde{c|z}) + (\widetilde{c|z}) &= \frac{a+1}{a+b+1}\end{aligned}\quad (\text{E.13})$$

Les équations pour les 2 premiers moments de $c|z$ donnent :

$$\begin{aligned}a &= (a+b)\widetilde{c|z} \\ a+1 &= (a+b+1) \cdot \left(S_{c|z}(1 - \widetilde{c|z}) + (\widetilde{c|z}) \right)\end{aligned}\quad (\text{E.14})$$

En soustrayant la première équation de la seconde et en simplifiant par le complémentaire de la moyenne $(1 - \widetilde{c|z})$, on obtient :

$$\begin{aligned}a+1-a &= (a+b+1)\widetilde{c} + (a+b+1) \cdot \left(S_{c|z}(1 - \widetilde{c|z}) \right) - (a+b)\widetilde{c} \\ 1-\widetilde{c} &= (a+b+1) \cdot \left(S_{c|z}(1 - \widetilde{c|z}) \right) \\ 1 &= (a+b+1) S_{c|z} \\ \frac{1}{S_{c|z}} - 1 &= (a+b)\end{aligned}\quad (\text{E.15})$$

Dès lors, en utilisant cette dernière équation et l'équation pour la moyenne $\widetilde{c|z}$, on trouve les paramètres a et b par :

$$a = \widetilde{c|z} \left(\frac{1}{S_{c|z}} - 1 \right) \quad (\text{E.16})$$

$$b = (1 - \widetilde{c|z}) \left(\frac{1}{S_{c|z}} - 1 \right) \quad (\text{E.17})$$

Pour des raisons de lisibilité et de mise en oeuvre numérique, il est fréquent de modifier la définition de la fonction β en décalant la valeur des exposants d'une unité :

$$\beta'(\phi, a, b) = \phi^{a'}(1-\phi)^{b'} = \phi^{a-1+1}(1-\phi)^{b-1+1} = \beta(\phi, a+1, b+1) \quad (\text{E.18})$$

Les paramètres a' et b' sont alors donnés par :

$$a' = \widetilde{c|z} \left(\frac{1}{S_{c|z}} - 1 \right) - 1 \quad (\text{E.19})$$

$$b' = (1 - \widetilde{c|z}) \left(\frac{1}{S_{c|z}} - 1 \right) - 1 \quad (\text{E.20})$$

De la même manière, les relations de récurrence vont être modifiées.

Pour cette nouvelle définition, la norme est donnée par :

$$\mathcal{B}'(a, b) = \int_0^1 \beta'(\phi, a, b) d\phi = \int_0^1 \beta(\phi, a+1, b+1) d\phi = \frac{\Gamma(a+1)\Gamma(b+1)}{\Gamma(a+b+2)} \quad (\text{E.21})$$

Avec ces définitions, la fonction reste symétrique :

$$\mathcal{B}'(b, a) = \mathcal{B}'(a, b) \quad (\text{E.22})$$

Mais les relations de récurrence deviennent :

$$\mathcal{B}'(a+1, b) = \frac{a+1}{a+b+2} \mathcal{B}'(a, b) \quad (\text{E.23})$$

$$\mathcal{B}'(a-1, b) = \frac{a+b+1}{a} \mathcal{B}'(a, b) \quad (\text{E.24})$$

Si les exposants sont aisés à calculer (tant que $S_{\text{clz}} > \varepsilon = 10^{-4}$), il n'en est pas de même du terme de normalisation $\mathcal{B}'(b, a)$ qui suppose une intégration. En effet, les méthodes d'intégration classiques (trapèzes, points de Gauss, développements limités) restent coûteuses, notamment en cas de branches infinies (exposants a' et b' négatifs) pour les fortes variances (lorsque $S_{\text{clz}} \rightarrow 1$). Nous proposons donc un recours intensif aux relations de récurrence pour *se ramener à la détermination de l'intégrale pour des valeurs d'exposants a' et b' compris entre 0 et 1*.

