



**HAL**  
open science

# Etude expérimentale de l'influence des mélanges gazeux sur la combustion sans flamme

Christiane Dupoizat Rottier

► **To cite this version:**

Christiane Dupoizat Rottier. Etude expérimentale de l'influence des mélanges gazeux sur la combustion sans flamme. Milieux fluides et réactifs. INSA de Rouen, 2010. Français. NNT : 2010ISAM0003 . tel-00557903

**HAL Id: tel-00557903**

**<https://theses.hal.science/tel-00557903>**

Submitted on 20 Jan 2011

**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.

# THESE

Présentée par

**Christiane ROTTIER**

En vue de l'obtention du titre de

**DOCTEUR DE L' INSTITUT NATIONAL  
DES SCIENCES APPLIQUEES DE ROUEN**

Discipline : Physique  
Spécialité : Energétique  
Ecole doctorale SPMII

## **ETUDE EXPERIMENTALE DE L'INFLUENCE DES MELANGES GAZEUX SUR LA COMBUSTION SANS FLAMME**

Soutenue le 2 mars 2010

Composition du jury :

Directeur de thèse :	A. BOUKHALFA	Professeur, INSA de Rouen
Co-encadrant	D. HONORE	Maitre de Conférences, INSA de Rouen
Président du jury :	J.M MOST	Directeur de Recherche, CNRS, Poitiers
Rapporteurs :	M. CHAMPION	Directeur de Recherche, CNRS, Poitiers
	N. DARABIHA	Professeur, Ecole Centrale Paris
Examineurs :	S. CARPENTIER	Ingénieur de Recherche, GDF SUEZ
	S. MAUREL	Ingénieur de Recherche, GDF SUEZ
	L. VERVISCH	Professeur, INSA de Rouen



### *Avertissement*

*Certains graphiques de cette version publique ont été modifiés  
afin de conserver le caractère confidentiel des informations et  
données obtenues durant cette thèse.*



## MERCI

*Je tiens tout d'abord à remercier Michel Ledoux, ancien directeur du CORIA, pour la confiance qu'il m'a accordée en m'accueillant au sein de son laboratoire.*

*Cette thèse a eu lieu dans le cadre de la collaboration entre GDF SUEZ et le CORIA, je n'aurais donc pu la réaliser sans l'accord d'Alain Quinqueneau et de Philippe Meunier, qu'ils en soient remerciés.*

*Je voudrais aussi remercier Nasser Darabiha et Michel Champion d'avoir accepté de rapporter ce travail, Jean-Michel Most d'avoir accepté d'être président du jury, ainsi que Stéphane Carpentier, Stéphane Maurel et Luc Vervisch pour avoir accepté de faire partie du jury.*

*Merci à Stéphane Carpentier, Raphael Hauguel et Linda Porcheron pour m'avoir guidée tout au long de cette thèse.*

*Je souhaite remercier Mourad Boukhalfa pour la confiance qu'il m'a accordée en acceptant d'être mon directeur de thèse. Ses remarques, notamment tout au long de la rédaction et de la préparation de la soutenance ont grandement participé à la valorisation de ce travail.*

*Evidemment, cette thèse n'aurait pu aboutir sans la présence et l'aide de David Honoré. Comme Mourad l'a si bien fait remarquer le jour de ma soutenance, je garde pas mal de choses en moi, il m'est donc très difficile d'exprimer mes sentiments, mais j'espère que tu sais à quel point je te suis, malgré tout, reconnaissante pour ton aide.*

*Enfin, merci à tous les deux de ne m'avoir jamais laissé sentir que faire 2 enfants pendant la thèse pouvait être un problème.*

*Je voudrais aussi remercier tout le personnel : de l'atelier (merci pour la qualité et la rapidité des pièces à réaliser souvent « pour hier »), du service électronique, du service info et des services communs du CORIA et de l'INSA.*

*Merci à toutes les personnes qui, par le prêt ou la conception de matériel, la conception de logiciels ont contribué au bon déroulement de cette thèse : Armelle C., Bertrand L., Bruno R., Gilles C., Gilles G., Eric D., Frédéric C...*

*Merci à tous ceux qui ont travaillé successivement sur l'installation : Benoit Taupin, Kevin Hersent et évidemment Aloïs Rich.*

*Merci à tous les doctorants (anciens ou nouveau). Tout d'abord mes collègues successifs de bureau : Mathieu, Aurélie et Guillaume (merci pour les discussions scientifiques, que ce soit en réactif ou en non réactif, mais surtout merci d'avoir supporté mes plaintes, plus ou moins répétées), Emilien (désolé Emilien tu n'auras pas une page complète de remerciement, sinon cette thèse coûtera trop cher à éditer ;-)) et Toufik.*

*Merci aussi à (dans le désordre) : Jérémy (entre autre pour Gambit), François, Yann, Mechline, Benoit, Corine (merci pour le temps gagné grâce à la flamme pilote, sans toi, qui sait combien d'années aurait encore duré cette thèse ?), Alexis (notre p'tit café de 8h contribue au bon déroulement des journées), Yannick (nous ne t'oublierons pas) et évidemment un grand merci à ma baby sitter préférée: Camille, même si la Manche nous sépare...*

*Enfin, merci à toute ma famille pour leurs encouragements. Et plus particulièrement, je souhaite remercier mon mari Damien : merci d'avoir supporté mon mauvais caractère pendant toutes ses années (surtout vers la fin).*

***A mes 2 p'tits amours : Ethan et Eliot  
A Papa***



## TABLE DES MATIERES

<b>Nomenclature</b> .....	<b>10</b>
<b>Introduction</b> .....	<b>13</b>
<b>Chapitre I: Etude bibliographique</b> .....	<b>17</b>
I.1- Les polluants .....	18
I.1.1- Le dioxyde de carbone et les autres gaz à effet de serre .....	18
I.1.2- Les oxydes d'azote.....	19
I.1.3- Réglementations.....	21
I.1.4- Etat des réserves et utilisation des ressources fossiles .....	22
I.2- La combustion sans flamme.....	23
I.2.1- Préchauffage de l'air – Utilisation de brûleurs régénératifs .....	27
I.2.2- Recirculation massive des produits de combustion dans l'enceinte du four et dilution des réactifs avant la combustion .....	30
I.2.3- Limites d'inflammabilité et mécanisme d'extinction : interaction chimie/turbulence .....	33
I.2.4- Absence de flamme visible et de formation de suies .....	34
I.2.5- Homogénéité de température, absence de bruit .....	35
I.2.6- Zones de réaction : localisation et stabilisation .....	36
I.3- Etude des mélanges méthane - hydrogène .....	38
I.3.1- Impact de l'ajout d'hydrogène sur les émissions de NOx.....	42
I.3.2- Impact de l'ajout d'hydrogène sur la recirculation des produits de combustion et sur la température du four .....	44
I.3.3- Limites d'inflammabilité et mécanisme d'extinction : interaction chimie/turbulence .....	46
I.3.4- Absence de flamme visible et formation de suie .....	48
I.3.5- Zone de réaction : localisation et stabilisation.....	49
I.4- Conclusions.....	49
<b>Chapitre II: Installation pilote de combustion sans flamme du CORIA</b> .....	<b>51</b>
II.1- La chambre de combustion « FOUR » .....	51
II.2- Le brûleur .....	53
II.3- Le préchauffeur d'air .....	53
II.4- Le circuit de refroidissement.....	55
II.5- Les lignes d'alimentation en combustible et en air .....	56
II.6- Mesure des températures et de flux aux parois .....	57
II.7- Montée en température et automatisme de l'installation .....	58
<b>Chapitre III: Techniques de mesure</b> .....	<b>63</b>
III.1- Mesures de concentrations moyennes d'espèces stables .....	63
Principe et montage expérimental .....	63
Temps d'acquisition.....	65
Reproductibilité des résultats .....	66
Conditions opératoires .....	66
III.2- Mesure de la température locale.....	67

Principe de la mesure de température par thermocouple à fil fin .....	67
Bilan thermique .....	67
Influence de la taille de la soudure chaude et la fréquence de coupure du thermocouple .....	74
Détermination de l'influence de la constante de temps du thermocouple .....	75
Dispositif expérimental .....	77
Convergence des résultats obtenus .....	81
III.3- Imagerie des zones réactives .....	82
Principe de la chimiluminescence .....	82
Montage expérimental .....	83
Imagerie rapide .....	85
Traitement des images .....	86
III.4- Vélocimétrie par images de particules (PIV) .....	89
Principe de base .....	89
Application de la PIV dans le four .....	91
Traitement des images de particules .....	93
L'endoscope .....	95
III.5- Traitement des résultats : méthodes de calcul des grandeurs classiques .....	102
III.5.1- Zone de recirculation interne /Identification des tourbillons .....	102
III.5.2- Quantification de la dilution par la PIV .....	104
III.5.3- Calculs de la concentration des espèces non mesurées .....	107
<b>Chapitre IV: La combustion sans flamme au méthane .....</b>	<b>111</b>
IV.1- Etude paramétrique .....	111
IV.1.1- Influence de la variation du taux d'aération .....	112
IV.1.2- Influence de la température de préchauffage de l'air .....	116
IV.2- Conditions de fonctionnement .....	120
IV.3- Caractéristiques aérodynamiques de l'écoulement .....	125
IV.3.1- Cônes potentiels .....	131
IV.3.2- Point de fusion, origine virtuelle et ouverture des jets .....	137
IV.3.3- Influence des vitesses sur la structure des jets .....	141
IV.3.4- Influence de la présence du jet d'air sur les jets de combustibles .....	144
IV.3.5- Importance du mélange .....	147
IV.4- Concentrations .....	158
IV.5- Champs thermiques .....	163
IV.6- Structure et allumage des zones de réaction .....	168
IV.7- Cinétique de la combustion sans flamme .....	176
IV.8- Conclusions .....	183
<b>Chapitre V: La combustion sans flamme à l'hydrogène .....</b>	<b>185</b>
V.1- Combustion sans flamme des mélanges CH <sub>4</sub> /H <sub>2</sub> avec préchauffage de l'air .....	188
V.1.1- Influence de l'ajout d'hydrogène sur la structure et la position des zones de réaction .....	188
V.1.2- Influence de l'ajout d'hydrogène sur les températures et les concentrations des fumées .....	191
V.2- Cas sans préchauffage de l'air .....	197
V.2.1- Structure et position des zones de réaction .....	197
V.2.2- Influence de l'hydrogène sur la concentration des fumées .....	200
V.3- Influence du diamètre d'injection du combustible .....	202
V.4- Conclusions .....	208
<b>Chapitre VI: Conclusions et perspectives .....</b>	<b>211</b>
<b>ANNEXES .....</b>	<b>215</b>

Annexe 1 : Paramètres pour la correction de mesures de température.....	215
Influence de l'émissivité des parois.....	217
Influence de la température des parois.....	218
Influence de la l'émissivité et de la température des gaz environnant .....	219
Annexe 2 : Température des parois et des fumées .....	220
Annexe 3 : Profils de vitesse transversale $V_x$ .....	221
Annexe 4 : Composition et volume des fumées .....	224
Annexe 5 : Caractéristiques des jets en fonction de la composition du combustible .....	226
<b>BIBLIOGRAPHIE .....</b>	<b>231</b>

# Nomenclature

Symbole	Unité	Définition
$\vec{\nabla} \cdot \vec{V} = \omega_z$	rad/s	Rotationnel de la vitesse
Act	m <sup>2</sup>	Surface de la soudure du thermocouple
CC(m,n)		Coefficient d'intercorrélation 2D
Cp	W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>	Capacité thermique
D	m	Diamètre de la chambre
d	m	Diamètre de l'injecteur
f	mm	Focale de la lentille
f <sub>c</sub>	Hz	Fréquence de coupure du thermocouple
Fumées	–	Gaz brûlés issus de la combustion
G		Rayonnement émis
Ga	N	Impulsion du jet d'air
Gf	N	Impulsion du jet de combustible
Ge	N	Impulsion des gaz brûlés
GES	–	Gaz à effet de serre
h	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	Coefficient d'échange convectif
K	–	Constante d'équilibre de la réaction de gaz à l'eau
Ke	Kg/Kg	Taux d'entraînement
Kv	Kg/Kg	Taux de recirculation des fumées
M	g/mol	Masse molaire
m	–	Paramètre de similitude
$\dot{m}_A$	kg/s	Débit massique du jet d'air
$\dot{m}_F$	kg/s	Débit massique du jet de combustible
$\dot{m}_R$	kg/s	Débit massique des recirculations
Nu		Nombre de Nusselt
P	kW	Puissance de fonctionnement de l'installation

PCI	KJ/Kg	pouvoir calorifique inférieur
Pr		Nombre de Prandt
$Q_{cat}$	J	Quantité de chaleur dégagée par catalyse
$Q_{vA}$	$m^3(n)/h$	Débit volumique du jet d'air (conditions normales)
$Q_{vF}$	$m^3(n)/h$	Débit volumique du jet de combustible (conditions normales)
$Q_{Air}$	$m^3/h$	Débit volumique du jet d'air
$Q_{CH4}$	$m^3/h$	Débit volumique du jet de méthane
Re		Nombre de Reynolds
$T_A$	°C	Température du jet d'air
$T_F$	°C	Température du jet de combustible
$T_R$	°C	Température des recirculations
$U_y$	m/s	Vitesse axiale
$U_x$	m/s	Vitesse radiale
Va	$m^3(n)/ m^3(n)$	pouvoir comburivore
$X_i$	%	Fraction molaire de l'élément i
$\Gamma$	–	Fonction scalaire gamma
$\Gamma_2$	–	Fonction scalaire gamma 2
$\alpha$	–	Taux de dilution
$\varepsilon$	Pa/s	Emissivité
$\phi$	–	Richesse
$\lambda$	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-4}$	Conductivité thermique
$\lambda=1/\phi$	–	Taux d'aération
$\mu$	J/K/kg	Viscosité dynamique
$\rho_i$	$kg/m^3$	Masse volumique de l'élément i
$\sigma$		Constante de Stephan
$\tau_c$	s	Temps de réponse du thermocouple



## Introduction

Les installations de combustion sont parmi les principales sources d'émissions d'oxyde d'azote (NO<sub>x</sub>) et de dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>). Les oxydes d'azote ont un impact direct sur la santé humaine et détruisent la couche d'ozone, alors que le dioxyde de carbone est un des principaux gaz à effet de serre.

Puisque qu'aucune technologie n'est disponible pour détruire le dioxyde de carbone présent dans les fumées, une solution temporaire est sa capture et sa séquestration. Cependant, la capture et la séquestration restent des solutions curatives à court terme. Deux alternatives préventives existent : réduire la consommation de combustibles fossiles, et/ou utiliser des combustibles dits « alternatifs » contenant moins d'atomes de carbone, tels que les combustibles issus de la biomasse ou les mélanges méthane-hydrogène, voire de l'hydrogène pur. En effet, le seul produit de la combustion d'hydrogène est la vapeur d'eau. L'utilisation d'hydrogène dans les installations de combustion permettrait de réduire de manière significative les émissions de gaz à effet de serre, dans l'hypothèse où il serait produit sans émission de dioxyde de carbone.

En récupérant l'énergie des fumées pour préchauffer l'air de combustion, la consommation de combustible peut être réduite de manière significative. Cependant, le préchauffage de l'air de combustion conduit à une augmentation de la température adiabatique de flamme et donc à une augmentation importante des émissions d'oxyde d'azote. L'étagement de l'air de combustion ou du combustible permet de réduire les émissions de NO<sub>x</sub> grâce à des zones de combustion globalement à températures plus faibles. Cet étagement, poussé à l'extrême en séparant les injections de combustible et de comburant, permet aux réactifs d'être dilués avant d'interagir. Le rayonnement de la zone de réaction devient négligeable par rapport à celui des parois du four. C'est pourquoi ce régime est appelé combustion sans flamme (ou combustion diluée). Dans cette configuration, les émissions de NO<sub>x</sub> sont très faibles.

La combustion sans flamme est donc un régime de combustion innovant et prometteur puisqu'il permet à la fois de réduire les émissions de NO<sub>x</sub> et la consommation de combustible.

Des fours industriels fonctionnent avec des brûleurs dits à « combustion sans flamme », principalement dans la sidérurgie. La combustion sans flamme est donc un régime stable parfaitement maîtrisé, en revanche, ses caractéristiques physico-chimiques sont loin d'être

entièrement connues. C'est pourquoi, depuis quelques années, les recherches sont très actives dans ce domaine.

La thèse présentée ici, porte sur l'étude du régime de combustion sans flamme, effectuée dans le cadre du projet "Foyer HPE" (2005 – 2009) du Programme d'Action Nationale sur l'Hydrogène et les piles à combustible (PAN-H) de l'Agence Nationale de la Recherche. Elle a été réalisée au CORIA, en collaboration avec GDF SUEZ, coordinateur du projet "Foyer HPE". Dans le cadre de cette collaboration, des études précédentes, menées sur une installation semi-industrielle, ont permis de déterminer certaines caractéristiques globales de ce régime de combustion. Cependant, il s'est avéré qu'une caractérisation plus détaillée nécessitait des expériences complémentaires. Pour cela, une installation pilote, pouvant être entièrement instrumentée, a été dimensionnée et installée au CORIA (Masson-2005). C'est cette installation qui a été mise en œuvre dans le cadre du présent travail.

Ce manuscrit est composé de cinq chapitres. Dans le premier chapitre, une étude bibliographique de l'état de l'art, détaille les différents travaux existants dans le domaine de la combustion sans flamme, au méthane mais aussi avec d'autres mélanges combustibles notamment avec de l'hydrogène. Elle permet de définir le régime de combustion sans flamme et de situer le contexte de notre étude.

L'installation pilote de combustion sans flamme du CORIA permet de reproduire le fonctionnement d'un brûleur régénératif. Elle a été conçue de manière à pouvoir réaliser le maximum de mesures, aussi bien intrusives qu'optiques, tout en gardant un bon confinement thermique. Le chapitre 2 en présente son fonctionnement.

Des mesures de concentrations moyennes des espèces stables ( $O_2$ ,  $CO_2$ ,  $CH_4$ ,  $NO_x$ ,  $CO$ ) par sonde de prélèvement, des mesures de température par thermocouple à fil fin, de l'imagerie des zones réactives par chimiluminescence du radical  $OH^*$  et notamment avec une caméra résolue en temps et des mesures de vitesse par PIV ont été réalisés. Les mesures de vitesse par PIV classique présentent un domaine relativement restreint centré sur la sortie du brûleur. Ces mesures ne permettent pas de mettre en évidence les recirculations externes, ni le point de fusion des 3 jets, c'est pourquoi, un endoscope à haute température a été développé dans le cadre de cette étude. Le chapitre 3 présente ces différentes techniques de mesures utilisées pour caractériser le régime de combustion, ainsi que les traitements et les calculs réalisés.

Une étude paramétrique de l'influence du taux d'aération (facteur d'air) et de la température de préchauffage de l'air a portée sur la structure des zones de réaction et sur les émissions de  $NO_x$  en cheminée. Les émissions de  $NO_x$  mesurées sur l'installation pilote du CORIA, en fonction du taux d'aération et de la température de préchauffage de l'air, présentent les mêmes évolutions que celles mesurées par E. Masson sur l'installation semi-industrielle de GDF SUEZ soulignant que le four pilote reproduit bien le fonctionnement de brûleurs régénératifs. De plus, cette étude paramétrique a permis de mettre en évidence certaines conditions de fonctionnement présentant des caractéristiques intéressantes à étudier de manière détaillée. Trois cas tests ont alors été déterminés : le cas F0 dont le fonctionnement se rapproche le plus du fonctionnement de brûleurs régénératifs à combustion sans flamme, le cas F1 sans préchauffage de l'air pour lequel les émissions de  $NO_x$  atteignent une valeur parmi les plus faibles jamais atteintes par un four à haute température, et le cas F2, avec un très fort excès d'air, pour lequel les émissions de  $NO_x$  sont importantes et qui représente une limite du régime de combustion sans flamme.

Pour ces trois cas tests, les mesures détaillées, sur l'installation de combustion sans flamme fonctionnant au méthane pur sont présentées et analysées. Ces mesures ont permis de mettre en évidence l'importance de l'aérodynamique : les 3 jets de forte impulsion entraînent les produits de combustion recirculant, ils sont donc très dilués et préchauffés avant leur

interaction. Selon les conditions initiales des comportements différents ont été observés notamment sur la localisation des zones de réaction et leurs caractéristiques.

Les résultats obtenus lors de cette étude paramétrique et de cette étude détaillée pour la combustion sans flamme au méthane sont présentés chapitre 4.

Le chapitre 5 présente l'influence de la composition du combustible sur le régime de combustion sans flamme en étudiant des mélanges méthane-hydrogène de proportion variable. Des mesures globales (localisation des zones de réaction par chimiluminescence  $\text{OH}^*$ , concentrations et températures des fumées et température des parois) ont permis de mettre en évidence, d'une part, qu'il était possible de faire fonctionner l'installation de combustion sans flamme avec des mélanges méthane-hydrogène tout en limitant la formation des polluants et, d'autre part, que le régime de combustion sans flamme pouvait être atteint même avec de l'hydrogène pur, et ce, sans changement de géométrie, même sans préchauffage de l'air de combustion. De plus, l'étude de l'influence du diamètre du jet de combustible a permis de mettre en évidence l'importance de l'impulsion de ce jet sur la dilution des réactifs avec les gaz brûlés.

Le dernier chapitre présente en conclusion, une synthèse des principaux résultats de cette étude et les perspectives possibles de ces travaux.



## *Chapitre I: Etude bibliographique*

*Ce chapitre résume l'état de l'art sur le régime de combustion sans flamme. Il est composé de deux parties principales. La première partie présente la combustion sans flamme au méthane et la seconde partie, l'influence du mélange combustible.*

*Le régime de combustion sans flamme permet d'allier limitation des émissions polluantes et optimisation de l'efficacité énergétique ; c'est pourquoi, les différentes voies de formation des NOx, puis l'état des ressources fossiles sont présentées. Après un bref rappel chronologique du développement de ce régime de combustion innovant, et une synthèse des travaux de recherche existants, la combustion sans flamme et ses principales caractéristiques sont alors détaillées. Dans la seconde partie de ce chapitre, l'étude des mélanges méthane-hydrogène (voire de l'hydrogène pur) en combustion et plus principalement en combustion sans flamme est abordée.*

Le dioxyde de carbone est le principal gaz à effet de serre (GES), quant aux oxydes d'azote, ils ont des effets négatifs sur l'écosystème (pluies acides, pollution photochimique, eutrophisation), sur la destruction de la couche d'ozone stratosphérique ainsi que sur la santé humaine (Borghi-1995). Ces deux espèces sont les principaux polluants émis par les installations de combustion. C'est pourquoi, les travaux de recherche visant à diminuer les émissions de NOx et de CO<sub>2</sub> lors de la combustion sont particulièrement importants, d'autant plus que le contexte réglementaire est de plus en plus exigeant. Différents accords internationaux (protocole de Göteborg, accords de Kyoto, directives européennes) amènent les Etats à réduire de manière significative leurs émissions de polluants atmosphériques.

## I.1- Les polluants

### I.1.1-Le dioxyde de carbone et les autres gaz à effet de serre

L'effet de serre est un phénomène naturel et indispensable à notre survie, puisqu'il permet de garder une température moyenne sur la planète de 15°C. Sans lui, le flux de rayonnement parvenant du Soleil serait renvoyé intégralement dans l'espace et la température moyenne sur Terre serait de -18°C rendant toute vie impossible.

Les activités humaines, depuis la révolution industrielle du XIX<sup>ème</sup> siècle, ont produit en peu de temps, une grande quantité de gaz à effet de serre supplémentaire, dont le plus important est le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>).

Le Tableau 1 répertorie les gaz à effet de serre pris en compte dans le protocole de Kyoto en fonction de leur pouvoir au réchauffement global (PRG) et de leur contribution à celui-ci. Le pourcentage, représente la contribution des différents GES au PRG, en France métropolitaine, en 2003 (Société française de chimie).

Il est évident que le dioxyde de carbone est le plus important gaz à effet de serre, non par son pouvoir de réchauffement, mais par sa quantité produite et émise dans l'atmosphère.

Gaz	PRG (Pouvoir de Réchauffement Global)	%
CO <sub>2</sub>	1	70
N <sub>2</sub> O	310	15
CH <sub>4</sub>	21	12
HFC	140 à 11700 (1751 en moyenne en 2003)	3
PFC	6500 à 9200 (7193 en moyenne en 2003)	3
SF <sub>6</sub>	23900	3

Tableau 1 Emissions des Gaz à effet de serre en fonction du PRG (pouvoir de réchauffement global). Les 6 gaz inclus dans le protocole de Kyoto sont pris en compte : CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O (protoxyde d'azote), HFC (hydrofluorocarbures), PFC (perfluorocarbures) et SF<sub>6</sub> (hexafluorure de soufre). La vapeur d'eau, non prise en compte, a un effet 2 fois plus important que le dioxyde de carbone.

Les secteurs de l'industrie et de l'énergie produisent près de 50% des émissions de GES dans le monde (Figure 1).

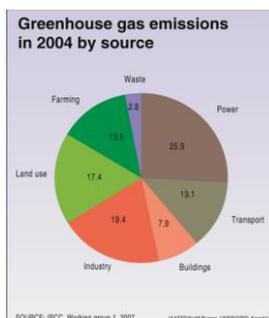


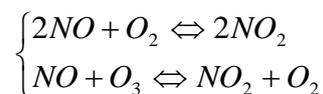
Figure 1 Proportion des gaz à effet de serre par source d'émission : Déchets, Transformation de l'énergie, Transport, Résidentiel tertiaire, Industrie manufacturière, Agriculture et sylviculture, et élevage (GRID-Arendal).

### 1.1.2-Les oxydes d'azote

Le dioxyde d'azote présent dans l'air inspiré passe à travers les alvéoles pulmonaires, se dissout dans le sang où il limite la fixation de l'oxygène sur l'hémoglobine. C'est donc un gaz irritant qui pénètre dans les plus fines ramifications des voies respiratoires. Les organes sont alors moins bien oxygénés. Le dioxyde d'azote pénètre dans les voies respiratoires profondes, où il fragilise la muqueuse pulmonaire face aux agressions infectieuses, notamment chez les enfants. Dès que sa concentration atteint  $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , il peut entraîner une altération de la fonction respiratoire, une hyper-réactivité bronchique chez l'asthmatique et un accroissement de la sensibilité des bronches aux infections chez l'enfant.

Le dioxyde d'azote se transforme dans l'atmosphère en acide nitrique, qui retombe au sol et sur la végétation. Cet acide contribue, en association avec d'autres polluants, à l'acidification des milieux naturels. Ils participent aux phénomènes des pluies acides, à la formation de l'ozone troposphérique, dont ils sont l'un des précurseurs, à l'atteinte de la couche d'ozone stratosphérique et à l'effet de serre.

Le monoxyde d'azote (NO) et dioxyde d'azote ( $\text{NO}_2$ ) sont des gaz polluants oxydants, qui se forment lors de la combustion. Les oxydes d'azote sont collectivement désignés par  $\text{NO}_x$ . Le monoxyde d'azote NO est ensuite oxydé en dioxyde d'azote  $\text{NO}_2$  par réaction avec d'autres oxydants de l'air (oxygène  $\text{O}_2$ , ozone  $\text{O}_3$ , ...):



Les voies de formation du NO sont: la voie précoce, la voie combustible, la voie thermique, la voie de production via le protoxyde d'azote, la voie de production par NNH et la voie de réduction par recombustion. Dans les réactions de combustion, la voie thermique devient prépondérante pour des températures au dessus de  $1600^\circ\text{C}$ . Les trois voies de formation (précoce, combustible et thermique) sont schématisées Figure 2.

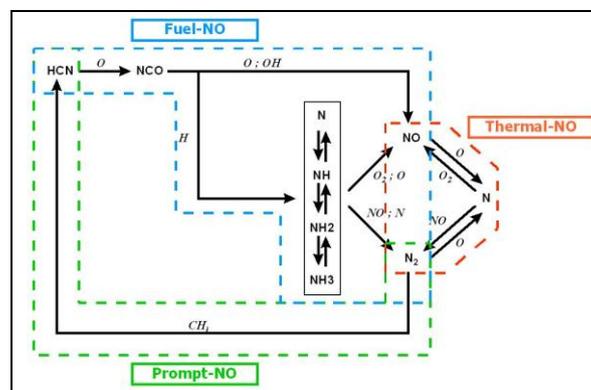
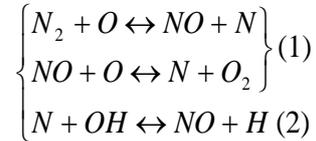


Figure 2 Voies de formation des oxydes d'azote (d'après De Soete, 2004).

- ***Le NO thermique***

Le NO thermique se forme par combinaison de l'azote  $N_2$  et de l'oxygène  $O_2$  atmosphériques lors de combustion à haute température.

La voie de formation du NO thermique, aussi appelé "mécanisme de Zeldovich", est décrit par les réactions suivantes:



Les réactions (1) sont plutôt favorisées lorsque la combustion a lieu dans des conditions pauvres, tandis que la réaction (2) est plutôt favorisée lors d'une combustion riche.

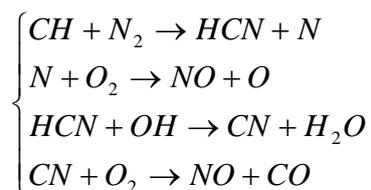
La première réaction conditionne la vitesse globale du mécanisme du fait de son énergie d'activation très élevée (318 kJ/mol). La dissociation du  $N_2$  suivant ce mécanisme demande beaucoup d'énergie. La température d'activation de la réaction de formation du NO thermique est de  $1300^\circ\text{C}$ , ce mécanisme ne devient significatif que dans le cas de hautes températures. Les émissions de NO sont considérablement augmentées lorsque l'oxygène et les produits de combustion sont exposés à de hautes températures supérieures à  $1600^\circ\text{C}$  pendant quelques secondes, ou  $2000^\circ\text{C}$  pendant seulement quelques millisecondes.

- ***Le NO combustible / Le « fuel-NO »***

Ce mécanisme réactionnel est induit dans la flamme par décomposition d'un combustible comportant des atomes d'azote qui libère des composés  $N_x$ . Ces derniers vont, sous certaines conditions, former HCN avec des radicaux Cx et CH. HCN ainsi synthétisé va réagir avec O présent dans la zone réactionnelle pour donner NCO, qui va se décomposer en CO et N. Cet atome d'azote va recevoir petit à petit des atomes d'hydrogène issus de la dissociation du combustible et de HCN, pour former NH,  $NH_2$  et  $NH_3$ . Mais ce processus lent rentre en concurrence avec la synthèse du NO et des  $NO_x$  par capture d'atomes d'oxygène. L'importance de ce type de mécanisme, dans la quantité totale émise, est directement fonction de la teneur en azote du combustible et de la richesse. Les énergies d'activation des différentes réactions sont faibles, il n'y a donc pas de dépendance aux conditions locales de températures.

- ***Le NO précoce/ Le « prompt -NO»***

Le milieu réactionnel est la flamme car il faut des molécules CH et Cx, comme pour le « fuel NO». En revanche, dans ce cas, la chimie est complètement différente, elle était considérée depuis de nombreuses années, comme la combinaison des relations suivantes :

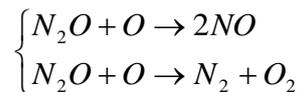


Depuis peu, les réactions chimiques mises en jeu dans cette formation sont remises en cause, et notamment la réaction  $CH+N_2$  qui formerait plutôt  $NCN + H$ . Cette réaction demande des radicaux CH, ce qui implique une combustion localement riche.

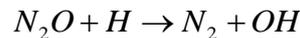
L'énergie d'activation est faible en regard de celle des mécanismes de formation du NO thermique. Le «prompt-NO» est ainsi un schéma de formation des oxydes d'azote favorisé en flamme riche et à relativement basse température. Le qualificatif de « prompt » vient du fait qu'il est présent dès le début de la combustion, au niveau du front de flamme, et beaucoup moins après. Dans des zones riches en combustible, le NO précoce est le mécanisme prépondérant.

- ***La voie de production via le protoxyde d'azote***

La rupture de la liaison  $N\equiv N$  peut s'effectuer selon:  $N_2 + O + M \rightarrow N_2O + M$  (Olschewski, 1966). Malte et Pratt (1974) proposent le mécanisme suivant de formation du NO à partir de  $N_2O$  :

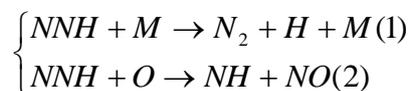


Cette voie de formation peut devenir importante à haute pression en présence d'excès d'oxygène. Les quantités de  $N_2O$  émises par des flammes de prémélange gazeuses restent faibles (de Soete-1989) car les concentrations en H sont suffisamment élevées pour réduire  $N_2O$  en  $N_2$  selon:



- ***La voie de production par NNH***

Bozzelli et Dean (1995) proposent un mécanisme de formation du NO à partir de NNH (le radical diazényle, NNH, de faible durée de vie est un précurseur de  $N_2$ ).



La réaction (1) est très rapide, la concentration en NNH est donc contrôlée thermodynamiquement. Cependant, d'après des simulations sur des mélanges méthane-air, Haworth (2003) conclue que la voie NNH joue un rôle mineur dans la plupart des conditions de combustion.

- ***La voie de réduction par recombustion***

NO est réduit en  $N_2$  dans des conditions riches (défaut d'oxygène). Ce mécanisme a été étudié dans diverses configurations expérimentales, de la flamme (Thorne et al. -1988, Etzkorn et al. -1992) au réacteur tubulaire (Glarborg et al. -1998) et au réacteur agité (Dagaut et al. -1998). L'étape dominante dépend des conditions de combustion.

### ***1.1.3-Réglementations***

Les engagements politiques pour réduire les émissions de polluants sont de plus en plus nombreux, parmi ceux-ci, on peut citer : le protocole de Göteborg (1999), les accords de Kyoto (entrés en vigueur en 2005) ou bien, plus récemment, le plan européen sur le climat, dit paquet "énergie-climat" (adopté en mars 2007). Les normes d'émissions, de plus en plus

drastiques, sont basées sur les Meilleures Techniques Disponibles (MTD). Le développement de ces MTD est donc un enjeu sociétal et environnemental, mais également économique pour les fabricants et fournisseurs de matériels de combustion dans l'ensemble des secteurs industriels.

### *1.1.4-Etat des réserves et utilisation des ressources fossiles*

Parallèlement à la maîtrise des rejets de polluants, les contraintes économiques sont également sources de progrès. Les exploitants d'installations de combustion cherchent à diminuer leur consommation de combustible. Ceci est d'autant plus vrai lorsqu'une énergie fossile est utilisée (gaz, pétrole, ...), car son coût est parfois très fluctuant et ses réserves s'épuisent rapidement. La Figure 3 répertorie une estimation des réserves mondiales en gaz naturel et en pétrole. Les réserves les plus importantes de gaz naturel se situent au Moyen Orient, il y resterait environ 230 ans de réserves, partout ailleurs, il resterait moins de 80 ans de réserves de gaz naturel. De même pour le pétrole, les réserves les plus importantes sont aussi au Moyen Orient, cette fois, il resterait moins de 80 ans de réserves, partout ailleurs, il resterait moins de 40 ans de réserves de pétroles. Même si la forte hausse du prix du pétrole alliée à des préoccupations de respect de l'environnement contribue à de nouveaux investissements dans les énergies de substitution (exploitation des sables bitumineux en Alberta au Canada pour récupérer le pétrole, transformation du gaz en pétrole, transformation du charbon en pétrole...), tous ces procédés nécessitent d'utiliser massivement les gaz industriels et représentent un marché très important qui devrait prendre son essor dans les 5 à 10 ans. Il est donc nécessaire de trouver des énergies alternatives aux énergies fossiles, c'est ce que l'on appelle les énergies renouvelables. Cependant, elles restent encore peu utilisées. La Figure 4 résume la consommation énergétique par secteur et par type d'énergie. Les énergies thermiques renouvelables ne représentent que 6.7% de la consommation, cette proportion reste encore à améliorer.

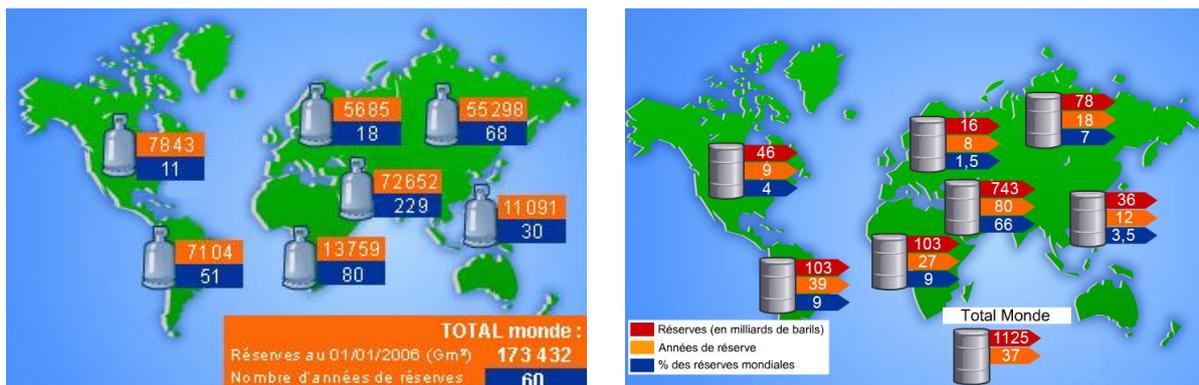


Figure 3 Estimation de l'état des réserves mondiales en gaz naturel et pétrole (Energy Information Administration / Department Of Energy).

### Consommation finale énergétique en 2006 par secteur et par produit (Mtep\*)

Secteur d'activité	Charbon	Produits pétroliers	Gaz	Électricité	Renouvelables thermiques**	Total
Industrie	6,5	6	12,5	11,7	1,25	37,4
Habitat et tertiaire	0,4	14,7	22,6	24	8,9	70,6
Agriculture	0	2,2	0,3	0,3	0,05	2,9
Transports	0	49,1	0,05	1,05	0,7	50,9
<b>Total (Mtep)</b>	6,9	72	35,4	37	10,9	161,7
<b>Part (%)</b>	4,2 %	44,5 %	21,6 %	22,9 %	6,7 %	100 %

Source : Observatoire de l'énergie. Valeurs corrigées du climat.

\* Mtep : mégatep (million de tep).

\*\* Énergies renouvelables thermiques (hors électricité) : bois, déchets, carburants, essentiellement; également solaire thermique, géothermie et autre biomasse.

Figure 4 Consommation énergétique par secteur (Observatoire de l'énergie).

Il est donc nécessaire de rechercher des solutions innovantes pour réduire les émissions polluantes (notamment les NOx), ainsi que les émissions de gaz à effet de serre et améliorer l'efficacité énergétique. Une solution innovante est la combustion sans flamme : ce régime de combustion permet de concilier maîtrise des rejets polluants et de la consommation de combustible. Son principe et ses caractéristiques sont détaillés dans le paragraphe suivant.

## I.2- La combustion sans flamme

La conférence de Kyoto a imposé aux pays industrialisés de réduire leurs émissions de CO<sub>2</sub>. La première approche retenue par les industriels est d'augmenter l'efficacité thermique des fours, ce qui permettra de diminuer les émissions de CO<sub>2</sub> par tonne de produit. Mais, l'augmentation de l'efficacité thermique requiert non seulement, des procédés à haute température, mais aussi des systèmes performants de récupération de chaleur.

Tout au long des années 1970 et 1980, des progrès remarquables, dans le domaine de la récupération de chaleur au niveau du brûleur, ont été réalisés, en Angleterre, grâce notamment aux travaux de British Gas et Hotwork Int. (Masters-1979).

D'autres progrès dans le développement de régénérateurs ont été accomplis au Japon, chez Nippon Furnace Kogyo (NFK), au début des années 1990. Ces nouveaux régénérateurs avec une capacité de type nids d'abeille sont beaucoup plus compacts et possèdent une plus faible inertie thermique (Tanaka-1994, Katsuki-1998). Ils fonctionnent avec des différences de température très faibles (typiquement de l'ordre de 50-100°C), entre la température de sortie du four et la température de préchauffage de l'air de combustion. Ils permettent donc de préchauffer l'air jusqu'à 1200°C en utilisant des produits de combustion à 1250-1300°C, ce qui a ouvert des possibilités d'amélioration de l'efficacité des fours et de réduction de la consommation de combustible.

Toutefois, des températures de combustion élevées conduisent à d'importantes émissions de NOx, c'est pourquoi, des travaux sont nécessaires pour vaincre cet inconvénient tout en continuant, simultanément à perfectionner les régénérateurs.

D'autres développements importants dans ce domaine méritent d'être cités. Au début des années 90, les travaux de Tokyo Gas ont mené au développement du concept d'injection directe du combustible (FDI : Fuel Direct Injection), (Nakamachi-1990). L'idée est d'injecter le combustible gazeux en plusieurs fois dans les produits de combustion chauds. Des idées similaires ont été développées pour l'oxy-combustion au gaz naturel (Kobayashi-1991).

Dans d'autres pays, les développements ont suivis différentes routes. Plutôt que de développer de nouveaux procédés de combustion, les travaux se sont principalement attachés au développement de brûleurs. Le brûleur à oxydation sans flamme (flameless oxidation – FLOX) développé en Allemagne (1991-1992), utilise de nombreux jets d'air qui, avant de se mélanger avec le combustible entraînent les produits de combustion.

En 1991, the International Flame Research Foundation (IFRF) développe une série de brûleurs au gaz naturel afin d'effectuer des études. Les brûleurs possèdent une injection centrale et de multiples injections périphériques. Lorsque le combustible est injecté par les injecteurs périphériques, la combustion est étagée et il a été démontré que les émissions de NOx diminuaient de manière significative. Ce brûleur fonctionne donc sur le concept FDI. Des mesures de flux radiatif sur la flamme étagée de l'IFRF ont montré que le flux était homogène et supérieur à celui obtenu dans le cas d'une combustion classique (Bertolo-1993).

Les séries de développement décrites précédemment, ont conduit à une nouvelle technologie de combustion qui utilise un système efficace de récupération de chaleur, inclus dans le brûleur, permettant de préchauffer l'air de combustion jusqu'à 1200°C. La température de sortie du four est seulement 50-70°C plus grande que la température de préchauffage de l'air (Figure 5). L'injection du combustible dans les produits de combustion chauds est l'élément essentiel de cette nouvelle technologie. Les brûleurs sont utilisés par paire. Il existe différents moyens de réaliser ce type de combustion, c'est pourquoi, le procédé lui-même possède plusieurs noms.

Au Japon, le procédé a d'abord été appelé « Excess Enthalpy Combustion », plus tard, il fut renommé en « combustion sans flamme » ou « combustion à haute température de l'air ». En Allemagne, il a été appelé « oxydation sans flamme », et « Injection bas-NOx » aux Etats-Unis.

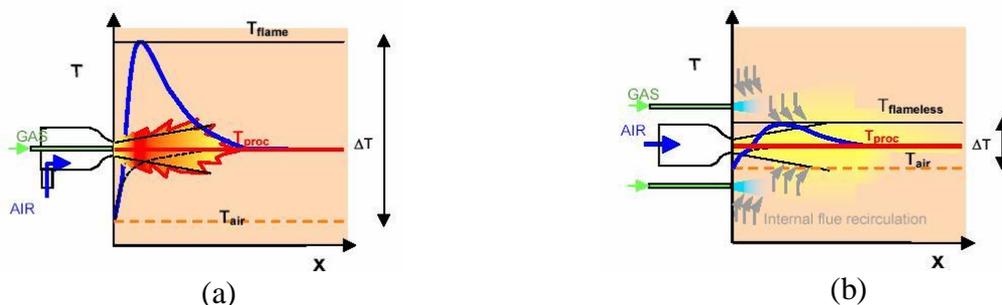


Figure 5 Combustion classique (a) et combustion sans flamme (b), (Milani et Saponaro 2001).

La combustion sans flamme est donc un mode de combustion innovant pour les systèmes industriels puisqu'elle permet à la fois de réduire la consommation de combustible (en préchauffant l'air de combustion) et de diminuer les émissions polluantes (par étagement des

injections). La combustion sans flamme permet donc de répondre au contexte actuel d'efficacité énergétique et de réduction des gaz à effet de serre. Ses caractéristiques seront décrites dans les paragraphes suivants.

Ce régime de combustion est de plus en plus étudié sur des installations expérimentales différentes. Les brûleurs de type co-flow ou co-courant permettent d'étudier les effets de la dilution et du préchauffage (Cabra-2005, Min-2009, Mörtberg-2005, Gupta-1999, Mazas-2009...), et de nombreuses études cinétiques ont lieu dans des réacteurs parfaitement agités ou dans des brûleurs à contre courant (Nicolle-2005, Le Cong-2007, Bauer-2006, Sabia-2006, ...).

Des installations industrielles, semi industrielles ou de laboratoire permettant de reproduire le régime de combustion sans flamme sont aussi étudiées.

Parmi celles-ci, on peut citer les mesures de température, de concentration, de chimiluminescence OH\*, réalisées à la faculté Polytechnique de Mons (Belgique) sur une installation semi-industrielle équipée d'un brûleur FLOX REGEMAT de 200kW (air injecté par de nombreux ports autour de l'injection de combustible) et sur une installation de laboratoire dont le brûleur de 30kW est à injection centrale d'air et deux injections périphériques de combustible, par Lupant et Pesenti (2005-2007). Ces mesures ont permis de mettre en évidence un volume de combustion et des flux plus élevés que dans le cas d'une combustion classique.

De même, Villani et Derudi (2007) ont réalisé des mesures de CO et NOx sur une installation de laboratoire (Politecnico di Milano, Italie), dont le brûleur avec un coflow d'air vicié par des produits de combustion permet de reproduire les conditions diluées du régime de combustion sans flamme et de contrôler le taux de dilution. Les mesures d'émissions de NOx et de CO, ont permis de déterminer un domaine d'existence de la combustion diluée propre, c'est-à-dire émettant peu de NOx et de CO. Cette étude est aussi numérique puisque l'installation a été simulée avec le code commercial CFX par Galletti et Parente (2007).

Donatini (2005), Galletti (2007) et Parente (2008) réalisent l'étude expérimentale (mesures de concentrations des émissions polluantes et température le long des parois-radian) et numérique (EDM/FRC : température en combustion classique et combustion sans flamme, effet du taux de recirculation, analyse des échelles de la turbulence et comparaison de différents modèles cinétiques) sur l'installation de combustion sans flamme d'ENEL Ricerca (Italie) équipée d'un brûleur NFK (injection centrale d'air, deux injections périphériques de combustible). L'impulsion des jets est primordiale puisqu'elle permet d'augmenter la dilution et de diminuer les émissions de NOx.

Szegö et Dally (2009) ont étudié l'effet de la température de préchauffage de l'air (injection centrale), du taux d'aération et de la composition du combustible (4 injections périphériques autour du jet d'air), sur les émissions de NOx, ainsi que sur la température des zones de réaction. Ils ont montré que le taux de recirculation était contrôlé par l'impulsion des jets.

A l'ITV (Aachen), Peters (1998-2004), Plessing (1998), Dally (2004) et Coelho (2001), ont déterminé les zones de réaction grâce à l'étude des températures dans l'enceinte (Mesures Rayleigh) et de l'émission du OH par LIPF, pour un brûleur Rekumat (injection centrale de méthane, multiples injections périphériques d'air). Une étude numérique utilisant le code commercial FLUENT couplé au modèle EPFM (Eulerian Particle Famelet model) a permis de déterminer la vitesse, le temps de résidence, la température et les fractions massiques des espèces, ainsi que le taux de dissipation scalaire. Les auteurs ont mis en

évidence que le champ aérodynamique prédit par ce modèle était en bon accord avec les mesures, même si, cependant, quelques différences ont pu être observées pour la vitesse moyenne et ses fluctuations. Le temps de résidence est, lui aussi, correctement reproduit, sauf dans la région proche brûleur dans laquelle il est sous estimé. Enfin, les auteurs retrouvent le bon ordre de grandeur pour les émissions de NOx.

Honnet (2007) a proposé un schéma cinétique réduit peu coûteux en temps de calcul, permettant d'estimer la température au sein du four de l'ITV, ainsi que les émissions de NOx. Stader et al. (2009) sur une installation de combustion sans flamme utilisant du charbon pulvérisé comme combustible, ont mesuré la vitesse, la température des parois et les émissions de NOx. Les auteurs ont montré qu'il était possible de réduire les émissions de NOx, par rapport à une combustion sans flamme au gaz naturel de 20% à 50% selon le type de charbon utilisé et la richesse du mélange.

A l'International Flame Research Foundation (IFRF) sur une installation semi-industrielle équipée d'un brûleur NFK, Weber (1999) et Adolphi (2005) ont étudié l'effet de la puissance et du type de combustible, grâce à des mesures de concentration, température, flux radiatif et vitesse. Mancini (2006) a simulé, par une association de réacteurs, avec différents modèles cinétiques, l'installation de combustion sans flamme de l'IFRF. Il a montré que, quelque soit le modèle cinétique, les résultats étaient peu différents les uns des autres, ce qui importait vraiment pour pouvoir simuler correctement la combustion sans flamme et retrouver les valeurs déterminés par les mesures était le modèle de turbulence. Il conclut que les codes existants reproduisent mal ce type de combustion parce que la turbulence et principalement la dilution des jets et la trajectoire des jets de combustibles sont mal modélisées.

Chez Gasunie (Pays Bas), Slim (2005) et Piepers (2001) étudient, avec un brûleur JDDC (Jet Driven Dilute Combustion, injection co-axiale d'air et de combustible à grande vitesse) sur une installation dont le volume est variable, l'influence du taux d'aération<sup>1</sup> (pour différents injecteurs) et de la composition du combustible (jusqu'à 75% de H<sub>2</sub>) en terme d'émissions de NOx.

Danon (Université de Delft, 2009) a étudié l'effet de la variation du taux d'aération et du temps d'alternance du brûleur sur son efficacité et sur les émissions de NOx et de CO, pour un four équipé de 3 paires de brûleurs FLOX, dans le but de déterminer la position optimale des brûleurs.

Sur un brûleur NFK, des mesures LIF sur OH et sur acétone, couplées à des mesures d'émission de NOx, ont permis d'identifier la position, et la structure des zones de réaction, ainsi que l'angle des injections de combustible pour limiter les émissions de NOx (Toriumi-2000). L'auteur en a déduit la présence de zones de réaction autour des jets de combustible de type diffusion. Le combustible doit être injecté parallèlement au jet d'air pour favoriser la dilution avant l'interaction des jets et limiter la formation de NOx.

Au KTH, un four semi industriel fonctionnant en oxy-combustion, a permis de caractériser le fonctionnement des principaux brûleurs commerciaux de combustion sans flamme : le brûleur FLOX, le brûleur Regemat et le brûleur Rebox-W. Des mesures de température, par pyromètre à aspiration, de concentrations (CO, CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, NOx, UHC et CH<sub>4</sub>), de flux radiatif ainsi que des simulations ont été réalisées (Narayanan-2005).

Au CORIA, Payet (2007) a réalisé l'étude numérique de l'oxy-combustion diluée : l'effet du schéma cinétique sur les vitesses, épaisseur de flamme, température et concentration a été investigué.

Enfin, chez GDF SUEZ, des mesures de température par thermocouple à fil fin, de concentration, de vitesse (par ADL), de flux et d'émission de chimiluminescence de OH\* et CH\* ont été faites sur une installation semi-industrielle équipée d'un brûleur NFK (Masson-

---

<sup>1</sup> Le taux d'aération est l'inverse de la richesse

2005). Ces mesures ont permis de mettre en évidence les processus de stabilisation de la combustion sans flamme, ainsi que les modes d'établissement des recirculations et de la dilution, et leurs impacts sur la combustion et les émissions de NOx.

Ces études ont permis de mettre en évidence les caractéristiques de la combustion sans flamme. Celles-ci sont détaillées dans les paragraphes suivants.

### ***1.2.1-Préchauffage de l'air – Utilisation de brûleurs régénératifs***

L'utilisation de brûleurs régénératifs dans un four de métallurgie permet de réduire la consommation de combustible. En effet, le préchauffage de l'air de combustion permet une économie d'énergie non négligeable.

Les premières utilisations des brûleurs régénératifs remontent à 150 ans, cependant, les fortes émissions de polluants associées à ce mode de combustion à haute température, et des normes de plus en plus contraignantes, ont rapidement limité l'emploi de ce type de brûleur. Depuis quelques dizaines années, ce concept, associé à des techniques de réduction d'émission de NOx, a connu un regain d'intérêt, et trouvé des applications dans plusieurs secteurs industriels notamment en verrerie et en sidérurgie. Les brûleurs régénératifs constituent aujourd'hui le système de récupération d'énergie des fumées le plus performant.

Une unité de brûleurs est composée de deux injecteurs comportant chacun une capacité thermique et fonctionnant alternativement comme brûleur ou comme évacuateur (Figure 6 (a)). Le fonctionnement est cyclique. Dans la première moitié du cycle l'injecteur n°1 fonctionne comme injecteur et l'injecteur n°2 comme évacuateur. Au passage de l'injecteur-évacuateur, les produits de combustion cèdent leur chaleur à la capacité thermique. Lors de la seconde moitié du cycle, l'injecteur n°2 fonctionne comme brûleur et l'injecteur n°1 comme évacuateur. L'air est préchauffé dans le brûleur grâce à la capacité thermique précédemment chauffée et peut atteindre des températures allant jusqu'à 1200°C (Wünning-1992).

De nouveaux équipements fonctionnant suivant ce principe ont été développés. Ce sont les brûleurs auto-régénératifs. Ils sont illustrés Figure 6 (b). Dans ce cas, il n'y a plus qu'un seul brûleur dont la capacité thermique a été divisée en deux capacités distinctes et le système d'inversion est intégré au brûleur. Le fonctionnement de ce type de brûleur est identique au fonctionnement d'un brûleur régénératif classique. Lors de la moitié du cycle, la moitié des injecteurs d'air évacuent les fumées. Au cours de la seconde moitié du cycle, les injections ayant servi d'évacuation sont utilisées pour injecter l'air qui se réchauffe au passage de la capacité thermique.

Ce type de brûleur permet de réduire la consommation de combustible. Milani (2001) a montré que l'utilisation d'une capacité thermique pour préchauffer l'air de combustion permettait de réduire de moitié la consommation de combustible par rapport à une combustion classique sans récupération de la chaleur des fumées (Figure 7 (a)). En pratique, Katsuki et Hasegawa affirment que si ce procédé était appliqué à l'ensemble des fours industriels au Japon, la consommation nationale totale en énergie diminuerait de 5% (Katsuki et Hasegawa-1998).

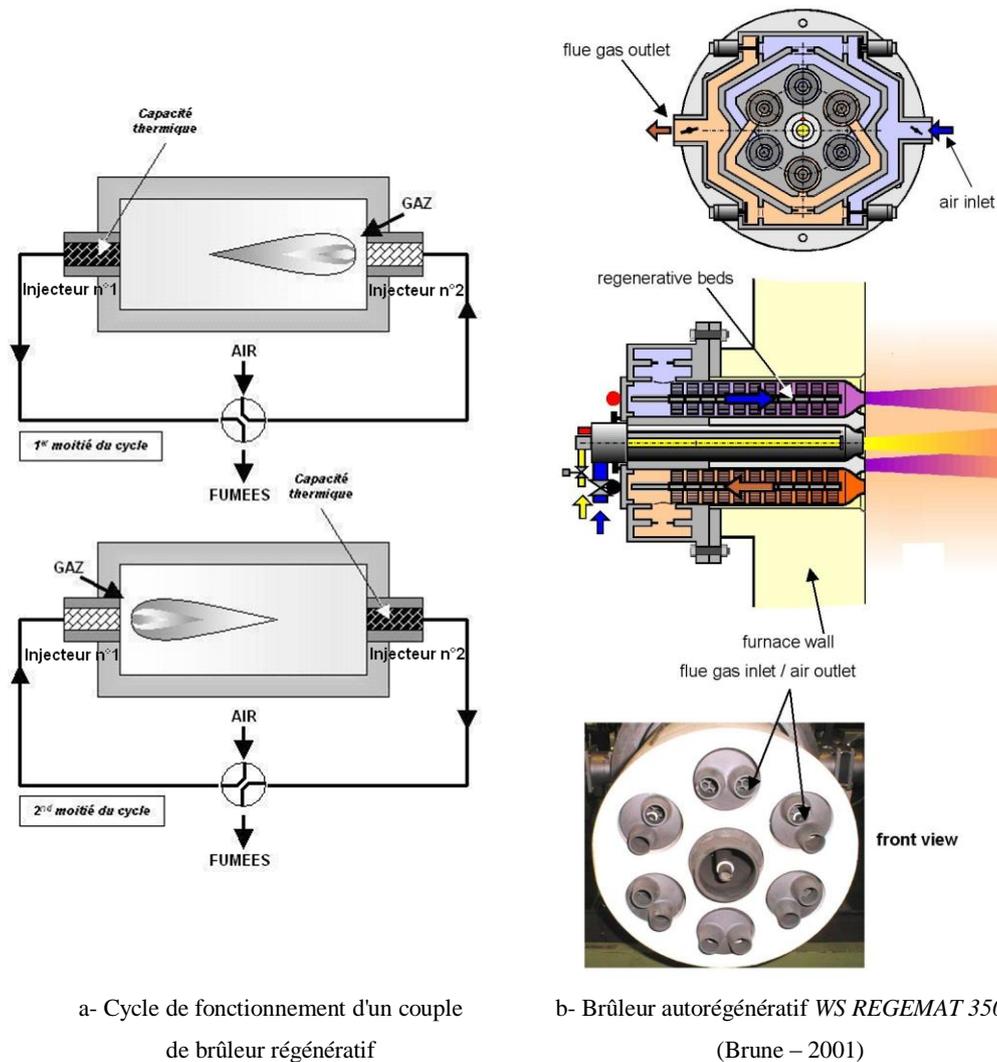
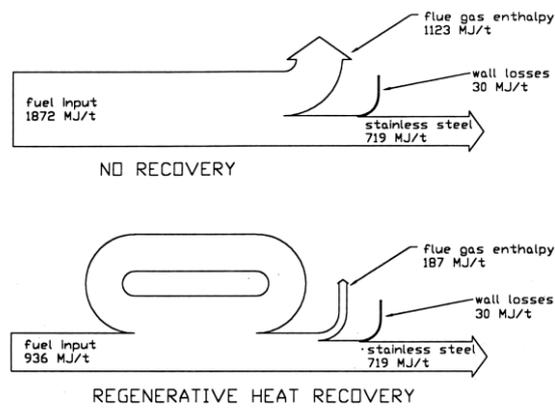


Figure 6 Brûleurs régénératifs et brûleurs auto-régénératifs.

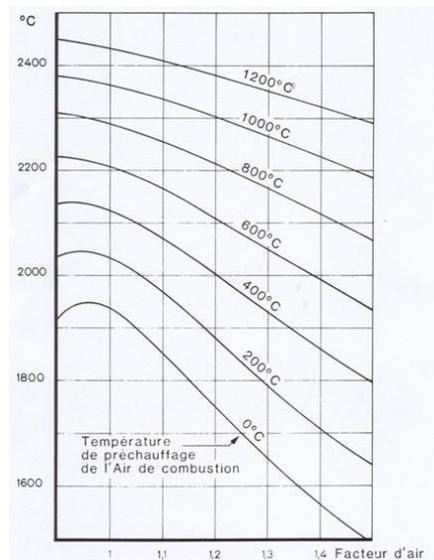
Cependant, le préchauffage de l'air provoque une augmentation très importante de la température adiabatique de flamme (Figure 7(b)) et donc des émissions d'oxyde d'azote (Figure 7(c)). Ainsi il faut chercher à diminuer la température locale de manière à minimiser la formation d'oxyde d'azote par voie thermique.

Une des méthodes pour diminuer la température est de diluer les réactifs avec des gaz inertes, dans la configuration de fours industriels, cette dilution peut être assurée par les gaz brûlés recirculant dans l'enceinte du four.

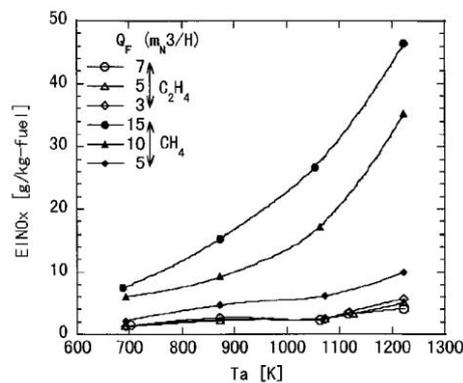
En effet, si on se réfère à la Figure 5 qui compare une combustion classique (avec un jet de carburant et un co-flow d'air non préchauffé) avec la combustion sans flamme, on peut remarquer que pour la combustion sans flamme, qui est diluée par les gaz brûlés inertes avant réaction, l'élévation de température au sein de la « flamme » est faible (contrairement à une combustion classique qui présente une importante élévation de température au sein de la flamme). La dilution par les produits de combustion avant la réaction permet de contrebalancer l'emploi d'air préchauffé.



(a) Comparaison entre un four de métallurgie équipé de brûleurs classiques et de brûleurs régénératifs (Milani-2001).



(b) Température adiabatique d'une flamme de méthane en fonction du taux d'aération et de la température de préchauffage.



(c) Effet de la température de préchauffage de l'air sur le niveau d'émission en oxyde d'azote (Fugimori-2000).

Figure 7 Avantages et inconvénients du préchauffage de l'air de combustion.

### ***1.2.2-Recirculation massive des produits de combustion dans l'enceinte du four et dilution des réactifs avant la combustion***

La recirculation des produits de combustion permet de diluer les réactifs. L'entraînement par les jets, des gaz recirculants, augmente la température des réactifs et la proportion d'inertes dans la zone de mélange combustible-comburant. La concentration en oxygène dans le jet de comburant diminue rapidement et par conséquent, on observe une augmentation du temps caractéristique de réaction. En revanche, la forte impulsion des réactifs permet de diminuer le temps caractéristique de mélange en créant un degré de turbulence important. Le temps du mélange devient comparable au temps caractéristique de la réaction.

La dilution réduit les températures maximales et donc la production de NO émis par voie thermique.

La combustion sans flamme est une combustion diluée, en effet, de faibles concentrations en oxygène et en monoxyde de carbone dans les zones de réaction sont un indicateur de la dilution. Les mesures de concentration en O<sub>2</sub> et en CO réalisées sur l'installation semi-industrielle de l'IFRF (Figure 8-a), ont mis en évidence de très faibles valeurs. De même, Lupant et al. (2005) ont montré que pour leur four, fonctionnant en régime de combustion sans flamme, les valeurs de CO, même dans les zones de réaction, sont très faibles. Enfin, Masson (2005), sur l'installation semi industrielle de GDF SUEZ a aussi mesuré des valeurs de CO inférieures à 3% dans les zones de réaction (Figure 8-c).

On peut alors définir la combustion sans flamme à partir du taux de recirculation des fumées et de la température du four. Le taux de recirculation des fumées ( $K_V$ ) est défini par

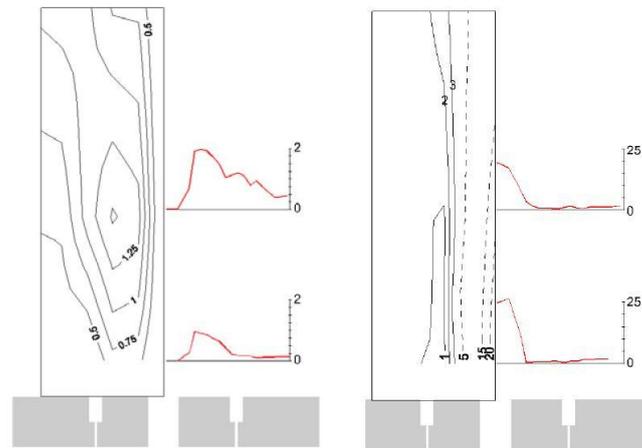
$$K_V = \frac{\dot{m}_r}{\dot{m}_A + \dot{m}_F}$$

Avec :

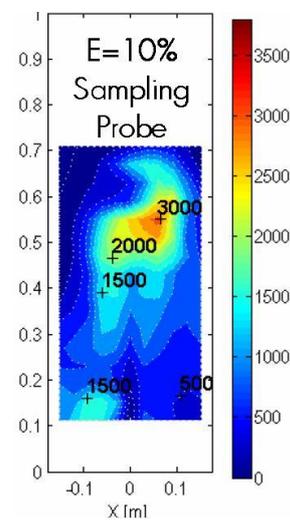
$\dot{m}_A$  : débit massique de l'air injecté,

$\dot{m}_F$  : débit massique du combustible injecté,

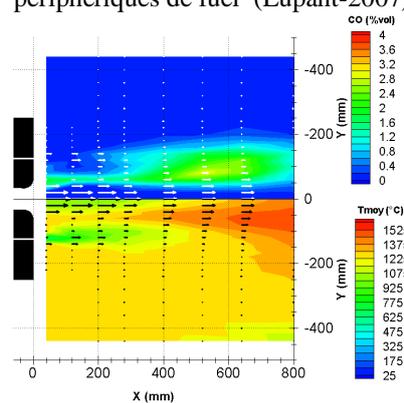
$\dot{m}_r$  : débit massique des produits de combustion recirculant.



(a) Champ de CO (à gauche) et d'O<sub>2</sub> (à droite), % vol sur fumées sèches, brûleur NFK (IFRF)



(b) Champ de CO, injection d'air au centre et deux injections périphériques de fuel (Lupant-2007)



(c) Champ de CO et de température moyenne, brûleur NFK (Masson- 2005)

Figure 8 Champs de concentrations en CO et O<sub>2</sub>.

Le diagramme Figure 9 établi par Wüning, illustre les différents régimes de combustion en fonction de la température du four et du taux de recirculation.

Les flammes stables sont possibles dans toute la gamme de température de la chambre de combustion, mais seulement pour des taux de recirculation faibles (inférieurs à 1).

Pour des taux de recirculation plus importants et des températures inférieures à la température d'auto inflammation du gaz naturel (800°C), la flamme va devenir instable, se décrocher et finalement se souffler.

Cependant, si la température du four et le taux de recirculation sont suffisamment élevés, le combustible peut réagir sous une forme très stable: la combustion sans flamme.

Comme on peut le voir sur le diagramme, l'obtention du régime de combustion sans flamme dans une chambre de combustion froide n'est pas possible. L'enceinte doit être préalablement chauffée avec une flamme pour pouvoir atteindre le régime de combustion sans flamme.

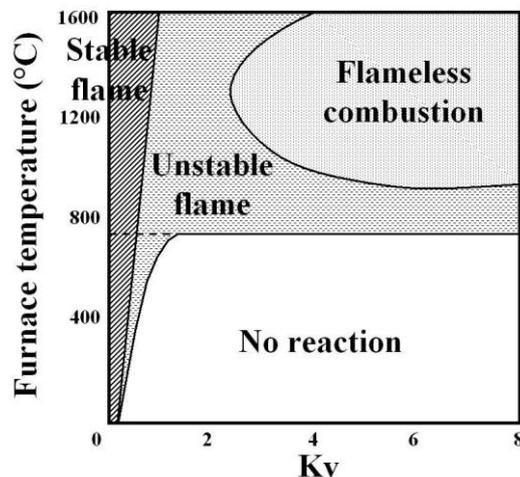


Figure 9 Diagramme de régime de flamme en fonction de la température du four et du taux de recirculation des fumées, (Wüning-1997).

Dally et al. (2004) ont simulé l'installation de combustion diluée de l'ITV (Aachen, Allemagne) avec le modèle EPFM (Eulerian particle flamelet model). Ce modèle résout les équations de flammelles stationnaires et est couplé à un code CFD non structuré. La Figure 10 représente le taux de dissipation scalaire obtenu sur une section horizontale à 50 mm et 200 mm du brûleur. Les contours représentant une fraction de mélange égale à la stoechiométrie sont dessinés en noir. Dally et al. ont remarqué que la dilution diminue la zone stoechiométrique, et que la zone de forte dissipation scalaire est plus importante par rapport au cas du méthane pur.

La dilution est un mécanisme qui permet d'éteindre la flamme en amont, ce qui permet aux jets de se mélanger avec les gaz brûlés recirculants avant réaction.

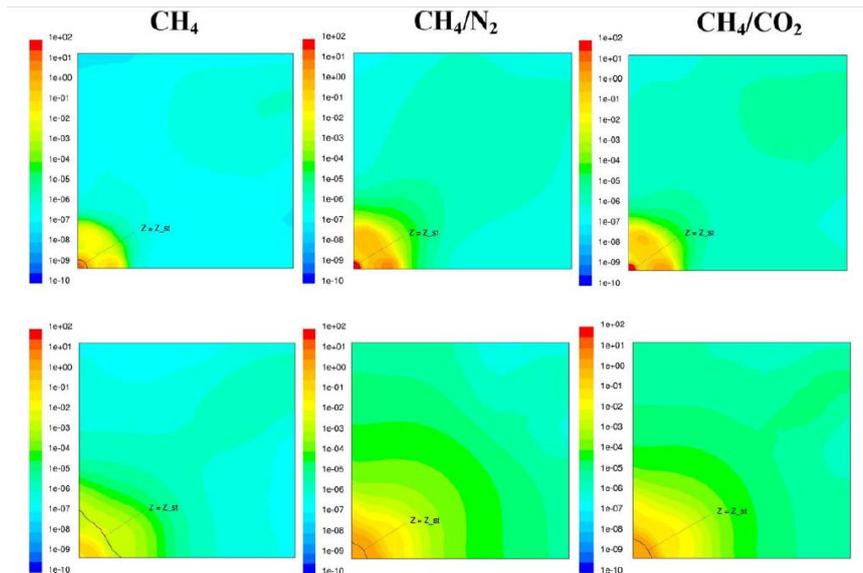


Figure 10 Taux de dissipation scalaire calculé grâce au modèle numérique EPFM, plans horizontaux représentant un quart du four à 50mm du brûleur (en haut), et à 200mm (en bas), (Dally-2004).

### *1.2.3-Limites d'inflammabilité et mécanisme d'extinction : interaction chimie/turbulence*

Plessing et al (1998) ont comparé les émissions de NO<sub>x</sub> de la combustion diluée avec des flammes prémélangées hautement turbulentes mais avec moins de plissement dans la zone de réaction. Ils ont souligné le fait que l'interaction entre la turbulence et la chimie doit avoir un rôle important sur la propagation et la structure de la flamme. Özdemir et Peters (2001) ont réalisé des mesures de vitesse, de température et de OH-LIPF (Laser Induced Predissociative Fluorescence) pour des flammes prémélangées et non prémélangées dans le même four que Plessing. Ils ont trouvé que l'impulsion du jet de combustible avait un impact significatif sur la distance entre la zone de réaction et la sortie du brûleur.

Cependant, la dilution du jet par des inertes permet d'atteindre le régime de combustion diluée en empêchant la stabilisation d'une zone de réaction en sortie de brûleur.

Les gaz brûlés recirculants, entraînés par les jets, viennent augmenter le pourcentage d'inertes dans le mélange de gaz frais, de telle manière que la cinétique chimique devient suffisamment lente, avec des échelles de temps comparables aux échelles de temps de l'écoulement. Ce qui fournit suffisamment de temps aux jets pour se mélanger avec les gaz brûlés et donc pour se chauffer au contact des gaz brûlés avant de se mélanger entre eux et de former une zone de réaction plus en aval de l'écoulement (Özdemir et Peters-2001).

### I.2.4-Absence de flamme visible et de formation de suies

Une des conséquences de la combustion diluée est que les espèces responsables des émissions lumineuses des flammes sont tellement diluées que la flamme devient invisible, d'où son nom. La Figure 11 représente le four du CSM (Italie) fonctionnant au gaz naturel soit en combustion classique (a) soit en combustion sans flamme (b). Pour une même puissance de brûleur (1.5MW), c'est-à-dire pour le même débit de combustible injecté, deux types de combustion complètement différents peuvent être observés.

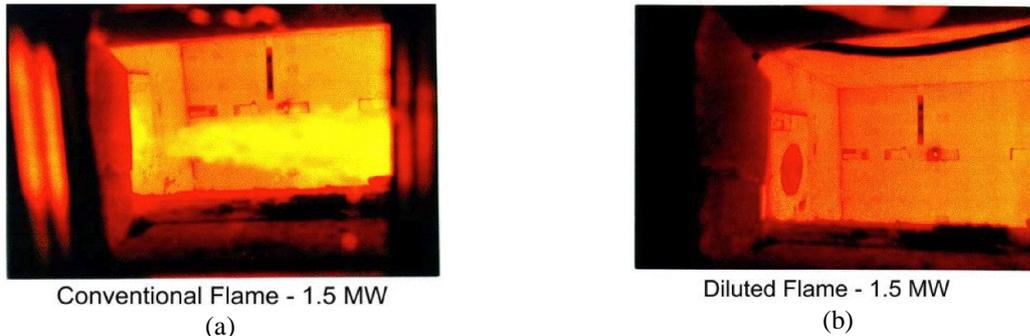


Figure 11 Comparaison d'une combustion avec et sans flamme (Milani et Saponaro, 2001).

La formation des suies dépend fortement de la température et de la dilution. Elle est favorisée seulement dans une gamme intermédiaire de température (Wagner-1993). La Figure 12 (a) présente la fraction de suies formée par une réaction de combustion en fonction de la température dans la zone de réaction. Les suies sont principalement formées dans des zones de réaction où la température est voisine de 1800K.

La Figure 12 (b) montre la fraction volumique de suies formées en fonction de la hauteur en sortie de brûleur pour différentes dilutions. Des temps de résidence plus long sont nécessaires pour commencer à former des suies, et une quantité moins importante de suies est formée dans des conditions diluées (Guo-2002).

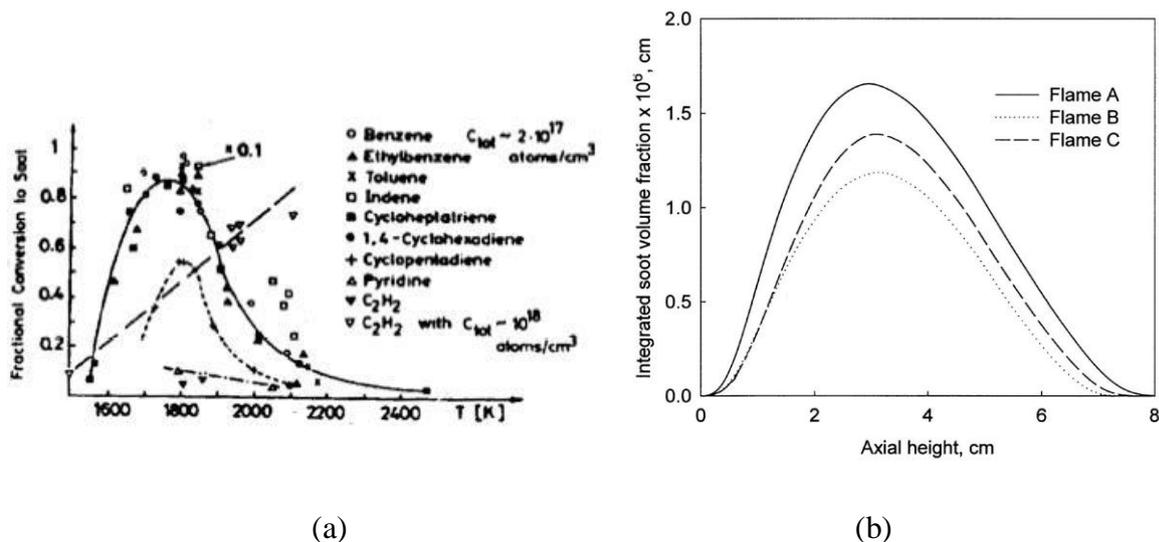


Figure 12 Production de suies en fonction (a) de la température (Wagner, 1993) et (b) de la dilution (Guo, 2002), Flame A : flamme éthylène/air, Flame B : flamme éthylène/air avec 30% mol d'argon, Flame C : flamme éthylène/air avec 30% mol d'hélium.

La « disparition » de la flamme n'est pas le seul phénomène notable, on peut aussi observer que la flamme devient « silencieuse ». Cette absence de bruit avait déjà été remarquée par Wüning (Figure 14). En effet, la combustion sans flamme n'est pas plus bruyante qu'une injection d'air.

### *1.2.5-Homogénéité de température, absence de bruit*

Une des caractéristiques essentielle du régime de combustion sans flamme est l'homogénéité du dégagement de chaleur et aussi du transfert. En effet, la température est homogène au sein du four. Elle présente donc peu de variations spatiale (Figure 13) et temporelle (Figure 14) de température. L'absence de front de flamme mince et fluctuant provoque une absence de bruit (Figure 14). Avec la combustion diluée, la température est homogène, les pics de température disparaissent et les gradients thermiques deviennent faibles.

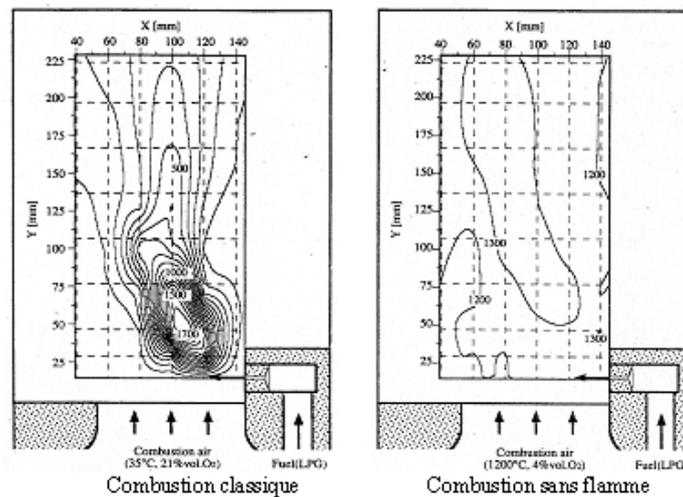


Figure 13 Distribution spatiale de température (Ishiguro-1998).

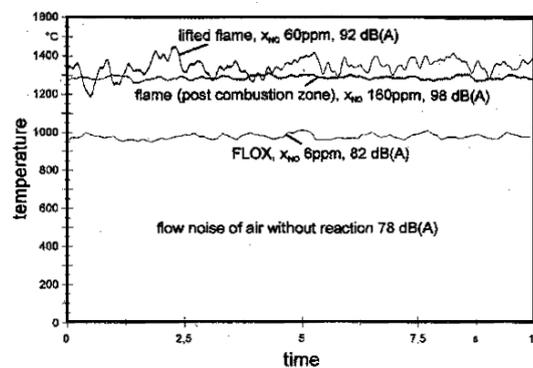


Figure 14 Mesures temporelles de température et de bruit, (Wüning-1999).

### ***1.2.6-Zones de réaction : localisation et stabilisation***

En diluant, la stabilisation de la combustion devient de plus en plus difficile. La transition entre flamme instable et combustion sans flamme est mal délimitée. C'est pourquoi il est nécessaire d'étudier les zones de réaction.

#### ***1.2.6.1- Zones de réaction***

Masson grâce à l'étude des concentrations en CO (Figure 15-a) et de l'émission de chimiluminescence OH\* (Figure 15-b), deux espèces produites lors du processus de combustion, a mis en évidence deux zones de réaction distinctes (Masson-2005).

La zone de réaction primaire (Figure 15-b, zone "a") dont l'intensité est faible, assure l'accrochage de la flamme. Elle se situe dans la région riche en combustible, dans le vortex centrifuge généré par l'effet de sillage derrière l'injection d'air. La température est légèrement plus élevée que dans les zones non réactives.

La zone de réaction secondaire (Figure 15-b, zone "b") située dans les deux couches de mélange entre le jet d'air et les deux jets de gaz naturel. L'étude de la température nous permet d'affirmer que le plus fort dégagement de chaleur a lieu dans cette zone.

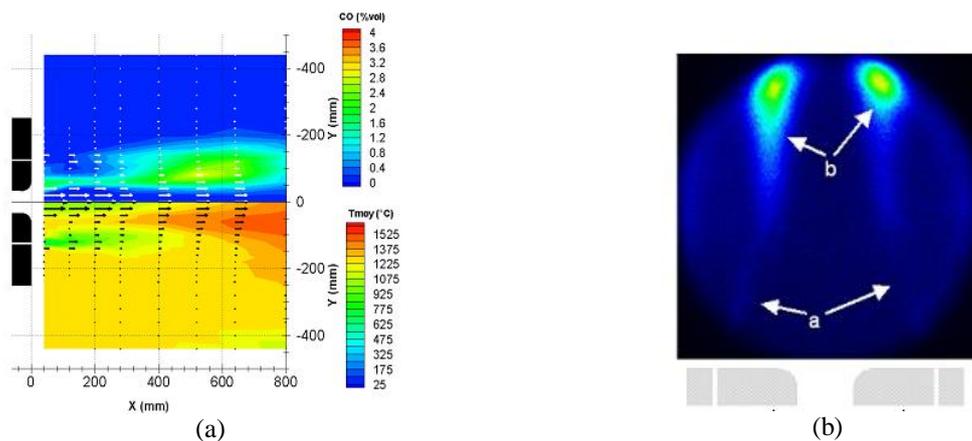


Figure 15 (a) Concentration en CO et champ de température, (b) Image instantanée de chimiluminescence OH\* -a zone primaire de réaction, -b zone secondaire de réaction (Masson-2005).

Toriumi, quant à lui, à réalisé des mesures de LIF sur OH et acétone dans une installation fonctionnant en régime de combustion sans flamme équipée d'une paire de brûleur NFK avec une injection centrale d'air et deux injections périphériques de combustible (Toriumi-2000). La Figure 16 montre la distribution, en sortie de brûleur, des radicaux OH\* et des gaz frais (combustible+acétone) pour de l'air préchauffé à 1100°C. Cette figure suggère qu'une zone de réaction peut être présente autour des jets de combustible et que cette zone de combustion se comporte comme une flamme de diffusion.

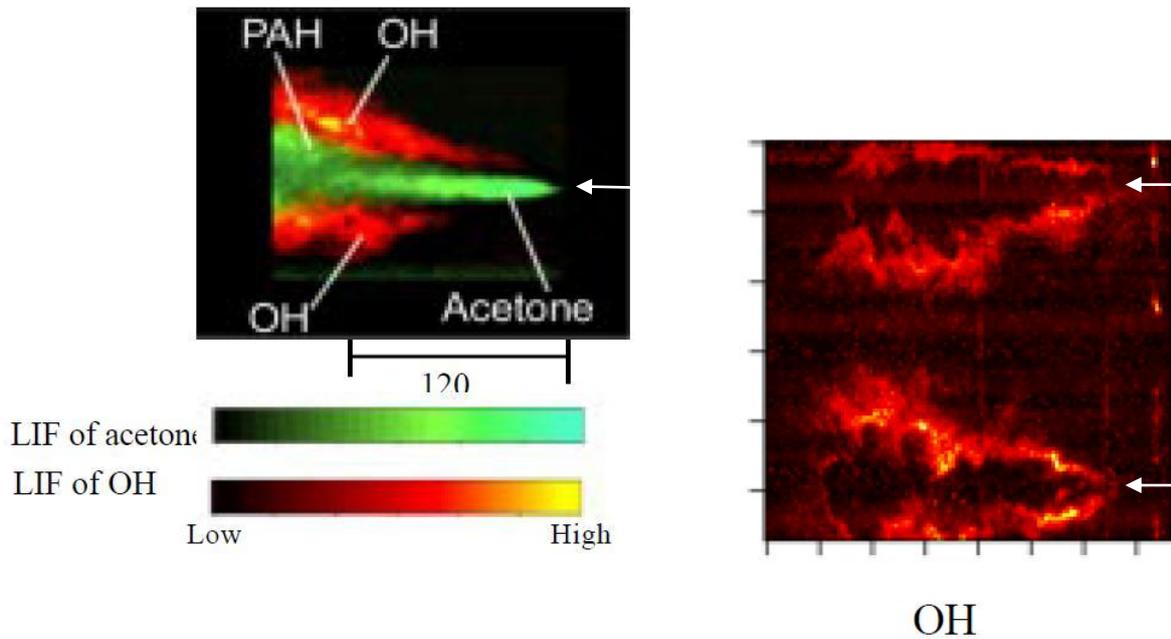


Figure 16 Distribution des gaz frais (combustible+acétone) et de la zone de combustion (OH), autour d'un jet de combustible (a), zone de combustion (OH) autour des jets de combustibles (b), pour une température de préchauffage de l'air de 1100°C, un taux d'aération  $\lambda=1.2$ , un débit d'air  $Q_{air}=60 \text{ m}^3(\text{n})/\text{h}$  et un débit de fuel (LPG)  $Q_{fuel}=2\text{m}^3(\text{n})/\text{h}$ , les flèches blanches représentent la position des injections de combustible (Toriumi-2000).

### I.2.6.2- Stabilisation des zones de réaction

L'étude de la chimiluminescence du radical OH\* a permis de mettre en évidence deux modes de stabilisation des zones de réaction.

- Accrochage de la flamme pour le brûleur à injection d'air centrale, mis en évidence sur le brûleur d'essai semi-industriel de Gaz de France (Figure 15, Masson-2005).
- Zone de réaction décrochée du brûleur (avec tendance à se raccrocher quand la température du four augmente) pour le brûleur à injection centrale de gaz naturel (Lupant-2005).

En effet, l'augmentation de la température de four entraîne un rapprochement de la zone à forte concentration de monoxyde de carbone vers le brûleur, caractérisant ainsi un accrochage de la flamme à la sortie du brûleur (Figure 17).

Cependant, ces brûleurs fonctionnent en mode de combustion sans flamme, il semble que les modes de stabilisation n'influencent pas ce régime de combustion.

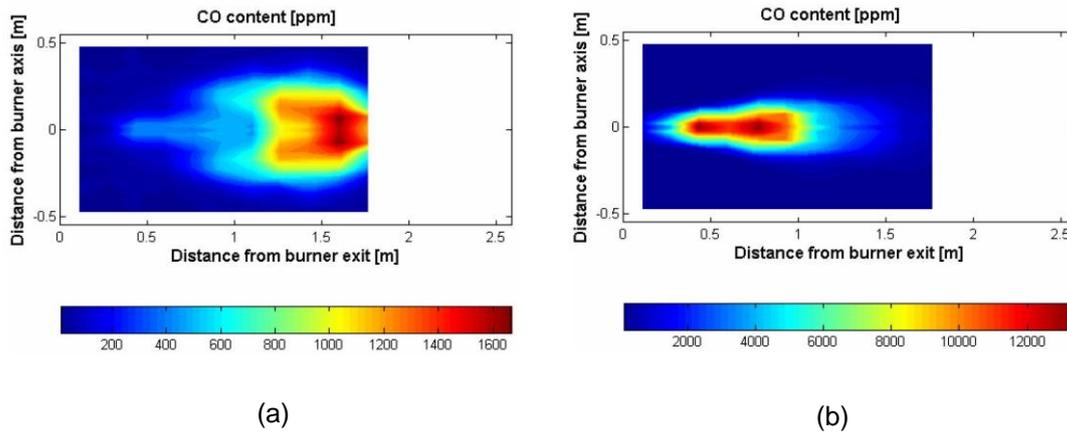


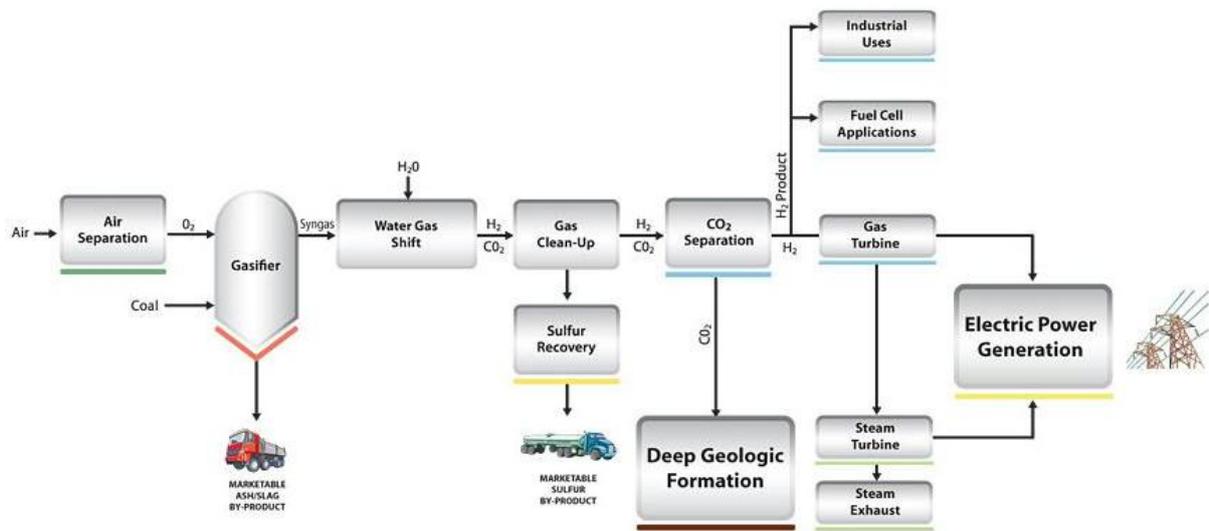
Figure 17 Champ de concentration de monoxyde de carbone mesurés durant les essais menés sur un brûleur WS REGEMAT.  
Température du four : (a) 1100°C, (b) 1300°C (Lupant-20)

### I.3- Etude des mélanges méthane - hydrogène

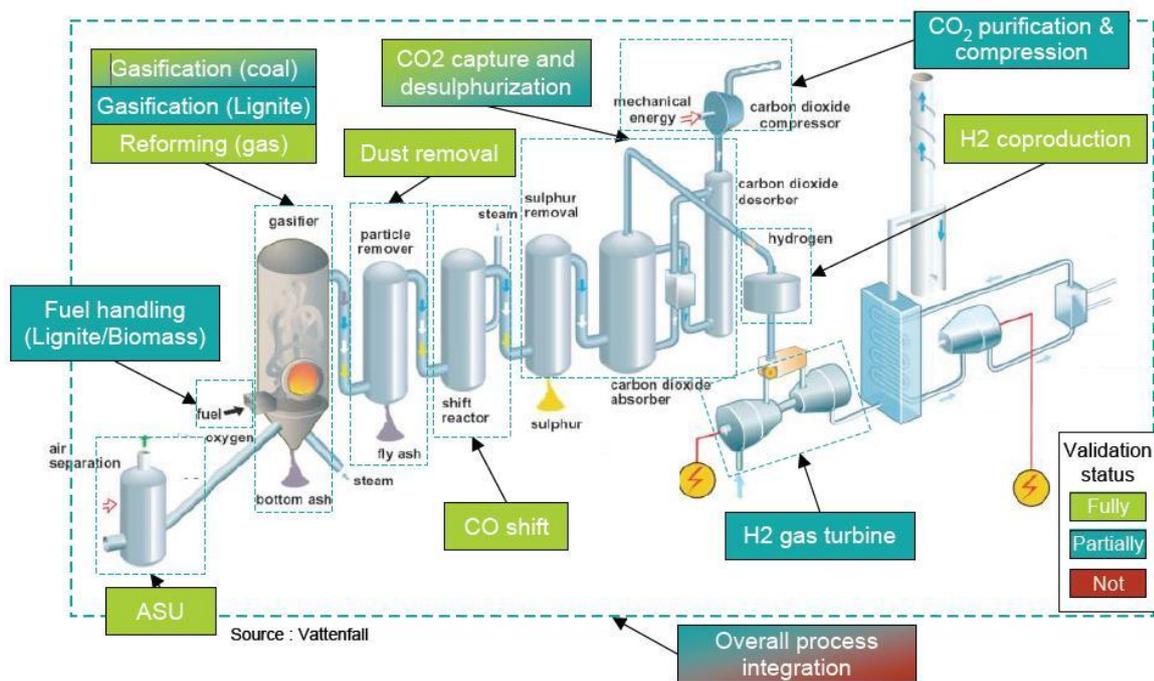
L'utilisation d'hydrogène comme combustible est intéressante pour plusieurs raisons. Tout d'abord, le seul produit de combustion de l'hydrogène est l'eau. Son utilisation permet donc d'éliminer l'émission de dioxyde de carbone à l'endroit où se situe l'installation de combustion. De plus, il sera alors possible d'utiliser des combustibles qui contiennent une grande quantité d'hydrogène dans le but de produire de l'énergie et de la chaleur tout en produisant peu d'émissions polluantes, en ayant une grande efficacité thermique et un processus peu coûteux. Par exemple, le gaz de cokerie (gaz récupéré comme sous-produit de la carbonisation du coke dans les cokeries minières ou sidérurgiques) contient une grande quantité de H<sub>2</sub> (CH<sub>4</sub> 40%-H<sub>2</sub> 60%). Il est pour le moment brûlé dans une chaudière, alors qu'il pourrait être aussi réutilisé comme combustible pour les fours industriels.

Une manière de produire de l'hydrogène sans émettre de CO<sub>2</sub> ou de NO<sub>x</sub> pourrait être le processus appliqué des projets tels que les projets US FutureGen ou européen ZEP (Figure 18), qui permettraient, à partir de charbon ou de gaz naturel de produire de l'électricité, de la chaleur et de l'H<sub>2</sub>.

L'installation IGCC (Integrated Gasification Combined Cycle) permettra, en gazéifiant le charbon (ou en reformant le méthane) avec de l'oxygène de produire du gaz de synthèse H<sub>2</sub> + CO. Ce dernier étant transformé en CO<sub>2</sub> grâce à l'ajout de vapeur d'eau. Le CO<sub>2</sub> sera alors séparé du H<sub>2</sub>, puis capturé et séquestré en sous-sol. Enfin, l'hydrogène produit pourra être utilisé dans des turbines à gaz et des turbines à vapeur pour produire de la chaleur et de l'électricité. L'hydrogène pourrait aussi être utilisé comme vecteur d'énergie sur des installations industrielles délocalisées.



(a) projet FutureGen



(b) projet ZEP (Zero Emission Fossil Fuel Power Plants)

Figure 18 Projets permettant de produire de l' $H_2$  sans émettre de  $CO_2$  (FutureGen et ZEP).

Cependant, la forte réactivité et le très grand pouvoir calorifique de l'hydrogène le rend difficile à contrôler. Mais l'hydrogène peut être utilisé pour faciliter l'allumage des carburants à faible pouvoir calorifique. La cinétique d'oxydation de l' $H_2$  va interagir de manière significative avec le procédé de combustion diluée. L'ajout d'hydrogène diminue le temps chimique et réduit la zone dans laquelle le mélange possède un temps de turbulence faible.

L'hydrogène est un composé nettement plus réactif que le méthane. En effet, la vitesse de flamme laminaire de l'hydrogène dans l'air est 6 fois plus grande que la vitesse de flamme laminaire du méthane (Figure 19). Et la masse volumique de l'hydrogène est très faible ( $0.0899\text{kg/m}^3$  à  $0^\circ\text{C}$ , contre  $0.717\text{kg/m}^3$  pour le  $\text{CH}_4$ , Tableau 2).