Ainsi, un usage exhaustif des relations de récurrence permet, quelles que soient les valeurs des exposants, de se ramener à la détermination d'une intégrale pour des exposants compris entre 0 et 1. Pour des raisons de temps de calcul, nous imposerons des limites raisonnables ($\varepsilon < S_{\text{clz}} < 1 - \varepsilon$) à ce calcul itératif. Pour les valeurs extrêmes d'un des 2 exposants, nous disposons d'intégrations analytiques :

$$\mathcal{B}'(a', 0) = \int_0^1 \phi^{a'} d\phi = \frac{1}{1+a'} \quad (\text{E.25})$$

$$\mathcal{B}'(a', 1) = \int_0^1 \phi^{a'} (1-\phi) d\phi = \frac{1}{1+a'} - \frac{1}{2+a'} = \frac{1}{2+3a'+a'^2} \quad (\text{E.26})$$

Après vérification pour quelques exposants entiers a' et b' , il est légitime de regrouper ces intégrations analytiques sous la forme :

$$\mathcal{B}'(a', b') \approx \frac{1}{1+a'+b'+ab(9-a-b+5ab)/4+\gamma} \quad , \forall a, b \in [0, 1] \quad (\text{E.27})$$

Avec

$$\gamma \approx (1+a) \cdot (1+b) ab(1-a)(1-b)(2-a)(2-b) (0,05\sqrt{ab} - 0,13) \quad (\text{E.28})$$

Annexe F

Pdf triviale en z du modèle $pdfp3z$

Défini dans le corps du mémoire, le modèle $pdfp3z$ est basé sur une pdf à 3 distributions de Dirac en z . La position z_i et l'amplitude α_i de ces 3 pics de Dirac respectent au moins les 2 premiers moments de z à savoir \widetilde{z} et \widetilde{z}''^2 .

La pdf en z associée s'écrit donc :

$$\widetilde{P}(z) = \sum_{i=1}^3 \alpha_i \delta(z - z_i) \quad \text{avec} \quad \sum_{i=1}^3 \alpha_i = 1 \quad (\text{F.1})$$

L'expression des 2 premiers moments de z donne respectivement :

$$\widetilde{z} = \sum_{i=1}^3 \alpha_i z_i \quad \text{avec} \quad \widetilde{z}''^2 = \sum_{i=1}^3 \alpha_i z_i^2 \quad (\text{F.2})$$

La variance \widetilde{z}''^2 est alors donnée par :

$$\begin{aligned} \widetilde{z}''^2 &= \widetilde{z}''^2 - \widetilde{z}^2 = \sum_{i=1}^3 \alpha_i z_i^2 - \left(\sum_{i=1}^3 \alpha_i z_i \right)^2 \\ &= \alpha_1 z_1^2 + \alpha_2 z_2^2 + \alpha_3 z_3^2 - \left(\alpha_1^2 z_1^2 + \alpha_2^2 z_2^2 + \alpha_3^2 z_3^2 \right) \\ &\quad - (\alpha_1 z_1 \alpha_2 z_2 + \alpha_1 z_1 \alpha_3 z_3 + \alpha_2 z_2 \alpha_3 z_3 + \alpha_1 z_1 \alpha_2 z_2 + \alpha_1 z_1 \alpha_3 z_3 + \alpha_2 z_2 \alpha_3 z_3) \\ &= \alpha_1 z_1^2 (1 - \alpha_1) + \alpha_2 z_2^2 (1 - \alpha_2) + \alpha_3 z_3^2 (1 - \alpha_3) \\ &\quad - 2(\alpha_1 \alpha_2 z_1 z_2 + \alpha_1 \alpha_3 z_1 z_3 + \alpha_2 \alpha_3 z_2 z_3) \end{aligned} \quad (\text{F.3})$$
$$\quad (\text{F.4})$$

Ainsi, comme nous fixons $z_1 = z_{min}$ et $z_3 = z_{max}$ avec très souvent $z_{min} = 0$ et $z_{max} = 1$ et grâce à la condition de normalisation de la pdf qui relie entre elles les amplitudes α_i , on obtient bien 3 égalités (expression des 3 premiers moments pour z) pour déterminer z_2 ainsi que α_1 et α_3 . L'amplitude α_2 sera alors donnée par : $\alpha_2 = 1 - \alpha_1 - \alpha_3$.