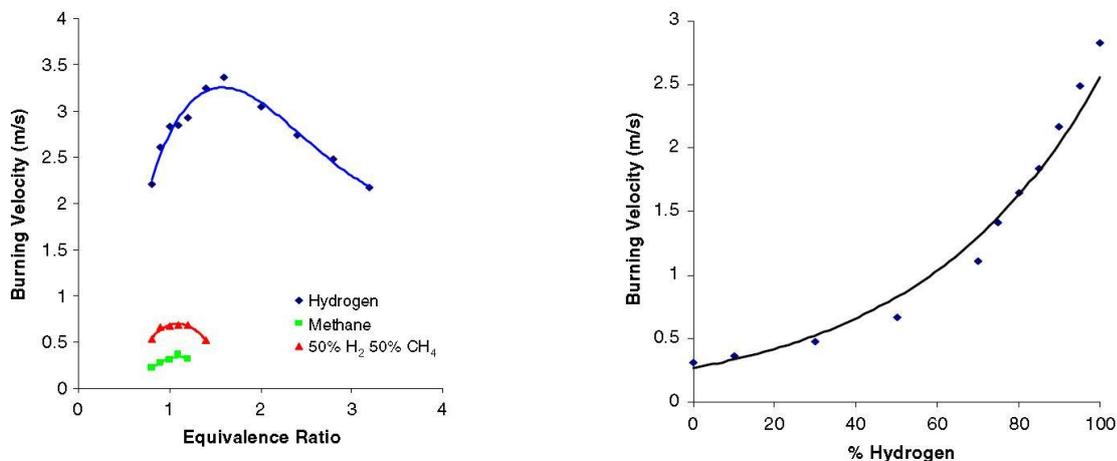


Figure 19 Vitesse de flamme laminaire du méthane et de l'hydrogène en fonction de la richesse (à gauche) et du pourcentage d'hydrogène dans le mélange stœchiométrique à température ambiante et pression atmosphérique (à droite), (Ilbas-2006)

L'hydrogène n'est pas un gaz toxique, mais il est inflammable et explosif. L'usage de l'hydrogène n'est donc pas forcément plus dangereux que celui du gaz naturel, cependant le risque est un peu différent. Il faut donc en tenir compte dans la conception des installations.

L'hydrogène est 8 fois plus léger que le méthane et sa molécule, très petite, lui confère un très bon coefficient de diffusion dans l'air (près de 4 fois celui du méthane). En milieu non confiné, l'hydrogène a donc tendance à monter et à se diluer très vite dans l'air, ce qui est un facteur de sécurité.

L'hydrogène est l'espèce chimique la plus énergétique par unité de masse. En revanche, par unité de volume de gaz, l'énergie explosive théorique est 3.5 fois plus faible pour l'hydrogène que pour le méthane. Sa limite inférieure d'inflammabilité (concentration en deçà de laquelle le mélange air-hydrogène n'est pas inflammable), est de 4% en volume, comparable à celle du gaz naturel (5% en volume). En revanche, sa limite supérieure d'inflammabilité (concentration au-delà de laquelle un mélange n'est plus inflammable) est nettement plus élevée (75% contre 15%). L'énergie nécessaire pour l'enflammer à la stœchiométrie est également nettement plus faible que pour le gaz naturel (environ 10 fois). La flamme d'hydrogène est bleue très pâle, quasi-transparente, elle rayonne peu dans le visible, de ce fait, peut être plus difficile à détecter.

	Gaz naturel (méthane CH <sub>4</sub> )	Hydrogène H <sub>2</sub>
Masse molaire (g/mol)	16	2
Masse volumique (conditions atmosphériques) (en kg/m <sup>3</sup> )	0.7	0.08
Chaleur de combustion (inférieure) (en kJ/g)	50	120
Limite du domaine d'inflammabilité dans l'air (en % vol)	5.3-15.0	4.0-75.0
Energie minimale d'inflammation (en mJ, pour mélange stœchiométrique à pression et température ambiante)	0.29	0.02
Température d'auto-inflammation (en °C)	540	585
Température de flamme (en °C)	1875	2045
Limite de détonabilité (en % vol)	6.3-13.5	13-65
Energie explosive (en kg TNT/m <sup>3</sup> )	7.03	2.02
Coefficient de diffusion dans l'air (en cm <sup>2</sup> /s)	0.16	0.61
Vitesse de flamme dans l'air (cm/s)	37	260
Vitesse de détonation dans l'air (km/s)	1.8	2

Tableau 2 Propriétés chimiques du méthane et de l'hydrogène (source Association Française de l'Hydrogène).

La limite d'inflammabilité basse se situe à 4 vol% d'hydrogène dans l'air. Un certain nombre de facteurs influencent cette limite: le sens de propagation de la flamme, la présence de gaz inertant (qui ont un effet allant dans le sens de la réduction de la combustion), la pression et la température.

Même si les études portant sur l'hydrogène sont de plus en plus nombreuses, elles sont très rares sur l'utilisation de l'hydrogène en combustion sans flamme. Elles peuvent être classées en trois catégories :

- Les études cinétiques, dans des réacteurs parfaitement agités, sont les études les plus nombreuses (Sabia-2006, Nicolle-2005). Cependant, ce sont celles qui s'éloignent les plus des conditions réelles de fonctionnement des installations industrielles.
- Les études expérimentales dans des fours (ou des installations) de différentes échelles se rapprochent les plus des conditions de fonctionnement en industrie, mais il n'existe pas d'études détaillées mis à part les mesures réalisées à l'IFRF pour le gaz de cokerie seulement (Villani et Derudi-2006, Slim-2005, Donatini-2005, Gupta-1999).
- Les simulations numériques (Nicole-2005, Galletti et Parente-2007, Donatini-2007) commencent à apparaître dans la bibliographie. Toutefois, les codes de calcul n'ont généralement été validés qu'à partir d'un cas au méthane pur ou à partir de valeurs entrée/sortie.

Les paragraphes suivant reprennent les principales caractéristiques du régime de combustion sans flamme afin d'analyser comment elles peuvent être influencées par l'ajout d'hydrogène.

### 1.3.1-Impact de l'ajout d'hydrogène sur les émissions de NOx

Dans cette partie, nous nous attacherons à étudier l'impact sur les émissions en oxyde d'azote de la substitution d'une partie du méthane par de l'hydrogène.

Pour un mélange hydrogéné donné, l'augmentation de la température de préchauffage de l'air conduit à une augmentation de la production de NOx.

Cette tendance est illustrée grâce aux mesures réalisées sur l'installation de combustion diluée de Politecnico di Milano et résumées par la Figure 20. Cette installation permet de reproduire le régime de combustion sans flamme en brûlant du combustible avec de l'air chaud initialement dilué par une grande quantité d'inertes. La quantité d'inertes est contrôlée de manière à faire varier le taux de dilution.

La Figure 20 représente les émissions de NOx en fonction du taux de dilution pour différentes températures de préchauffage de l'air, pour les mélanges CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> 70/30% (figure a) et 40/60% (figure b) en volume.

De même, pour une composition du mélange combustible et une température de préchauffage de l'air données, les émissions de NOx diminuent lorsque le taux de dilution augmente.

Ces deux tendances sont similaires à celles observées pour la combustion sans flamme au méthane.

De plus, la figure (b) met aussi en évidence que les températures de préchauffage faibles réduisent le taux d'oxydation du combustible et augmentent le temps caractéristique de combustion. De ce fait, les combustibles hautement réactifs, tel que l'hydrogène, peuvent avoir le même comportement que le méthane: produire de très faibles émissions de NO et obtenir une combustion diluée stable à différents taux de recirculation.

Il faut cependant noter que plus le mélange contient de l'hydrogène, plus le taux de recirculation doit être élevé pour atteindre des émissions de NOx peu importantes. En effet, il devient plus difficile de déplacer le front de flamme dans la chambre de combustion afin d'éviter les pics de température et donc la formation de NO.

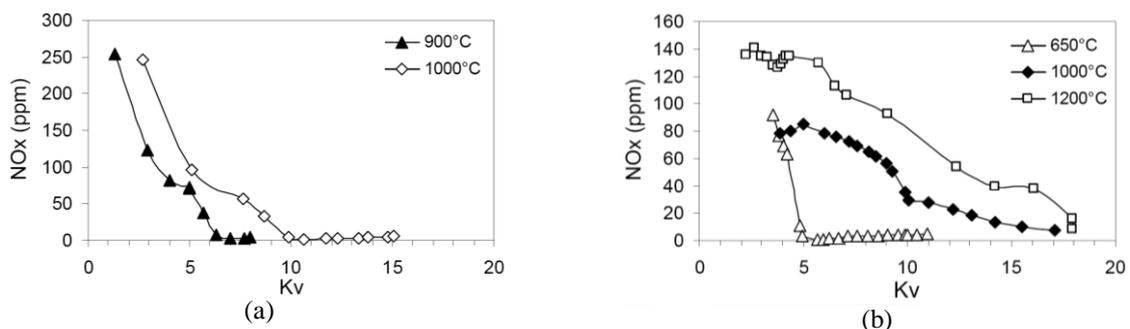


Figure 20 Effet de la température de préchauffage de l'air et du taux de recirculation sur les émissions de NOx pour les mélanges CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>, 70/30% (a) et 40/60% (b), en gardant l'excès d'O<sub>2</sub> à 3% (Derudi, 2007).

L'évolution des émissions de NOx en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le mélange est résumé Figure 21. Il est évident que lorsque la quantité d'hydrogène du combustible augmente, les émissions de NOx croissent. Cependant, il est important de noter que selon le type d'installation, l'influence de la quantité d'hydrogène ne semble pas être la même. En effet, sur l'installation d'ENEL, qui ne permet pas des taux de dilution important puisque seule une faible partie des gaz brûlés est réinjectée juste en sortie du brûleur<sup>2</sup>, l'ajout

<sup>2</sup> Brûleur régénératif Rekumat : le combustible est injecté au centre avec un co-flow d'air préchauffé

d'hydrogène à hauteur de 10% provoque déjà un accroissement significatif des émissions de NOx. Tandis que dans le cas de l'installation de GASUNIE (2005, avec un brûleur JDDC-150, coflow d'air et de combustible à forte vitesse), four industriel pour lequel le grand volume de la chambre de combustion permet des recirculations naturelles, l'ajout d'hydrogène, jusqu'à 55% en volume ne modifie pas les émissions de NOx. Pour des concentrations H<sub>2</sub> supérieures à 55% et inférieures à 75% (aucune mesure n'a été réalisée avec des concentrations de H<sub>2</sub> supérieures à 75%), l'augmentation des émissions de NOx est principalement due, à la présence d'une petite zone de combustion de type flamme de diffusion en sortie de brûleur. Cette zone de réaction favorise les pics de température et donc la production de NOx par voie thermique.

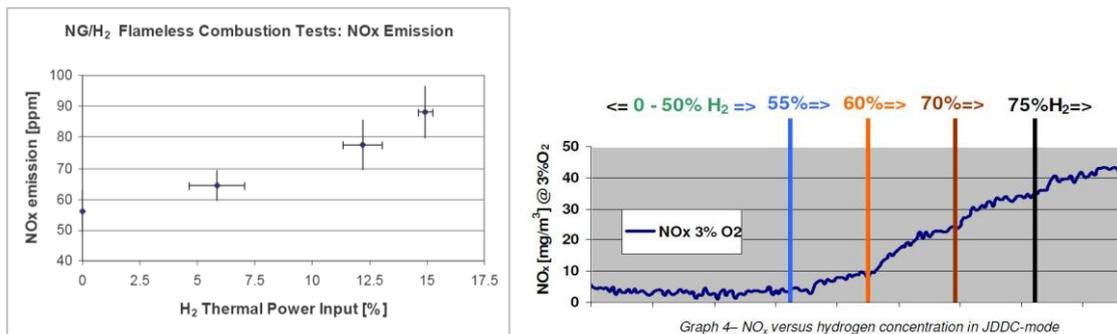


Figure 21 Emissions de NOx en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le mélange combustible (a) : mesures réalisées sur l'installation de combustion sans flamme d'ENEL par Donatini-2005 (brûleur Flox Reumat C100 de WS GmbH), (b) : mesures réalisées sur le four de GASUNIE par Slim-2005 (JDDC-150 (Jet Driven Dilute Combustion)).

Par un post-traitement de ses calculs de vitesse et de température, Donatini prédit les émissions de NOx à l'aide des modèles cinétiques présentés Tableau 3. Les émissions de NOx en fonction du taux de recirculation en combustion sans flamme au méthane pur et à l'hydrogène pur sont reportés Figure 22, dans le cas du méthane pur, l'auteur souligne la bonne concordance avec les valeurs expérimentales reportées Figure 21 puisqu'il prédit une concentration de NOx de 60ppm pour 55ppm mesurés.

Pour la voie thermique :	Pour la voie précoce :
$O + N_2 = NO + N \bullet$	$CH \bullet + N_2 = HCN + N \bullet$
$N \bullet + O_2 = NO + O \bullet$	$N \bullet + O_2 = NO + O \bullet$
$N \bullet + OH \bullet = NO + H \bullet$	$OH \bullet + HCN = CN \bullet + H_2O$
	$CN \bullet + O_2 = NO + CO$

Tableau 3 Modèles cinétiques utilisés pour calculer les émissions de NOx (Donatini-2005).

Pour le cas avec du méthane pur, la contribution principale est apportée par la voie de formation thermique, qui représente plus de 90% des émissions totales. Pour le cas avec de l'hydrogène pur, les émissions de NOx sont constituées exclusivement par la voie thermique par l'absence de composé carboné. Dans ce cas, les émissions de NOx sont supérieures à 100ppm si le taux de recirculation est maintenu en dessous de 100%. Cependant, les émissions de NOx diminuent rapidement sous 100ppm lorsque le taux de recirculation devient supérieur à 2. En augmentant le taux de recirculation, la dilution du mélange avant réaction augmente, ce qui permet de limiter la formation de points chauds et donc la formation de NOx par voie thermique.

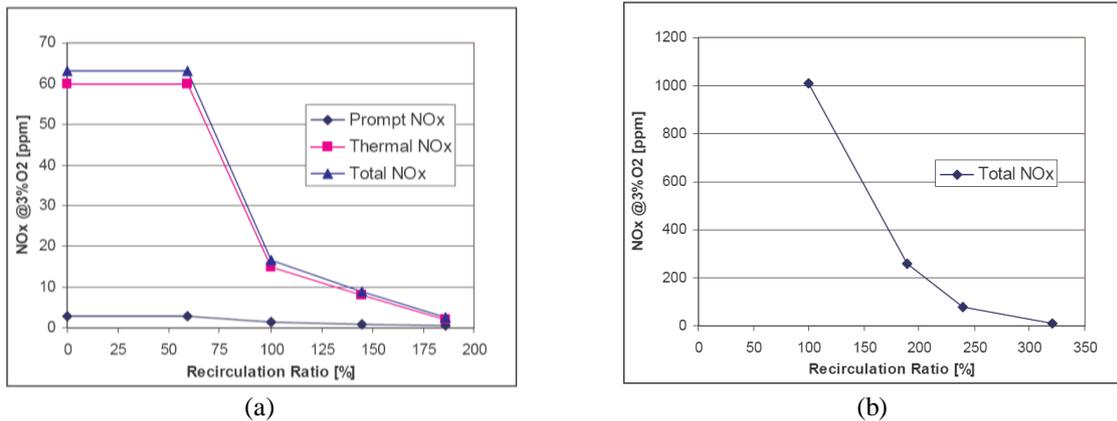


Figure 22 Emissions de NOx en combustion sans flamme (a) méthane pur (b) hydrogène pur (Donatini-2005).

### 1.3.2-Impact de l'ajout d'hydrogène sur la recirculation des produits de combustion et sur la température du four

Dans le cas d'installations fonctionnant au méthane pour lesquelles la recirculation est faible ou est forcée, l'ajout d'hydrogène oblige une augmentation importante du taux de recirculation pour atteindre un seuil faible d'émissions de NOx. Ce seuil est dominé par la réactivité du mélange.

Derudi et Villani ont observé plusieurs effets positifs sur la stabilité de la combustion sans flamme. La Figure 23 représente les domaines d'existence de la combustion sans flamme (température de four et taux de dilution) en fonction de la nature du combustible. Grâce à l'ajout d'hydrogène, la température d'auto-inflammation est plus basse, la gamme d'inflammabilité est plus importante et la combustion a tendance à produire une plus grande quantité de radicaux H, ce qui autorise la combustion sans flamme à s'étendre vers des environnements très dilués et à des températures moyennes de four plus faibles.

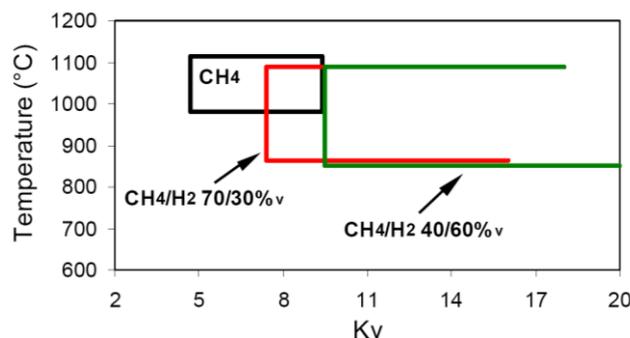


Figure 23 « Clean mild combustion » pour le méthane pur, et deux mélanges méthane/hydrogène (Derudi-2007).

Les auteurs observent qu'en dessous du seuil de température défini par la région d'existence de la combustion sans flamme, l'efficacité de la combustion diminue ce qui provoque une production importante de CO avec une diminution importante du CO<sub>2</sub>. La forte réactivité du mélange combustible, lorsque de l'hydrogène est présent, permet d'atteindre le régime de combustion sans flamme même pour des environnements très dilués. Ceci laisse aussi

supposer que l'hydrogène pourrait être utilisé pour doper des carburants à faible pouvoir calorifique dans le but d'obtenir une combustion plus efficace, favorisant l'oxydation complète des hydrocarbures. L'hydrogène pourrait être utilisé même dans des écoulements très dilués et prévenir ainsi la formation de polluants et principalement les hydrocarbures imbrûlés et les suies.

Les résultats de Derudi et al. sont confirmés par Galletti et al., qui ont simulé numériquement l'installation de combustion diluée de Politecnico di Milano (Figure 24). Lorsque de l'hydrogène est ajouté au méthane, un taux de recirculation plus grand est nécessaire pour atteindre le régime de combustion sans flamme, puisqu'il est possible d'observer, que la zone à haute température est plus grande lorsque le combustible est un mélange méthane – hydrogène, pour un même taux de dilution (figure c).

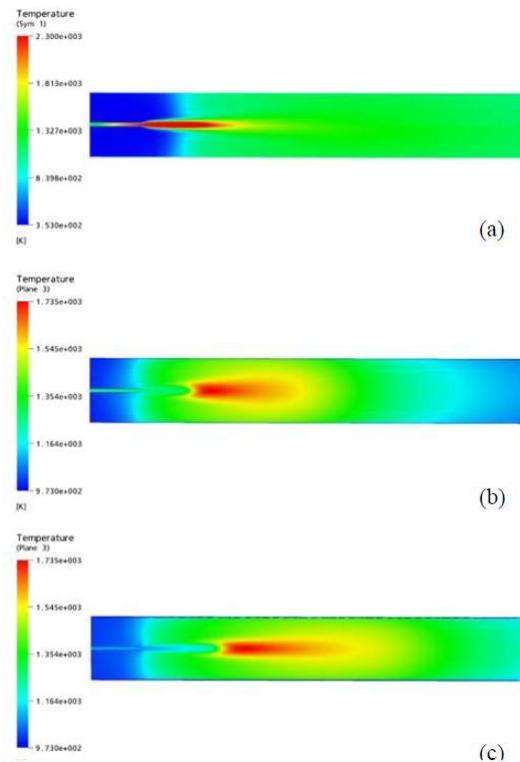


Figure 24 Champs de température pour (a) le méthane en combustion classique ( $Kv=1.18$ ), (b) combustion sans flamme ( $Kv=6.28$ ), (c) un mélange méthane/hydrogène ( $Kv=6.28$ ), installation de combustion diluée de CIIRCO-Politecnico di Milano (Galletti-2007).

De même, les résultats des simulations obtenus dans le cas d'un brûleur autorégénératif de 13kW fonctionnant en régime de combustion sans flamme (ENEL) lorsqu'il est alimenté par du méthane permettent d'arriver à la même conclusion (Figure 25).

Sur la Figure 25, le champ de température (a) est calculé pour du méthane pur. Dans ce cas, la température est homogène au sein de la chambre de combustion. Lorsque l'on ajoute de l'hydrogène, la température maximale augmente et la zone de flamme devient visible. La recirculation des gaz brûlés n'est plus suffisante pour assurer les conditions nécessaires pour atteindre le régime de combustion sans flamme lorsque l'on ajoute de l'hydrogène au méthane. Pour le champ de température (c), le brûleur fonctionne avec un degré de recirculation de 102%. Les émissions de  $NO_x$  prédites s'élèvent à 64ppm<sub>v</sub>, les performances du brûleur pourraient être améliorées en augmentant le taux de recirculation. Dans leur

configuration, ceci pourrait être réalisé en diminuant la section d'injection de l'air, ce qui permettrait d'augmenter la vitesse de l'air et donc d'augmenter l'entraînement des produits de combustion. En effet, en diminuant la section de moitié, le taux de recirculation augmente jusqu'à 143% et les émissions de NOx décroissent à 13ppm<sub>v</sub>.

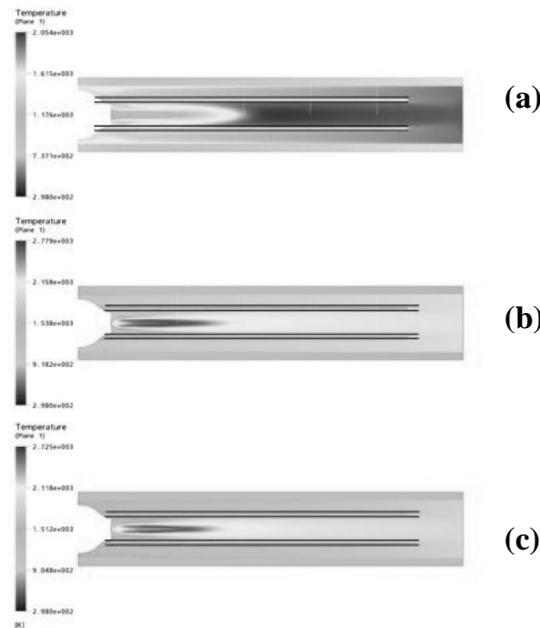


Figure 25 Distribution de température pour différentes compositions du carburant : (a) 0% H<sub>2</sub>; (b) 4.8% H<sub>2</sub>; (c) 11.2 % H<sub>2</sub>, simulation de l'installation expérimentale ENEL, (Galletti-2007).

Dans le cas où la géométrie du brûleur ne permet pas des recirculations importantes, l'ajout d'hydrogène peut nécessiter un changement de géométrie du brûleur pour atteindre le régime de combustion sans flamme puisque des taux de recirculation plus importants sont nécessaires pour avoir une combustion propre lorsque l'hydrogène est ajouté au combustible (Donatini,-2007). En revanche, dans le cas de fours industriels pour lesquels les dimensions de la chambre de combustion sont grandes par rapport au diamètre du brûleur, les recirculations sont suffisamment importantes pour atteindre le régime de combustion sans flamme sans, à priori, changement de géométrie du four (mesures IFRF avec le gaz de cokerie, Adolphi-2005, et mesures GASUNIE, Slim-2005).

### ***1.3.3-Limites d'inflammabilité et mécanisme d'extinction : interaction chimie/turbulence***

Un ajout d'hydrogène au méthane augmente les performances du brûleur en diminuant la température en dessous de laquelle la combustion n'est plus propre et en augmentant le taux de recirculation maximum.

Si l'on compare avec le méthane, les combustibles hybrides contenant de l'hydrogène nécessitent une plus importante dilution en oxygène et une plus grande vitesse d'éjection pour obtenir un régime de combustion stable. Mais ils permettent de faire fonctionner le brûleur à des températures de four plus faibles. En utilisant de l'H<sub>2</sub> pur, il est possible d'atteindre le régime de « combustion diluée propre » à des températures beaucoup plus faibles que celles

obtenues pour les mélanges. Un régime de combustion diluée « froid » a été observé pour des températures de four proche de 500°C avec un préchauffage de l'air à 200°C (Derudi-2007). Il a aussi été mis en évidence une limite haute de température de environ 1100°C quelque soit le combustible, au dessus de laquelle les émissions de NOx deviennent importantes.

Sabia a réalisé une étude des mélanges méthane/hydrogène, en combustion diluée dans un réacteur parfaitement agité. Il a mis en évidence que pour le cas sans hydrogène, il existait une zone pour laquelle la combustion n'était pas possible. Cette zone n'existe plus dès lors que l'on ajoute de l'hydrogène au mélange combustible. Ceci suggère qu'une petite quantité d'hydrogène améliore la réactivité du système (Sabia-2004).

Les valeurs expérimentales montrent que le système est plus sensible à la présence d'hydrogène plutôt qu'à la valeur de la concentration d'hydrogène.

Pour de faibles températures initiales, la température du réacteur augmente avec la fraction massique d'hydrogène. Au contraire, pour les hautes températures initiales, la température du réacteur diminue lorsque la fraction massique de l'hydrogène augmente.

Le schéma cinétique supposé, pour une concentration initiale en hydrogène de 0.9% proposé par Sabia, est résumé Figure 26. L'épaisseur des traits est proportionnelle à l'importance de la réaction. Des analyses réalisées en l'absence d'hydrogène montrent que dans le cas des conditions expérimentales choisies, la réaction principale doit être la décomposition du H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. Les atomes H réagissent via la réaction de propagation H+O<sub>2</sub>+M→HO<sub>2</sub>+M qui produit des radicaux HO<sub>2</sub> relativement stables. Ils forment alors H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> qui se décompose en deux radicaux OH. La présence d'hydrogène favorise les réactions de ramification classiques à hautes températures, ce qui augmente la réactivité du système. En fait, H<sub>2</sub> réagit principalement avec OH à travers la réaction exothermique H+O<sub>2</sub>→OH+O. De l'analyse du taux de production, on peut déduire que les réactions impliquant le radical OH présentent le plus d'augmentation. Pour une concentration en H<sub>2</sub> de 0.9%, la réaction de ramification H<sub>2</sub>+O→OH+H devient aussi importante en terme de production de radicaux OH. Elle déshydrogène le méthane en CH<sub>3</sub>. De cette manière, l'oxydation du méthane peut être initiée et accélérée par la grande quantité de radicaux présents dans le système.

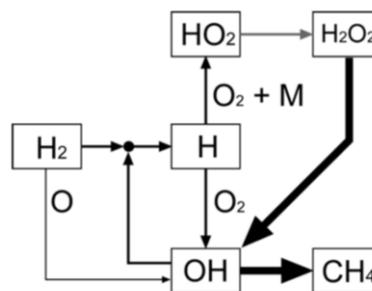
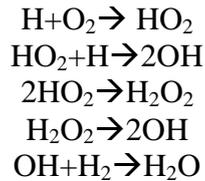


Figure 26 Principal schéma cinétique impliqué dans le mécanisme d'allumage du mélange CH<sub>4</sub>-H<sub>2</sub>/O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> pour Tin=1015K et C/O=0.2 et t=0.2s (après le début de la simulation) (Sabia-2004).

Nicolle et al. (2005), quant à eux, proposent le mécanisme suivant: l'oxydation du méthane par l'hydrogène se réalise à travers une augmentation de la production de radicaux OH en augmentant l'importance de la réaction H+HO<sub>2</sub>→OH+OH. L'augmentation de la concentration initiale en hydrogène favorise la formation de radicaux HO<sub>2</sub> à faible température, ce qui provoque une augmentation de la concentration en OH et en H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. L'oxydation de l'hydrogène, lorsqu'il est ajouté à du méthane, de l'éthane ou du propane se déroule principalement via la réaction avec OH. Les réactions suivantes résument le mécanisme conduisant à l'augmentation de la réactivité des mélanges enrichis en hydrogène (Nicolle-2005) :



Elles sont suivies des réactions des hydrocarbures avec OH.

Nicolle utilise les vitesses de réaction calculées par des simulations réalisées avec GDF-Kin 5.0 pour expliquer l'effet de l'ajout de gaz de synthèse ( $\text{H}_2 + \text{CO}$ ) dans le combustible.

Le CO est produit par  $\text{HCO} + \text{M} = \text{H} + \text{CO} + \text{M}$  (7-6) et consommé par  $\text{CO} + \text{OH} = \text{CO}_2 + \text{H}$  (7-7). L'appauvrissement en carbone sous la forme initiale de  $\text{CH}_4$  conduit à la disparition de la voie  $\text{CH}_4 \rightarrow \text{CH}_3 \rightarrow \text{CH}_2\text{O} \rightarrow \text{HCO} \rightarrow \text{CO}$ . La vitesse de 7-2 ( $\text{N}_2 + \text{O} = \text{N} + \text{NO}$ ) augmente et celle de 7-1 ( $\text{N} + \text{OH} = \text{NO} + \text{H}$ ) diminue avec la présence d'hydrogène.

La température finale augmente et la concentration en atome d'oxygène présente un léger accroissement, ce qui explique l'augmentation de la vitesse de réaction de  $\text{N}_2 + \text{O} = \text{N} + \text{NO}$ .

La diminution de la concentration en N est à l'origine de la diminution de la vitesse de  $\text{N} + \text{OH} = \text{NO} + \text{H}$ . La diminution de N est liée à la décroissance de la vitesse de réaction de  $\text{CH} + \text{N}_2 = \text{HCN} + \text{N}$  (7-5) et de  $\text{NH} + \text{OH} = \text{N} + \text{H}_2\text{O}$  qui contribuent pour environ 10% à la formation de N.

Mais l'augmentation de NO provient de la diminution de la vitesse de réduction par recombustion. La vitesse de réaction de  $\text{CH}_2 + \text{NO} = \text{HCN} + \text{NO}$  (7-9) diminue fortement lorsque le rapport gaz de synthèse sur méthane augmente.

### *1.3.4-Absence de flamme visible et formation de suie*

L'ajout d'hydrogène peut favoriser l'apparition d'une flamme visible à l'œil. En effet, Villani et Derudi ont observé l'apparition de la zone de réaction lorsque le méthane est remplacé par un mélange méthane (40%) – hydrogène (60%) en volume, de plus, lorsque l'hydrogène pur est utilisé comme combustible, et dans le cas de faibles vitesses, une zone colorée, très proche du brûleur est visible (Villani et al.-2006).

Les essais réalisés par Slim chez Gasunie ont montré qu'à partir de 55% d'hydrogène (en volume), la zone de réaction réapparaissait (Figure 27).

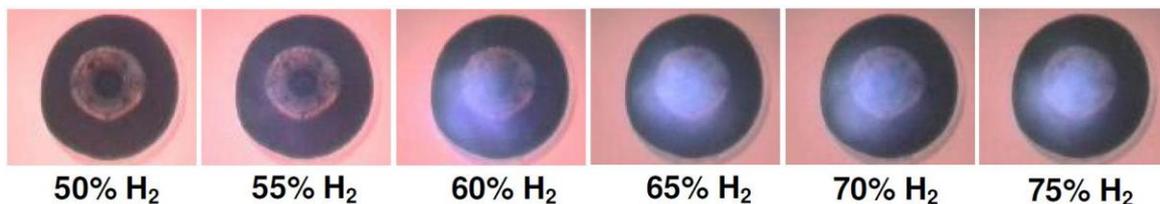


Figure 27 Forme de la flamme, brûleur JDDC, pour différentes concentrations en hydrogène (Slim-2005).

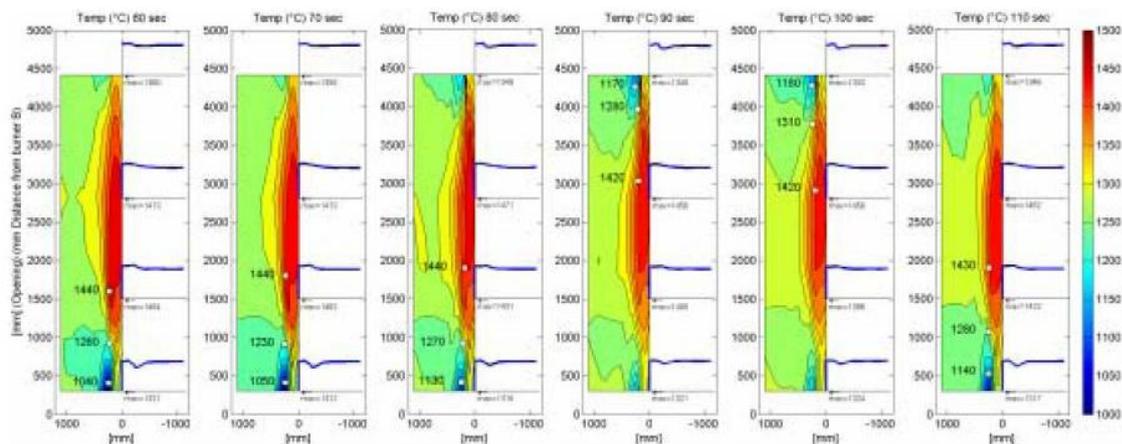
De même, les mesures réalisées par l'IFRF avec le gaz de cokerie ont montré que lorsque la puissance augmente, la zone de réaction peut être visible.

Lorsque le pourcentage d'hydrogène dans le mélange combustible augmente, il est alors possible de perdre les caractéristiques du régime de combustion sans flamme. Toutefois, on reste dans un régime de combustion massivement dilué stable.

### I.3.5-Zone de réaction : localisation et stabilisation

La Figure 24 représente les champs de température pour le méthane en combustion classique, en combustion sans flamme et pour un mélange méthane-hydrogène en combustion sans flamme. L'observation des températures permet de mettre en évidence la structure des zones de réaction. Lorsque la combustion sans flamme est atteinte avec un mélange méthane-hydrogène, on peut observer la présence d'un long panache de gaz chauds dans le centre de la chambre de combustion, diminuant ainsi les gradients de température dans la partie supérieure du four par rapport à une combustion sans flamme au méthane seul. Cette différence de structure est principalement due aux fortes vitesses de jets nécessaires pour atteindre le régime de combustion sans flamme avec de l'hydrogène.

Les essais réalisés à l'IFRF ont montré que les températures étaient homogènes (Figure 28). Les gradients restent faibles puisque même avec l'ajout d'hydrogène, les températures sont inférieures à 1500°C. Cependant, la zone pour laquelle les températures sont supérieures à 1400°C débute plus près de la sortie du brûleur comparé à l'utilisation du gaz naturel.



In Flame Temperature Measurement for Flame 34 over the period of two cycle. Nominal Firing Rate of 800 kW, reversal time of 30 seconds and fuel nozzle diameter of 15.5 mm.

Figure 28 Champs de température, installation de combustion sans flamme de l'IFRF (Adolfi-2005), utilisation du gaz de cokerie (CH<sub>4</sub> 40%-H<sub>2</sub> 60%).

## I.4- Conclusions

La combustion sans flamme est une combustion fortement diluée pour laquelle les gradients de température sont faibles. L'homogénéité de température au sein du four permet d'éviter la formation des oxydes d'azote par voie thermique. De plus, l'utilisation d'air préchauffé permet de réduire la consommation de combustible et de ce fait, les émissions de CO<sub>2</sub>. Milani et Saponaro (2001) ont comparé l'utilisation de brûleurs régénératifs, pour une combustion avec et sans flamme, en terme de consommation de combustibles. Celle-ci permet d'économiser de 15 à 30% de combustible en plus avec la combustion sans flamme. La combustion sans flamme est donc un régime de combustion très prometteur en termes de réduction de la consommation d'énergie et de réduction des émissions polluantes.

Les recherches sont donc de plus en plus actives dans ce domaine, principalement avec du méthane ou du gaz naturel, elles restent peu nombreuses sur l'utilisation de l'hydrogène. Or, l'utilisation de l'hydrogène comme vecteur d'énergie se développera probablement grâce à la création de centrales telles que celles prévues par les projets FutureGen et ZEP, qui permettront de créer de l'électricité, de la chaleur, mais aussi de l'hydrogène utilisable par les industries, sans émission dans l'atmosphère de gaz à effet de serre. Cependant, mis à part la base de données IFRF, aucune étude complète n'a permis de caractériser ce type de combustion. Cependant, les installations de l'IFRF sont des installations type semi industrielles, donc de grand diamètre qui ne permettent pas de réaliser des études expérimentales complètement détaillées. C'est ce que nous nous attacherons à faire dans la suite de ce travail. L'installation utilisée pour les mesures, est l'installation de combustion sans flamme du CORIA, qui est décrite dans le chapitre suivant.

### *Chapitre II: Installation pilote de combustion sans flamme du CORIA*

*Les mesures ont été réalisées dans l'installation pilote de combustion sans flamme du CORIA qui permet de reproduire le fonctionnement des brûleurs régénératifs. Cette installation a été conçue de manière à pouvoir réaliser le maximum de mesures, optiques mais aussi par sondes, tout en gardant un bon confinement thermique. Les différents composants de l'installation ainsi que son fonctionnement, notamment la montée en température pour atteindre les conditions stationnaires, sont présentés dans ce chapitre.*

#### **II.1- La chambre de combustion « FOUR »**

L'installation pilote de laboratoire de combustion sans flamme du CORIA, baptisée « FOUR » pour « Furnace with Optical access and Upstream Recirculation » et conçue par Eric Masson au cours de sa thèse (2005), a été dimensionnée pour fonctionner dans une gamme de puissance de 10 à 30 kW. Elle est constituée d'une chambre de combustion, dont les parois en fibres céramiques (de densité  $190\text{Kg/m}^3$ ) supportent des températures jusqu'à  $1425^\circ\text{C}$ , sur laquelle est monté un brûleur alimenté en air préchauffé électriquement (Figure 29). La chambre de combustion a une configuration verticale avec le brûleur sur la sole et la cheminée en voute. L'ensemble des alimentations combustible, air, eau et électrique est contrôlé afin d'assurer la maîtrise des conditions opératoires de l'installation et son fonctionnement continu sans présence humaine.

Un dispositif mobile permet de faire varier facilement le volume de la chambre de combustion, et donc de faire varier le confinement de l'écoulement pour un même régime de fonctionnement du brûleur. De plus, un ensemble de blocs amovibles (réfractaire: béton 56%  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , base andalousite) placés sur la chambre de combustion la rend complètement

## II. Installation pilote de combustion sans flamme du CORIA

accessible à des mesures dans la flamme à l'aide de techniques optiques, tout en conservant le confinement à haute température de l'écoulement.

Le régime de combustion sans flamme est atteint "naturellement" dans le four pilote, comme sur une installation industrielle, sans aucun artifice forçant la recirculation des gaz brûlés ni la dilution des réactifs.

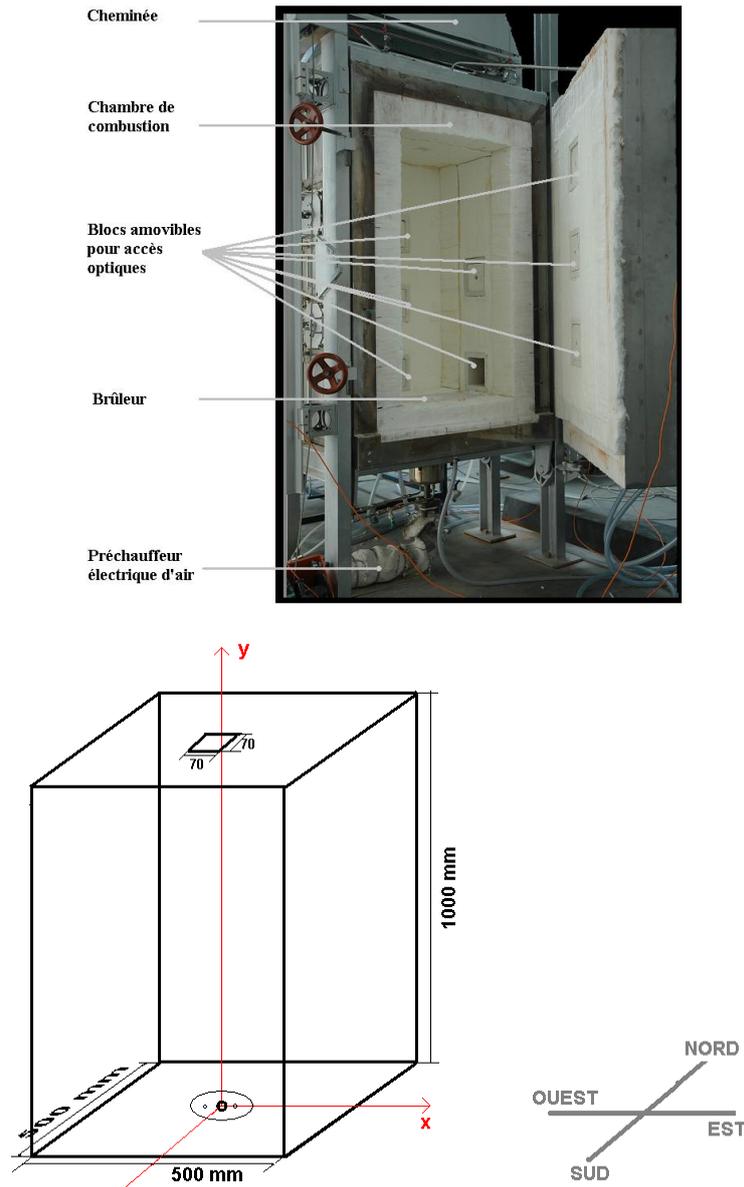


Figure 29 Photographie du four pilote de combustion sans flamme du CORIA, chambre de combustion ouverte (en haut), géométrie et dimensions du four (en bas).

### II.2- Le brûleur

La Figure 30 présente la configuration choisie pour le brûleur. Elle reprend la géométrie du brûleur commercial NFK HRS DL2-5, précédemment étudié à l'échelle semi-industrielle (Masson-2005). Il consiste en deux injections de méthane ( $\varnothing_0 = 3$  mm) distantes de 101,4 mm entourant une injection centrale d'air ( $\varnothing_a = 25$  mm) avec une sortie en forme de congé (R = 11 mm).

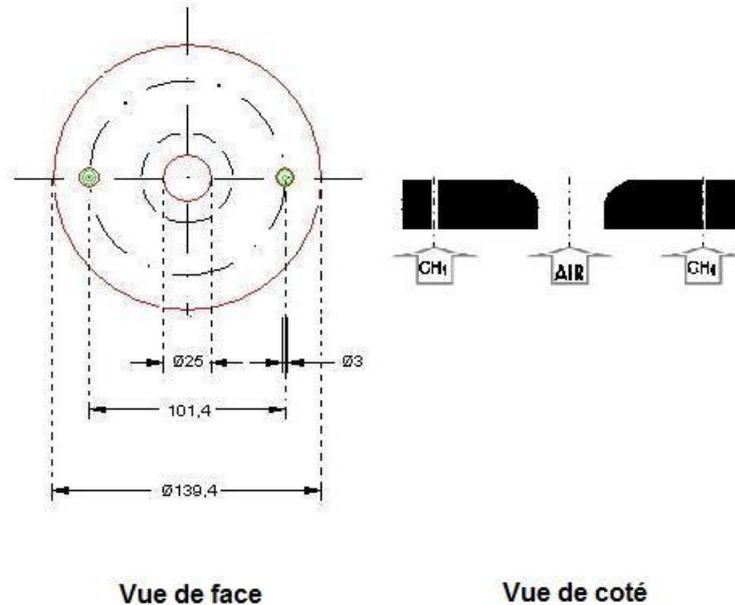


Figure 30 Schéma du brûleur de combustion sans flamme.

### II.3- Le préchauffeur d'air

Pour les fours industriels, l'utilisation de brûleurs régénératifs permet de préchauffer l'air de combustion. Cependant, le fonctionnement de brûleurs régénératifs est alternatif. L'installation pilote du CORIA utilise un préchauffeur d'air électrique de manière à reproduire le fonctionnement d'un brûleur régénératif en régime stationnaire.

Le réchauffeur d'air est piloté par un régulateur à l'aide des informations fournies par un thermocouple de type K. Il permet de préchauffer l'air jusqu'à des températures de  $600^{\circ}\text{C}$  afin de reproduire le fonctionnement d'un brûleur régénératif. Cette chaîne de régulation ne génère pas de fluctuations de température qui pourraient causer des perturbations lors des mesures dans la flamme et empêcher d'atteindre des régimes stationnaires.

Le réchauffeur d'air LEISTER 10000HT initialement installé sur le FOUR ne permettait pas de préchauffer de faibles débits d'air. Le débit minimal requis pour ne pas l'endommager prématurément était de  $60\text{m}^3(\text{n})/\text{h}$ . Or, pour nos points de fonctionnement, au maximum

## II. Installation pilote de combustion sans flamme du CORIA

30.6m<sup>3</sup>(n)/h d'air étaient nécessaires. Seulement une partie de l'air préchauffé était injectée dans le brûleur, le complément étant refroidi avant d'être rejeté dans l'atmosphère, c'est pourquoi un système d'échangeurs thermiques air/eau permettait de refroidir l'air chauffé inutilement et non envoyé dans le four (Masson-2005). Cependant, l'installation d'air comprimé ne nous permettant pas d'atteindre des débits de 60m<sup>3</sup>(n)/h, la résistance chauffante subissait une usure prématurée et devait être régulièrement remplacée. De plus, le réchauffeur ne possédant aucune sécurité sur le débit en entrée, une baisse de pression dans le réseau d'air comprimé provoquait une surchauffe et donc un endommagement irrémédiable de la résistance. C'est pourquoi nous avons choisi de le remplacer par un préchauffeur d'air électrique Sylvania SureHeat Max (10 kW, 380V triphasé). Il permet de chauffer l'air jusqu'à 600°C même pour de faibles débits (12m<sup>3</sup>(n)/h), rendant ainsi inutile l'utilisation du système d'échangeur. De plus, ce réchauffeur a l'avantage de posséder une sécurité sur le débit d'air en entrée. Un thermocouple mesure la température d'une résistance en entrée du réchauffeur. La température de la résistance augmente rapidement si elle n'est plus refroidie suffisamment par le débit d'air. En cas de surchauffe de la résistance, une sécurité permet d'éteindre le réchauffeur avant que celui-ci ne soit irrémédiablement endommagé.

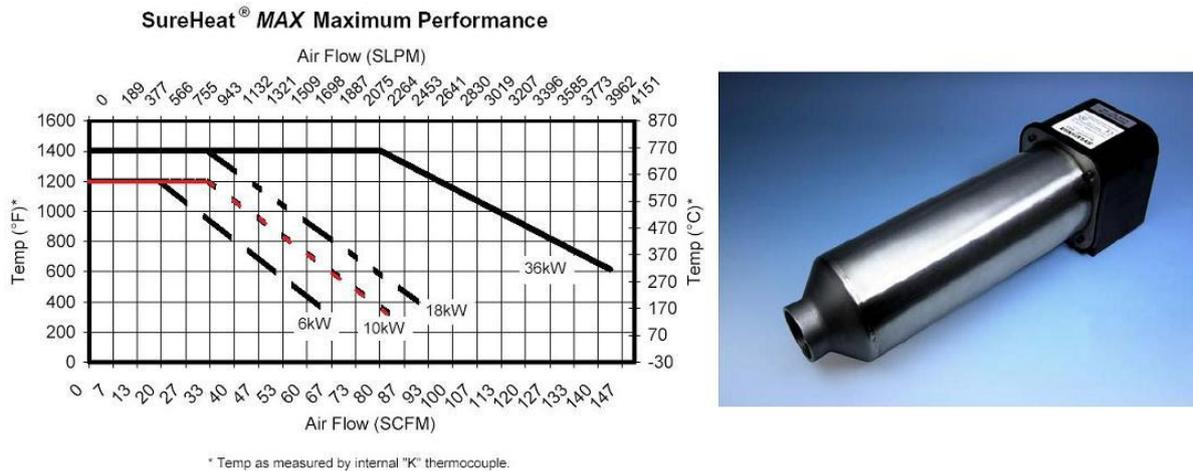
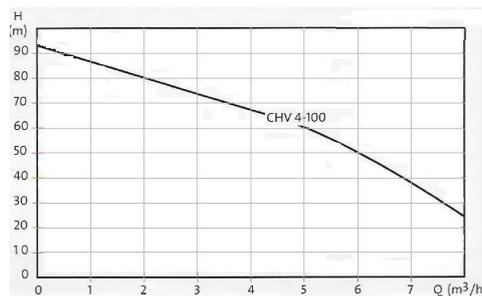
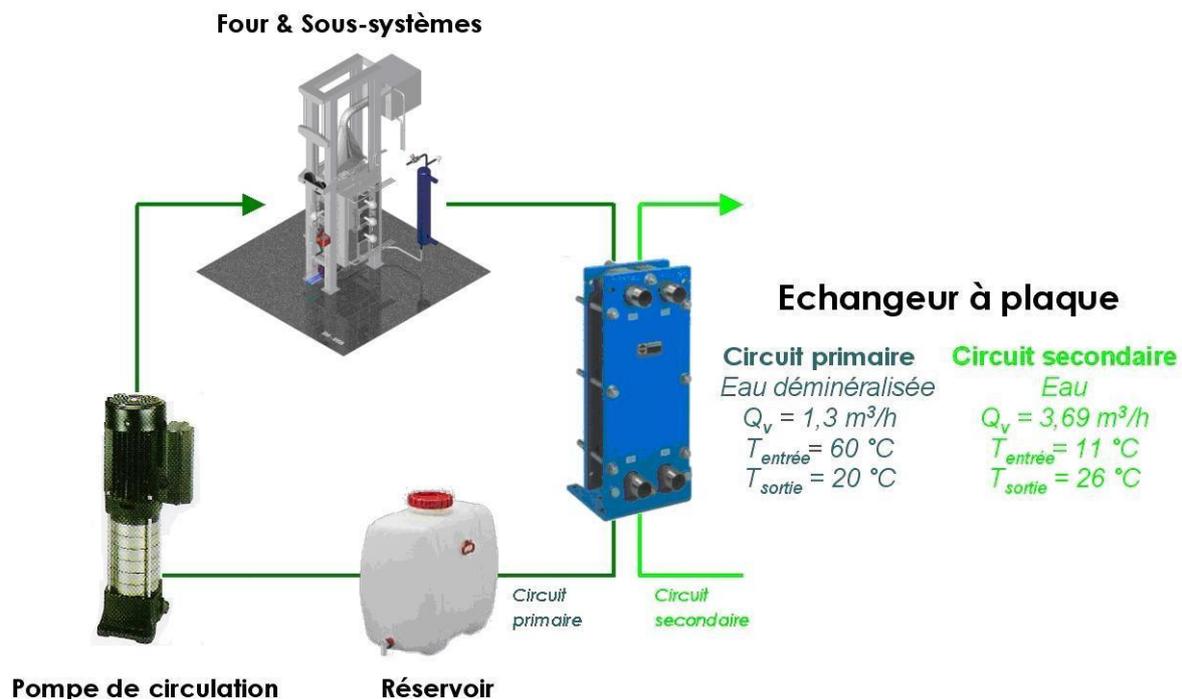


Figure 31 Réchauffeur d'air SYLVANIA 10kW installé sur le FOUR pilote du CORIA.

## II.4- Le circuit de refroidissement

Un circuit fermé d'eau déminéralisée permet de refroidir les parois de la chambre de combustion, les fumées qui sont envoyées dans l'atmosphère et les sondes de mesure utilisées lors des diagnostics. Ce circuit d'eau est lui-même maintenu à température à l'aide d'un échangeur eau/eau. Ce circuit d'eau « perdue » est alimenté par l'eau du réseau. Il est régulé par un débitmètre à flotteur dans le but de limiter la consommation d'eau. Le circuit de refroidissement est présenté Figure 32. La pompe multicellulaire verticale CHV4-100 fonctionne dans une gamme de débit relativement faible (1-8 m<sup>3</sup>/h) mais elle autorise des pertes de charges importantes (jusqu'à 90m), elle est donc parfaitement adaptée à notre configuration pour laquelle le système de refroidissement possède de nombreux tuyaux.



Caractéristiques techniques de la pompe multicellulaire verticale CHV4-100

Figure 32 Circuit de refroidissement du FOUR.

## II.5- Les lignes d'alimentation en combustible et en air

Deux lignes permettent d'alimenter le brûleur en combustible et en comburant.

La ligne d'alimentation en combustible est représentée Figure 33. Elle est composée de deux parties. La première partie, représentée en orange sur le schéma, est constituée d'un débitmètre volumique. La seconde partie représentée en vert, est constituée d'un ensemble de régulateurs de débit massique (RDM) contrôlés par ordinateur. La ligne de débitmètrie volumique débute par une vanne 3 voies pour sélectionner le gaz utilisé: gaz naturel de réseau ou méthane. Le gaz de réseau a une pression de distribution de 300mb, son débit maximal dans les conditions normales est de  $2\text{m}^3(\text{n})/\text{h}$ , soit une puissance de 20kW. Il est utilisé pour allumer l'installation et la maintenir en régime. Le méthane G20 est conditionné en cadre à haute pression (200bars) qui permet d'atteindre des puissances de l'ordre de 40kW. Il sera utilisé pour réaliser les mesures. Une électrovanne coupe l'alimentation en cas de chute de débit. Un détendeur assure une pression de service de 1.5 bars au niveau du débitmètre. Une vanne de réglage à pointeau permet de régler le débit de gaz. Enfin, un débitmètre volumique associé à un capteur de pression et de température permet de mesurer le débit de gaz dans les conditions normales.

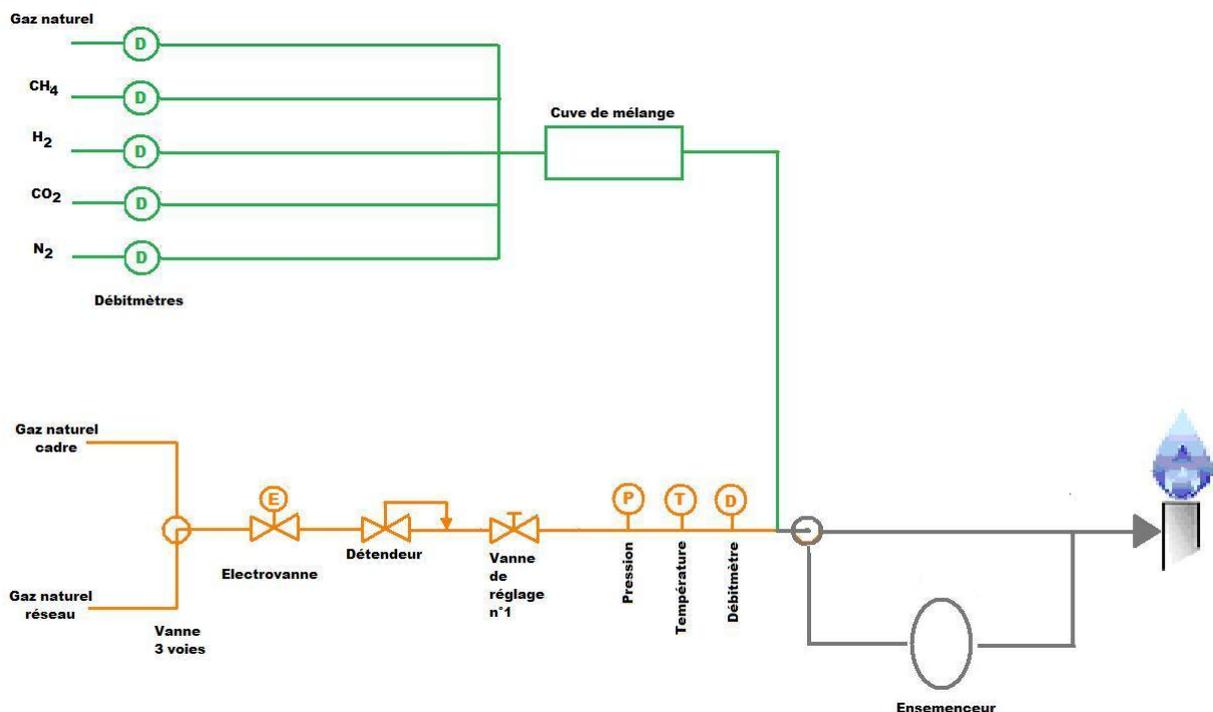


Figure 33 Ligne d'alimentation en combustible, la débitmètrie volumique est représentée en orange, la débitmètrie massique en vert.

La ligne d'alimentation en air est schématisée Figure 34. Elle permet de fournir de l'air à haute température au brûleur avec un débit bien défini et réglable. La ligne d'alimentation en air est, elle aussi, constituée de deux parties : la partie débitmètrie volumique (en orange sur le schéma) et la partie débitmètrie massique contrôlée par ordinateur (en vert sur le schéma). En ce qui concerne la débitmètrie volumique, la pression d'alimentation dans la ligne est

## II. Installation pilote de combustion sans flamme du CORIA

contrôlée par le détendeur placé en aval du débitmètre. La vanne n°2 permet de régler le taux d'ensemencement. Le réchauffeur préchauffe l'air entre 15 et 600°C.

Les débitmètres massiques contrôlés par ordinateur ont été installés de manière à pouvoir utiliser des mélanges combustibles (air, gaz naturel, méthane, hydrogène, dioxyde de carbone et azote). A l'aide d'une feuille de calcul Excel, on gère la composition du mélange désiré. Chacun des gaz constituant le mélange est envoyé dans la cuve de mélange puis dans le brûleur. L'air, quant à lui est injecté dans le brûleur via le réchauffeur. Ce système de débitmétrie permet de contrôler et de faire varier facilement la composition du mélange combustible.

Cette nouvelle ligne a été utilisée notamment pour les essais de combustion sans flamme avec des mélanges variables CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub>. Les essais CH<sub>4</sub>/air ont été, quant à eux, réalisés avec les lignes de débitmétrie volumique.

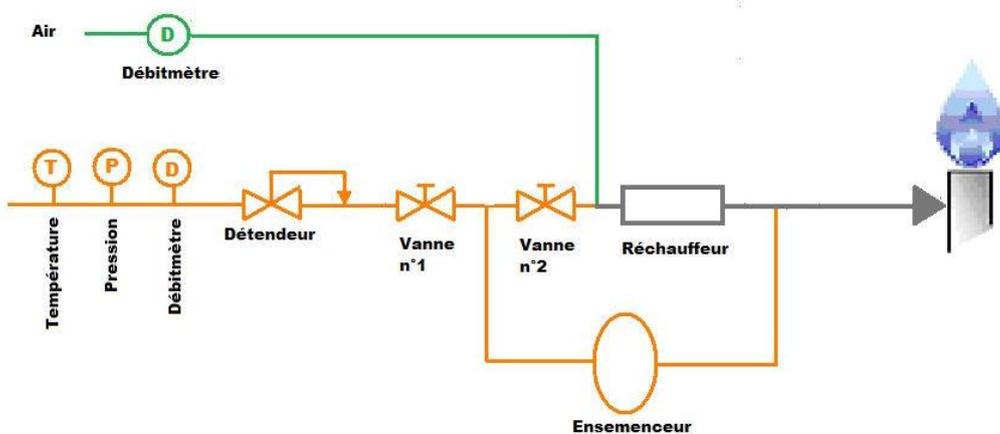


Figure 34 Ligne d'alimentation en air, la débitmétrie volumique est représentée en orange, la débitmétrie massique en vert.

### II.6- Mesure des températures et de flux aux parois

L'installation est équipée de 10 thermocouples de type S (Pt-10% Rh/Pt), chemisés en céramique, fonctionnant entre 0 et 1550°C. Ils sont accordés à un afficheur 12 voies. Les valeurs de températures sont enregistrées sur ordinateur. Ces thermocouples permettent de mesurer la température des parois. Ils s'insèrent dans les blocs aux parois spécialement conçus pour cela.

Les mesures de flux sont réalisées à l'aide de fluxmètres thermiques fabriqués sur mesure par la société Captec. Le fluxmètre détecte le flux d'énergie total transféré sur une petite surface de mesure par convection, conduction et rayonnement. Le principe de fonctionnement de ces capteurs (Figure 35) repose sur la mesure du gradient de température entre les deux faces d'un élément sensible noir de très faible épaisseur (0,4 mm) dont la résistance thermique est connue. Une face est soumise au flux de chaleur tandis que la température de l'autre face est maintenue constante par une circulation d'eau. Le signal de sortie est une tension directement proportionnelle au flux de chaleur. La sensibilité du capteur est de l'ordre de 83.8μV/(kWm<sup>-2</sup>), et est fournie par le constructeur avec une précision de 0.1μV/(kWm<sup>-2</sup>) après étalonnage. Le capteur est intégré dans un ensemble refroidi en cuivre dont la température ne doit pas

excéder 200°C afin de ne pas modifier la sensibilité de l'appareil. C'est pourquoi il doit être refroidi par une circulation d'eau afin d'être inséré dans un bloc béton, à la place d'un thermocouple de paroi. Le fluxmètre délivre une tension qui peut être mesurée avec un milli ou un microvoltmètre. Grâce au coefficient de sensibilité fourni par le constructeur, on peut calculer le flux reçu par la surface.

La faible épaisseur de la surface de mesure rend négligeable la perturbation produite par le détecteur. On peut donc considérer que l'on mesure le flux sur la face externe du capteur. Le temps de réponse du fluxmètre est très faible (0.1s), la mesure est donc instantanée.

Il est important de noter que ces mesures ne représentent pas le flux de chaleur émis par la zone de combustion seule, mais aussi par les produits de combustion recirculant dans l'enceinte et par les parois du four.

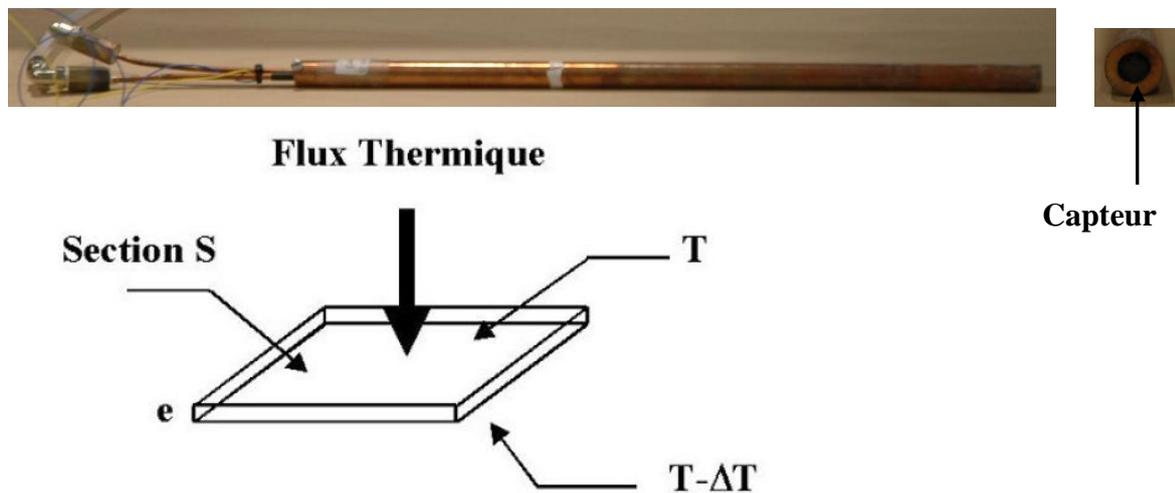


Figure 35 Principe de fonctionnement du fluxmètre thermique CAPTHERM (e : épaisseur du capteur, T : température du fluide ambiant).

### II.7- Montée en température et automatisme de l'installation

La procédure initiale d'allumage du four était longue et peu souple. Le débit de gaz naturel est initialement fixé à 0.3 m<sup>3</sup>(n)/h, deux flammes très rayonnantes sont observées au nez des injections de gaz naturel (1<sup>ère</sup> image Figure 36). Ces deux flammes permettent de chauffer les parois du FOUR, mais elles sont très instables lorsque les parois sont froides. Le débit de gaz naturel, et donc la puissance du brûleur, est augmenté progressivement à mesure que la température des parois s'élève. Au fur et à mesure que la température des parois augmente, celles-ci rayonnent de plus en plus. A contrario, les zones de réaction sont de moins en moins lumineuses à mesure que les gaz chauds recirculants viennent les diluer. Lorsque le FOUR fonctionne en régime stationnaire de combustion sans flamme, le rayonnement des zones de réaction est tellement faible et le rayonnement des parois (T=1100°C) est tellement intense que seul celui-ci peut être observé.

## II. Installation pilote de combustion sans flamme du CORIA

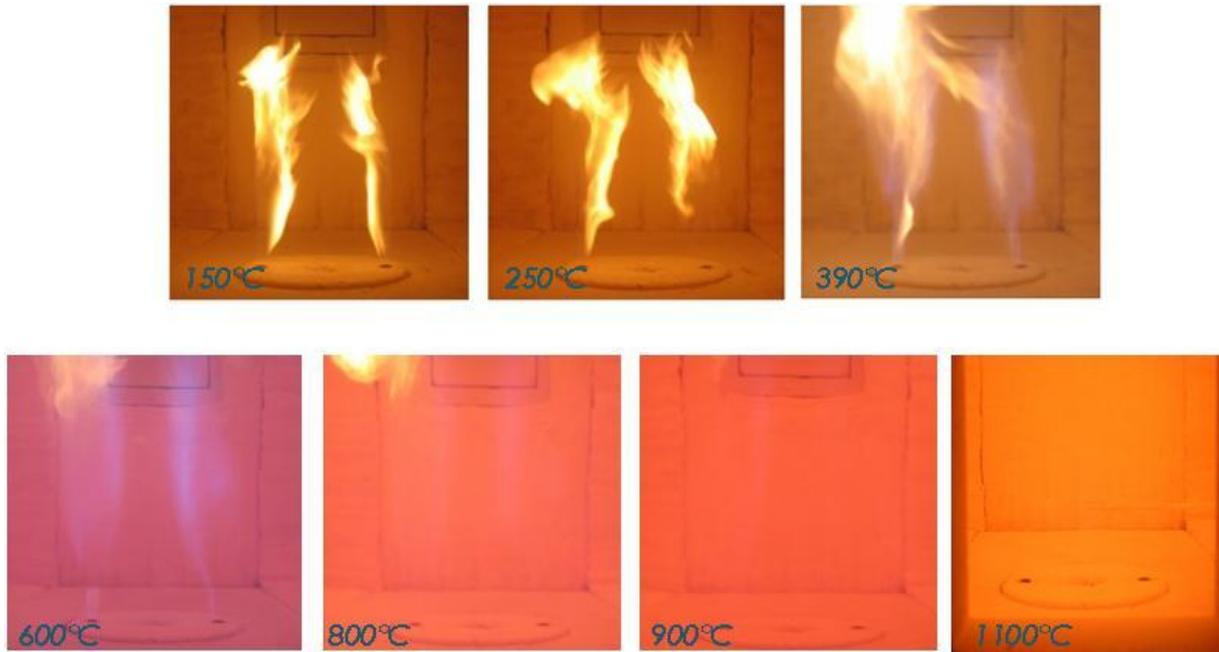


Figure 36 Photographies des zones de combustion lors de la mise en chauffe du four.

Au dessus de 800°C, c'est-à-dire lorsque la température des parois est supérieure à la température d'auto inflammation du gaz naturel, la combustion est stable, cependant, 8h sont nécessaires pour atteindre un régime stable. C'est pourquoi, un brûleur pilote a été conçu de manière à maintenir la combustion pendant toute la phase de mise en chauffe du four à puissance maximale (20kW). Le brûleur pilote est un brûleur coaxial qui fonctionne au gaz naturel et à l'oxygène. L'oxy-flamme obtenue est très stable et ne peut pas être éteinte même lorsque le FOUR fonctionne à 20kW. Des essais ont montré que la flamme était plus stable en injectant l'oxygène au centre ( $Q_v \approx 2.01 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ ) et le méthane en périphérie ( $Q_v \approx 4 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ ), c'est donc cette configuration qui a été retenue. La nouvelle procédure d'allumage est beaucoup plus rapide et souple. Le brûleur pilote est allumé, la flamme est placée au dessus d'une injection de gaz naturel. Le débit de gaz naturel est initialement fixé à 0.5 m<sup>3</sup>(n)/h pendant 30 minutes, puis il est augmenté à 2 m<sup>3</sup>(n)/h. La combustion est maintenue pendant toute la phase d'allumage grâce à la présence de l'oxy-flamme. Au bout de 2h30 de mise en chauffe, les parois atteignent la température de 800°C et les zones de réaction ne sont plus visibles. Au bout de 4h, les parois du FOUR sont à 1100°C, le FOUR est en régime stationnaire et les mesures sont possibles.



Figure 37 Brûleur pilote.

## II. Installation pilote de combustion sans flamme du CORIA

Du fait de la forte inertie des parois du four, la phase d'allumage est donc longue. Lorsque le régime de combustion sans flamme est atteint, on doit pouvoir le conserver, c'est pourquoi l'installation doit fonctionner 24h/24h.

Deux modes de fonctionnement sont donc possibles : le mode manuel, qui ne tient pas compte des alarmes et permet d'allumer l'installation. Et le mode automatique doté d'un système de sécurité permettant de laisser le four fonctionner sans surveillance. Dès qu'une alarme se déclenche, l'installation est automatiquement arrêtée. La liste des alarmes est donnée Figure 38. L'alarme système contrôle les écoulements en entrée (le débit minimal d'air passant par le réchauffeur), la température du four (celle-ci doit toujours être supérieure à 800°C afin que la combustion soit stable), l'atmosphère du labo (elle ne doit pas contenir d'imbrûlés ou de CO), les débits d'eau du système de refroidissement (les parois du FOUR et les fumées doivent être correctement refroidies) et les mauvais fonctionnements des débitmètres. En cas de dysfonctionnement, l'arrivée de combustible et le réchauffeur sont automatiquement arrêtés, le circuit de refroidissement et l'arrivée d'air froid dans le four sont maintenus de manière à assurer un refroidissement correct de l'installation.

n°	Désignation	Nom	Observation
1	Air total dysfonctionnement	ATMF	Déclenchement en cas de dysfonctionnement du calculateur afficheur
2	Air total limite	ATL	Déclenchement lorsque le débit d'air total descend en dessous de 40 m <sup>3</sup> (N)/h
3	Air surnuméraire dysfonctionnement	ASMF	Déclenchement en cas de dysfonctionnement du calculateur afficheur
4	Air surnuméraire limite	ASL	Déclenchement lorsque la température de l'air surnuméraire dépasse 60 °C
5	Gaz naturel dysfonctionnement	GNMF	Déclenchement en cas de dysfonctionnement du calculateur afficheur
6	Gaz naturel limite	GNL	Déclenchement lorsque la pression au niveau du débitmètre dépasse les 1,6 bars absolus
7	Temperature four limite basse	TFL	Déclenchement lorsque la température du four descend en dessous de 800 °C
8	Temperature four limite Haute	TFH	Déclenchement lorsque la température du four dépasse 1200 °C
9	Détection de CO	DCO	Déclenchement en cas de détection de CO
10	Détection de CH <sub>4</sub>	DCH4	Déclenchement en cas de détection de CH <sub>4</sub>
11	Arrêt d'urgence	ARU	Déclenchement manuel

Figure 38 Liste des alarmes (Masson-2005).

Un logiciel de suivi de fonctionnement a été développé spécifiquement pour le FOUR. C'est un serveur d'acquisition des températures et des débits volumiques, qui est doté d'un système de vidéo surveillance. Les données sont enregistrées au CRIHAN et consultable depuis n'importe quel ordinateur. C'est donc un logiciel de contrôle à distance : il permet de suivre en permanence l'évolution des températures et des débits au sein du four.

## II. Installation pilote de combustion sans flamme du CORIA

La Figure 39 montre l'interface graphique de ce logiciel de contrôle à distance qui permet de suivre en temps réel les températures aux parois, les températures des fumées ainsi que les débits d'air et de méthane, par lecture directe, ou par graphiques. Le système de vidéo surveillance, permet de vérifier, lors de la phase d'allumage, de la présence de la flamme. Ce logiciel permet de s'assurer du fonctionnement correct de l'installation et si besoin est, d'intervenir plus rapidement. Il permet aussi de réaliser des calculs de bilans à partir de données statistiques.

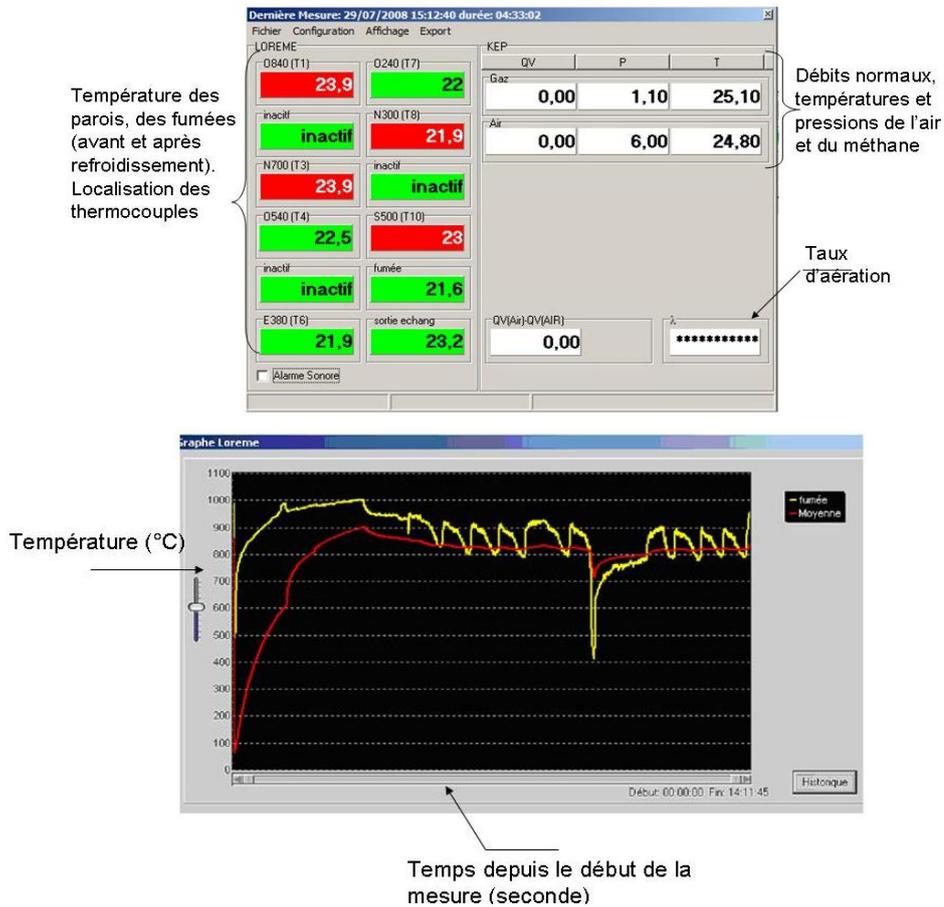


Figure 39 Interface graphique du logiciel de suivi à distance permettant de vérifier le bon fonctionnement du FOUR.



## *Chapitre III:* **Techniques de mesure**

*Dans ce chapitre les différentes techniques de mesure utilisées ainsi que les traitements réalisés lors de cette étude sont présentés : mesures de concentrations des espèces stables par sonde de prélèvement, de température par thermocouple à fil fin, imagerie moyenne et résolue en temps des zones de réaction par chimiluminescence du radical  $OH^*$ , de vitesse par PIV (vélocimétrie par images de particules) classique puis avec un endoscope à haute température développé dans le cadre de cette étude.*

### **III.1- Mesures de concentrations moyennes d'espèces stables**

#### ***Principe et montage expérimental***

Les mesures de concentrations moyennes d'espèces stables sont réalisées grâce à l'utilisation d'une sonde de prélèvement et d'une baie d'analyse. La Figure 40 résume le principe de la mesure. La sonde est refroidie par une circulation d'eau. Le groupe froid permet d'aspirer le gaz via une ligne de prélèvement chauffée à 180°C de manière à ce que l'eau présente dans l'échantillon prélevé ne se condense pas dans la ligne. Après aspiration, la vapeur d'eau contenue dans l'échantillon est condensée par le groupe froid, les gaz secs sont envoyés pour analyse tandis que l'eau est rejetée. Deux analyseurs différents ont été utilisés. Ils sont répertoriés avec les gammes de mesure des composants dans le Tableau 4. La centrale d'acquisition SA70 permet de convertir les signaux analogiques, reçus par les analyseurs, en signaux numériques. Les données sont sauvegardées sur PC portable.

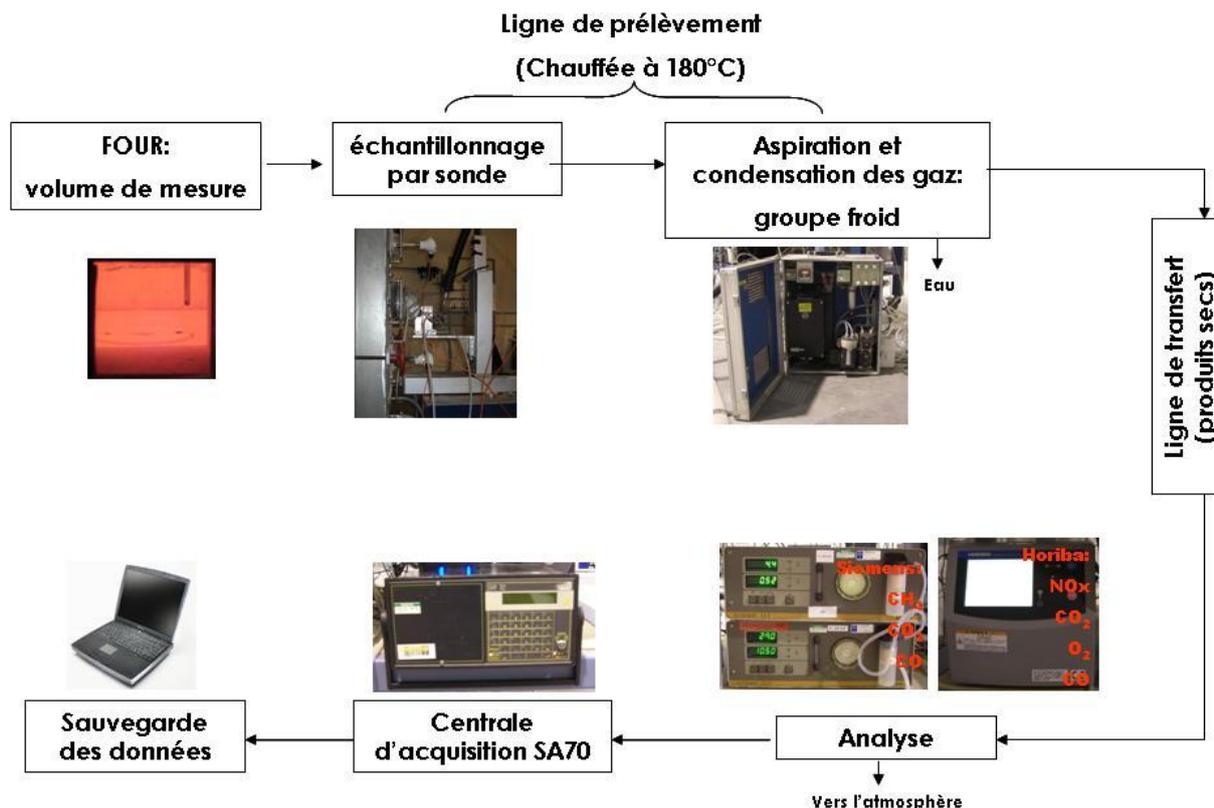


Figure 40 Dispositif expérimental de mesures de concentrations par prélèvement.

Espèce	Analyseur	Principe	Gamme
O <sub>2</sub>	HORIBA PG250	Cellule galvanique	0-25% ± 1%
CO <sub>2</sub>	HORIBA PG250	Infra Rouge non dispersif	0-20 % ± 0.8%
NO <sub>x</sub>	HORIBA PG250	Chimiluminescence NO <sub>2</sub> *	0-500ppm ± 17.5ppm
CO	HORIBA PG250	Infra Rouge non dispersif	0-5000ppm ± 175ppm
CH <sub>4</sub>	ULTRAMAT 22P, Siemens	Absorption Infra Rouge	0-10% ± 0.7% 0-100% ± 0.7%

Tableau 4 Caractéristiques des analyseurs de gaz.

La sonde de prélèvement réalisée en acier inoxydable possède une double paroi extérieure refroidie en eau (Figure 41). Elle est alignée dans le plan vertical du four passant par les axes des trois injecteurs, à l'aide d'une croix laser et elle est positionnée au point de mesure grâce à un déplacement motorisé 2D commandé via le logiciel ISEL développé au CORIA. L'étanchéité est assurée par un soufflet métallisé. Un système de trappe coulissante, de blocs réfractaires placés de part et d'autre de la sonde ainsi que de l'air injecté dans le soufflet permet de préserver sa durée de vie. Un contrôle des analyseurs de gaz est effectué quotidiennement à l'aide de bouteilles de gaz étalon.

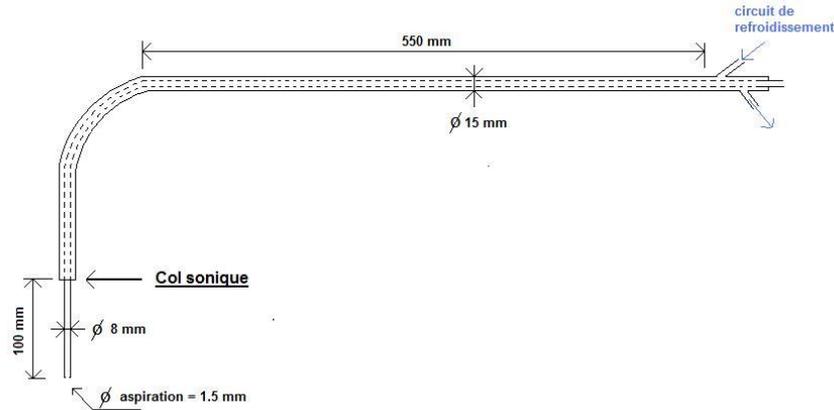


Figure 41 Sonde de prélèvement.

### Temps d'acquisition

De manière à déterminer le temps d'acquisition nécessaire en chacun des points de mesure, nous avons réalisé une acquisition de 28 minutes. Le prélèvement a été effectué à une hauteur de 55mm en sortie de brûleur, à 5mm par rapport au centre du jet de méthane, côté air, pour le cas de référence. Cette zone correspond à un point où l'on a un début de combustion et donc une forte production de CO et des fluctuations importantes. Les valeurs moyennes mesurées en fonction du temps sont données Figure 42. Les concentrations en CH<sub>4</sub>, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> et NO<sub>x</sub> convergent dès 60 secondes d'acquisition. En revanche, on remarque toujours de fortes fluctuations de la concentration en CO même après une demi-heure de mesure. Le temps d'acquisition choisi pour les mesures est d'une minute par point. On obtiendra donc des concentrations moyennes en CH<sub>4</sub>, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> et NO<sub>x</sub>, mais on aura une plus forte incertitude sur la concentration en CO dans les régions à forte fluctuation.

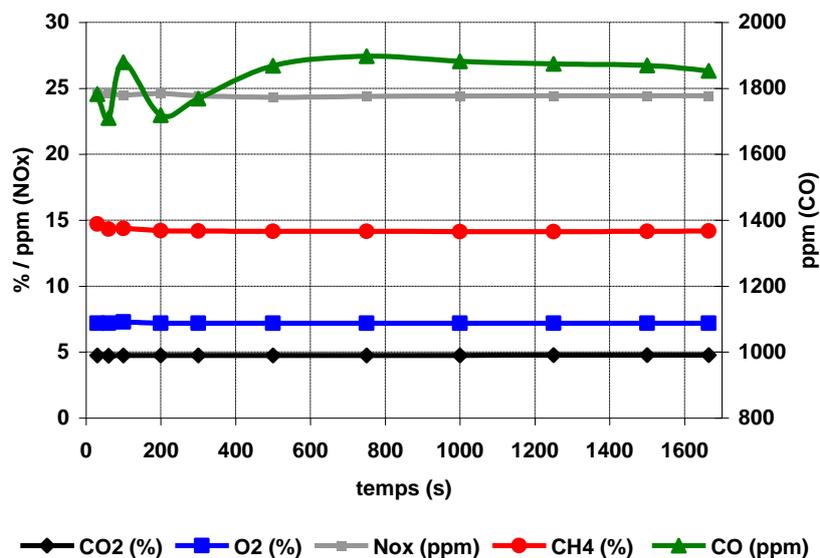


Figure 42 Convergence des mesures de concentrations.

### Reproductibilité des résultats

Afin de vérifier la reproductibilité des mesures, nous avons réalisé consécutivement 6 fois la même ligne de mesure, pour le cas avec un fort excès d'air ( $\lambda=1.72$ ). Le temps pour réaliser une ligne de mesure étant de 40 minutes, 3h20 se sont écoulées entre le début de la première et le début de la dernière ligne de mesure. Les concentrations mesurées pour chacune des espèces et pour chacune des acquisitions sont reportées Figure 43.

Les concentrations en  $\text{NO}_x$ , en  $\text{O}_2$  et en  $\text{CO}_2$  se superposent parfaitement. Les concentrations en  $\text{CO}$  et en  $\text{CH}_4$  présentent des variations du maximum mesuré : de 63 à 70% pour le  $\text{CH}_4$  et de 3844 à 4534 ppm pour le  $\text{CO}$ . Ces variations s'expliquent d'une part par les fluctuations temporelles de  $\text{CO}$  et d'autre part par la taille de la sonde vis à vis du jet de méthane.

Malgré ces deux limitations, les mesures de concentrations peuvent donc être considérées comme reproductibles.

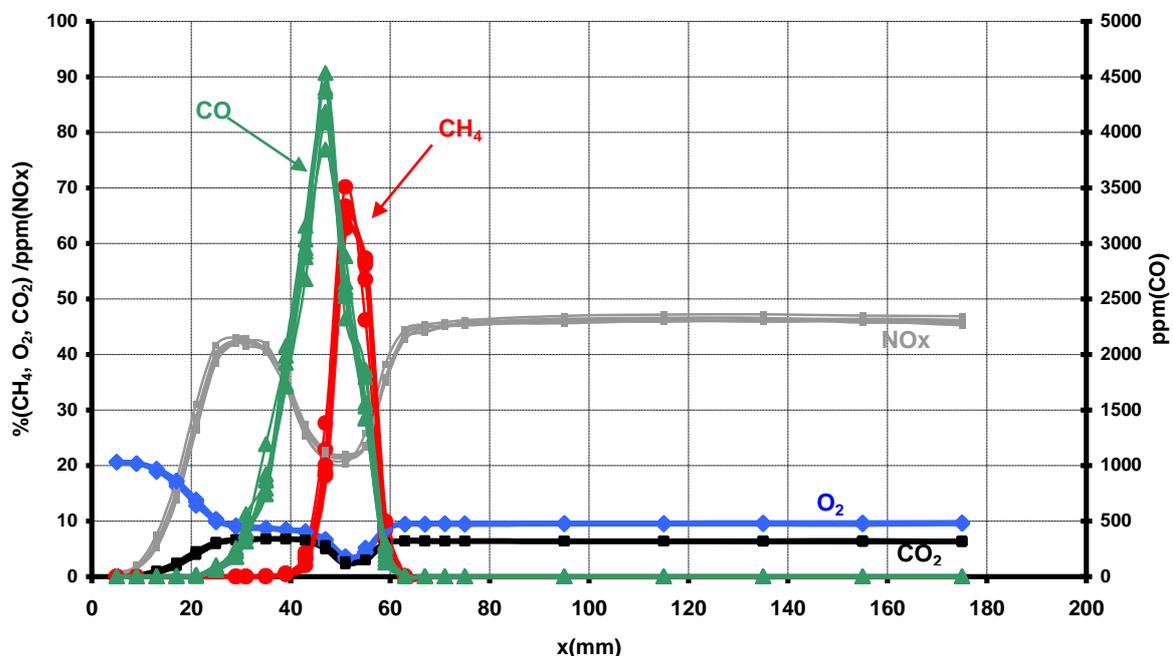


Figure 43 Reproductibilité des mesures de concentration par sonde de prélèvement.

### Conditions opératoires

Les mesures de concentrations ont été réalisées pour chacun des trois cas tests sélectionnés, et pour deux des accès du four : E380 et O500. Les hauteurs de mesures par rapport au brûleur sont données Tableau 5.

E380(mm)	45	55	65	75	85	95	105	115	125	135
O500(mm)	210	220	230	240	250	260	270	280	290	

Tableau 5 Hauteurs de mesures de concentration par sonde de prélèvement.

Pour chaque hauteur 20 à 24 points ont été nécessaires à la réalisation d'un profil radial, ce qui représente 8h de mesure par cas et par accès.

### III.2- Mesure de la température locale

#### *Principe de la mesure de température par thermocouple à fil fin*

Un thermocouple est un circuit formé de deux fils métalliques de nature différente dont les extrémités sont reliées par deux soudures. Lorsque l'une des jonctions est maintenue à une température différente de l'autre, il y a apparition dans le circuit d'une force électromotrice (f.é.m) due aux effets Peltier (métaux différents) et Thompson (gradient de température dans le métal). Cette f.é.m est fonction de la différence de température entre les deux soudures. Un tel dispositif est appelé thermocouple différentiel puisqu'il fournit un signal proportionnel à la différence de température entre la soudure « froide » et la soudure « chaude ».

La soudure froide, appelée jonction de référence, est maintenue à une température connue (0°C, température constante non nulle, ou température variable mais connue). La détermination de la température du fluide environnant la soudure chaude nécessite la réalisation du bilan thermique autour de celle-ci.

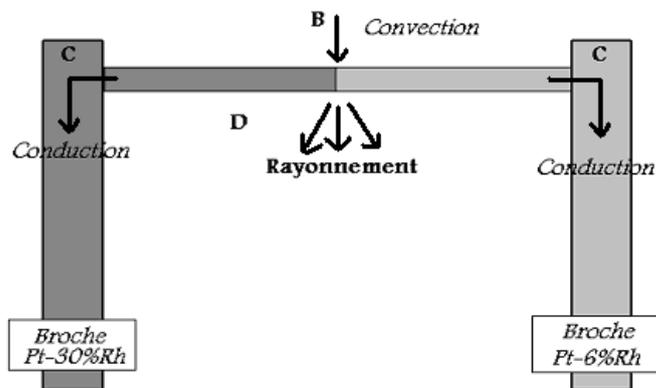


Figure 44 Bilan thermique sur le thermocouple à fil fin.

#### *Bilan thermique*

Le bilan énergétique, pour une unité de longueur « dx » du thermocouple, peut être exprimé de la manière suivante :

$$\pi^2 \cdot dx \cdot \rho \cdot C_p \frac{\partial T_c}{\partial t} = 2r\pi \cdot dx \cdot h(T_g - T_c) - r^2 \pi \cdot dx \cdot \lambda_f \frac{\partial^2 T_c}{\partial x^2} + 2r\pi \cdot dx \cdot \varepsilon_c \cdot \sigma (\varepsilon_{pa} T_{pa}^4 + \varepsilon_g T_g^4 - T_c^4) + 2\pi \cdot dx \cdot Q_{cat}$$

Acc                      B                      C                      D                      E

L'accumulation (Acc) est la somme des effets de convection (B), de conduction (C), de rayonnement (D) et de catalyse (E).

$\rho$  est la masse volumique,  $C_p$  la capacité calorifique,  $\lambda_f$  la conductivité thermique,  $\sigma$  la constante de Stefan,  $T_g$ ,  $T_c$  et  $T_{pa}$  sont respectivement la température du gaz, autour de la sonde, que l'on cherche à déterminer, la température mesurée par le thermocouple et la température des parois,  $\varepsilon_g$ ,  $\varepsilon_c$  et  $\varepsilon_{pa}$  sont respectivement, les émissivités des produits de

combustion, du thermocouple et du matériau réfractaire des parois,  $r$ : rayon du fil fin,  $h$ : coefficient d'échange convectif ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ ), et  $Q_{\text{cat}}$ : quantité de chaleur dégagée par catalyse.

#### ***Convection***

Le terme  $B$  représente l'échange thermique par convection entre le thermocouple et son environnement.

#### ***Conduction***

A haute température, il existe toujours un gradient de température entre le fil et les broches supportant le fil fin puisque les pertes par rayonnement varient en fonction du diamètre des fils. Cependant, il existe une longueur de fil pour laquelle l'échange conductif entre le fil et son support n'influence plus le point de mesure (Bradley et Matthews-1968). Si la longueur du fil est 200 fois plus importante que son diamètre, comme dans notre cas, alors on peut supposer que l'échange par conduction n'influence plus la mesure.

#### ***Rayonnement***

Le terme  $D$  représente l'échange radiatif entre le thermocouple et son environnement constitué dans notre cas du gaz et des parois de la chambre de combustion. Neveu (Neveu-1994) et Larass (Larass-2000) en se basant sur les travaux de Hottel et Sarofim (Hottel-1967) considèrent que l'émissivité des gaz est l'émissivité des espèces majoritaires c'est-à-dire, l'émissivité des produits de combustion:  $\text{H}_2\text{O}$  et  $\text{CO}_2$ , l'azote participant peu aux échanges radiatifs (Siegel et Howell - 1981, Heitor et Moreira - 1992). L'émissivité de ces deux espèces est très faible (comprise entre 0.03 et 0.09, d'après Hottel-1967). De nombreux auteurs considèrent donc que le rayonnement des gaz vers le thermocouple peut être négligé, nous avons vérifié cette hypothèse (cf. annexe 1).

#### ***Catalyse***

Les thermocouples sont composés de matériaux comme le platine ou le rhodium qui sont de bons catalyseurs pour, entre autre, l'oxydation de  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2$  et  $\text{CO}$ . Dans des écoulements réactifs en présence de  $\text{CH}_4$  ou de  $\text{CO}$ , des réactions surfaciques se produisent sur le fil du thermocouple qui change alors de comportement au fil du temps, et peuvent influencer la température mesurée (Neveu-1994).

Dans notre cas, nous nous sommes assuré que les mesures étaient reproductibles avec le même thermocouple au fur et à mesure du temps en faisant 4 passages successifs (4h séparent le début du premier passage de la fin de la dernière ligne de mesure) (Figure 45).

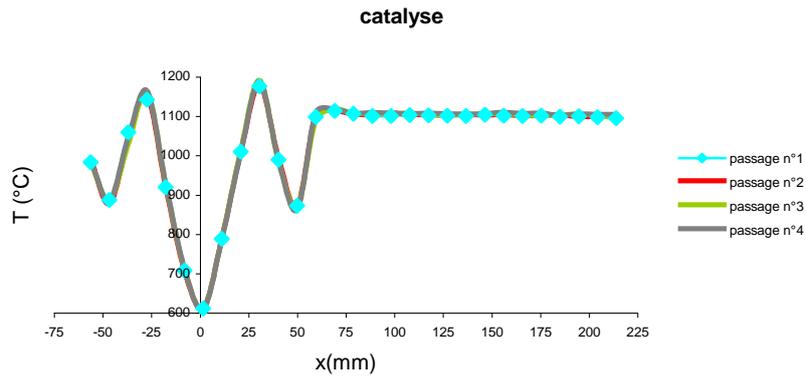


Figure 45 Vérification de la non- catalycité du thermocouple de type B, hauteur y=90mm (accès O220, mesures réalisées avec la canne coudée).