Toutefois, une expression de pdf en z à 3 distributions de Dirac peut être décrite trivialement à l'aide de la ségrégation en z . En conservant $z_1 = z_{min}$ et $z_3 = z_{max}$, il est possible de vouloir représenter l'état moyen pour comparer par exemple les résultats du CRN n'incluant que l'information moyenne aux prédictions du calcul CFD. Dès lors, on impose $z_2 = \bar{z}$.

Ainsi, pour respecter les deux premiers moments de z après un tel positionnement des distributions de Dirac, on cherche à définir leur amplitude en fonction de la ségrégation S_z avec toujours $S_z = \bar{z}''^2 / (z_{max} - \bar{z})(\bar{z} - z_{min})$. En effet, si la ségrégation est maximale ($S_z = 1$), les distributions extrêmes en $z_1 = z_{min}$ et $z_3 = z_{max}$ sont seules à représenter l'écoulement ($\alpha_2 = 0$) et si les fluctuations deviennent nulles ($S_z = 0$), l'état moyen, représenté par z_2 , accumule l'ensemble de l'information ($\alpha_2 = 1$). A l'image du modèle EBU pour la combustion prémélangée, lorsque $S_z = 1$, la pdf ne contient que 2 états extrêmes ($\alpha_2 = 0$) et induit :

$$\begin{aligned} \alpha_3 &= 1 - \alpha_1 \\ \bar{z} &= \int_{z_{min}}^{z_{max}} z \bar{P}(z) dz = \int_{z_{min}}^{z_{max}} z (\alpha_1 \delta(z - z_1) + (1 - \alpha_1) \delta(z - z_3)) dz \\ &= \alpha_1 z_1 + (1 - \alpha_1) z_3 = \alpha_1 z_{min} + (1 - \alpha_1) z_{max} \\ \bar{z}''^2 &= \int_{z_{min}}^{z_{max}} (z - \bar{z})^2 \bar{P}(z) dz = \bar{z}^2 - \bar{z}^2 \\ &= \alpha_1 z_{min}^2 + (1 - \alpha_1) z_{max}^2 - (\alpha_1^2 z_{min}^2 + 2\alpha_1(1 - \alpha_1) z_{min} z_{max} + (1 - \alpha_1)^2 z_{max}^2) \\ &= \alpha_1(1 - \alpha_1)(z_{max} - z_{min})^2 \end{aligned}$$

Dans toutes nos applications (flamme de Masri, flamme Cocorico et tube à flamme industriel), nous avons $z_{min} = 0$ et $z_{max} = 1$. Dès lors, les expressions ci-dessus se simplifient en :

$$\alpha_3 = 1 - \alpha_1 \quad (F.5)$$

$$\bar{z} = 1 - \alpha_1 \quad (F.6)$$

$$\bar{z}''^2 = \alpha_1(1 - \alpha_1) \quad (F.7)$$

Lorsque $S_z = 1$, on a donc : $\alpha_1 = 1 - \bar{z}$, $\alpha_2 = 0$ et $\alpha_3 = \bar{z}$.

Lorsque $S_z = 0$, on impose : $\alpha_1 = 0$, $\alpha_2 = 1$ et $\alpha_3 = 0$.

Ainsi, on glisse linéairement entre ces 2 cas limites grâce à la ségrégation S_z :

$$\alpha_1 = S_z(1 - \bar{z}) , \quad \alpha_2 = 1 - S_z \quad \text{et} \quad \alpha_3 = S_z \bar{z} \quad (F.8)$$