Si l'on néglige la conduction, l'émissivité des gaz et la catalyse, le bilan thermique peut alors s'écrire :

$$\frac{\partial T_c}{\partial t} = \frac{2h}{r\rho C_p}(T_g(t) - T_c(t)) + \frac{2\varepsilon_c \sigma}{r\rho C_p}(\varepsilon_{Pa} T_{Pa}^4 + \varepsilon_g T_g^4 - T_c^4(t))$$

En introduisant  $d=2r$  et le nombre de Nusselt :  $Nu = \frac{hd}{\lambda_g}$ , on obtient le bilan thermique :

$$\frac{\partial T_c}{\partial t} = \frac{4Nu\lambda_g}{d^2 \rho C_p}(T_g(t) - T_c(t)) + \frac{4\varepsilon_c \sigma}{d\rho C_p}(\varepsilon_{Pa} T_{Pa}^4 + \varepsilon_g T_g^4 - T_c^4(t))$$

De manière à quantifier la correction de température pour l'intégralité des champs de température mesurés dans le four, nous avons créé un programme Matlab qui calcule la température réelle en fonction de la température mesurée et des différents paramètres propres à notre installation. Les températures de parois sont prises à 1050°C et la température des gaz à 1300°C. L'émissivité des recirculations est calculée à l'aide du document de l'IFRF (feuille Excel n°96) qui permet d'évaluer l'émissivité des produits de combustion du gaz naturel, avec ou sans formation de suie en fonction de la température des fumées. L'émissivité est  $\varepsilon_{gaz}=0.1551$  pour  $T_{recirculations}=1316K$  (cas F0),  $\varepsilon_{gaz}=0.1442$  pour  $T_{recirculations}=1280K$  (cas F2) et  $\varepsilon_{gaz}=0.1577$  pour  $T_{recirculations}=1277K$  (cas F1). L'influence de l'émissivité du gaz sur la correction de température a été étudiée, elle est très faible (cf. annexe 1). C'est pourquoi, on choisit  $\varepsilon_{gaz}=0.15$  comme émissivité caractéristique du gaz. Les parois du four sont en matériau réfractaire en fibre céramique d'émissivité  $\varepsilon_{parois}=0.62$  à 1000°C (IFRF combustion Handbook, annexe 1). Les courbes de température obtenues pour différentes vitesses de l'écoulement sont données Figure 46. On peut remarquer que plus la vitesse de l'écoulement est faible, plus l'erreur est importante. Pour une même température mesurée, la température du gaz environnant n'influence pas le point de mesure, par contre, plus la température de la paroi est faible, plus l'erreur sur la température mesurée est grande.

Pour notre installation, les températures faibles (inférieures à 800°C) se situent dans les jets, or la vitesse des jets est toujours supérieure à 14 m/s (vitesse du jet d'air non préchauffé). La

température mesurée la plus importante est  $1510^{\circ}\text{C}$ , dans les couches de mélange méthane/air, pour le cas avec excès d'air. On peut donc supposer que, dans cette zone, la vitesse est supérieure à  $5\text{m/s}$ . Ainsi, dans notre configuration expérimentale avec un confinement à haute température, que ce soit donc pour des grandes vitesses et faibles températures ou des faibles vitesses et fortes températures, l'écart entre la température réelle et la température mesurée sera toujours inférieur à 4%.

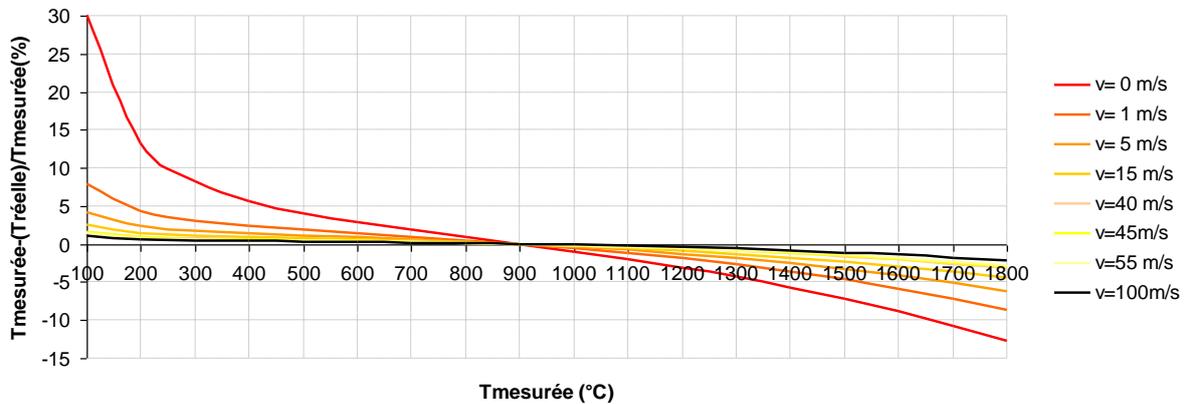


Figure 46 Ecart entre la température réelle et la température mesurée en fonction de la température mesurée.

Le bilan thermique sur la soudure chaude fait intervenir la vitesse locale (dans le nombre de Nusselt  $Nu$ ). Ne connaissant pas le champ de vitesse pour la totalité de notre installation, il n'est donc pas possible de post-traiter la totalité des champs de température obtenus. Cependant, nous avons réalisé la correction des mesures de température dans la région proche du brûleur pour laquelle nous connaissons aussi les vitesses mesurées par PIV. La différence entre la température mesurée et la température corrigée étant la plus importante dans les zones à faibles vitesses, nous avons choisi le cas sans préchauffage de l'air (F1) pour réaliser cette correction.

La Figure 47 (respectivement la Figure 48) présente les cartographies de température pour la région proche brûleur corrigées à l'aide du champ de vitesse obtenu par PIV classique (respectivement PIV endoscopique).

La Figure 49 montre l'évolution de la température mesurée et corrigée en fonction de la distance au centre du brûleur à une hauteur de  $35\text{mm}$ . Cette hauteur correspond à la position axiale qui présente la plus grande différence entre la température mesurée et la température corrigée. Les couches de mélange des jets de méthane et d'air avec les produits de combustion recirculant, sont les zones pour lesquelles les gradients de température sont les plus élevés. Dans ces zones, pour lesquelles la correction de température est la plus importante, l'écart entre la température mesurée et la température corrigée est de  $22^{\circ}\text{C}$  ( $< 2\%$ ).

E. Masson a observé le même phénomène sur l'installation semi industrielle : l'augmentation de température obtenue grâce à la compensation numérique (en tenant compte de la convection et du rayonnement) est de 3% dans les zones à forte vitesse et atteint au maximum 6% dans les zones à faible vitesse (Masson-2005).

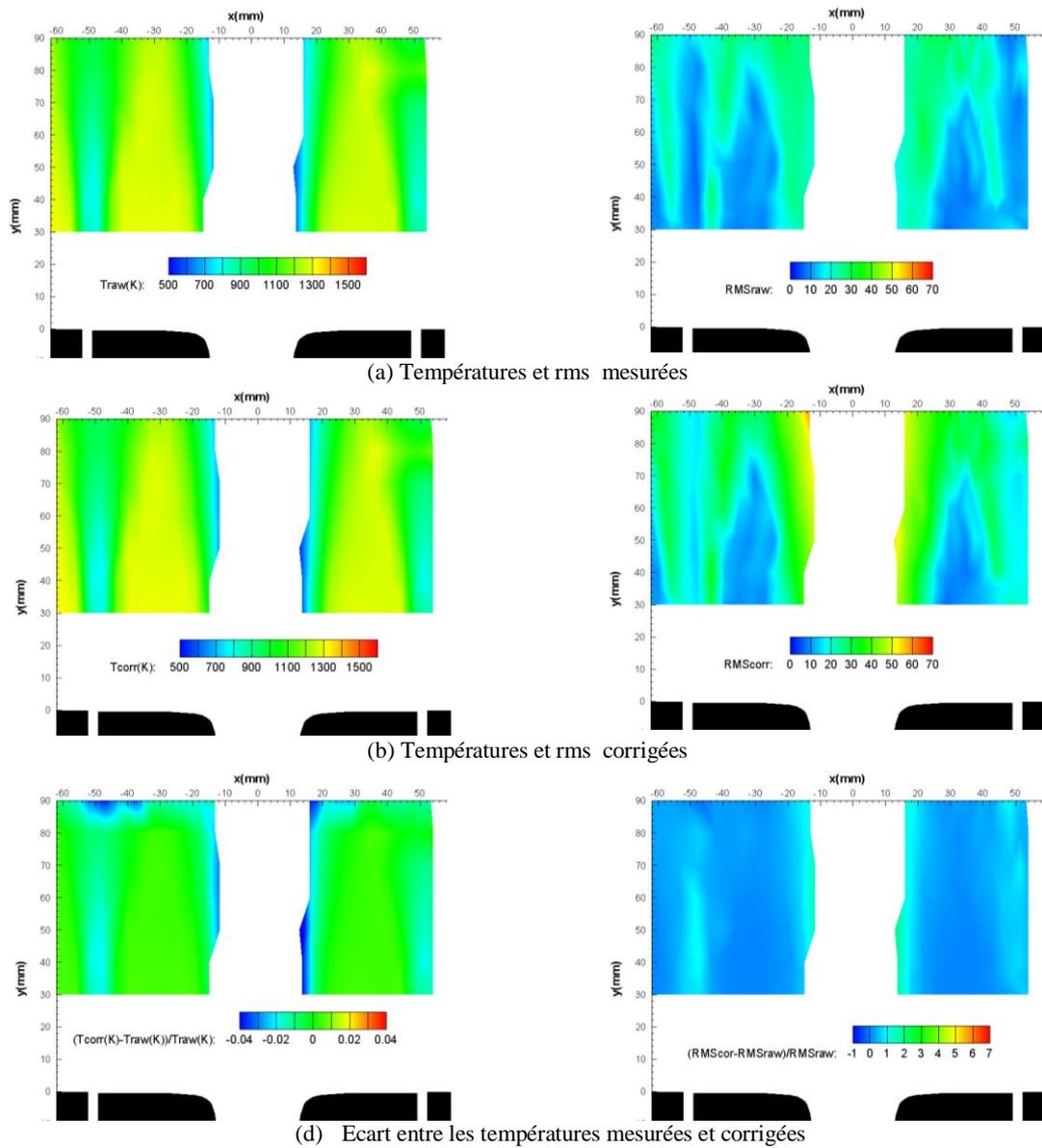


Figure 47 Champs de température (à gauche) et de rms (à droite).

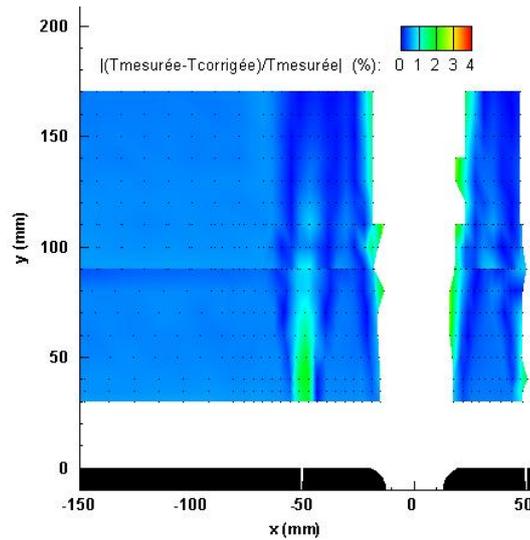


Figure 48 Ecart (en %) entre la température mesurée à l'aide des mesures de vitesse réalisées par PIV endoscopique et la température corrigée.

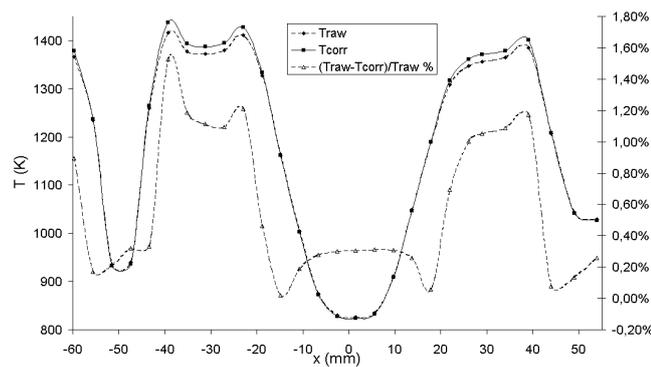


Figure 49 Différence entre température brute et température corrigée pour la hauteur  $y=35\text{mm}$  (qui présente la température mesurée la plus élevée).

Szegö et al. (2008) corrigent leurs mesures de température (obtenues dans une installation de combustion sans flamme) par le rayonnement, à partir de l'équation d'équilibre sur la soudure du thermocouple. La température du gaz ( $T_g$ ) est déterminée à partir de la température mesurée ( $T_{tcb}$ ) et du flux net de rayonnement, en tenant compte de la position du thermocouple par rapport aux parois.

$$T_g = T_{tcb} + \frac{A_{tcb} \varepsilon_{tcb} \sum_{w=1}^N \sigma G_{1w} (T_{tcb}^4 - T_w^4)}{h}$$

$A_{tcb}$  est la surface de la soudure du thermocouple,  $\varepsilon_{tcb}$ , l'émissivité du thermocouple,  $N$  le nombre total de parois de l'installation,  $\sigma$  la constante de Boltzmann,  $G_{1w}$ , la partie du rayonnement émis par le thermocouple qui est incidente à la surface  $w$  qui est absorbée (Siegel-2002),  $T_w$  est la température de la paroi  $w$ ,  $h$  est le coefficient de convection calculé pour une sphère (Incropera-1996, Cheron-1999). Tout comme les autres auteurs, Szegö (2008) néglige l'effet du rayonnement dû aux gaz environnants.

En l'absence de champ de vitesse, les auteurs proposent de calculer le nombre de Nusselt ( $Nu = \frac{h_t D}{\lambda_g}$ ) en utilisant le coefficient de convection pour une sphère :

$$Nu = 0.38Re^{0.56} Pr^{0.36} + 2$$

Dans ce cas, l'influence du nombre de Reynolds sur le nombre de Nusselt est faible. Ce dernier est 2 quelque soit la vitesse des gaz au point de mesure.

Nous avons réalisé la même correction, en considérant notre soudure cylindrique, dans ce cas, dans la gamme de vitesse de notre écoulement, le nombre de Nusselt varie de 0.3 à 0.4 ( $Nu = 0.42Pr^{0.2} + 0.57Re^{0.5} Pr^{0.33}$ , corrélation de Kramer -1946). Pour l'estimation de l'erreur relative sur les mesures de température, le nombre de Nusselt est fixé à 0.4. La Figure 50 présente l'écart entre la température mesurée et la température corrigée, pour les trois cas étudiés, en tenant compte du rayonnement et de la position par rapport aux parois sous les hypothèses précédemment énoncées. L'écart le plus grand est situé dans la zone de combustion pour laquelle les températures mesurées sont les plus élevées, ainsi que au centre du jet d'air, pour lequel les vitesses et les températures sont les plus faibles. Sur l'ensemble du champ de température, quelque soit le cas, l'écart de température reste inférieur à 5%.

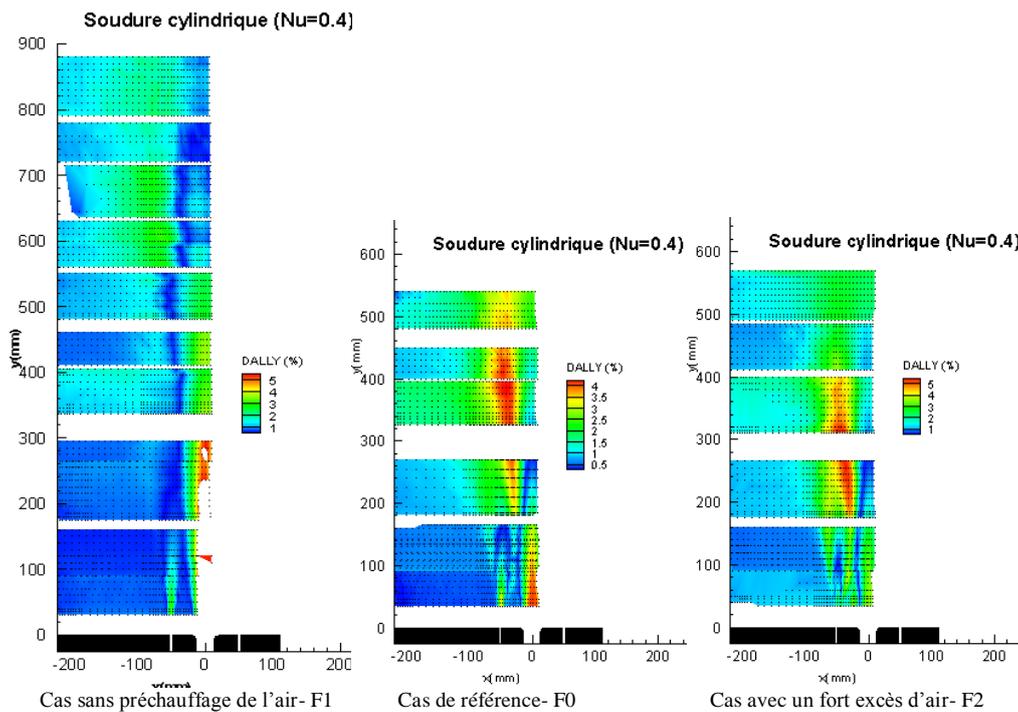


Figure 50 Mesures de température corrigée en prenant en compte le rayonnement et la position par rapport aux parois.

Rocha et al. (2008), dans une flamme jet turbulente, calculent la correction par rayonnement : elle est de 82°C pour les températures les plus élevées ( $T_{max}=1350^{\circ}C$ ) et de 7°C pour les températures les plus faibles ( $T_{min}=200^{\circ}C$ ), ce qui représente un écart entre la température mesurée et la température réelle de 6% (pour  $T_{max}$ ) et 3.5% (pour  $T_{min}$ ).

Les auteurs listent les corrections rencontrées dans la littérature :

- Des mesures réalisées avec un thermocouple Pt/Pt-13%Rh de 0.25mm de diamètre, ont été corrigées par le rayonnement (Nguyen-1995) avec des valeurs comprises entre 40 et 97K.

- Pour un thermocouple S de diamètre 0.076 mm, la correction des pertes par rayonnement a été estimée entre 64 et 78K pour une température de flamme maximale de 1880K (Mihalcea-1997).
- D'autres mesures réalisées dans une flamme avec des thermocouples Pt/Pt-10%Rh non revêtu de diamètres 0.025 et 0.051mm et avec un thermocouple de diamètre 0.051mm revêtu avec de l'oxyde de silicium, ont permis d'estimer l'écart entre la température réelle et la température mesurée de 47 et 95K pour les thermocouples non revêtus et de 135K pour le thermocouple revêtu (Schoenung-1981).

D'autres sources d'erreur, comme l'incertitude sur la taille de la soudure, le fait que le temps de réponse du thermocouple soit plus grand que le temps d'échantillonnage (Shannon-2003) sont à prendre en compte.

Finalement, Korusoy (2002) affirme que la température mesurée sous estime la température moyenne réelle de moins de 3% et que cette sous estimation n'affecte pas les tendances.

Les auteurs s'accordent à dire que la correction sur les mesures de température reste inférieure à 6% quelques soient les conditions de mesures.

Les températures mesurées avec le thermocouple à fil fin sont très proches des températures réelles de l'écoulement. De plus, les variations de température restent similaires entre valeurs mesurées et valeurs corrigées. Les mesures obtenues avec les thermocouples à fil fin représentent effectivement le champ thermique dans le four avec une incertitude inférieure à 5%.

Comme la vitesse de l'écoulement n'est pas connue pour l'ensemble de la chambre de combustion, les températures mesurées seront présentées sans correction.

#### ***Influence de la taille de la soudure chaude et la fréquence de coupure du thermocouple***

Les campagnes de mesure de température par thermocouple à fil fin ont été très longues (12 mois environ). Non seulement à cause de la fragilité de la soudure chaude, mais à cause du nombre important de points de mesure pour chacun des trois cas étudiés (2705 points de mesure pour chacun des deux cas avec préchauffage de l'air F0 et F2 et 4090 points de mesure pour le cas sans préchauffage F1). Deux cannes support de thermocouple différentes, l'une droite, l'autre coudée ont été utilisées. Plusieurs thermocouples ont donc été utilisés pour les mesures. Il s'est avéré intéressant de comparer l'influence de la taille de la soudure sur la température mesurée. Pour le cas de référence, la zone autour du point de fusion théorique a été mesurée avec le même type de thermocouple mais avec un fil fin dont le diamètre de soudure était différent. Pour le premier cas, le diamètre de la soudure est d'environ 50 $\mu$ m, pour le second cas, le diamètre de la soudure est 4 fois plus important. La soudure de 50 $\mu$ m a cassé à la traversée du point de fusion, la soudure de 200 $\mu$ m a résisté et a permis de mesurer tout le domaine pour les trois cas. Ce deuxième thermocouple possède une constante de temps plus grande qui ne lui permet pas de mesurer correctement toutes les fluctuations de l'écoulement. De plus, tout au long de l'acquisition des données, on a pu noter des valeurs aberrantes de température. Nous avons décidé de ne pas tenir compte des valeurs de températures erronées pour le calcul de la moyenne et de la rms. Le thermocouple de 200 $\mu$ m a été utilisé pour mesurer les températures dans la zone comprise entre  $y=90$ mm et

$y=160\text{mm}$  pour les trois cas utilisés. Cependant le cas sans préchauffage de l'air n'a posé aucun problème de numérisation.

Pour le cas de référence, 538 points de mesure ont été réalisés, 261 ont été modifiés en enlevant au maximum 25 mesures instantanées (sur les 160 000 réalisées en chaque point) représentant seulement 0.02%.

Pour le cas avec excès d'air, sur les 387 points de mesure réalisés, 89 ont été modifiés en ôtant moins de 14 mesures instantanées (0.001%).

La Figure 51 montre que les températures mesurées par le thermocouple de  $200\mu\text{m}$  sont les mêmes que celles mesurées par le thermocouple de  $50\mu\text{m}$ , dans les jets et dans les recirculations. Par contre, dans les couches de mélanges des jets, principalement dans la couche de mélange entre le jet d'air et les jets de méthane, le thermocouple de  $200\mu\text{m}$  sous-évalue de 4% environ les températures.

Plus la soudure est grosse, plus le thermocouple a des difficultés pour mesurer correctement les fluctuations de température. Cependant, il a fallu trouver un compromis entre précision des résultats et robustesse du thermocouple. Les mesures de températures brutes mesurées entre les hauteurs  $y=90\text{mm}$  et  $y=160\text{mm}$  possèdent donc une incertitude supplémentaire de 4%.

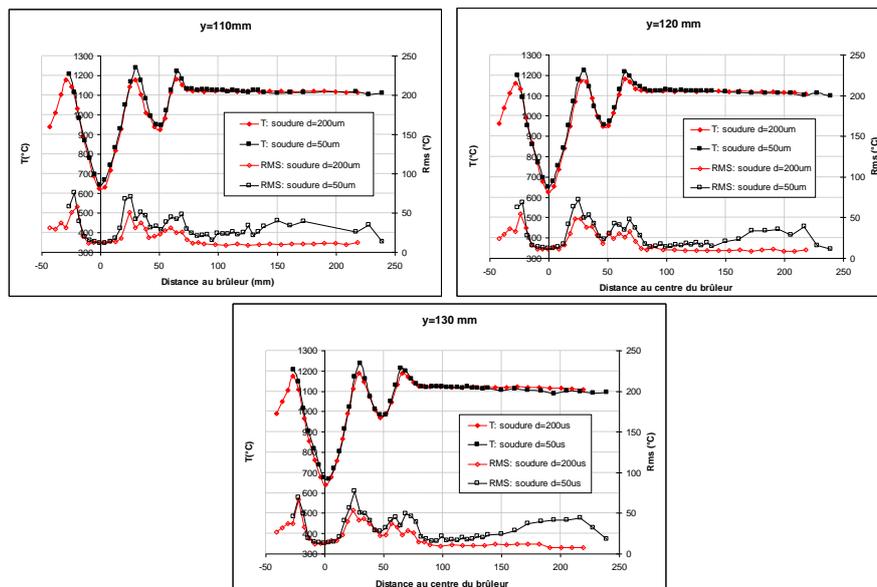


Figure 51 Influence de la taille de la soudure chaude.

### Détermination de l'influence de la constante de temps du thermocouple

Malgré le faible diamètre des matériaux utilisés pour sa fabrication, le thermocouple à fil fin se comporte comme un filtre passe bas de fréquence de coupure de l'ordre de 10Hz

( $f_c = \frac{1}{2\pi\tau_c}$  où  $\tau_c$  est la constante de temps du thermocouple) (Neveu, 1994). Ce qui a pour

effet d'atténuer considérablement l'amplitude des fluctuations de température mesurées au-delà de cette fréquence de coupure. La technique de compensation numérique a pour but de retrouver les fluctuations présentes dans l'écoulement.

Généralement, une augmentation de la température entraîne une diminution de la constante de temps du thermocouple. Cette influence est notable pour des vitesses faibles (inférieures à

4m/s), mais devient négligeable pour des jonctions inférieures au double du diamètre des fils (Dupont-1984). De plus, l'amplitude de la correction diminue avec la taille du thermocouple (Bradley et Matthews-1968). C'est-à-dire que plus le diamètre de la soudure plongée dans la source chaude est important, plus l'écart entre la température réelle et la température mesurée est grand.

Lorsque le diamètre de la soudure augmente, la constante de temps du thermocouple augmente aussi et la fréquence de coupure diminue (Paranthoën-1996). Enfin, la constante de temps du thermocouple varie en fonction de la vitesse et de la nature du gaz.

Dans le logiciel A3T utilisé pour acquérir les températures, la constante de temps du thermocouple est calculée à partir du diamètre de soudure entré en condition initiale (pour une soudure chaude de 50 $\mu$ m, la fréquence de coupure du thermocouple est d'environ 10 Hz) :

$$\tau_{cv} = \frac{\rho C_p d^2}{4Nu\lambda_g} \text{ (Neveu-1994).}$$

Les mesures de température présentées ne sont pas corrigées, mais nous avons voulu connaître l'influence de la variation du diamètre de la soudure sur la correction de la température mesurée. Pour cela, nous avons utilisé le domaine proche brûleur pour le cas sans préchauffage de l'air à une hauteur de 35mm en sortie de brûleur. C'est le même domaine de mesure que celui utilisé précédemment pour déterminer l'influence de la correction sur les valeurs brutes de température. Pour 4 diamètres de soudure différents : 50 $\mu$ m, 100 $\mu$ m, 200 $\mu$ m et 300 $\mu$ m, l'évolution des températures en fonction de la position dans le four sont données Figure 52. Il n'est pas possible de mesurer la température au centre du jet d'air non préchauffé avec un thermocouple type B (Tableau 6). Un diamètre de soudure trop important (300 $\mu$ m), semble influencer les valeurs de température corrigée (par convection et rayonnement). Cependant cette influence est très faible puisqu'on mesure un écart de 40K maximum (3%) entre les valeurs mesurées et les valeurs corrigées, ce qui correspond aux incertitudes de mesures dues à l'incertitude sur le diamètre de la soudure répertoriées dans la littérature par Rocha (2008), (31K pour Rocha, 34K pour Nguyen-1995, 20K pour Mihalcea-1997 et 25K pour Schoenung-1981).

Nous pouvons donc considérer que l'effet du diamètre de la soudure, dans la gamme des thermocouples réalisés pour cette étude, traduit une incertitude sur la mesure de l'ordre de 5% comme dans la littérature.

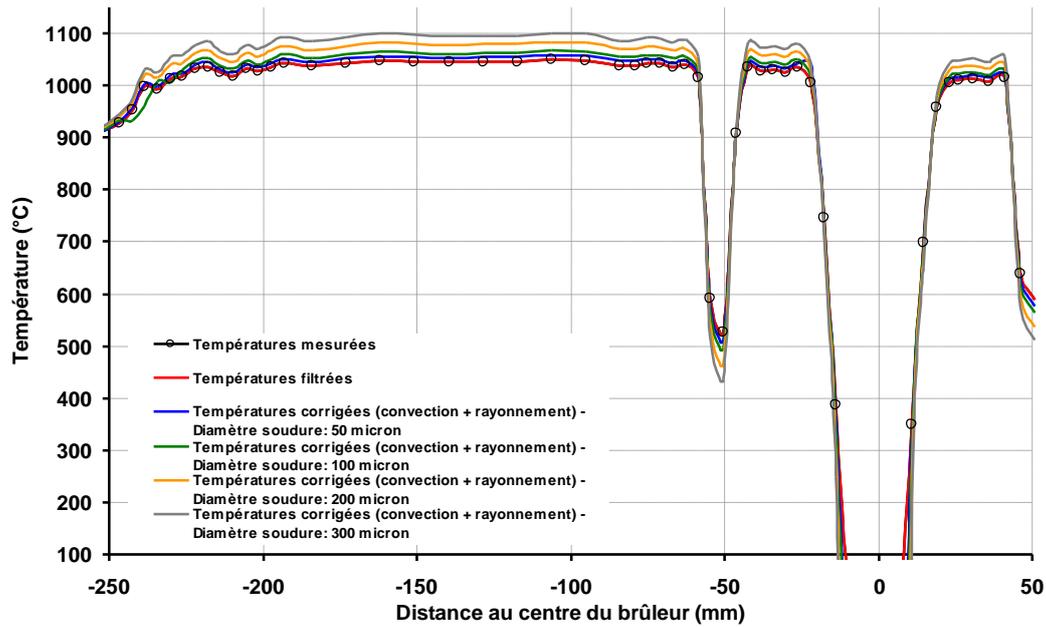


Figure 52 Influence du diamètre de la soudure chaude sur les mesures de température.

### Dispositif expérimental

Les Tableau 6 et Tableau 7 décrivent respectivement les caractéristiques générales des thermocouples et des alliages platine-rhodium. Le thermocouple à fil fin est choisi de type B de manière à pouvoir mesurer des températures jusqu'à 1800°C tout en gardant une très bonne précision, ce qui n'aurait pas été le cas avec un thermocouple de type S qui a une précision moins bonne pour les températures inférieures à 333°C et qui ne permet pas de mesurer des températures supérieures à 1600°C. Cependant, le thermocouple B ne permettant pas de mesurer des températures inférieures à 100°C, le jet d'air non préchauffé ne peut pas être complètement caractérisé.

Type	Fil conducteur		Sensibilité moyenne (mV/°C)	Gamme de température (°C)		Précision
	positive	négative		continu	intermittent	
S	Platine 10% Rhodium	Platine	11.4	0 à 1550	0 à 1700	-40°C à +333°C +/- 2.5°C 330 à 1200°C +/- 0.0075*T°C
B	Platine 30% Rhodium	Platine 6% Rhodium	10.6	100 à 1600	0 à 1800	600 à 1700 °C +/- 0.0025*T °C
Ir	Iridium	Iridium 40% Rhodium	5.4	0 à 2000	0 à 2400	

Tableau 6 Caractéristiques des thermocouples.

	$\rho$ masse volumique(kgmi <sup>-3</sup> )	$\rho_e$ résistivité électrique ( $\mu\Omega\text{cm}$ )	$\alpha_0$ ( $^{\circ}\text{C}^{-1}$ ).100	$\alpha_c$ ( $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ ).10 <sup>5</sup>	$\lambda_c$ ( $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ )	$C_c$ ( $\text{Jkg}^{-1}\text{K}^{-1}$ )	$\rho C_c$ ( $\text{Jm}^{-3}\text{K}^{-1}$ )
<b>Pt</b>	21450	10,59	0,393	2,42	70	135	2895750
<b>Pt - 6% Rh</b>	20557	17,50	0,200	1,20	35	142	2919094
<b>Pt - 10% Rh</b>	20500	19,43	0,166	1,01	30	145	2972500

$$\rho_e(T) = \rho_{e_0} (1 + \alpha_0(T - T_0)) \quad \text{où } T_0 \text{ est la température de référence, ici } 20^{\circ}\text{C}$$

Tableau 7 Caractéristiques des alliages Platine/Rhodium.

La soudure chaude du thermocouple de type B est réalisée par soudure de deux fils de 50  $\mu\text{m}$  de diamètre, de composition différente. Les fils sont en platine avec respectivement 30% et 6% de rhodium. Ces fils sont ensuite fixés sur des broches de plus grand diamètre afin d'être plus résistantes à l'écoulement. Chaque broche est constituée du même alliage que la partie du fil fin correspondant (Figure 53).

La géométrie idéale d'un thermocouple, de manière à minimiser l'erreur sur la mesure, a été décrite par Yule et al. (1978), Heitor et Moreira (1992, 1993), Paranthoën et Lecordier (1996). La forme adoptée par nos thermocouples est la suivante :

- Le fil fin est fixé et bien tendu entre les deux broches de 500  $\mu\text{m}$  de diamètre. Le diamètre des broches est quatre fois plus élevé que celui du fil fin (Yule et al.-1978) de manière à résister aux efforts dus à l'écoulement.
- Le diamètre des fils fins est homogène de 50  $\mu\text{m}$  pour le thermocouple de type B. Le point de soudure qui représente le point de mesure, se trouve au milieu et possède autant que faire se peut le même diamètre que le fil.
- La longueur du fil entre les deux broches est de 12 mm. Cette longueur est basée sur une estimation de Neveu (1994) respectant les influences induites par les pertes par conduction (Bradley et Matthews-1968) et l'effet des couches limites autour des broches à basses fréquences étudié par Paranthoën et al (1982).

Il est très difficile de réaliser un thermocouple correspondant parfaitement à la description ci-dessus. Il faut connaître l'influence sur les résultats des différences entre forme idéale et forme réelle. D'après la littérature (Bradley et al.-1968, Petit et al.-1982, Scadron et al-1952 et Larass-2000), on considère que

- Une variation sur la longueur ou le diamètre des broches n'a pas d'influence.
- Un fil insuffisamment tendu peut changer les valeurs de la mesure si le fil se trouve dans des zones à température inégale au point de soudure. Cette influence est négligeable dans des régions avec un gradient de température faible. La soudure peut se déplacer en fonction de la dilatation thermique, ou de la force de l'écoulement. Ceci peut avoir deux effets, la position mesurée est différente de celle recherchée et, si le thermocouple est revêtu, il est possible qu'un revêtement fragile casse.
- La précision du diamètre est importante pour l'évaluation de la constante de temps et l'estimation des pertes par rayonnement.

La variation de diamètre est inférieure à 2% pour les fils neufs. En revanche, une soudure parfaite est difficile à réaliser. La jonction entre deux fils fins est donc faite par chalumeau. Dupont et al. (1984) ont montré que la variation de la constante de temps est négligeable pour des jonctions inférieures au double du diamètre des fils. La jonction des thermocouples utilisés dans notre étude respecte largement ce critère.

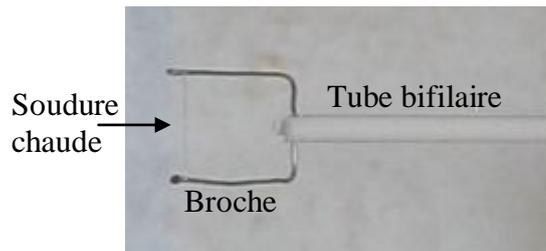


Figure 53 Thermocouple de type B utilisé pour les mesures de température.

La Figure 54 présente le dispositif expérimental de mesure des températures. Il est constitué d'un thermocouple à fil fin relié à un préamplificateur Stanford Research SR-560 (qui permet d'amplifier la valeur de la tension mesurée) et d'un micro-ordinateur muni d'une carte d'acquisition AT-MIO16-X (National Instrument) permettant de convertir le signal analogique en signal numérique.

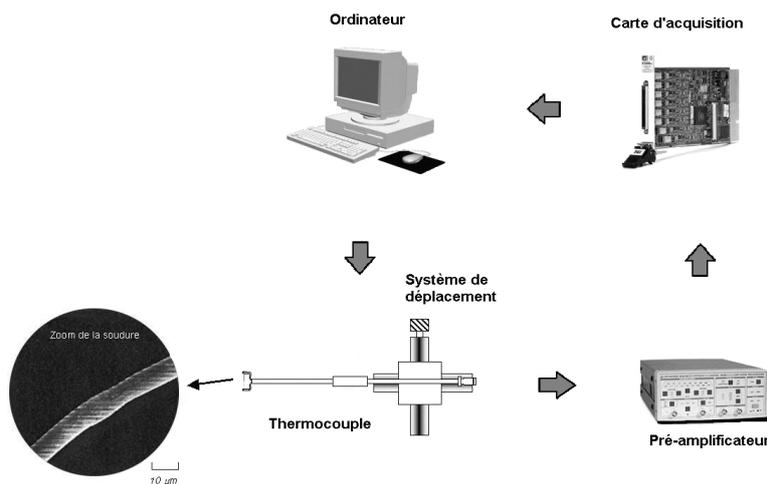


Figure 54 Dispositif expérimental permettant l'acquisition des températures.

Le thermocouple est monté dans un tube bifilaire en céramique et dans une canne refroidie par un circuit d'eau, afin de pouvoir résister aux hautes températures du four. L'ensemble, conçu et réalisé au CORIA, peut être installé sur chacune des ouvertures placées en quinconce sur les portes du four. Deux géométries de cannes refroidies ont été conçues. Une canne droite permet de mesurer les températures dans le four sur une hauteur de 90 mm centrée sur chaque accès, et une canne coudée pour accéder aux zones entre deux accès (Figure 55).

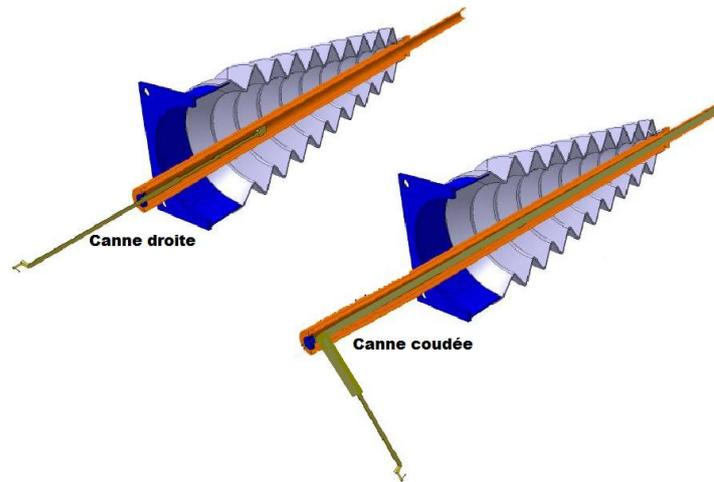


Figure 55 schémas en coupe des supports refroidis de thermocouples.

On utilise un soufflet afin de permettre le déplacement de la canne dans l'axe du brûleur et à différentes hauteurs tout en assurant l'étanchéité du four avec l'extérieur. Le soufflet en armature métallique a une température limite de fonctionnement de 800°C. Cette limite a nécessité l'installation de briques en réfractaires de part et d'autre de la canne de manière à limiter l'ouverture et protéger le soufflet. De plus, une trappe coulissante avec un trou d'un diamètre légèrement supérieur à celui de la canne est installée entre le four et le soufflet, et de l'air à température ambiante est injecté dans le soufflet de manière à s'assurer que la température du soufflet ne dépasse pas sa température maximale d'utilisation. Des mesures de concentration des fumées ont montré que la présence de la chaîne de mesure de température, notamment l'ajout d'air dans le soufflet de manière à le refroidir, n'avait pas d'influence sur la valeur de la concentration en oxygène dans les fumées. De plus l'influence de la présence d'air dans le soufflet a été vérifiée (Figure 56). L'écart de température mesurée avec et sans air dans le soufflet est inférieur à l'incertitude de mesure.

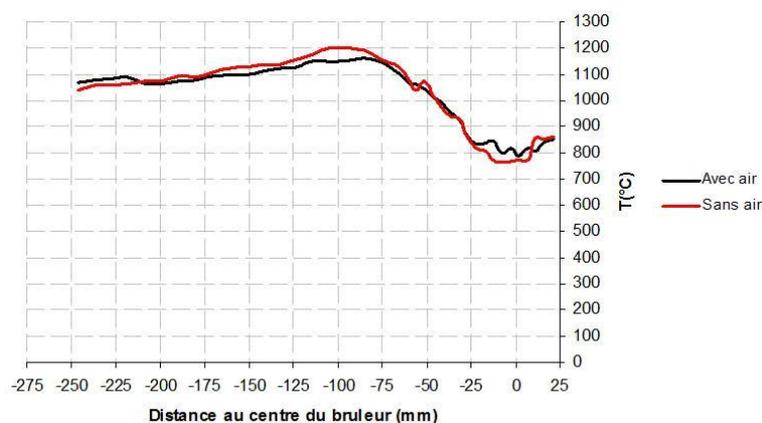


Figure 56 Influence de la présence de jet d'air, pour refroidir le soufflet, sur la mesure de température pour la hauteur  $y=720\text{mm}$ . La courbe en noire représente les températures mesurées avec la présence d'air dans le soufflet, la courbe en rouge représente les températures mesurées sans air dans le soufflet.

L'acquisition du signal de température, ainsi que le positionnement du thermocouple dans l'écoulement à l'aide d'un système motorisé permettant de se déplacer suivant deux axes (Figure 57), est géré par ordinateur avec le logiciel A3T développé par Gaz de France et le CORIA.

D'après le théorème de Shannon, la fréquence d'échantillonnage doit être deux fois plus grande que la fréquence que l'on souhaite mesurer (Gasquet et Witomski-1990). Du fait de la compensation numérique à effectuer, certains auteurs (Heitor et al, 1985-1992, Poinsot-1987) préconisent de prendre au minimum quatre fois la fréquence maximale à mesurer.

Comme la répartition spectrale exacte de l'écoulement à étudier est inconnue, la fréquence d'échantillonnage doit être la plus élevée possible. L'acquisition des données brutes de température a été réalisée avec une fréquence d'échantillonnage de 8000Hz sur une durée de 20s. En chaque point, 160 000 mesures instantanées sont enregistrées, elles permettent de calculer la température minimum, maximum, la moyenne ainsi que la RMS.

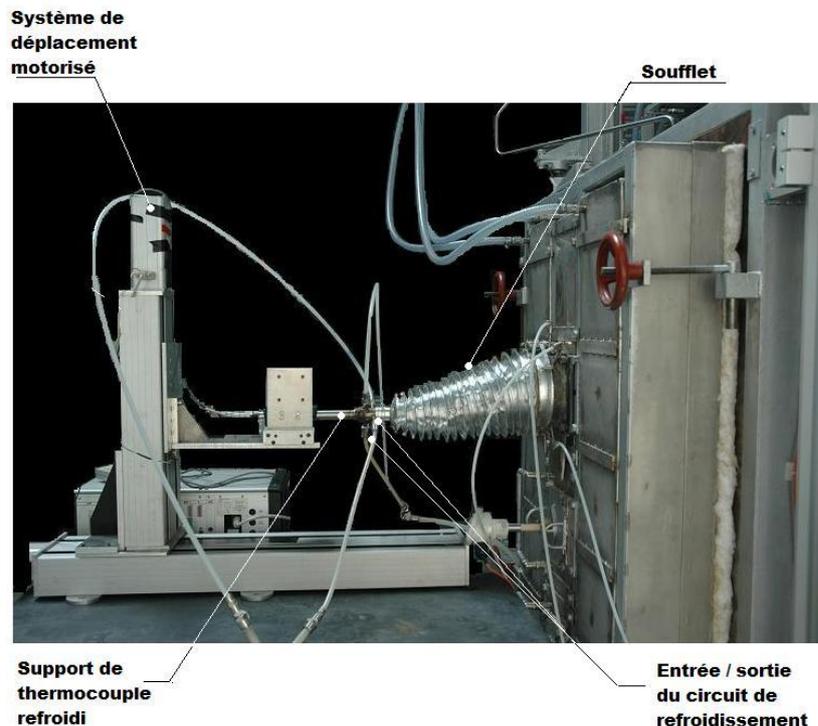


Figure 57 Implantation de la technique de mesures de température sur le four.

### *Convergence des résultats obtenus*

Afin de vérifier que le temps d'acquisition des mesures est bien suffisant pour obtenir la température moyenne réelle, la convergence a été calculée, pour les conditions nominales, en 4 endroits différents de l'écoulement : dans les gaz brûlés qui recirculent, dans la couche de mélange entre le méthane et les gaz brûlés, dans la couche de mélange entre l'air et les gaz brûlés, et enfin dans le jet d'air préchauffé. La Figure 58 représente l'écart de température par rapport à la moyenne en fonction du nombre de valeurs mesurées. Sans surprise, les points

dans les gaz brûlés (a) et dans le jet d'air (d) sont les plus rapides à converger, puisqu'ils se situent dans des zones sans réaction de combustion ni couche de cisaillement, seules 1200 mesures (6000 mesures pour le jet d'air) sont nécessaires. 12 000 mesures permettent d'obtenir la convergence pour le point dans la couche de mélange air/méthane (c). Le cas le plus long à converger est le point (b), dans la couche de mélange méthane/gaz brûlés qui présente une couche de cisaillement importante. Cependant, à partir de 52000 valeurs, la température moyenne diffère de moins de 1% par rapport à la température moyenne calculée à partir des 160000 valeurs instantanées de température.

Le temps d'acquisition est suffisamment long et nous pouvons considérer que nos mesures de températures ont convergé.

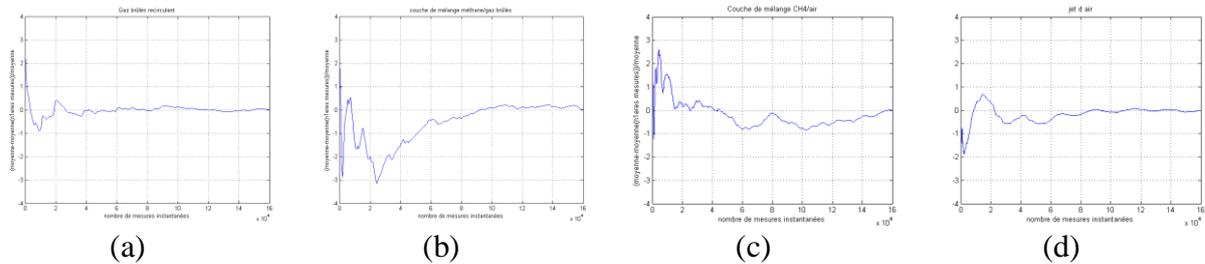


Figure 58 Vérification de la convergence des mesures de température (a) dans les gaz brûlés, (b) dans la couche de mélange  $\text{CH}_4$ /gaz brûlés, (c) dans la couche de mélange air/gaz brûlés, (d) dans le jet d'air.

### III.3- Imagerie des zones réactives

#### *Principe de la chimiluminescence*

Les écoulements en combustion présentent un rayonnement ultraviolet et visible principalement localisé dans la zone de réaction. En effet, pendant la réaction de combustion, plusieurs espèces dont les radicaux  $\text{OH}^*$ ,  $\text{CH}^*$  et  $\text{C}_2^*$  sont créés dans un état excité sur un niveau d'énergie instable. Ils se déséxcitent quasi instantanément soit par collision avec un partenaire, soit par rayonnement : on parle alors de chimiluminescence. La Figure 59 présente les spectres d'émission des radicaux  $\text{OH}^*$ ,  $\text{CH}^*$  et  $\text{C}_2^*$  au cours de la combustion d'un mélange méthane-air.

La présence d'un de ces radicaux indique donc qu'on a une zone de combustion. La chimiluminescence du radical  $\text{OH}^*$  dans l'ultraviolet permet de mettre en évidence les zones réactives en s'affranchissant d'autres rayonnements, notamment l'émission des parois à haute température ou des suies (Masson-2005).

Le principal défaut de cette technique réside dans la résolution spatiale. Le détecteur placé devant la flamme collecte la totalité du signal de chimiluminescence en intégrant suivant le chemin optique. Il n'est donc pas possible de déterminer de quelle partie de la flamme provient le signal enregistré par imagerie. En revanche, cette technique, relativement facile de mise en œuvre, permet d'obtenir la topologie des zones réactives, même dans le cas des flammes à haute température et en régime de combustion sans flamme.

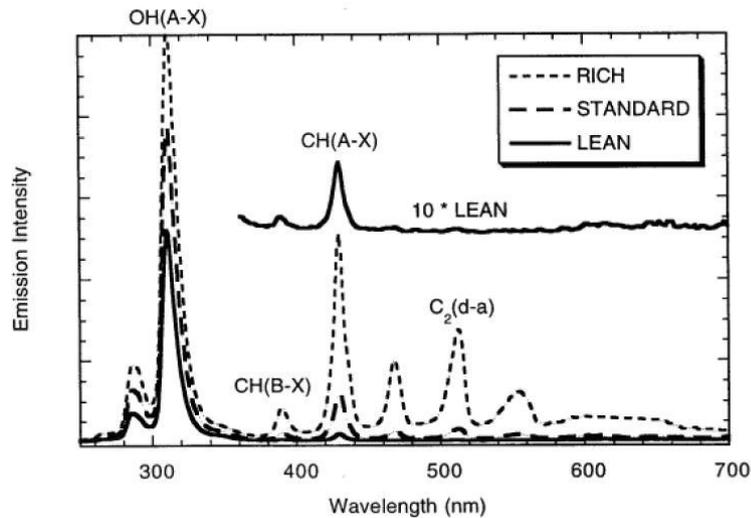


Figure 59 Spectre UV-Visible d'émission d'une flamme de prémélange air-méthane (Smith et al-2002).

## Montage expérimental

### Visualisation directe

Le dispositif de mesure est placé sur le côté de la chambre de combustion perpendiculairement aux 3 injecteurs. La caméra ICCD (Princeton Instruments IMAX 512T 16 bits) munie d'un objectif UV (Goyo 25mm f/2.8) et d'un filtre interférentiel (@ 308 ± 10 nm, Figure 60) collecte le signal du radical OH\* à travers un hublot en quartz UV (Figure 61).

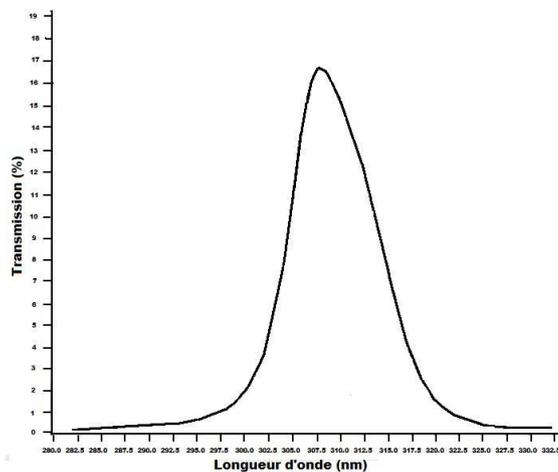


Figure 60 Courbe de transmission du filtre interférentiel centré sur 308 ± 10 nm.

L'objectif à courte focale permet d'avoir un grand angle de vision. Ainsi, il a été possible d'acquérir des images sur un domaine de 200\*200mm<sup>2</sup>, centré sur l'injection d'air à plusieurs positions depuis la sortie du brûleur. Les temps d'exposition de la caméra varient entre 2 et 20ms avec le gain de l'intensificateur est fixé à 250.

La Figure 63 montre, pour le cas de référence, les images de chimiluminescence obtenues à travers le bloc hublot rond avec un objectif à grande focale Nikkor 105mm f/4, (a) et à travers un hublot carré avec l'objectif à courte focale (b) et (c). On voit clairement l'intérêt de ce nouveau montage qui permet de mettre en évidence les zones de réaction sur un large

domaine. Toutefois, le matériel étant placé à quelques centimètres du hublot, les hautes températures sont susceptibles d'endommager la caméra et le filtre interférentiel, ce dernier ayant du être remplacé deux fois. C'est pourquoi un second montage a ensuite été réalisé.

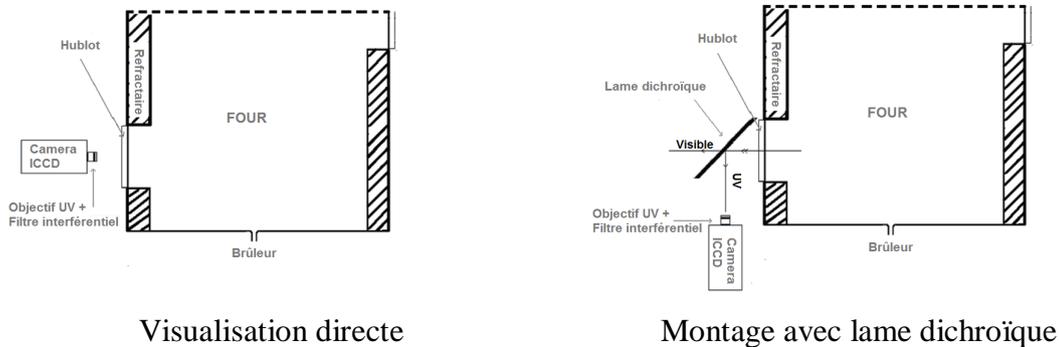


Figure 61 Schémas des dispositifs expérimentaux de chimiluminescence.

#### *Utilisation d'une lame séparatrice*

Une lame dichroïque (Figure 62), qui réfléchit l'UV et transmet le visible, est intercalée entre la caméra et le four à un angle de 45°. La caméra est maintenant placée à 90° par rapport au hublot. La caméra, l'objectif et le filtre interférentiel OH\* utilisés sont les mêmes que pour le montage précédent (Figure 61) pour les mesures méthane-air.

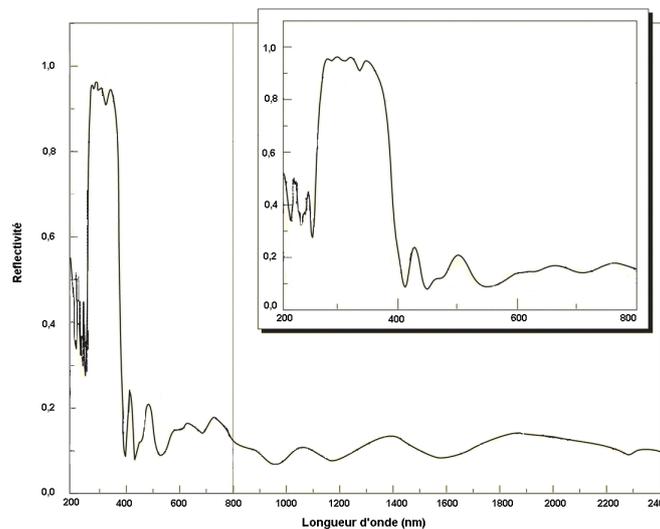


Figure 62 Courbe de réflectivité de la lame dichroïque.

Les temps d'exposition de la caméra varient entre 5 et 500ms, pour les cas au méthane pur, et ils varient entre 1 et 1000ms pour les mélanges méthane-hydrogène, le gain de l'intensificateur fixé à 250 quelque soit le temps d'exposition.

Le principal avantage de ce montage expérimental réside dans le fait que la caméra n'est plus dans l'axe du rayonnement direct du four, et le matériel est préservé. Le champ de vision est similaire à celui obtenu par la visualisation directe (200\*200mm<sup>2</sup>) mais la résolution est plus faible : 1.7 px/mm contre 2.5 px/mm, du fait d'une distance plus grande entre le centre du four et le capteur (Figure 63).

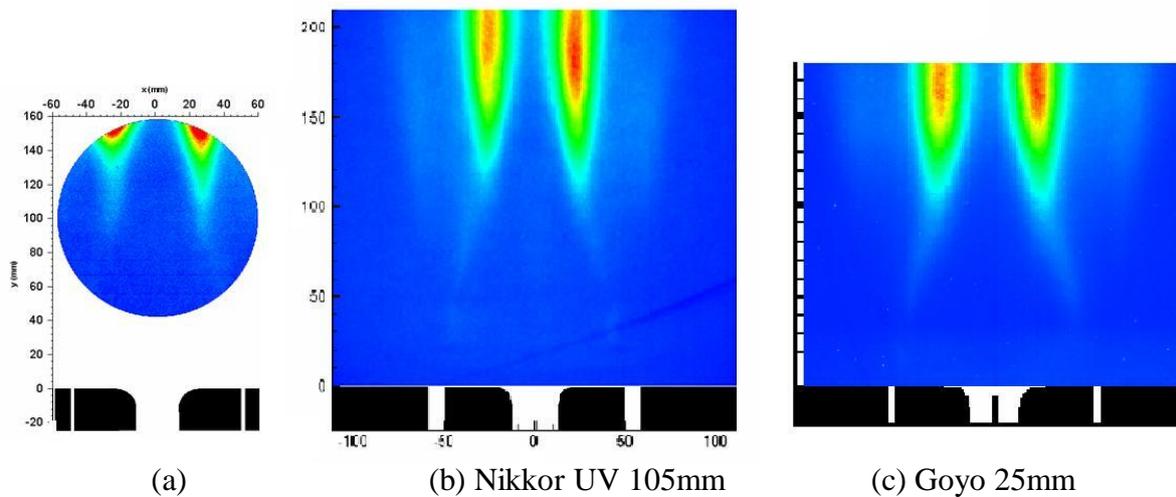


Figure 63 Champs de vision avec l'objectif à grande focale (a) et l'objectif à courte focale en visualisation directe (b), avec la lame dichroïque (c).

### *Imagerie rapide*

L'imagerie rapide permet de réaliser un suivi temporel des zones de réaction. Dans notre cas, elle permet de suivre plus particulièrement l'extrémité de la zone de réaction principale, afin d'essayer de déterminer le mode de stabilisation de cette flamme liftée en mettant en évidence les phénomènes instationnaires.

On utilise une caméra rapide CMOS à laquelle a été ajouté un intensificateur Roper Scientific. La caméra est équipée d'un objectif UV (100 F/2.8 type CERCO 2178) et de deux filtres passe bande UG11. Le filtre UG11 présente une bande passante principale centrée sur la longueur d'onde d'émission du OH\* mais beaucoup plus large que le filtre interférentiel utilisé précédemment (Figure 65). Il permet de capter plus de signal transmis par les zones de réaction. Cependant, ce filtre présente une bande passante secondaire centrée sur 710 nm qui laisse passer 30% du signal émis par les parois. Ce signal, plus intense couvre totalement l'émission des zones de réaction. L'ajout d'un second filtre UG11, permet de réduire de moitié ce signal résiduel. Les zones de réaction se détachent alors du rayonnement des parois.

Ce montage présente un inconvénient : l'intensificateur Roper Scientific est prévu à l'origine pour la technique de PIV, c'est-à-dire pour prendre deux images successives séparées par un très court intervalle de temps ( $\Delta T$  de l'ordre de quelques microsecondes). L'intensificateur fonctionne très bien pour les deux premières images, pour tous les intervalles d'acquisition supérieurs à  $\Delta T$ , les images suivantes présentent une perte importante du signal qui s'accroît avec la fréquence d'acquisition.

Des acquisitions d'images successives ont été réalisées en faisant varier la fréquence d'acquisition, le temps et le gain d'intensification. Les valeurs de ces paramètres ont été déterminées de manière à obtenir des images avec un bon rapport signal sur bruit tout en conservant une cadence d'acquisition suffisamment élevée pour pouvoir considérer l'écoulement résolu en temps.

La fréquence d'acquisition de 1400Hz, avec un temps d'intensification de 660  $\mu s$  et un gain de 33.8, permet d'obtenir un bon compromis entre rapidité et qualité des images, c'est donc la fréquence utilisée pour les acquisitions.

Ce dispositif expérimental ne permet pas d'intensifier autant que la caméra Princeton utilisée précédemment, et le signal émis par les zones de réaction est très faible, c'est pourquoi les acquisitions ont été réalisées en visualisation directe.

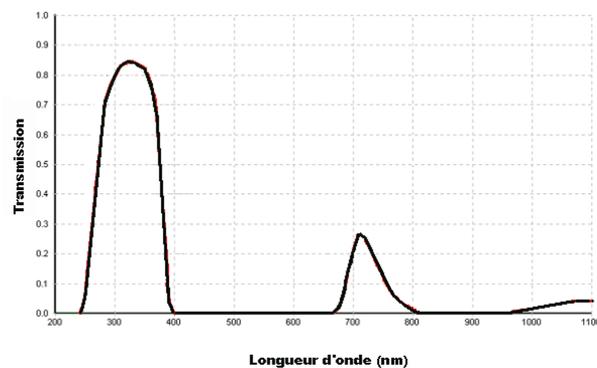
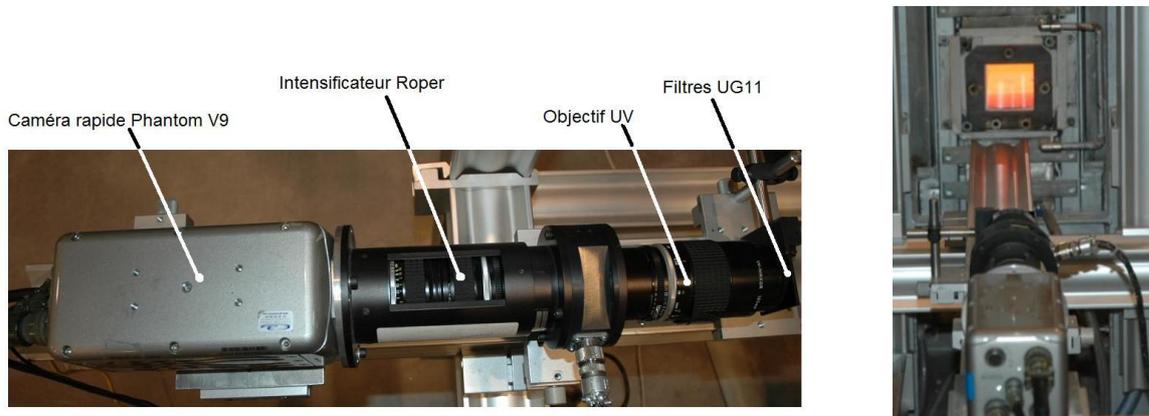


Figure 65 Bande passante du filtre UG11.

## Traitement des images

### *Rayonnement des parois*

Le rayonnement des parois du FOUR dans le visible est très intense et est proportionnel à la température du réfractaire. Le signal ultraviolet des parois est enregistré en faisant une acquisition de 50 images juste après avoir arrêté l'arrivée de combustible : les zones de réaction disparaissent alors que les parois sont toujours à la même température. Le temps d'exposition de chaque image est de 500ms et le gain de l'amplificateur est fixé à 250. La moyenne des images du rayonnement des parois est soustraite aux images instantanées. Ce traitement permet de s'affranchir d'une partie du rayonnement parasite des parois.

### *Mesure de la hauteur de suspension de la zone de réaction*

Les images de chimiluminescence permettent de mesurer la hauteur de suspension de la zone de réaction décollée. Pour cela, l'évolution du niveau de gris en fonction de la hauteur, pour chaque position radiale de la zone de réaction secondaire de part et d'autre de l'axe central, est

déterminée (Figure 66). L'intersection des tangentes à la courbe (droites en rouge sur la figure) détermine la position de la hauteur de suspension.

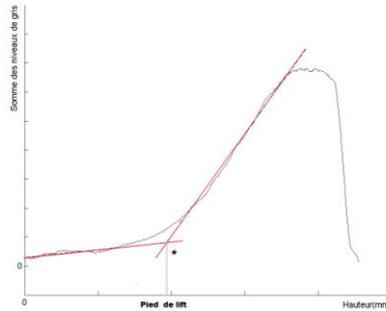


Figure 66 Hauteur de suspension de la zone de réaction.

#### *Calcul de la probabilité de présence de flamme*

Pour la position de la hauteur de suspension de la zone de réaction déterminée par la méthode décrite au paragraphe précédent, on considère l'évolution du niveau de gris en fonction de la position radiale. Le maximum, que l'on notera  $NG^*$ , permet de déterminer le seuil à partir duquel on peut considérer le début de la zone de réaction. La valeur du seuil nous permet de binariser les images instantanées de la manière suivante:

- si le niveau de gris du pixel considéré est supérieur au seuil ( $NG^*$ ) alors on considère que l'on est en présence d'une réaction et la valeur 1 est donnée au pixel correspondant.
- si le niveau de gris du pixel considéré est inférieur au seuil ( $NG^*$ ) alors on considère que l'on n'a pas de réaction et la valeur 0 est donnée au pixel correspondant.

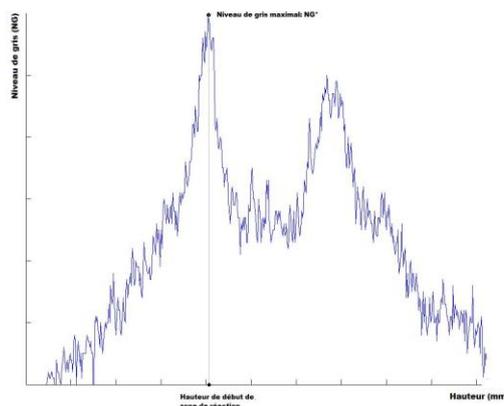


Figure 67 Evolution du niveau de gris en  $y=97$ mm.

La moyenne des images instantanées binarisées nous donne la probabilité de présence de la flamme

Plus le signal est faible plus les contours peuvent être très bruités. On lisse chaque image instantanée avant de faire la moyenne et le calcul de la pdf. Quatre lissages ont été réalisés: le lissage 3\*3 (la valeur du niveau de gris de chaque pixel est remplacée par la moyenne du niveau de gris initial du pixel et de ses 8 plus proches voisins), le lissage 5\*5 (même manière de lisser que pour le lissage 3\*3 mais en utilisant cette fois, les 24 voisins du pixel considéré), le lissage médian (on remplace chaque pixel par la valeur médiane des niveaux de gris du pixel et de ses 8 plus proches voisins), et le lissage gaussien (la valeur du niveau de gris des voisins du pixel lissé est pondérée par un filtre gaussien, ce qui permet de prendre en compte la distance séparant chacun des pixels).

La Figure 68 représente les contours des zones de réaction, dans les conditions nominales, lissés avec les filtres gaussien, médian, 3\*3 et 5\*5.

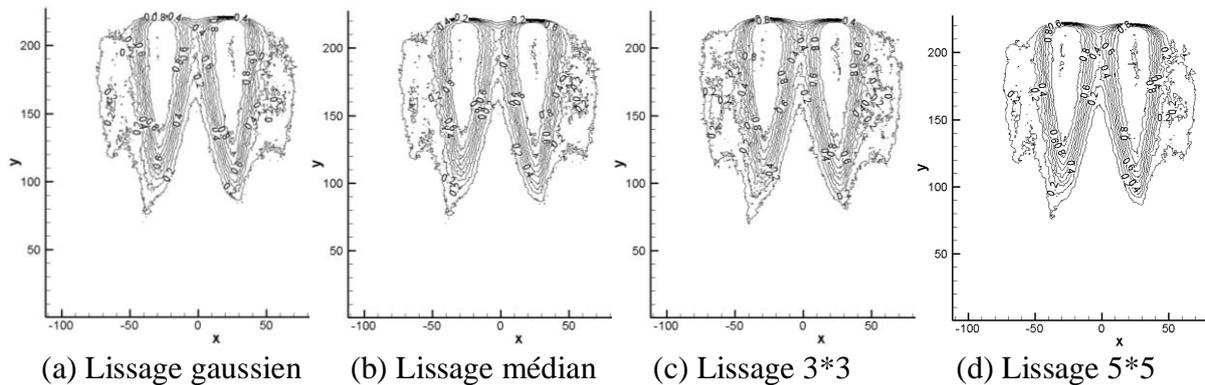


Figure 68 Contours des zones de réaction après lissage.

Les lissages 3\*3, gaussien et médian donnent sensiblement le même résultat, alors que le lissage 5\*5 lisse trop les contours. Le résultat final est donc indépendant des trois premières méthodes. Le filtre médian permettant d'éliminer les valeurs extrêmes notamment celles dues au bruit de mesures, c'est cette méthode qui est choisie dans notre cas.

#### *Intensité des zones de réaction*

L'intensité des zones de réaction est définie comme l'intensité moyenne du signal de chimiluminescence (par pixel) dans les différentes zones. Celles-ci sont déterminées de la manière suivante :

- La zone II est représentée en blanc sur la Figure 69. La zone II est définie à partir du cas nominal puisque pour ce cas, la zone de réaction autour des jets de combustible est suffisamment faible pour ne pas gêner le calcul du pied de lift. On détermine la hauteur de suspension en suivant la méthode décrite au paragraphe précédent: c'est le début de la zone II. La zone II est définie pour tout pixel dont le niveau de gris est supérieur au niveau de gris du pied de lift.
- La zone I, la zone en marron sur la Figure 69 à laquelle il faut enlever la zone II. Les bords externes de la zone I sont définis à partir du cas avec fort excès d'air, puisque c'est le cas qui présente une zone de réaction autour des jets de combustible dont les limites sont le plus facilement identifiables. On obtient la zone de réaction I comme la soustraction de cette dernière avec la région considérée comme la zone II.
- L'intensité du bruit de fond est la moyenne des niveaux de gris calculée sur une partie de l'image pour laquelle aucune zone de réaction n'est observable. C'est zone est représentée par un rectangle rouge. Le bruit de fond représente le rayonnement des parois.

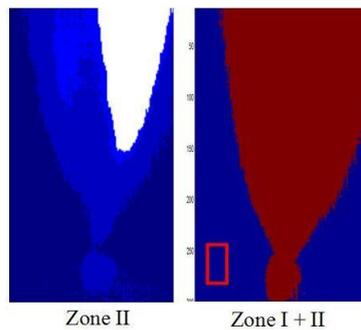


Figure 69 Visualisation des extrémités des zones de réaction sur une demie-image moyenne.

## III.4- Vélométrie par images de particules (PIV)

### *Principe de base*

La PIV est composée de deux étapes distinctes :

- l'acquisition des images sur l'écoulement étudié,
- le traitement des images par la détermination des champs instantanés de vitesse.

### *Acquisition des images*

Le principe de la PIV pour l'acquisition des images est celui de la double tomographie laser (Willert-1991, Lecordier-1997). Il consiste à éclairer un écoulementensemencé en fines particules diffusantes à l'aide d'une nappe de lumière et d'enregistrer sur un détecteur 2D l'image instantanée des particules traversant la tranche lumineuse. La PIV nécessite une double exposition, séparée par un temps très court, de l'écoulement pour obtenir deux positions différentes des particules d'ensemencement. La Figure 70 présente les différents maillons de la chaîne de mesure par PIV. Elle est constituée : d'un écoulementensemencé en fines particules diffusantes, d'une nappe de lumière servant à éclairer les particules à des instants précis, d'un détecteur pour collecter le rayonnement diffusé par les particules d'ensemencement se déplaçant dans la nappe de lumière.

Les lasers fournissent généralement un faisceau cylindrique qui est transformé en une nappe laser de faible épaisseur. Les montages optiques les plus employés sont constitués d'une lentille sphérique (pour faire converger le faisceau laser suivant un axe perpendiculaire à la direction de propagation) et d'une lentille cylindrique (qui fait diverger le faisceau suivant l'autre axe perpendiculaire).

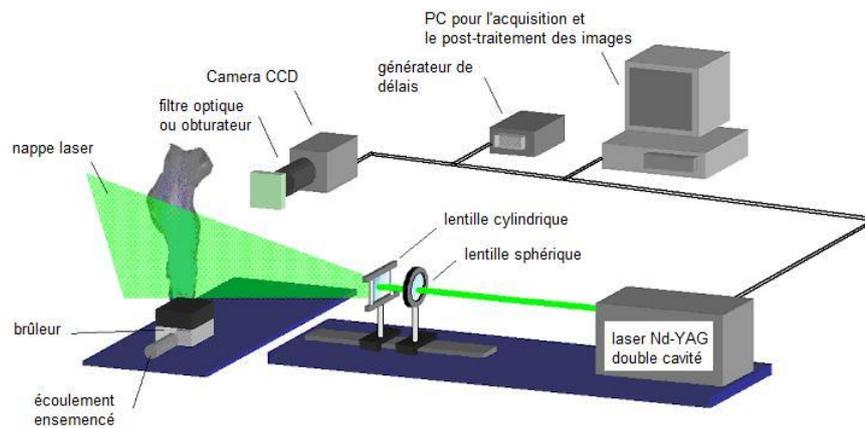


Figure 70 Principe de la PIV.

#### Traitement des résultats

Il est nécessaire d'enregistrer au moins deux fois la position des particules d'ensemencement. Ces deux images successives permettent de déterminer le déplacement des particules par un calcul d'inter-corrélation. Elles sont obtenues grâce à une camera généralement équipée d'un capteur CCD. Les particules sont choisies suffisamment petites et de faible masse volumique pour qu'on puisse supposer qu'elles suivent parfaitement l'écoulement. Le déplacement des particules ainsi que le temps entre les deux tirs laser ( $\Delta t$ ) permettent de déterminer la vitesse des particules c'est-à-dire, la vitesse de l'écoulement.

La Figure 71 illustre les différentes étapes du calcul d'inter-corrélation. La première image contient les particules enregistrées à l'instant  $t$ , et la seconde, leurs positions à l'instant  $t + \Delta t$ . L'image est décomposée en fenêtres d'interrogation de taille  $N \times M$  à partir d'un maillage. Pour chaque fenêtre d'interrogation, un opérateur d'inter-corrélation 2D ( $CC(m,n)$ ) est appliqué pour déterminer localement le déplacement des particules d'ensemencement. Cet opérateur est souvent basé sur des méthodes de calcul de transformées de Fourier rapides (FFT).

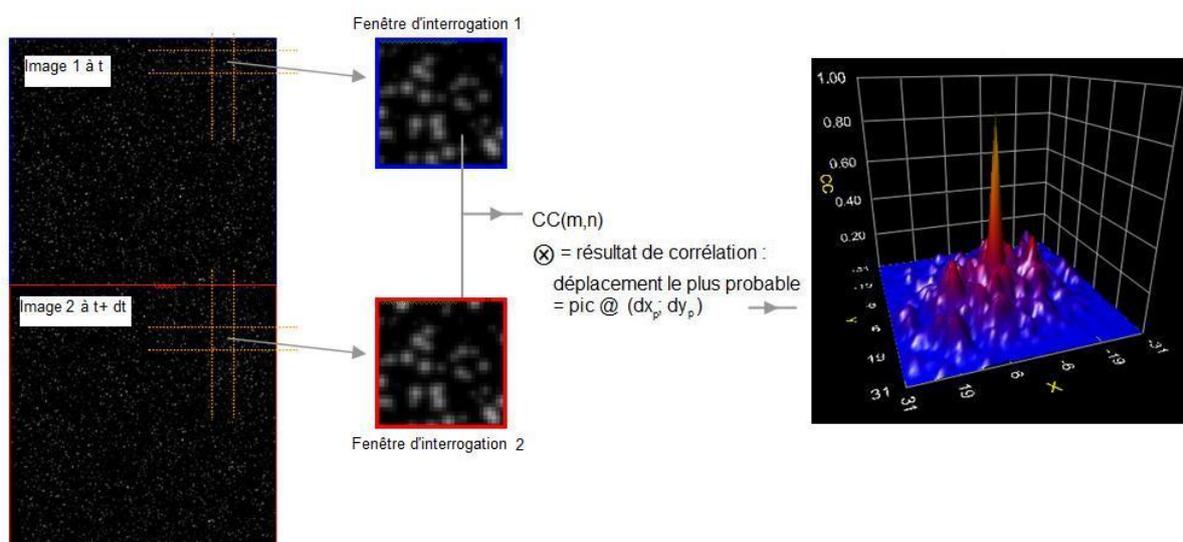


Figure 71 Principe du calcul d'inter corrélation.

Le calcul du coefficient  $CC(m,n)$ , implique un nombre d'opérations de l'ordre de  $(NM)^2$ . Au début du traitement numérique des images de PIV, dans les années 1990, les ordinateurs personnels exigeaient un temps de calcul de la fonction de corrélation trop important. L'utilisation du théorème de Wiener-Kinchine permet d'effectuer le calcul de la fonction d'inter corrélation à partir des transformées de Fourier rapides (FFT) des fenêtres 1 et 2. Cette solution ne nécessite plus qu'un nombre d'opérations de l'ordre de  $N^2 \text{Log}2N$  (pour  $N=M$ ), et est couramment utilisée dans les traitements actuels. En contre partie les dimensions M et N doivent être des puissances de 2. Cette contrainte peut être atténuée par la technique de «padding» qui consiste à compléter une fenêtre d'analyse, non puissance de 2, par des valeurs numériques jusqu'à la puissance de 2 la plus proche. Par exemple pour une fenêtre d'analyse souhaitée de  $40 \times 50$  pixels<sup>2</sup> le complément sera réalisé pour obtenir une fenêtre de  $64 \times 64$  pixels<sup>2</sup> pour le calcul par FFT.

La première étape consiste à calculer les FFT des deux mailles d'analyses prélevées sur les deux images de particules. Ensuite, le signal d'inter-corrélation est obtenu en effectuant une FFT inverse du produit des deux spectres. La position du plus haut pic ainsi obtenu dans l'espace des déplacements permet de déterminer le déplacement le plus probable de la particule. Le calcul est réalisé sur toutes les fenêtres d'interrogation de l'image. On obtient alors le champ de vitesse instantané sur tout le domaine d'étude.

Aujourd'hui les performances des ordinateurs personnels permettent de ne plus utiliser systématiquement les FFT pour le calcul de la fonction d'inter-corrélation, et de revenir à des calculs par corrélation directe.

L'avantage de cette dernière est sa souplesse d'utilisation tant au niveau de la taille, que de la forme des fenêtres d'analyse. On peut en effet choisir d'utiliser des fenêtres d'interrogation rectangulaires ou d'autres formes.

#### ***Application de la PIV dans le four***

Pour des écoulements rapides (de plus d'1 m/s), seule l'utilisation de lasers pulsés permet d'obtenir des vues figées des particules d'ensemencement dans l'écoulement. La vitesse de l'écoulement en entrée du four étant comprise entre 15 m/s et 70 m/s, on utilise un Laser Nd-YAG bi-pulse (double cavité) à 532 nm. Un jeu de miroirs inclinés à 45°, montés en système périscopique, permet d'aligner la nappe laser avec l'accès optique (Figure 72). La lentille sphérique ( $f=1\text{m}$ ) permet de faire converger le faisceau laser pour obtenir un faisceau le plus fin possible. La lentille cylindrique ( $f = -50$  mm) fait diverger le faisceau suivant un axe: on obtient une nappe laser verticale de faible épaisseur ( $< 1\text{mm}$ ).

La caméra CCD FlowMaster, LaVision ( $1280 \times 1024$ , 12 bits), reliée à un PC de synchronisation et d'acquisition (Figure 72), est placée perpendiculairement à la nappe laser. La caméra est munie d'un objectif Nikkor 50mm  $f/1,2$  et d'un obturateur à cristaux liquides. Lors de l'acquisition de la seconde image, le temps d'ouverture de la camera est fixe et égal au temps de lecture de la première image. La seconde image peut être saturée par le rayonnement des parois. L'obturateur à cristaux liquides ne laisse passer aucun rayonnement

après le second tir laser, puisqu'il s'ouvre juste avant le premier tir laser et se referme juste après le second tir. On a alors le même niveau exposition sur les deux images.

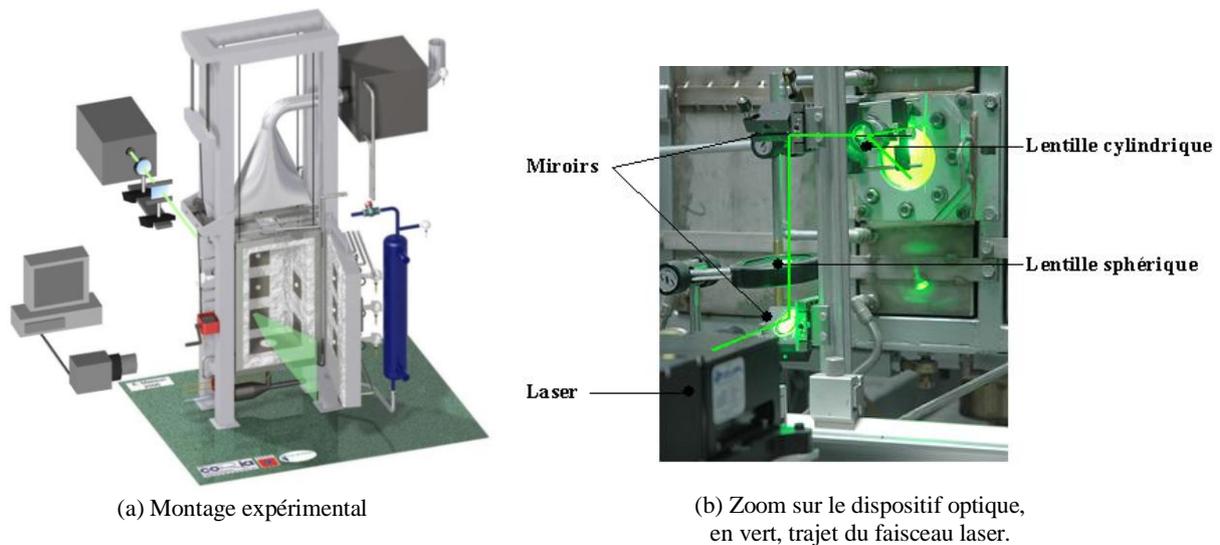


Figure 72 Banc de PIV.

Le logiciel DaVis associé à un générateur de délais permet de synchroniser laser, camera et obturateur ainsi que d'enregistrer les images. Le temps entre deux images de particules est  $\Delta t = 20\mu s$ .

Les particules utilisées pour ensemencher l'écoulement sont des particules de dioxyde de zirconium ( $ZrO_2$ ,  $M=123.22$  g/mol, Point de fusion :  $2715^\circ C$ ), qui sont préalablement étuvées. L'oxyde de zirconium est toxique du fait de sa forte volatilité, cependant, ce sont les particules qui ensemenchent le plus facilement. Elles sont petites (diamètre moyen  $5\mu m$ ), de masse volumique faible et subsistent même dans les zones de réaction à haute température pour que l'on puisse considérer qu'elles représentent correctement l'écoulement dans sa globalité.

Parmi tous les systèmes, l'ensemenceur à lit fluidisé présente le plus d'atouts, dans la gamme de débits d'air et de méthane utilisés pour cette étude, pour ajuster le taux d'ensemencement. Deux ensemenceurs de type lit fluidisé permettent d'ensemencer les jets en particules de  $ZrO_2$ .

L'application de la PIV dans ce type de four à haute température n'est pas aisée. De nombreux problèmes techniques et pratiques ont dû être résolus avant d'obtenir une chaîne de mesure fonctionnant correctement.

Dans un premier temps, l'alignement de la nappe laser n'a pu être réalisé qu'après de nombreux essais. Le positionnement du faisceau laser incident a dû être réglé minutieusement. La lentille divergente a dû être positionnée le plus près possible de la paroi afin de s'assurer que le faisceau laser s'étende au maximum à l'intérieur du four, qu'il ne soit stoppé et qu'il ne perde de sa puissance par un effet de diaphragme.

Enfin, du fait de la forte recirculation dans le four en régime de combustion sans flamme, les particules présentes dans l'écoulement se re-déposent sur les parois, mais aussi sur les hublots, provoquant ainsi leur encrassement, diminuant fortement la qualité des images et surtout absorbant une bonne partie du faisceau laser. Le four doit être éteint et les hublots nettoyés entre chaque série de 300 mesures, ce qui allonge la durée des expériences.

#### *Traitement des images de particules*

Une mire quadrillée, préalablement enregistrée, permet de déterminer la position exacte du champ observé dans l'enceinte du four et le grandissement optique (correspondance pixels/mm réels). Ce dernier associé au temps entre chaque impulsion permet de déterminer les vitesses à partir du déplacement des particules calculé par corrélation.

Le calcul initial a été réalisé sous DaVis, par FFT, avec des fenêtres d'interrogations de 64\*64 pixels, et un recouvrement de 75%. Ce qui représente un maillage de 160 mailles horizontalement, et 128 verticalement. Deux calculs successifs ont alors été réalisés. Ensuite, la taille de ces fenêtres a été réduite en 32\*32 (pixels\*pixels), et 5 calculs successifs ont été réalisés. (Schéma multi-passes prédicteur/correcteur avec diminution des tailles des fenêtres d'interrogation 64\*64 (2pass), puis 32\*32 (5pass)).

Pour le second calcul des vecteurs vitesse, le logiciel DirectPIV (R&D Vision) avec un calcul de corrélation directe a permis d'utiliser des fenêtres d'interrogation rectangulaires de taille 16\*40 pixels, et un recouvrement de 25% en x et 75% en y (Susset-2002 et 2006). Le maillage obtenu est formé de 213\*99 mailles dont 7 mailles dans les jets de méthane. Les vecteurs erronés sont filtrés grâce à l'application successive de deux filtres. Un filtre global où seules les vitesses radiales comprises entre -10 et 10 m/s et les vitesses axiales comprises entre -10 et 80 m/s sont conservées, un filtre local permettant d'enlever les vecteurs vitesses qui ont un écart supérieur à 60% par rapport à l'écart maximum avec les vecteurs voisins. Finalement, les vecteurs vitesse filtrés sont interpolés avec un filtre gaussien 3\*3.

On réalise aussi un dernier calcul de vecteurs vitesse, avec le logiciel DirectPIV en mode itératif. Pour ce mode, on fixe la taille initiale des fenêtres d'interrogation et le logiciel détermine les vecteurs vitesses en diminuant le plus possible la taille de la fenêtre d'analyse. Le calcul initial a été réalisé avec des fenêtres d'interrogations rectangulaire de 32\*64 (pixels\*pixels), avec 75% de recouvrement en x et 70% de recouvrement en y.

Une série d'image de nappe laser, c'est-à-dire sans ensemencement, a été acquise. La moyenne de ces images représente l'image du bruit de fond, c'est-à-dire l'image du signal des parois. Cette image est ensuite soustraite à chaque image instantanée de particules, de manière à obtenir une image de particules qui s'affranchit du rayonnement des parois.

#### *Choix du meilleur algorithme*

La Figure 73 présente les cartographies des vitesses axiales pour le cas de référence (F0) obtenus à l'aide de ces trois méthodes de calculs.

Le calcul DaVis a permis de détecter le jet d'air ainsi que la partie supérieure des jets de méthane. Cependant, leur base n'a pu être détectée qu'avec le logiciel DirectPIV, puisque les vitesses d'éjection de l'air et du méthane sont très importantes, la hauteur des fenêtres d'interrogation ne peut être inférieure à 32 pixels, afin que les particules ne sortent pas de la fenêtre d'analyse.

Le logiciel DaVis utilise des fenêtres d'interrogation carrées pour réaliser le calcul d'intercorrélation, leur largeur est donc de 32 pixels. Cependant, 32 pixels représentent environ 3mm (diamètre du jet de méthane). C'est pourquoi, le logiciel DaVis n'a pu permettre de mettre en évidence les sorties d'injection des jets de méthane.

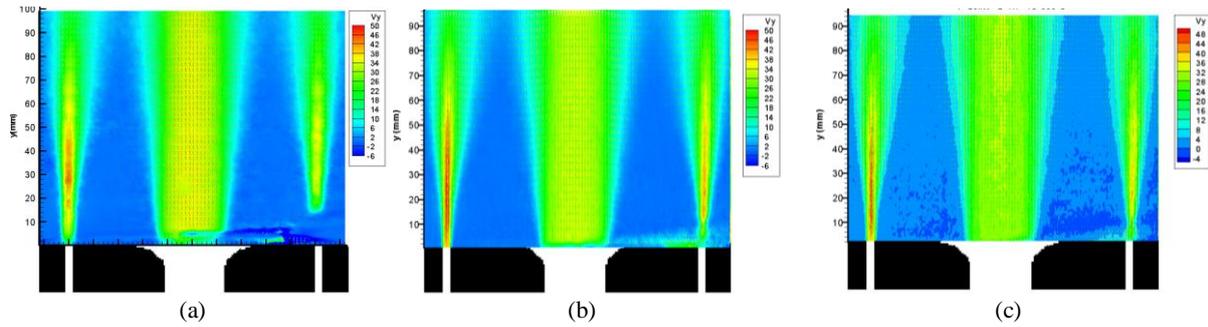


Figure 73 Cartographies des vitesses axiales (m/s), (a) DaVis, (b) DirectPIV Standard, (c) DirectPIV Itératif.

Si l'on compare les profils de vitesse axiale à différentes hauteurs en sortie de brûleur (Figure 74). On remarque que le calcul Itératif avec DirectPIV décrit légèrement moins bien le jet d'air que les méthodes DirectPIV Standard et DaVis. De plus, aucun gain de précision au niveau des jets de méthane n'est obtenu avec cette méthode itérative en corrélation directe.

Comme on peut le voir sur ces figures, et principalement sur les Figure 73 à Figure 74, le logiciel DirectPIV permet de mieux décrire les jets de méthane, et ce, surtout en sortie d'injecteurs. Le jet d'air, quant à lui, est parfaitement décrit par n'importe laquelle de ces 3 méthodes.

Il semble plus judicieux de réaliser les calculs avec DirectPIV en standard plutôt qu'en itératif, puisque la méthode itérative ne donne pas de résultats significativement meilleurs et le temps de calcul est beaucoup plus long.

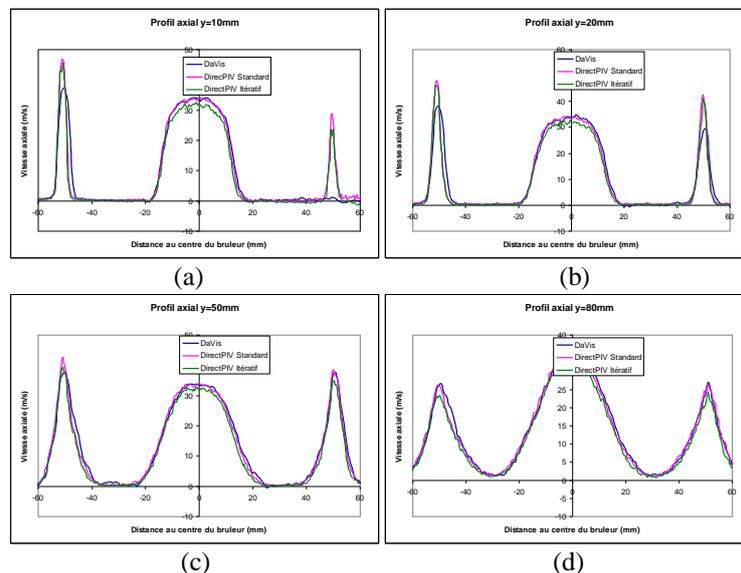


Figure 74 Profils des vitesses axiales à différentes hauteurs en sortie de brûleur : (a) 10mm, (b) 20mm, (c) 50mm, (d) 80mm.

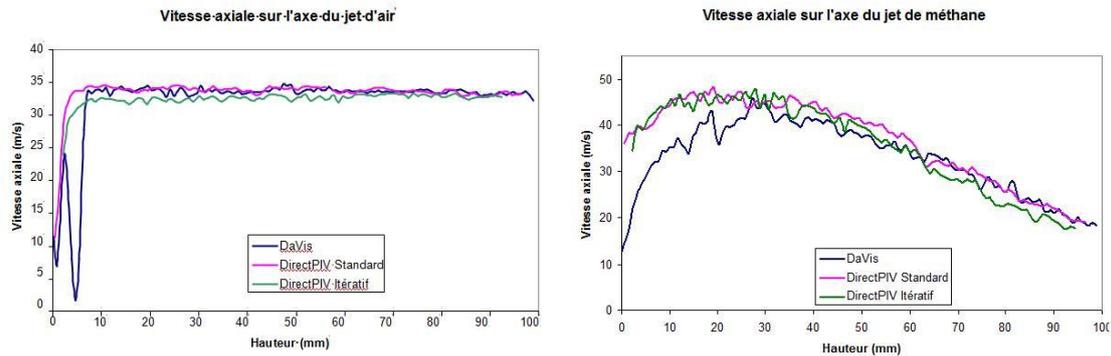


Figure 75 Vitesses axiales (m/s) sur l'axe du jet d'air (à gauche) et du jet de méthane (à droite).

Nos champs de PIV obtenus pour les 3 conditions expérimentales seront donc, par la suite, traités avec le logiciel DirectPIV avec la méthode standard.

Une première série de mesure de vitesse par PIV a été réalisée dans le FOUR. La Figure 76 représente une image de particules obtenue pour le cas de référence. Même s'il est limité à  $90 \times 90 \text{ mm}^2$ , ce champ est correct et permet d'observer la sortie des 3 jets. Cependant il a semblé intéressant de chercher à agrandir la zone de mesure pour, notamment, chercher à caractériser la zone de recirculation externe et les zones de mélange des jets plus en aval. C'est pourquoi, un endoscope à haute température a été développé, de manière à obtenir un angle de collection plus important.

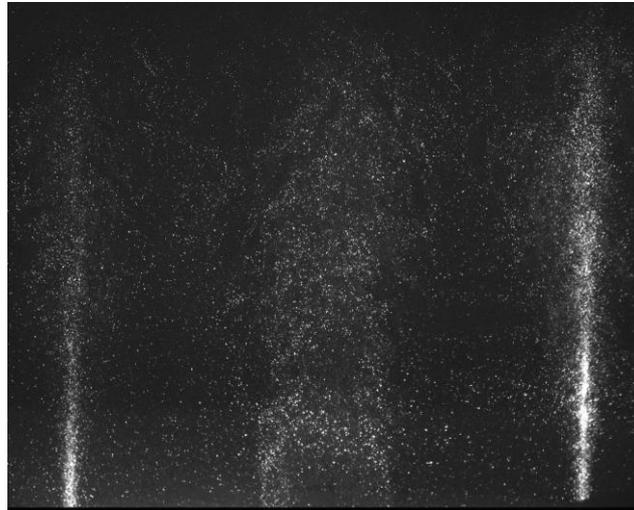


Figure 76 Image de particules pour le cas de référence.

### *L'endoscope*

Un endoscope à haute température est un système optique composé de plusieurs lentilles permettant d'avoir un grand angle de collection, contenu dans un fourreau en acier inoxydable refroidi en eau. La Figure 77 présente le montage des lentilles au sein de l'endoscope. La première lentille, qui est placée dans le four à fleur de paroi, est refroidie grâce à des jets d'azote afin de la préserver de la chaleur. Les jets d'azote permettent aussi de maintenir sa surface propre.

L'endoscope a une longueur utile de 700mm et a un diamètre de 78mm.

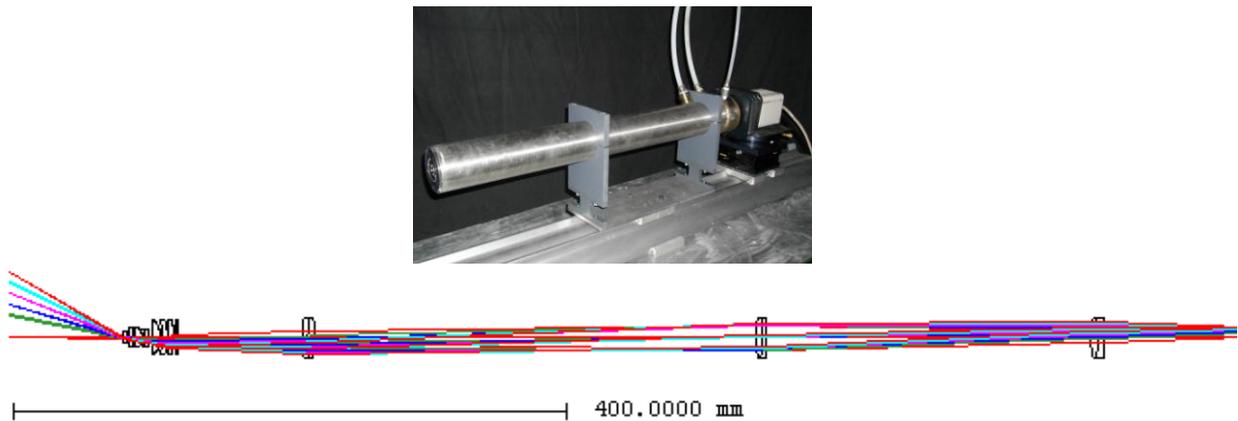


Figure 77 Photo et montage optique de l'endoscope haute température, les lignes colorées représentent le trajet optique depuis la lentille d'entrée (à gauche) jusqu'au capteur CCD (à droite).

Le chemin optique à l'intérieur de l'endoscope a été déterminé avec le logiciel OpTaliX Pro. Les lentilles ont été positionnées de manière à obtenir une image nette d'un objet se situant à 250mm de la première lentille (Honoré-2009).

#### *Montage expérimental*

La Figure 78 présente le montage expérimental utilisé pour les mesures de vitesses par PIV endoscopique. Le laser Nd-YAG délivre des couples d'impulsion laser de 120 mJ. Un système de miroir monté en périscope permet d'aligner verticalement la nappe laser avec l'axe du brûleur. Pour obtenir une nappe laser la plus grande possible, on utilise une lentille cylindrique de courte distance focale  $f=+19\text{mm}$ .

L'endoscope, placé à  $90^\circ$  par rapport au brûleur, permet de réaliser des mesures à haute température grâce à la présence d'un fourreau refroidi en eau et de jets d'azote sur la première lentille afin de la préserver de la chaleur mais aussi des particules. La canne optique centrale permet un angle de collection de  $61^\circ$ . Les images de particules sont enregistrées par une caméra CCD Hamamatsu (12 bits,  $2048 \times 2048$  pxl), munie d'un obturateur à cristaux liquides. L'ensemble laser Nd-Yag bi-pulse, caméra CCD et obturateur est synchronisé à l'aide d'un boîtier R&D Vision EG32. Les séries d'images de particules sont acquises via le logiciel R&D Vision HIRIS.

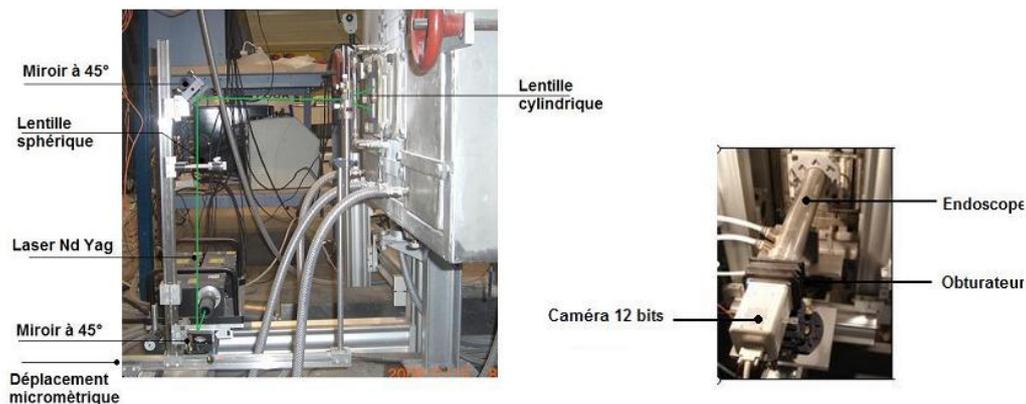


Figure 78 PIV : montage expérimental endoscopique.

#### *Champs de vision*

L'utilisation de l'endoscope donne un angle de vision plus important, comme l'illustre la Figure 79.

Sans endoscope il est possible d'observer un champ de  $100 \times 100 \text{ mm}^2$  centré sur l'injection d'air, alors qu'avec l'endoscope le champ observable est de  $250 \times 250 \text{ mm}^2$  à  $250 \text{ mm}$ . Le champ de vision obtenu est maintenant limité par la hauteur de la nappe laser se développant verticalement dans le four (Figure 80).

La succession de lentilles présentes dans la canne optique de l'endoscope provoque une distorsion en tonneau de l'image. Cette distorsion géométrique implique que le gradient n'est plus linéaire pour ce système optique. Il faut alors corriger les images de particules avant de pouvoir appliquer le calcul de corrélation. Pour corriger cette distorsion on utilise une méthode de correction par zones ou une méthode de unwarping (Honoré-2009).

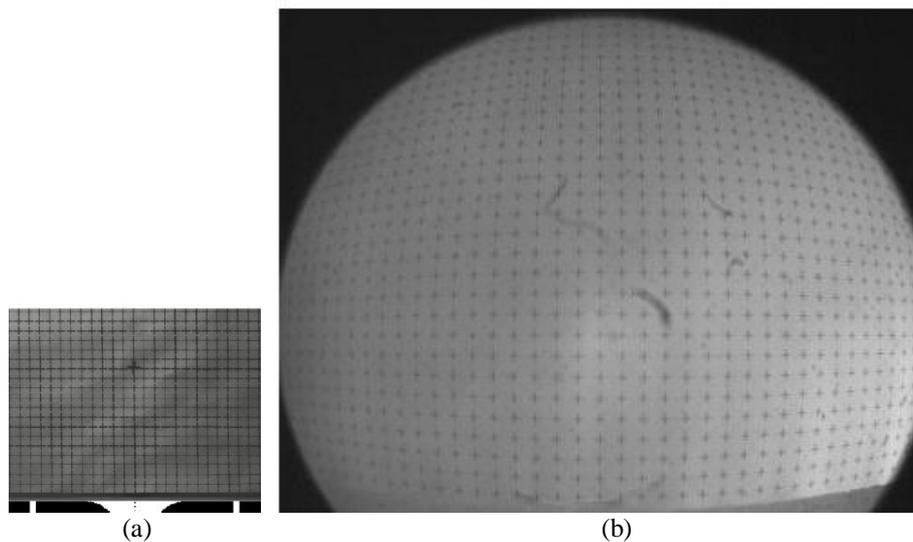


Figure 79 Champs de vision par visualisation de mires quadrillées. Image de mire brute (a) sans endoscope (1 trait/ 5mm), (b) avec endoscope (1 croix / 10mm).

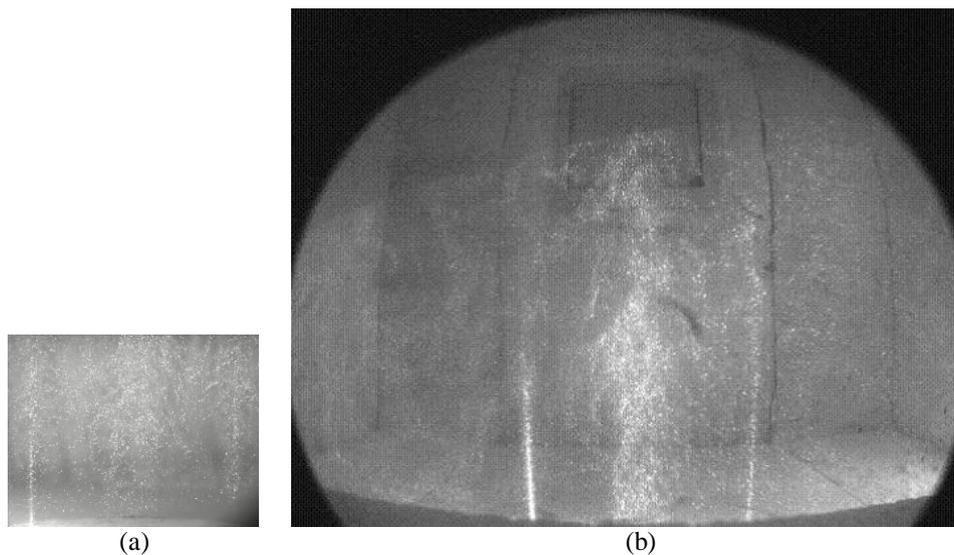


Figure 80 Images de particules sans (a) et avec (b) endoscope.

**Principe de la correction**

On part de l'image finale. Pour chaque point  $u'$  de l'image finale défini par rapport à sa position par rapport aux segments  $A'B'$ ,  $D'C'$  et  $A'C'$ ,  $B'D'$ , correspond un point  $u$  dans l'image initiale brute déformée. Ce point  $u$  se situe aux mêmes proportions que le point  $u'$  par rapport aux segments de droite définissant la maille :

$$x_M = \frac{A'M'}{A'B'} = \frac{AM_1}{AB} = \frac{CM_2}{CD} ; y_N = \frac{A'N'}{A'C'} = \frac{AN_1}{AC} = \frac{BM_2}{BD}$$

La position sub-pixel  $(M, N)$ , correspondant à l'intersection des droites  $(M_1M_2)$  et  $(N_1N_2)$ , est déterminée dans le trapèze  $(ABCD)$ . Le niveau de gris associé au pixel  $(M', N')$  sur l'image corrigée est obtenu à partir des 4 plus proches pixels de  $(M, N)$ , en calculant la valeur moyenne du niveau de gris pondérée par la distance par rapport à chaque pixel réel.

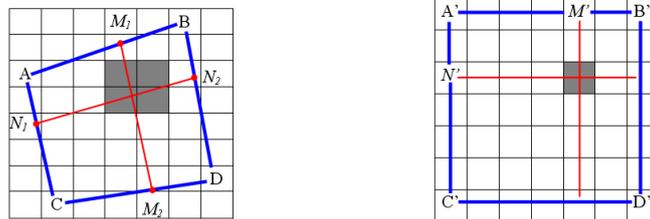


Figure 81 Méthode de correction d'image.

A chaque point de l'image finale, correspond un point de l'image brute.

Le logiciel « Warp », développé au CORIA par F. Corbin, à partir de cette méthode originale, permet de réaliser la correction sur chaque image instantanée de particules.

Le traitement se fait par recherche automatique des points sur l'image de mire distordue : il s'agit de sélectionner une fenêtre, au centre de l'image, qui n'est pas déformée. Dans notre configuration pour laquelle, les particules enregistrées se trouvent à 250mm de l'entrée de l'endoscope, une zone d'au moins 50\*50mm<sup>2</sup> n'est pas déformée, dans cette zone, le grandissement est de 7pxl/mm.

Une fois la fenêtre sélectionnée, le logiciel recherche automatiquement tous les points de la mire. La position des points est parfois difficile à déterminer automatiquement, principalement sur les bords de l'image où la distorsion en tonneau est importante, elle peut donc être rectifiée manuellement.

Une fois les points de la mire déterminée avec précision, la méthode de correction est appliquée dans chaque zone délimitée par 4 croix voisines. On enregistre un fichier de calibration qui servira pour corriger l'ensemble des images de particules.

La Figure 82 présente une image de mire avant et après correction.

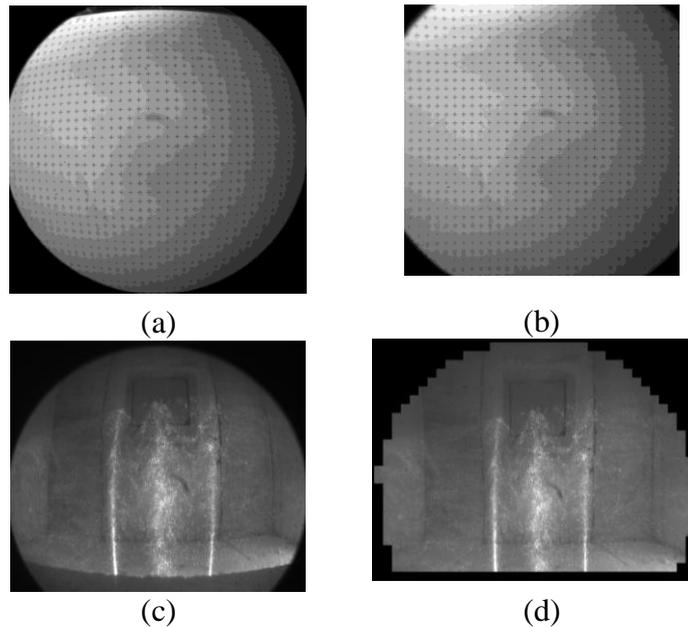


Figure 82 (a) Image de mire brute 2048\*2048pxls, (b) image de mire corrigée 2660\*1960, (c) image de particules brute, (d) image de particules corrigée.

### *Soustraction du bruit de fond*

Des images de nappe laser sans particule ont été enregistrées de manière à pouvoir enlever le bruit de fond sur les images brutes de particules (cf. III.4-).

Un second prétraitement a aussi été réalisé. On calcule l'image moyenne des particules ainsi que l'écart type (rms). L'image de fond est calculée comme étant la soustraction de la rms à l'image moyenne, ce qui permet de ne garder que les endroits où les fluctuations sont peu présentes, c'est à dire, les rayonnements parasites continus.

La Figure 83 présente les profils transversaux de la vitesse axiale calculée pour 3 hauteurs en sortant de brûleur en soustrayant à l'image brute de particules, l'image de nappe laser enregistrée (courbe rouge), et l'image moyenne moins la rms calculée (courbe noire).

Ces deux méthodes donnent des profils identiques. Par la suite, on utilisera les images prétraitées à partir de la rms car elles prennent en compte l'illumination des particules par les parois.

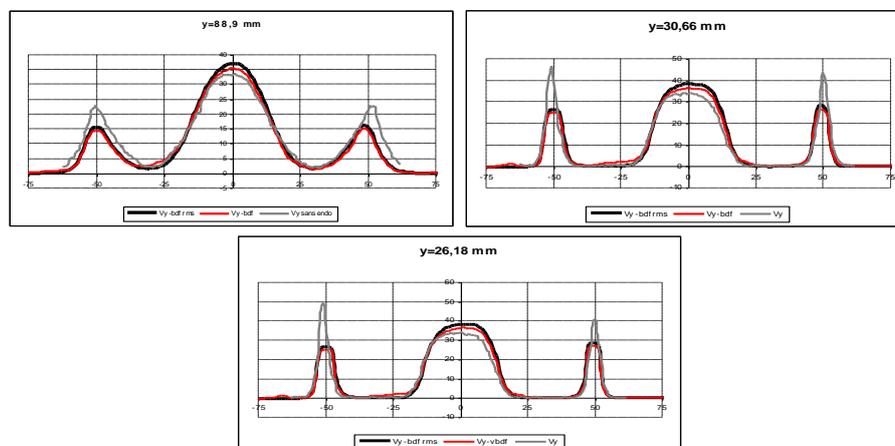


Figure 83 Comparaison des deux méthodes pour soustraire le bruit de fond.

Une fois cette image de fond obtenue, elle est soustraite à l'image instantanée, l'image finale obtenue présente suffisamment de contraste pour permettre le calcul de corrélation (Figure 84).

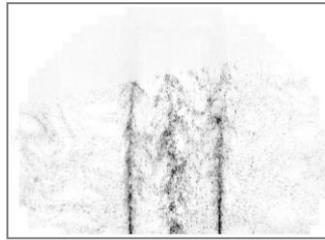


Figure 84 Image de particules corrigée après soustraction du bruit de fond (en niveaux de gris inversés).

#### *Choix de la méthode de correction d'image*

La Figure 85 présente les profils radiaux de la vitesse axiale ( $V_y$ ) déterminée grâce aux deux logiciels de calcul (DaVis et DirectPIV) à différentes hauteurs en sortie de brûleur ( $y=11\text{ mm}$ ,  $y=78\text{ mm}$  et  $y=150\text{ mm}$ ). La meilleure méthode de post traitement est un calcul avec le logiciel DirectPIV puisque les fenêtres rectangulaires permettent de mieux capter la vitesse à la base des jets de méthane.

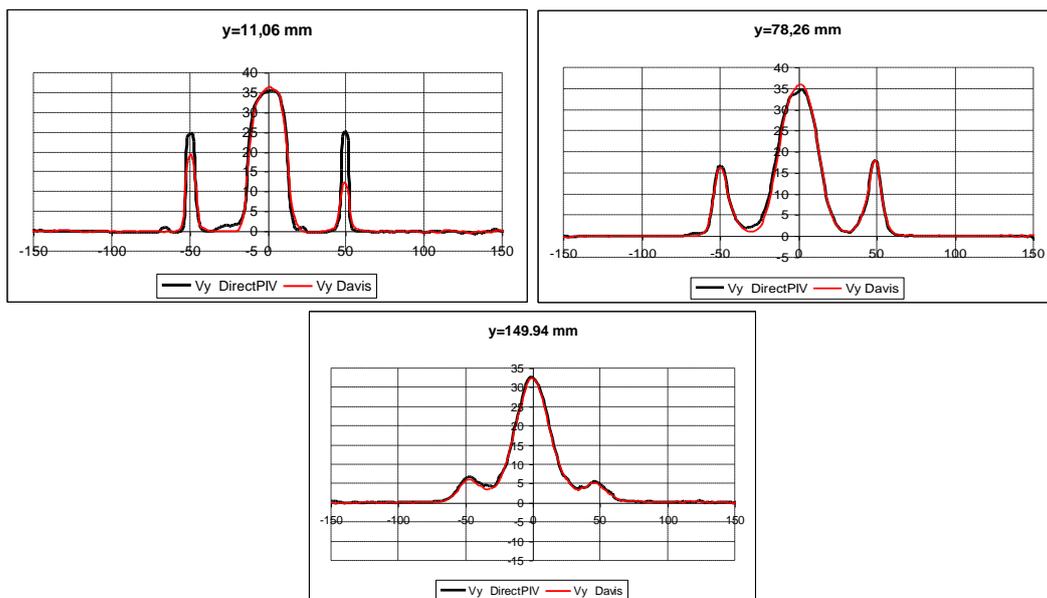


Figure 85 Comparaison de la méthode de calcul des champs de vecteurs vitesse.

Le calcul a été réalisé avec deux tailles de mailles différentes ( $20 \times 40$  pixels et  $32 \times 64$  pixels). La Figure 86 montre que le calcul avec la taille de maille  $20 \times 40$  pixels donnent des résultats plus précis au centre des jets de méthane (la vitesse au centre du jet est plus élevée que pour le calcul en  $32 \times 64$ ) et d'air (la vitesse radiale,  $V_x$ , s'annule en  $x=0$  pour  $y=5\text{ mm}$ , ce qui n'était pas le cas pour le calcul  $32 \times 64$ ) en sortie de brûleur.

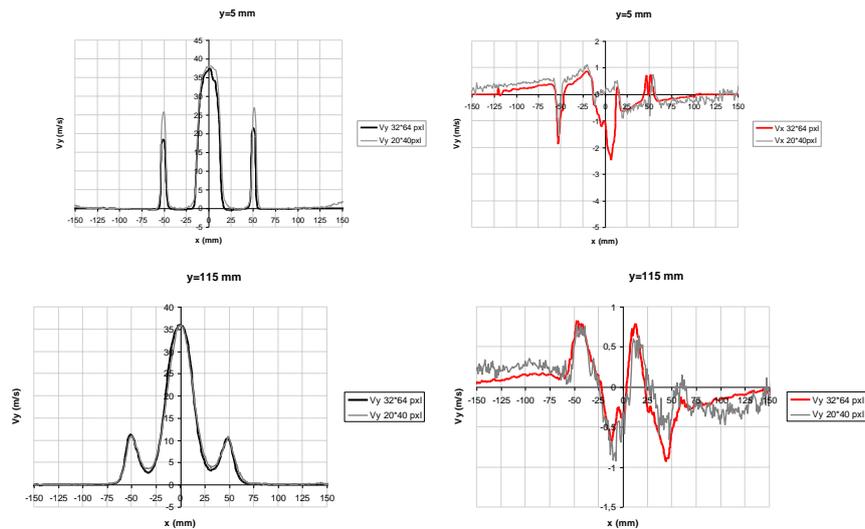


Figure 86 Comparaison de la taille de maille de calcul.

A cause d'un problème d'ensemencement, les images de particules obtenues pour le cas F2 ne sont pas de qualité suffisamment bonne pour être exploitées, elles ne seront donc pas présentées dans ce manuscrit.

Finalement, les champs de vitesse, présentés dans la partie résultats (cf. Chapitre IV:), ont été déterminés de la manière suivante pour tous les cas étudiés :

- La distorsion en tonneau a été corrigée à l'aide du logiciel de unwarping développé dans le cadre de cette étude.
- Le bruit de fond a été calculé en soustrayant l'image de rms à l'image moyenne de particules.
- Les champs de vitesse ont été calculés avec le logiciel DirectPIV de R&D Vision, en utilisant des mailles de calcul rectangulaires de dimension 20 \* 40 pixels, et un recouvrement de 75% en x et en y.
- Filtrage des vecteurs erronés avec les mêmes filtres que ceux appliqués pour la PIV classique (cf.III.4-).

### III.5- Traitement des résultats : méthodes de calcul des grandeurs classiques

#### III.5.1- Zone de recirculation interne /Identification des tourbillons

##### *Rotationnel*

Le rotationnel de la vitesse,  $\omega_z$ , est utilisé pour localiser les tourbillons présents au sein d'un écoulement.

$$\text{Sa forme globale est : } \vec{\nabla} \cdot \vec{V} = \begin{pmatrix} \frac{\partial V_z}{\partial y} - \frac{\partial V_y}{\partial z} \\ \frac{\partial V_x}{\partial z} - \frac{\partial V_z}{\partial x} \\ \frac{\partial V_y}{\partial x} - \frac{\partial V_x}{\partial y} \end{pmatrix}$$

Dans notre configuration bidimensionnelle, la vitesse selon la composante z ( $V_z$ ) et la dérivée partielle en z ( $\frac{\partial}{\partial z}$ ) sont nulles. Le rotationnel peut donc s'écrire de manière simplifiée par :

$$\omega_z = \frac{\partial V_y}{\partial x} - \frac{\partial V_x}{\partial y}$$

Cependant, l'utilisation du rotationnel pour localiser le centre des noyaux tourbillonnaires est rendue délicate à cause de la proximité des jets de méthane et d'air par rapport aux tourbillons. En effet, la présence de gradients de vitesses importants au niveau du jet d'air et des jets de méthane induit de fortes valeurs de vorticité dues au cisaillement des jets, et ne permet alors pas de visualiser la vorticité due aux tourbillons.

Plusieurs études ont été consacrées aux développements de méthodes d'identification de tourbillons dans les écoulements turbulents (Graftieaux-2001, Susset-2002). Cependant, dans beaucoup de configurations, le problème principal est de définir les propriétés morphologiques simples des tourbillons de grande dimension dans un écoulement turbulent présentant des échelles spatiales plus petites.

Pour résoudre ce problème, Graftieaux & Michard ont proposé le calcul d'une fonction scalaire  $\Gamma$  dérivée du champ instantané de vitesse (Graftieaux-2001).

**La fonction scalaire gamma ( $\Gamma$ )**

Soit P un point du domaine de mesure,  $\Gamma$  est défini en P par :

$$\Gamma(P) = \frac{1}{S} \int_{M \in S} \frac{(\vec{PM} \wedge \vec{U}_M) \cdot \vec{z}}{\|\vec{PM}\| \cdot \|\vec{U}_M\|} dS \quad (1)$$

où S est une surface entourant le point P, M est un point appartenant à S et  $\vec{z}$  est le vecteur unité perpendiculaire au plan de mesure.  $\Gamma$  est une quantité adimensionnelle de norme maximale égale à l'unité.

Ce scalaire permet de quantifier la topologie des trajectoires de l'écoulement au voisinage de P et indique le sens de rotation du tourbillon suivant le signe de  $\Gamma$ .

L'application de l'équation (1) au maillage des mesures PIV impose de définir une fenêtre rectangulaire pour la surface S, centrée sur chaque vecteur (position P). Dans ces conditions l'expression équivalente pour  $\Gamma$  est :

$$\Gamma(P) = \frac{1}{N} \sum_S \frac{(\vec{PM} \wedge \vec{U}_M) \cdot \vec{z}}{\|\vec{PM}\| \cdot \|\vec{U}_M\|}$$

où N est le nombre de points M à l'intérieur de S. Le paramètre N joue le rôle d'un filtre spatial, mais n'affecte que légèrement la position du maximum  $\Gamma$ . On a choisi de réaliser les calculs en tenant compte des 16 plus proches voisins du point P.

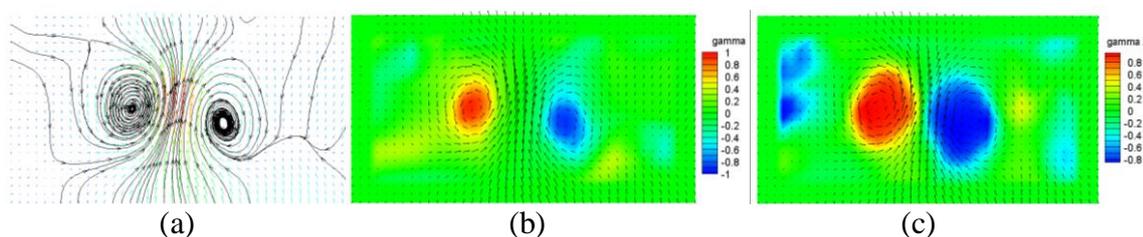
**« Suivi » de la fonction scalaire ( $\Gamma_2$ )**

La définition de  $\Gamma$  n'est pas invariante par translation. Ceci implique que seuls les tourbillons non convectés par l'écoulement peuvent être repérés. Pour résoudre ce problème une expression différente de  $\Gamma$  peut être utilisée en soustrayant la vitesse moyenne calculée sur la surface S.

On prend en compte la vitesse moyenne  $\langle V \rangle_S$  calculée sur la surface S pour obtenir une nouvelle expression:  $\Gamma_2(P) = \Gamma(P) - \langle V \rangle_S$

Cette nouvelle expression est alors invariante par translation mais elle rend plus délicate la localisation précise du centre du tourbillon. Graftieaux et al. montrent que cette expression est plutôt adaptée à la localisation des frontières du tourbillon (Graftieaux-2001).

La Figure 87 représente les fonctions scalaires  $\Gamma$  et  $\Gamma_2$  appliquées à deux tourbillons contrarotatifs. Les valeurs positives de  $\Gamma$  et  $\Gamma_2$  décrivent un tourbillon dans le sens trigonométrique. Les zones à fort  $\Gamma$  et  $\Gamma_2$  permettent de détecter le centre tourbillonnaire.



### III.5.2- Quantification de la dilution par la PIV

La dilution des jets avant réaction est une caractéristique importante du régime de combustion sans flamme. Cette dilution est réalisée aérodynamiquement dans la chambre de combustion par entrainement des gaz brûlés recirculants par les jets de réactifs. Nous avons souhaité évaluer cette dilution en calculant le taux d'entrainement des jets.

Il est défini par le rapport entre le débit à une section donnée ( $Q(Y) = \int_S U_y * dS$ ,  $U_y$  vitesse axiale,  $S$  surface à la section Y) et le débit d'éjection ( $Q_{th}(Y_o)$ ). Sous l'hypothèse que la masse volumique est constante le long du jet :

$$Ke(Y) = \frac{Q(Y)}{Q_{th}(Y_o)}$$

Pour déterminer expérimentalement les débits volumiques en fonction de la hauteur, on définit la largeur des jets par la section comprise entre les droites définissant l'ouverture des jets ( $\frac{U_y}{U_{y_o}} = 0.05$ ) représentées en noir sur la cartographie ci-dessous (Figure 88).

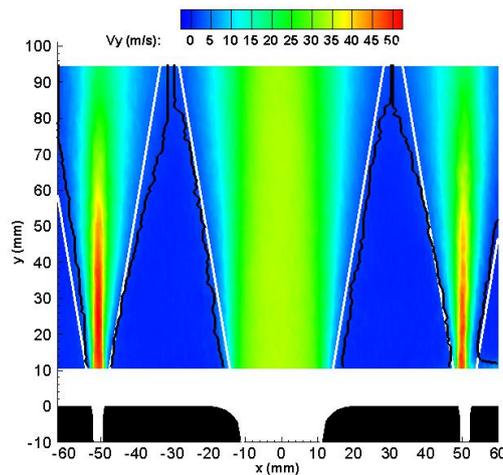


Figure 88 Détermination de la section du jet d'air.

Afin d'obtenir un débit indépendant du maillage des fenêtres d'interrogations, nous avons discrétisé l'intégration sur les profils de vitesse.

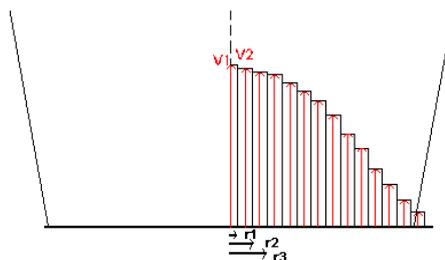


Figure 89 Discretisation des profils de vitesse.

Le débit volumique total du jet pour les  $i$  mailles est alors :  $Q(Y) = \sum_i q_i = \sum_i V_i S_i$

avec :  $q_i = V_i S_i$  débit sur la maille  $i$ ,

$S_i$  surface totale comprise entre la maille  $i$  et le centre du jet,

et  $V_i$  vitesse déterminée par PIV dans la maille  $i$ .

Le rayon de la maille  $i$  est :  $r_i = (i-1)r_1$  et la surface  $i$  correspondante peut s'écrire :

$$S_i = \pi(r_i^2 - r_{i-1}^2)$$

La surface totale comprenant toutes les mailles entières est donc donnée par :

$$S_{Totale} = \sum_{i=2} ((i-1) * 8) \pi r_1^2$$

Finalement, le débit massique entrainé est donné par :

$$\dot{m}(y) = \rho \sum_N V_i S_i = \rho \left( \sum_{i=2}^N V_i (i-1) * 8 \right) \pi r_1^2$$

**Remarque :** dans les paragraphes suivants, mis à part pour le calcul de la masse volumique, les fractions molaires  $X_i$  sont appliquées à toutes les espèces sauf à l'eau.

#### **Calcul du taux de recirculation**

Masson a montré que la théorie de Craya-Curtet (1958) était la plus adaptée pour décrire les recirculations naturelles dans l'installation du laboratoire (Masson, 2005). Le taux de recirculation dans la chambre de combustion peut être évalué en fonction de l'impulsion du jet d'air, des jets de combustible, et du jet en fond de chambre :

$$Kv = A \cdot (\sqrt{m} - B)$$

Le paramètre de similitude ( $m$ ), en tenant compte d'un unique jet composé des jets de combustible et du jet d'air, est défini par :

$$m = \frac{G_j}{G_E} - \frac{1}{2}$$

$G_j$  est l'impulsion du jet unique qui est composé du jet d'air et des jets de combustible :  
 $G_j = G_A + 2G_F$

Avec

$G_A$  impulsion du jet d'air (N)

$G_F$  impulsion du jet de combustible

$G_E$  impulsion des fumées

$D$  diamètre de la chambre

$d$  diamètre de l'injecteur

Les dimensions de la chambre sont grandes devant le diamètre de l'injecteur, le rapport

$\frac{D^2}{D^2 - d^2}$  tend vers 1.

Les constantes A et B sont définies par rapport à la géométrie de l'installation (Monnot-1978). Dans notre configuration, A=0.55 et B=1.5.

Finalement, le taux de recirculation devient :

$$K_V = \frac{\dot{m}_R}{\dot{m}_A + \dot{m}_F} = 0.55 \left( \sqrt{\frac{G_A + 2G_F}{G_E}} - 0.5 - 1.5 \right)$$

$\dot{m}_A$ ,  $\dot{m}_F$  et  $\dot{m}_R$  sont respectivement les débits massiques d'air, de combustibles et des recirculations.

$G_A$ ,  $G_F$  et  $G_E$  sont respectivement les impulsions du jet d'air, d'un jet de combustible et des fumées.

Les impulsions des jets d'air, de combustible et des fumées sont calculées en fonction des mesures d'entrée sortie :

$$G_A = Q_{m_A} \cdot V_A = 4 \cdot \rho_A \frac{Q_{vn_A}^2}{3600^2 \pi D_A^2} \cdot \frac{T_A + 273.15}{273.15}$$

$$G_F = Q_{m_F} \cdot V_F = 4 \cdot \rho_F \frac{Q_{vn_F}^2}{3600^2 \pi D_F^2} \cdot \frac{T_F + 273.15}{273.15}$$

Et

$$G_E = Q_{m_E} \cdot V_E = \frac{(Q_{vn_A} \rho_A + Q_{vn_F} \rho_F)^2}{3600^2 S_E \rho_E}$$

La masse volumique  $\rho_E$  est calculée à partir de la composition théorique des fumées :

$$\rho_E = \frac{273.15}{273.15 + T_E} \sum X_i \rho_i$$

$Q_{vn_A}$  et  $Q_{vn_F}$  sont respectivement le débit d'air et de combustible dans les conditions normales à P = 101325 Pa et T = 0 °C (en m<sup>3</sup>(n)/h).

$T_A$ ,  $T_F$  et  $T_E$  sont les températures de l'air, du combustible et des fumées (en °C).

$\rho_A$  et  $\rho_F$  et  $\rho_E$  sont respectivement les masses volumiques de l'air, du combustible et des fumées dans les conditions normales (en kg/m<sup>3</sup>).

$D_A$  et  $D_F$  sont les diamètres de l'injecteur d'air et de l'injection de combustible.

$S_E$  est la section de la chambre.

$X_i$  est la fraction molaire des produits de combustion.

$\rho_i$  est la masse volumique dans les conditions normales de chacun des produits de combustion de fraction molaire  $X_i$ .

E. Masson a comparé les impulsions des jets d'air et de combustible pour les différentes conditions expérimentales étudiées. Il a remarqué qu'il existait un rapport variant de 3 à 20 entre l'impulsion du jet d'air et celle des jets de combustible. Il en a déduit que l'impulsion

des jets de combustible pouvait être négligée devant celle du jet d'air. Cependant, lors de son étude, la vitesse des jets de combustible était constante.

Pour notre étude de l'influence de la composition du mélange combustible sur le régime de combustion sans flamme, la vitesse du jet de combustible varie, son impulsion ne peut donc pas être considérée comme étant négligeable puisqu'elle peut représenter jusqu'à 30% de l'impulsion du jet d'air. Elle sera donc prise en compte dans les calculs.

### III.5.3- *Calculs de la concentration des espèces non mesurées*

Les analyseurs disponibles lors des mesures de concentration par sonde de prélèvement ne nous permettent pas d'obtenir toutes les espèces. En pratique, les concentrations en CH<sub>4</sub>, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, CO et NO<sub>x</sub> peuvent être mesurées. En revanche, les concentrations en H<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub> et N<sub>2</sub> peuvent être déduites des concentrations des espèces mesurées, en supposant que localement l'écoulement est à l'équilibre chimique et thermodynamique, ce qui est le cas en dehors des zones de réaction.

L'équation de l'oxydation partielle du méthane permet d'établir les concentrations molaires d'H<sub>2</sub>O, d'H<sub>2</sub> et de N<sub>2</sub>,

$$X_{H_2O} = \frac{2 \cdot X_{CO_2} + X_{CO}}{1 + \frac{X_{CO}}{K \cdot X_{CO_2}}}$$

$$X_{H_2} = \frac{X_{H_2O} \cdot X_{CO}}{K \cdot X_{CO_2}}$$

$$X_{N_2} = 3.76 \cdot \left( X_{CO_2} + \frac{X_{CO}}{2} + X_{O_2} + \frac{X_{H_2O}}{2} \right)$$

K, constante d'équilibre de la réaction du gaz à l'eau, est défini en fonction de la température du milieu, à partir des tables JANAF (Chase-1985).

Sa courbe, d'équation ci après est reportée Figure 90.

$$K = \exp \left[ a_1(1 - \ln T) - \frac{a_2}{2}T - \frac{a_3}{6}T^2 - \frac{a_4}{12}T^3 - \frac{a_5}{20}T^4 + \frac{a_6}{T} - a_7 \right]$$

Avec :

	a1	a2	a3	a4	a5	a6	a7
300 < T < 1000 K	-1,07544518	0,00576009	-9,8696E-07	-5,7786E-09	3,2777E-12	-4867,00907	-0,54473592
T < 5000 K	1,74782252	-0,00065875	1,0136E-07	8,2103E-12	-1,805E-15	-5634,4363	-15,2815406

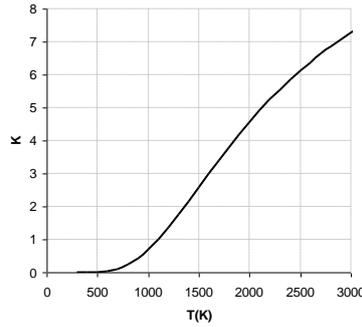


Figure 90 Evolution de la constante d'équilibre de la réaction du gaz à l'eau, en fonction de la température.

### Masse volumique

La masse volumique locale peut être déterminée, aux endroits de l'écoulement pour lesquels les concentrations et la température sont connues, de la manière suivante :

$$\rho_T = \sum_i \rho_i(T_i) \cdot X_i$$

$\rho_i$ ,  $T_i$  et  $X_i$  sont respectivement la masse volumique, la température et la fraction molaire de l'espèce  $i$ .

Les fractions molaires sont

$$X_{CH_4} = \frac{[CH_4]_{mesuré}}{\sum X_i}$$

$$X_{CO_2} = \frac{[CO_2]_{mesuré}}{\sum X_i}$$

$$X_{O_2} = \frac{[O_2]_{mesuré}}{\sum X_i}$$

$$X_{CO} = \frac{[CO]_{mesuré} / 10000}{\sum X_i}$$

$$X_{NO} = \frac{[NO]_{mesuré} / 10000}{\sum X_i}$$

$$X_{H_2O} = \frac{\frac{2 \cdot [CO_2]_{mesuré} + [CO]_{mesuré} / 10000}{1 + \frac{[CO]_{mesuré} / 10000}{K \cdot [CO_2]_{mesuré}}}}{\sum X_i}$$

$$X_{N_2} = \frac{3.76 \cdot \left( [CO_2]_{mesuré} + \frac{[CO]_{mesuré} / 10000}{2} + \frac{[H_2O]_{calculé}}{2} \right)}{\sum X_i}$$

Et

$$X_{H_2} = \frac{[H_2O]_{calculé} \cdot [CO]_{mesuré}}{K \cdot [CO_2]_{mesuré} \sum X_i}$$

La masse volumique de l'espèce, à la température T (en °C), est calculée par :

$$\rho_i = \rho_{100} \frac{(273)}{T + 273} \text{ (kg/m}^3\text{)}$$

Les masses volumiques des espèces à pression atmosphérique et à la température T=100°C,  $\rho_{100}$ , sont reportés Tableau 8.

Espèce	$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )
O <sub>2</sub>	1.032
CH <sub>4</sub>	0.5174
CO <sub>2</sub>	1.422
N <sub>2</sub>	0.9028
CO	0.9027
NO	0.9668
H <sub>2</sub>	0.06496
H <sub>2</sub> O	0.5874

Tableau 8 Masse volumique des espèces à 100°C (fluidat.com).

#### ***Estimation du taux de dilution***

Le taux de dilution est défini par le rapport du volume d'espèces inertes sur le volume des réactifs. Les réactifs sont le CH<sub>4</sub>, l'air, c'est-à-dire, un mélange 21% en volume d'O<sub>2</sub> et 79% en volume de N<sub>2</sub>, et les inertes représentent les produits de combustion entraînés.

Le taux de dilution peut donc être estimé en chaque point de mesure des concentrations par :

$$\alpha = \frac{1 - (X_{CH_4} + X_{O_2} + \frac{79}{21} X_{O_2})}{X_{CH_4} + X_{O_2} + \frac{79}{21} X_{O_2}}$$

#### ***Estimation de la richesse***

La richesse ( $\Phi$ ) est calculée à partir de la concentration volumique du combustible et du comburant :

$$\Phi = \frac{X_{CH_4}}{X_{O_2} / 2} = \frac{2 * [CH_4]_{vol}}{[O_2]_{vol}}$$



## *Chapitre IV:* **La combustion sans flamme au méthane**

*Ce chapitre se compose de deux parties : l'étude paramétrique et l'étude détaillée. L'étude paramétrique met en évidence l'influence du taux d'aération et de la température de préchauffage de l'air sur la structure moyenne des zones de réaction et sur les émissions de NOx. Cette étude paramétrique a permis d'isoler 3 conditions expérimentales dont l'étude détaillée est ensuite présentée. Pour ces trois conditions, l'analyse des mesures de vitesse, de température et de concentrations a permis de mettre en évidence les paramètres physico-chimiques qui contrôlent le régime de combustion sans flamme au méthane dans notre configuration.*

### **IV.1- Etude paramétrique**

Des études précédentes réalisées à l'échelle semi-industrielle, présentées chapitre I, ont montré l'influence du taux d'aération<sup>3</sup> et de la température de préchauffage de l'air sur les émissions de NOx ainsi que sur la structure des zones de réaction pour la combustion sans flamme (Masson-2005, Quiqueneau-2001). Dans cette partie, nous détaillerons l'évolution des zones de réaction et des émissions en fonction de ces deux paramètres.

---

<sup>3</sup> Le taux d'aération représente le facteur d'air, c'est-à-dire, l'inverse de la richesse.

### IV.1.1- Influence de la variation du taux d'aération

#### Emissions de NOx

Lors d'essais semi-industriels réalisés sur des brûleurs commerciaux, il a été constaté une forte augmentation des émissions en oxyde d'azote en fonction du taux d'aération, comme le montre la Figure 91 qui présente l'influence du taux d'aération sur les émissions d'oxydes d'azote du brûleur REGEMAT (Quinqueneau-2001) et du brûleur NFK (Masson-2005).

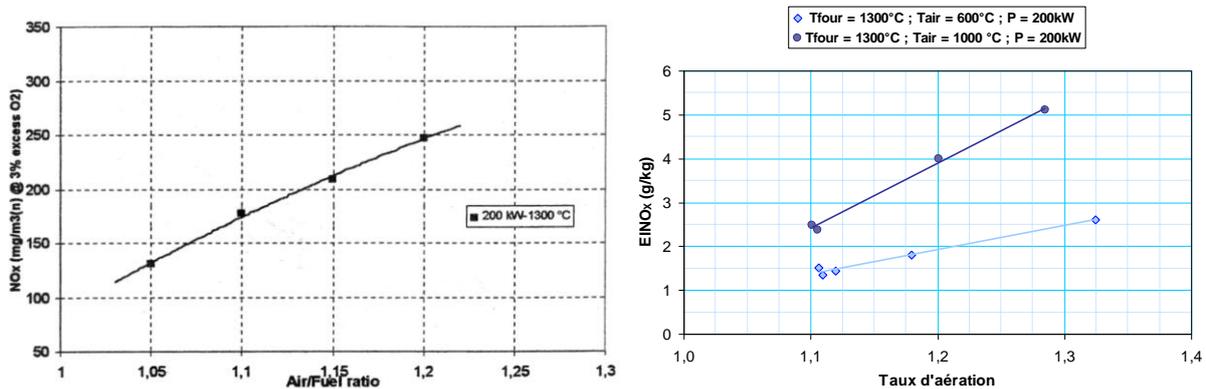


Figure 91 Influence du taux d'aération sur les émissions d'oxydes d'azote du brûleur WS REGEMAT (Quinqueneau-2001) et du brûleur NFK (Masson-2005).

Les résultats obtenus dans cette étude sur l'installation de combustion sans flamme du CORIA, montrent les mêmes tendances : en effet, la Figure 92 montre également cette augmentation des émissions de NOx avec l'augmentation du taux d'aération. Pour une température de préchauffage de l'air  $T_a=565$  °C, la concentration en NOx dans les fumées croît de 24 ppm @3% O₂ à 57 ppm @3% O₂ lorsque le taux d'aération passe de  $\lambda=1.18$  à  $\lambda=1.80$ .

On a souhaité étudier l'évolution de la structure des zones de réaction dans ces conditions.

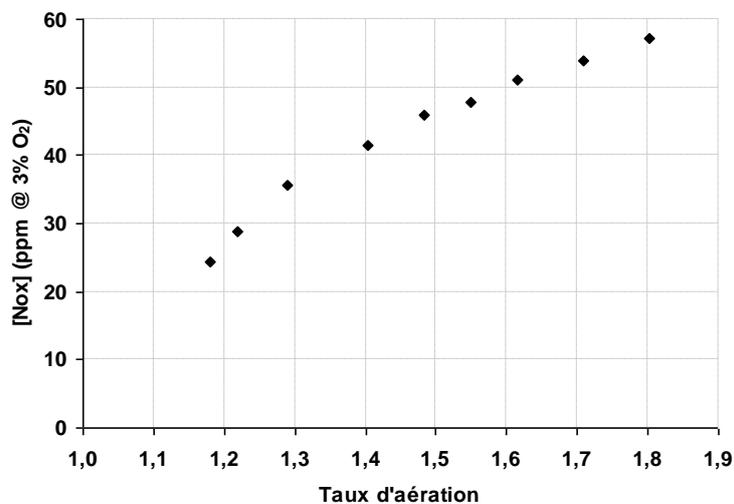


Figure 92 Emissions de NOx en fonction du taux d'aération,  $T_a=565$ °C.

##### *Structure spatiale de la zone de réaction moyenne*

L'image moyenne de chimiluminescence permet de mettre en évidence la position des zones de réaction (cf. III.5-). Pour un taux d'aération  $\lambda=1.18$ , deux zones de réaction distinctes et moyennes peuvent clairement être observées (Figure 93):

- la zone de réaction « principale » se situe dans les couches de mélange des jets d'air et de méthane,
- la zone de réaction « secondaire » se situe sur les bords externes des jets de méthane, entre le méthane et l'oxygène résiduel présent dans les gaz brûlés qui recirculent.

La zone de réaction « principale » est très intense et provoque un fort dégagement de chaleur.

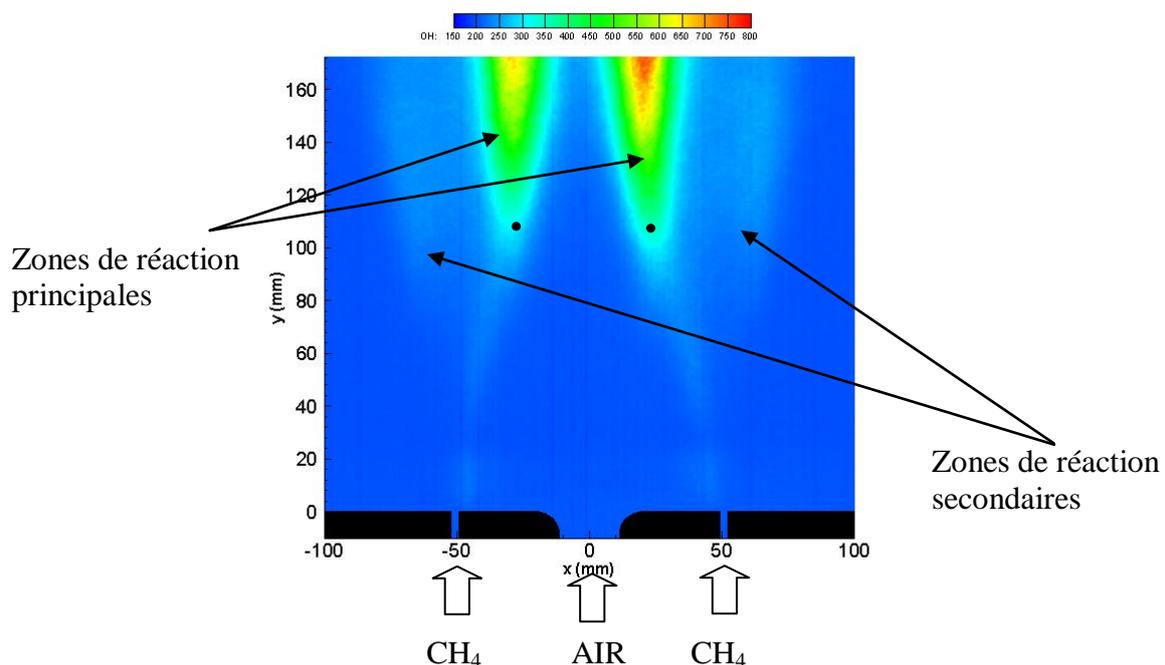


Figure 93 Image moyenne de chimiluminescence OH\* obtenue pour un taux d'aération  $\lambda=1.18$  (les points noirs représentent les points de fusion des jets).

La Figure 95 présente les images moyennes de chimiluminescence obtenues, pour une température de préchauffage de l'air de 565°C, en faisant varier le taux d'aération de  $\lambda=1.18$  jusqu'à  $\lambda=1.72$ .

Le signal de chimiluminescence émis autour des jets de méthane est très faible, il augmente de manière continue avec le taux d'aération. La zone de réaction « secondaire » reste très peu intense et provoque un faible dégagement de chaleur. Sur les bords extérieurs des jets de méthane, il est possible d'observer une extinction locale de la zone de réaction après 10 diamètres qui peut être le résultat d'un étirement plus important de cette partie du jet de méthane.

Par ailleurs, sur toutes les visualisations il est constaté une légère dissymétrie entre les deux structures moyennes des zones de réaction « est » et « ouest », ceci est dû probablement à une légère différence de la régulation du débit de méthane dans les deux injecteurs qui se traduit par un écart de vitesse à la sortie d'environ 2%.

Lorsque le taux d'aération augmente, à une température de préchauffage de l'air fixe, le signal de chimiluminescence dans les zones de réaction augmente également, ce qui traduit une combustion de plus en plus intense. Nous avons cherché à évaluer la variation de l'intensité du signal OH\* entre les deux zones de réaction principale et secondaire. Pour cela, l'intensité de la zone de réaction principale, de la zone de réaction secondaire et du rayonnement des parois est déterminée avec la méthode décrite au paragraphe III.5-.

Les résultats obtenus sont résumés sur la Figure 94. La tendance mise en évidence par l'imagerie moyenne est ici clairement illustrée : plus le taux d'aération est important, plus l'intensité de la zone de combustion augmente. Les courbes d'évolution montrent que l'intensité des zones augmente de manière similaire pour la zone de réaction « principale » et la zone de réaction « secondaire ». Il n'y a pas de zone de réaction plus favorisée par l'augmentation du taux d'aération.

Le signal des parois est proportionnel au rayonnement du réfractaire (constituant les parois), lui-même proportionnel à la température des parois puissance 4. Comme la température des parois diminue de 50°C entre les taux d'aération 1.18 et 1.72, le niveau d'émission des parois devrait diminuer de 15%. Or, on observe une légère augmentation du signal en dehors des zones de réaction du fait de la présence de flammes visibles, dont une partie du rayonnement est réémis par les parois.

Lorsque le taux d'aération augmente, les conditions nécessaires à l'allumage de la flamme peuvent être réunies dès la sortie des injections de combustible, c'est pourquoi une zone de réaction est possible. En effet, lorsque le taux d'aération augmente, la quantité d'oxygène dans les fumées est plus importante : la zone de réaction secondaire (autour des jets de combustible) est favorisée. Sa présence permet à la température des réactifs d'augmenter, les conditions locales nécessaires pour maintenir une zone de réaction sont alors plus rapidement réunies et la température maximale dans la zone de réaction principale doit être plus importante, ce qui favorise la production de NOx. Les mesures en cheminée confirment cette tendance.

De plus, lorsque le taux d'aération augmente, on peut observer à l'œil des flammes très instationnaires autour des jets de méthane.

En résumé, le taux d'oxygène dans les fumées ou dans la zone de mélange est déterminant pour la stabilisation de la combustion sans flamme. A Contrario, celui-ci provoque une augmentation des émissions de NOx. Il est donc nécessaire de trouver un point optimal de fonctionnement de ce régime, permettant de stabiliser les zones de réaction tout en conservant des émissions polluantes faibles.

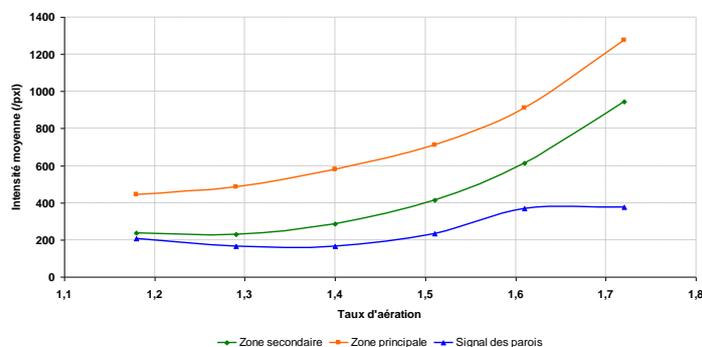


Figure 94 Intensité moyenne (par pixel) des zones de réaction en fonction du taux d'aération  $\lambda$ .

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

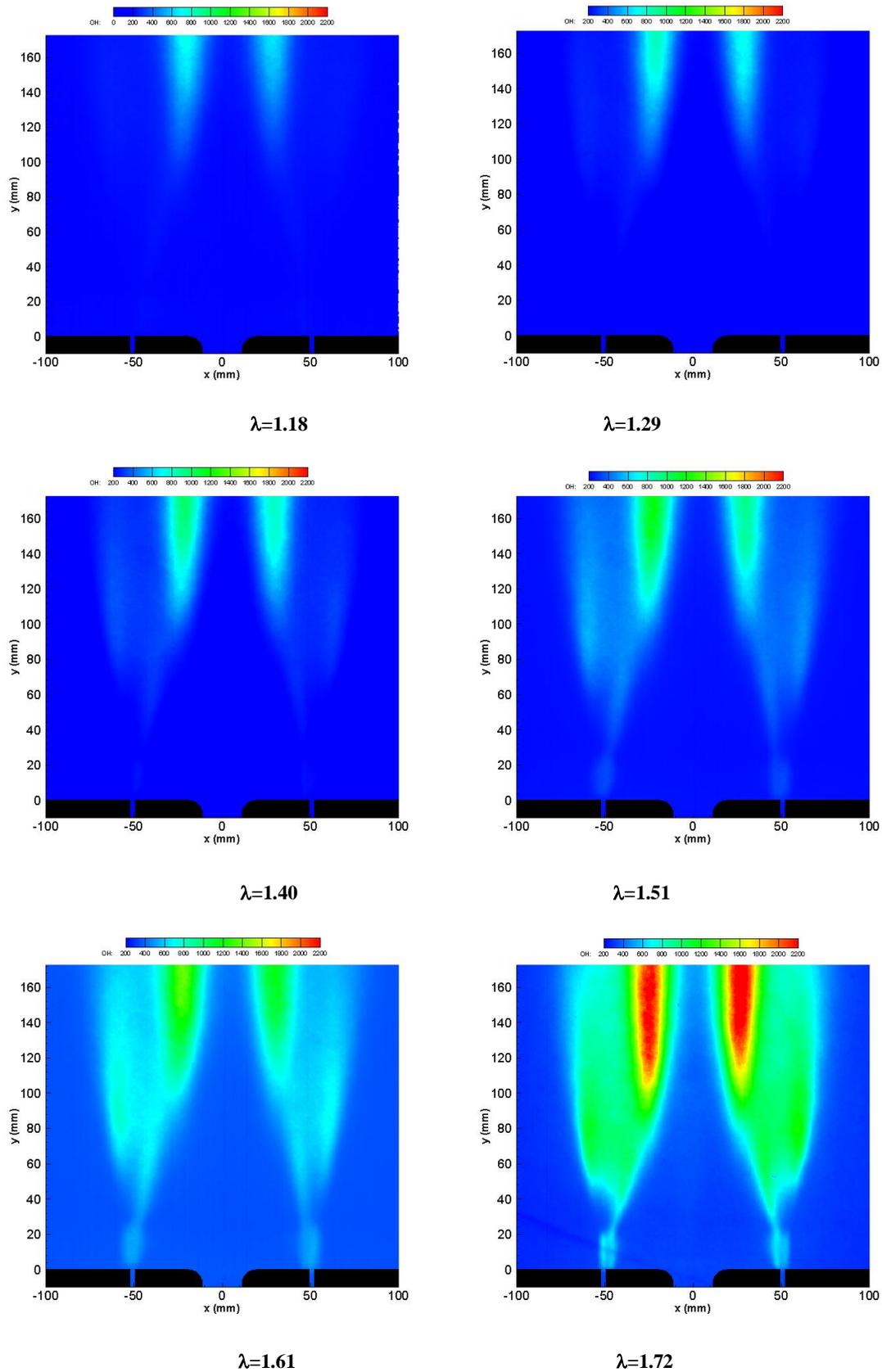
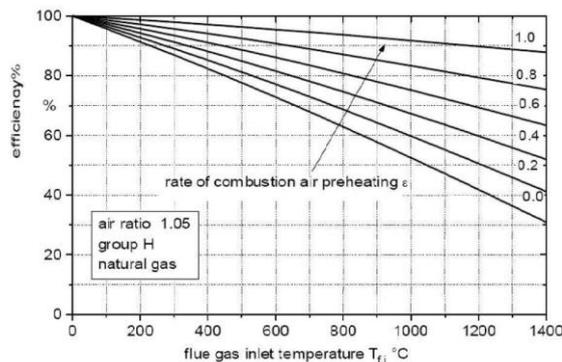


Figure 95 Images moyennes de chimiluminescence pour une température de préchauffage de l'air  $T_a=565^\circ\text{C}$  et un taux d'aération variable de  $\lambda=1.18$  à  $\lambda=1.72$ .

### IV.1.2- Influence de la température de préchauffage de l'air

Les systèmes industriels de préchauffage de l'air, par la récupération de l'énergie des produits de combustion, offre l'avantage d'augmenter le rendement de fonctionnement de l'installation, comme le montre la Figure 96.



$$\eta = \frac{h_{fuel} + h_{air} - h_{fumée}}{h_{fuel}}$$

$$\epsilon = \frac{T_{air}^{sortie} - T_{air}^{entrée}}{T_f^{entrée} - T_{air}^{entrée}}$$

Figure 96 Evolution du rendement ( $\eta$ ) d'une installation en fonction de la température des fumées ( $T_f$ ) et du taux,  $\epsilon$ , de récupération de chaleur des fumées (Flamme, 2000).

Même si des études récentes ont montré que la combustion sans flamme pouvait être obtenue sans préchauffage de l'air (Masson-2005, Szegö-2008), ce dernier a longtemps été considéré comme un élément indispensable à l'obtention de ce mode de combustion (Yamauchi-1999, Cavaliere-2001).

Nous avons donc voulu établir l'importance de ce paramètre de fonctionnement sur ce mode de combustion et démontrer si, comme l'avait observé Masson, la combustion sans flamme était possible avec de l'air à température ambiante.

### Emissions de NOx

La Figure 97 présente l'évolution des concentrations de NOx en cheminée en fonction de la température de préchauffage de l'air.

Les émissions de NOx diminuent exponentiellement lorsque la température de préchauffage de l'air diminue, jusqu'à atteindre un cas ultime où la production de NOx atteint la valeur de 4ppm à 3% O<sub>2</sub>. En effet, les émissions de NOx sont divisées par 6 lorsque la température de préchauffage de l'air décroît de  $T=565^\circ\text{C}$  à la température ambiante.

Par ailleurs, pour la température de préchauffage de l'air la plus élevée,  $T=565^\circ\text{C}$ , atteinte par notre installation, la production de NOx restent bien inférieure à celle dans le cas d'une combustion classique (cf. I.2.2-I.1-).

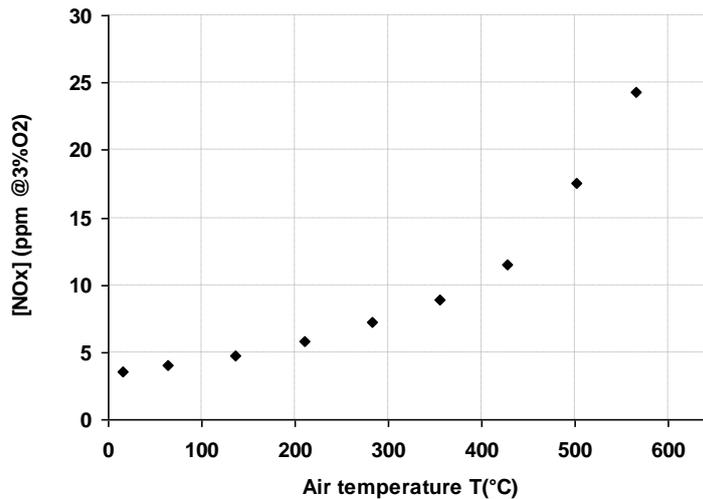


Figure 97 Influence de la température de préchauffage de l'air sur les émissions de NOx.

### *Structure spatiale de la zone de réaction moyenne*

La Figure 99 présente les images moyennes réalisées par imagerie de chimiluminescence OH\*, pour un taux d'aération  $\lambda=1.18$ , pour deux positions de hublot dans le FOUR, en faisant varier la température de préchauffage de l'air. Les premières mesures ont été réalisées pour le cas sans préchauffage de l'air.

Celle-ci a ensuite été augmentée progressivement jusqu'à  $T=600^{\circ}\text{C}$ . On obtient les mêmes résultats si la température de préchauffage de l'air diminue de  $T=600^{\circ}\text{C}$  jusqu'à  $T=25^{\circ}\text{C}$ , puisque la mesure n'est réalisée qu'après stabilisation du four, c'est-à-dire, après stabilisation de la température des fumées et de la température des parois.

Lorsque l'on diminue la température de préchauffage de l'air, on a une extinction progressive de la zone de réaction autour des jets de méthane jusqu'en dessous du seuil de détection. A partir de  $400^{\circ}\text{C}$ , la base de la zone de réaction principale commence à se décaler progressivement et n'est plus détectable à travers le premier accès optique. On retrouve la zone de réaction principale à travers un deuxième accès optique plus en aval (au milieu de la hauteur du FOUR), permettant de déterminer la hauteur de la fin de réaction principale qui varie de 450 à 600mm.

L'évolution de la position de la zone de réaction principale peut être attribuée à un décalage vers l'aval des conditions locales propices à l'auto-inflammation du mélange ou / et à une augmentation du délai d'auto-inflammation. La diminution de l'intensité du signal de OH\* lorsque la température décroît, traduit une diminution de l'intensité de la combustion. Il n'est plus possible d'observer la zone de réaction secondaire autour des jets de méthane. La zone de réaction se déplace en aval dans le four. On obtient un régime de combustion plutôt prémélangé et surtout fortement dilué.

La courbe Figure 98 présente l'évolution de l'intensité (par pixel) pour le premier accès optique dans la zone de réaction principale en fonction de la température de préchauffage de l'air, elle permet de mettre en évidence les constatations précédemment énoncées. La zone de réaction est inexistante pour les températures de préchauffage de l'air inférieures à  $T_a=400^{\circ}\text{C}$ .

A  $T_a=400^\circ\text{C}$ , la zone de réaction commence à apparaître, puis son intensité augmente avec la température, elle présente la même évolution que les émissions de  $\text{NO}_x$ .

Grandmaison et al. ont observé la même tendance en faisant varier la température du four. Pour des températures de four élevées, la totalité du combustible est consommé dans la zone qui se situe après le point de confluence des deux jets (« two jet mixing zone»). En revanche, pour des températures de four faibles, la présence de combustible bien après le point de fusion révèle une zone de réaction située plus en aval du brûleur (Grandmaison-1998).

***La diminution de la température de préchauffage du jet d'air décale vers l'aval la zone de réaction. La dilution des jets avant réaction est favorisée, ce qui diminue la densité locale de dégagement de chaleur et ainsi la production de  $\text{NO}_x$ .***

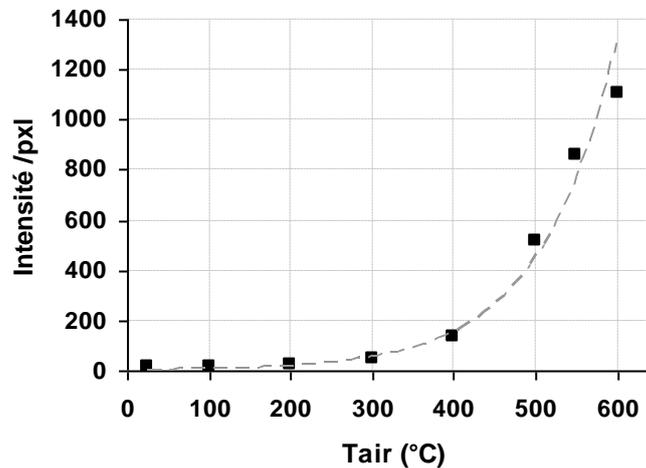


Figure 98 Evolution de l'intensité de la zone de réaction principale (par pixel) en fonction de la température de préchauffage de l'air.

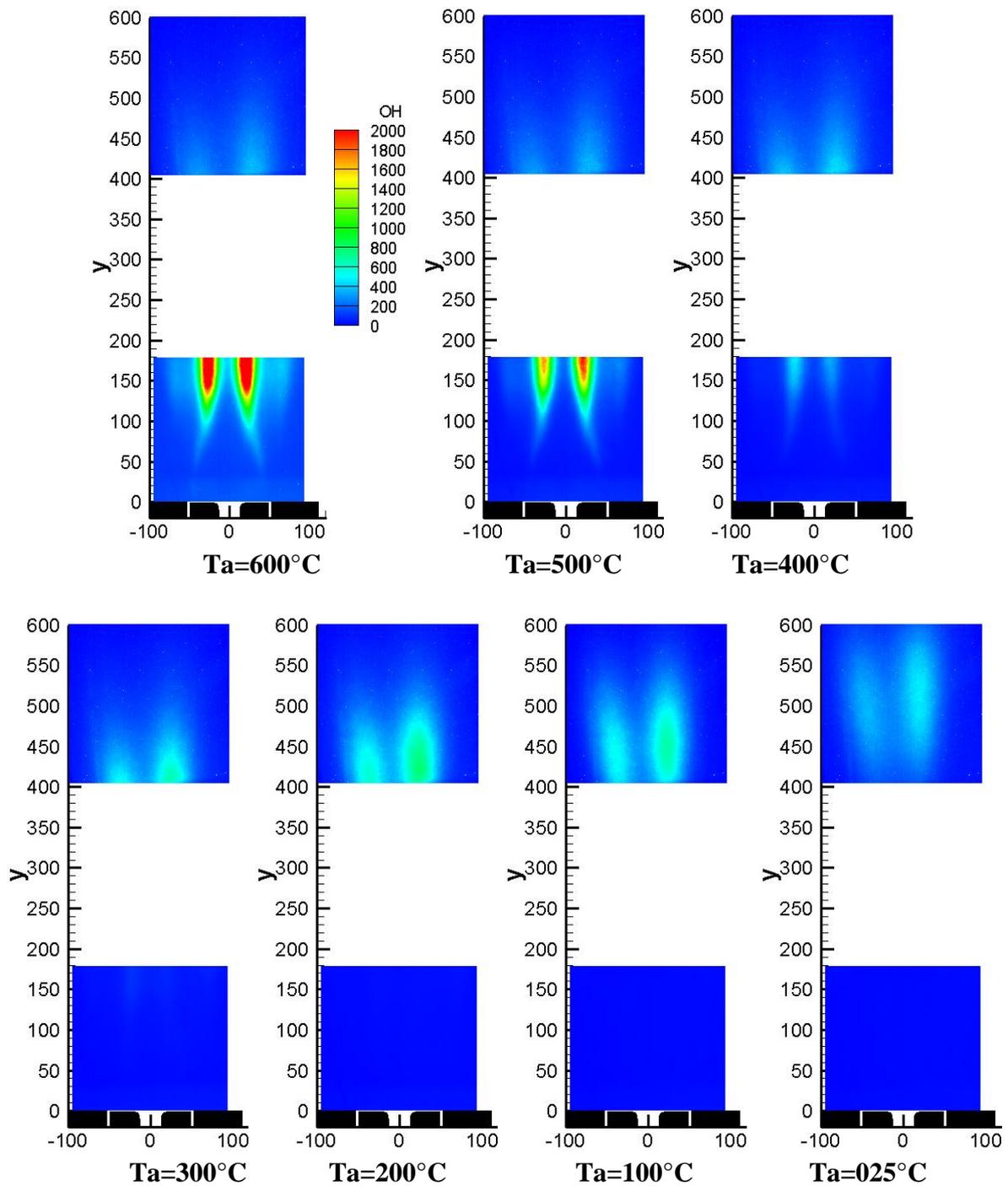


Figure 99 Imagerie moyenne de chimiluminescence de  $\text{OH}^*$ , taux d'aération  $\lambda=1.18$ , température de préchauffage de l'air ( $T_a$ ) variable.

## IV.2- Conditions de fonctionnement

L'étude paramétrique a permis de mettre en évidence l'effet de plusieurs paramètres (température de préchauffage de l'air – taux d'aération) sur la position de la zone de réaction et les niveaux d'émission de polluants. A partir de ces résultats, 3 conditions expérimentales ont été choisies pour être caractérisées de manière détaillée.

Les conditions opératoires nominales de **référence** sont les conditions qui se rapprochent le plus du fonctionnement des brûleurs régénératifs de combustion sans flamme. Ce cas sera abrégé « F0 » sur les graphiques et les figures de ce chapitre. Les conditions d'entrée sont :

- Puissance de combustion: **P = 18.6 kW**
- Taux d'aération :  **$\lambda = 1,18$**
- Température de préchauffage de l'air : **T= 565 °C**

Parce que le régime de combustion sans flamme a d'abord été atteint avec des brûleurs régénératifs, le préchauffage de l'air de combustion à l'entrée du système, était considéré, à tort, comme une condition nécessaire pour l'obtention du régime de combustion sans flamme. Or, l'étude paramétrique a montré qu'en l'absence de préchauffage, les émissions de NOx atteignent une valeur très faible. Par la suite, le cas **sans préchauffage de l'air**, nommé « F1 » et dont les conditions initiales sont données ci-dessous, sera caractérisé de manière détaillée.

- Puissance de combustion : P = 18.6 kW
- Taux d'aération :  $\lambda = 1,18$
- Température de préchauffage de l'air : T= 25 °C

Lorsque l'on augmente le taux d'aération, une zone de réaction qui émet beaucoup de NOx et contenant beaucoup de suies est observable à l'œil. Ce point de fonctionnement est une limite du régime de combustion sans flamme. C'est pourquoi, le cas avec un **fort excès d'air** (« F2 ») sera détaillé par la suite:

- Puissance de combustion : P = 18.6 kW
- Taux d'aération :  $\lambda = 1,72$
- Température de préchauffage de l'air : T= 550 °C

Le Tableau 9 résume les caractéristiques des jets pour ces 3 conditions expérimentales.

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

	F0	F1	F2
P (kW)	18,6	18,6	18,6
$\lambda$	1,18	1,18	1,72
$T_{CH_4}$ (°C)	20	20	20
$T_{air}$ (°C)	565	20	550
PCI	9,95	9,95	9,95
Va	9,54	9,54	9,54
$Q_{vCH_4}$ (m <sup>3</sup> (n)/h)	1,87	1,87	1,87
$Q_{vAir}$ (m <sup>3</sup> (n)/h)	21,04	21,04	30,6
$m_{CH_4}$ (kg/s)	$0,40 \cdot 10^{-3}$	$0,40 \cdot 10^{-3}$	$0,40 \cdot 10^{-3}$
Vgaz (m/s)	39,4	39,4	39,4
Vair (m/s)	36,6	12,8	51,3
Viscosité cinématique (m <sup>2</sup> /s) air	$0,09159 \cdot 10^{-3}$	$0,09159 \cdot 10^{-3}$	$0,09159 \cdot 10^{-3}$
Viscosité cinématique (m <sup>2</sup> /s) CH <sub>4</sub>	$0,01662 \cdot 10^{-3}$	$0,01662 \cdot 10^{-3}$	$0,01662 \cdot 10^{-3}$
Re (air)	20951	3489	13998
Re (CH <sub>4</sub> )	7116	7116	7116

Tableau 9 Caractéristiques des jets d'air et de méthane pour les cas F0, F1 et F2.

Comme nous l'avons vu précédemment, l'imagerie de chimiluminescence montre, pour les cas F0 et F2, deux zones de réaction. La zone de réaction principale se situe dans les couches de mélange des jets d'air et de méthane. La zone de réaction secondaire se situe autour des jets de méthane. Pour le cas F2, cette zone de réaction, plus intense que pour le cas F0, est attachée au brûleur. Une extinction partielle peut être observée vers  $y=30$  mm, probablement due à un étirement plus important du jet de méthane du côté des gaz recirculant.

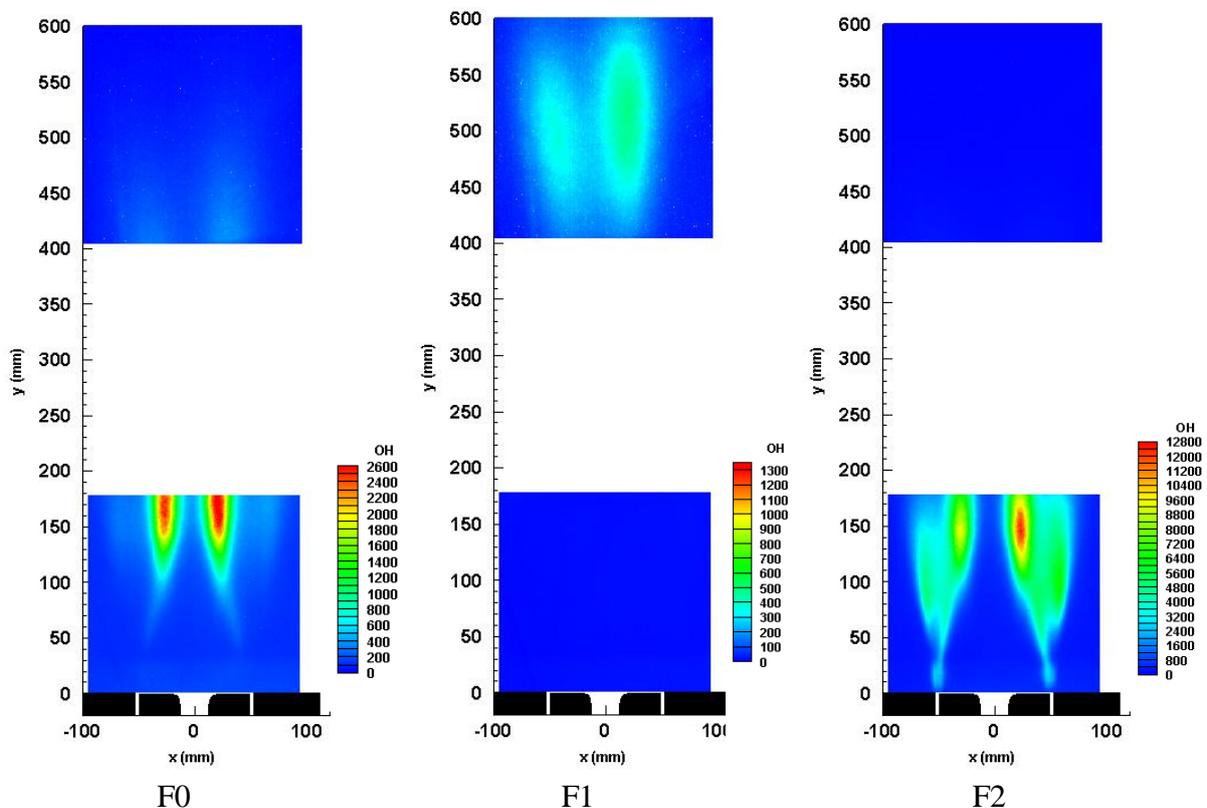


Figure 100 Localisation des zones de réaction pour les trois cas étudiés, à l'aide de la visualisation du radical OH\*.

La Figure 101 présente l'évolution des températures des parois et du flux dans le four en fonction de la distance au brûleur pour les trois cas étudiés.

La température des parois est homogène sur la hauteur du four. Cependant, elle dépend légèrement des conditions initiales. Pour le cas de référence « F0 », la température des parois est 1050°C, pour le cas « F2 » la température des parois est 1000°C, et 950°C pour le cas sans préchauffage de l'air « F1 ».

Le flux est également homogène sur la hauteur du four. Il est compris entre 30 et 35 kW/m<sup>2</sup> pour le cas sans préchauffage de l'air et entre 35 et 40 kW/m<sup>2</sup> pour les cas avec préchauffage. Il est supérieur pour les cas avec préchauffage de l'air puisque dans ces cas là, la température des parois est supérieure de 100K au cas sans préchauffage.

L'absence de fort gradient longitudinal de température et de flux est une caractéristique typique du régime de combustion sans flamme et a déjà été observé sur des installations semi-industrielles (Masson-2005, Brune-2001, Flamme-2001, Weber-2000).

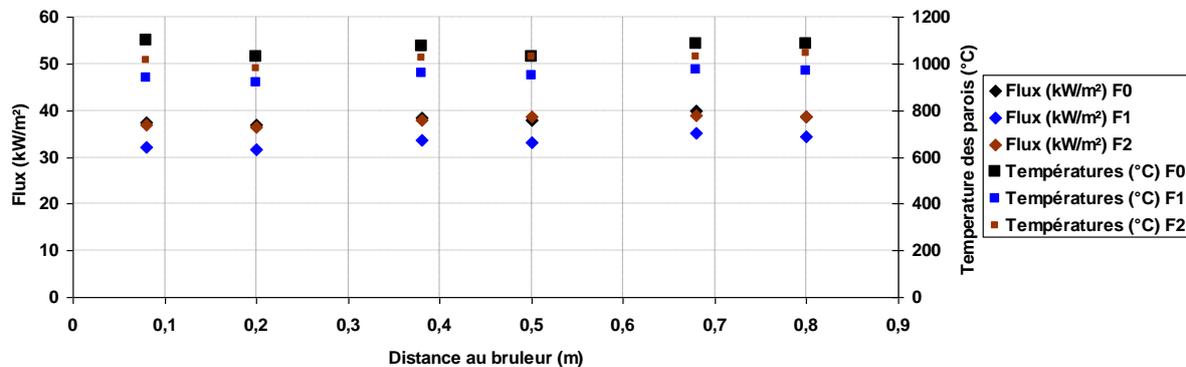


Figure 101 Flux et températures aux parois pour les 3 cas étudiés.

Le Tableau 10 présente les concentrations, la température des fumées et la température moyenne des parois pour les trois cas étudiés. Les concentrations ont été mesurées avec une baie d'analyse. Les températures des fumées et des parois correspondent à la moyenne des températures enregistrées lors des différentes séries de mesures non intrusives (PIV, OH\*...) réalisées pendant ce travail de thèse mais aussi pendant la thèse de Masson (2005). Pour chacun des cas, la combustion est complète puisque on ne retrouve pas de méthane ou de CO dans les fumées. De plus, l'écart entre la température des parois et des fumées reste inférieur à 50°C quelque soit le cas étudié.

	O <sub>2</sub> (%vol)	Imbrûlés (%vol)	CO <sub>2</sub> (%vol)	NO <sub>x</sub> (ppm à 3%O <sub>2</sub> )	T(°C)fumées +/- 50°C	T(°C)Parois +/- 50°C	O <sub>2</sub> théorique (%)	CO <sub>2</sub> théorique (%)
F0	5.11	0	8.69	29	1077	1057	3.5	9.8
F1	4.31	0	9.07	6	977	957	3.5	9.8
F2	9.69	0	6.17	51	1022	1007	9.4	6.5

Tableau 10 Concentrations et température des fumées pour les 3 cas étudiés.

Dans ces trois conditions de fonctionnement sélectionnées, plusieurs techniques de mesures ont été successivement utilisées pour la mesure de :

- vitesse dans la région près de la sortie du brûleur par PIV "classique",
- température locale par thermocouple à fil fin,
- vitesse dans un grand champ de mesure après développement de la technique de PIV endoscopique,
- concentrations locales d'espèces stables par sondes de prélèvement.

L'analyse de cette dernière campagne de mesures locales a mise en évidence dans la zone de recirculation externe en dehors de la zone centrale des jets, des concentrations différentes des compositions théoriques attendues correspondantes aux produits de combustion. Plusieurs réétalonnages et vérifications ont alors été réalisés, qui ont montré que cette différence devait être attribuée à des entrées d'air dans la chambre de combustion. La présence de ces entrées d'air parasites a été confirmée par des mesures de pression réalisées à trois hauteurs :  $y=80$ , 380 et 780mm, à l'aide d'un micro manomètre numérique FCO 12 (Funness Controls Limited) permettant de mesurer des écarts de pression jusqu'à  $\Delta P=199.9$  mm H<sub>2</sub>O. Les résultats sont synthétisés Tableau 11.

Cas test Hauteur	F0	F1	F2
<b>Y=080 mm</b>	-2.25 < $\Delta P$ <-1.47 Pa	-0.29 < $\Delta P$ < -0.39 Pa	1.47 < $\Delta P$ < 1.86 Pa
<b>Y=380 mm</b>	0.69 < $\Delta P$ < 0.98 Pa	2.25 < $\Delta P$ < 2.54 Pa	4.01 < $\Delta P$ < 4.31 Pa
<b>Y=780 mm</b>	3.33 < $\Delta P$ < 3.62 Pa	4.80 < $\Delta P$ < 4.99 Pa	6.17 < $\Delta P$ < 6.66 Pa

Tableau 11 Pression dans le FOUR, pour les cas F0, F1 et F2, en fonction de la hauteur.

Ainsi, malgré les petites dimensions de la section de sortie (50 x 50 mm<sup>2</sup>), le four est en dépression sur sa partie basse pour les cas F0 et F1, induisant des entrées d'air. Des mesures de traçage de fuites par Hélium ont montré que ces entrées d'air provenaient principalement des blocs modulaires placés en bas du four. Cette dépression est due aux très fortes impulsions des jets en sortie de brûleur. L'arrivée d'air parasite est plus faible pour le cas sans préchauffage de l'air F1, puisque la dépression induite par le jet d'air d'impulsion inférieure, est moindre. Pour le cas F2, le débit total est plus important, la pression augmente au sein du four mais reste insuffisante pour empêcher complètement les infiltrations d'air.

Depuis la mise en évidence de ces entrées d'air, un système de régulation de la pression du four a été installé. Il est constitué d'un registre mobile en réfractaire qui vient obstruer plus ou moins la section de sortie. Dans ces conditions, on assure une surpression suffisante à l'intérieur de l'enceinte pour éviter les entrées d'air parasites. Au niveau du premier accès de mesure,  $y=80$ mm, la pression dans l'enceinte devient alors 34 Pa pour F0, 38 Pa pour F1 et 49 Pa pour F2. Les résultats obtenus en surpression sont résumés Tableau 12. Les mesures sont cette fois très proches des concentrations théoriques. Les écarts observés sont en dessous des incertitudes de la baie d'analyse et des débitmètres. A titre d'exemple, l'écart le plus grand pour la concentration d'oxygène mesuré pour le cas F1 correspond à un écart de 2% sur le débit de méthane ou le débit d'air.

	O <sub>2</sub> (%vol)	CO <sub>2</sub> (%vol)	O <sub>2</sub> théorique (%)	CO <sub>2</sub> théorique (%)
F0	3.7	9.4	3.5	9.8
F1	3.9	9.2	3.5	9.8
F2	9.3	6.3	9.4	6.5

Tableau 12 Concentrations en O<sub>2</sub> dans les fumées pour les 3 cas étudiés, FOUR en surpression.

La comparaison des concentrations mesurées avec et sans dépression permet d'estimer la part des entrées d'air dans les conditions opératoires pour les trois cas-tests dans lesquelles les mesures détaillées ont été réalisées. Elle est de l'ordre de 8 % pour F0, 3 % pour F1 et 3 % pour F2. La Figure 102 présente les images moyennes de chimiluminescence OH\* obtenues avec et sans dépression dans le four avec deux caméras intensifiées et des filtres différents.

La différence de niveaux entre les deux séries d'images provient principalement d'un endommagement prononcé du filtre utilisé. On peut toutefois observer que les structures des zones de réaction ne sont pas modifiées. Avec et sans dépression dans le four, la zone de réaction principale se stabilise dans la couche de mélange des jets de réactifs, dès le point de fusion des jets pour le cas avec air préchauffé et beaucoup plus en aval sans préchauffage de l'air. Même si les entrées d'air sur le bas du FOUR pourraient favoriser la présence de la flamme de diffusion autour des jets de méthane, on voit que celle-ci est toujours présente pour les cas F0 et F2 en surpression. Ainsi même si il est difficile de déterminer précisément les quantités d'air supplémentaires dues à la dépression dans le four lors des mesures détaillées, les trois cas-tests sélectionnés restent représentatifs des conditions nominales et des limites du régime de combustion sans flamme obtenu avec un brûleur régénératif dans un four à haute température. L'analyse des résultats obtenus permet notamment de mettre en évidence les phénomènes physico-chimiques pilotant ce régime de combustion particulier.

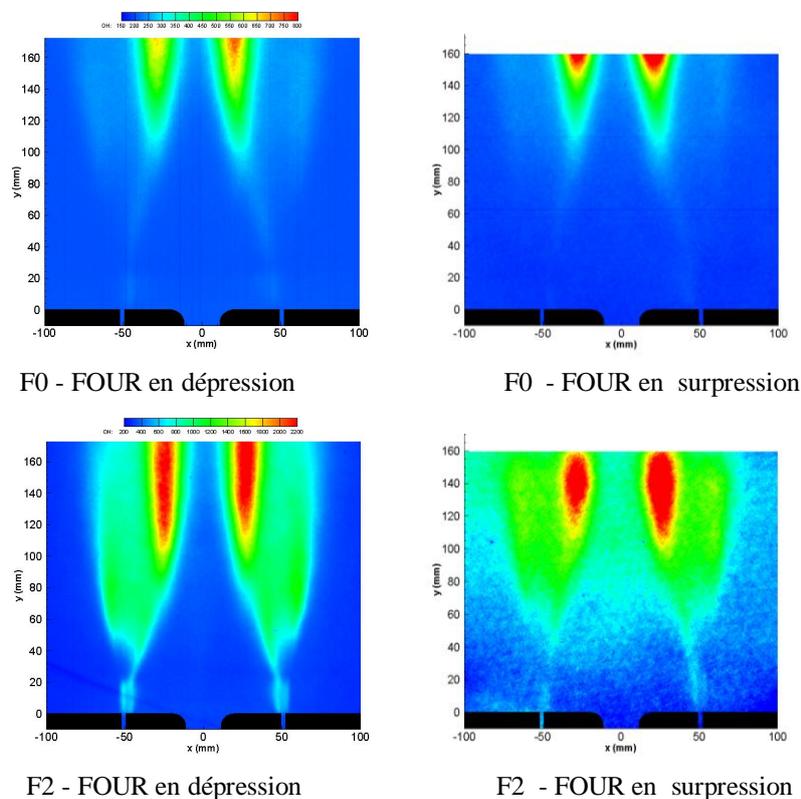


Figure 102 Imagerie moyenne de chimiluminescence de OH\*, cas F0 et F2, FOUR en dépression (à gauche) et en surpression (à droite).

### IV.3- Caractéristiques aérodynamiques de l'écoulement

L'étude globale de l'aérodynamique d'un injecteur, ou d'un brûleur, est nécessaire à la compréhension de son fonctionnement en combustion et plus particulièrement à la compréhension des phénomènes d'interaction entre la flamme et la turbulence.

#### *Les différentes zones de l'écoulement issu de jets multiples*

Dans le cas d'écoulements issus de jets multiples, il est possible de décrire l'écoulement global à travers trois zones indépendantes de la géométrie des injecteurs (Lin et Sheu-1991). Plus récemment, Grandmaison et Yimer, en s'appuyant sur les travaux de Becker et Booth, définissent les caractéristiques de deux jets d'impulsion différente (Grandmaison et Yimer-1998, Becker et Booth-1975). Le jet de combustible (« Weak Jet ») possède une impulsion très inférieure à celle du jet d'oxydant (« Strong Jet »), ces jets débouchent dans une atmosphère de produits de combustion chauds au repos.

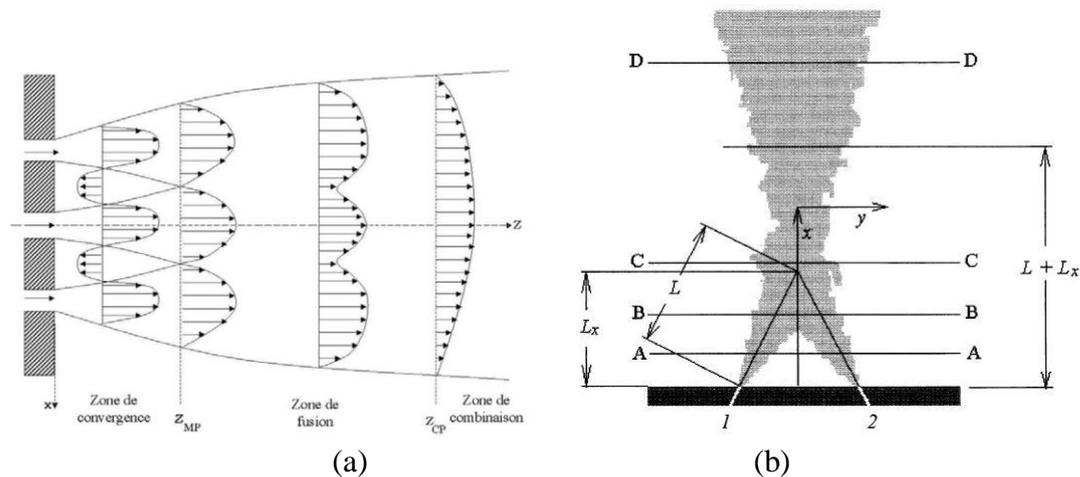


Figure 103 Les trois zones d'un écoulement (a) issu d'un jet triple (d'après Lin et Sheu-1991), (b) issu d'un jet double, la section A-A est la zone 1, la section B-B est le début de la zone 2, la section C-C est le milieu de la zone 2 et la section D-D représente la zone 3 (Becker et Booth-1975).

Lin et Sheu définissent alors trois zones : la zone de convergence, la zone de fusion et la zone de combinaison que Grandmaison et al appellent respectivement « pre-encounter zone », « two-jet mixing zone » et « dilution zone » (Figure 103).

- La « zone de convergence » correspond à la zone dans laquelle, les jets entraînent seulement les produits de combustion, aucune interaction entre eux n'existe. Ils peuvent être considérés comme des jets indépendants.
- La deuxième zone appelée « zone de fusion » est la zone dans laquelle les jets interagissent entre eux. Dans cette zone, ils se mélangent et entraînent aussi les produits de combustion. Dans cette zone, fortement intermittente, les profils des différentes quantités, initialement séparés, fusionnent jusqu'à ce que la valeur maximale du profil soit située le long de l'axe principal. Les profils peuvent alors admettre plusieurs maxima et minima.

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

- Enfin dans la dernière zone dénommée « zone de combinaison », le profil s'uniformise doucement pour ressembler à un profil de type jet simple. Les caractéristiques de l'écoulement seront alors celles d'un jet simple. L'écoulement peut être considéré comme un jet unique, dans lequel l'air et le combustible sont complètement mélangés, qui continue à entraîner et à se mélanger avec les produits de combustion.

Ces trois zones observables pour tous les jets multiples seront plus ou moins modifiées selon les configurations d'injections.

Nous avons voulu savoir si, dans notre configuration de brûleur à trois injections séparées, l'écoulement évoluait selon les trois zones décrites précédemment.

La Figure 104 et la Figure 105 présentent le champ de vitesse axiale et les lignes de courant, dans le cas des mesures de PIV classique et endoscopique pour les trois cas étudiés.

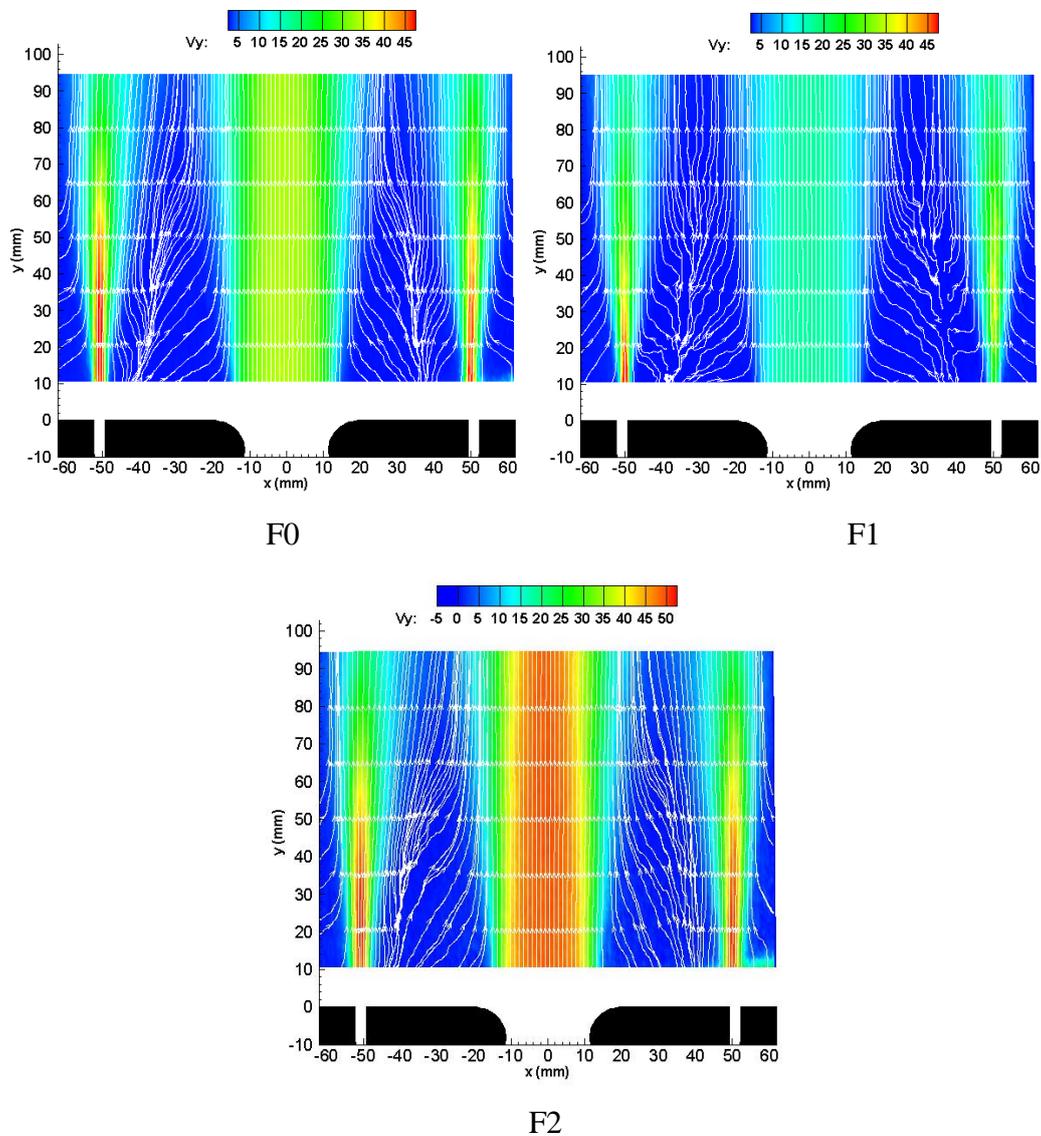


Figure 104 Champs de vecteur vitesse axiale et lignes de courant PIV classique.

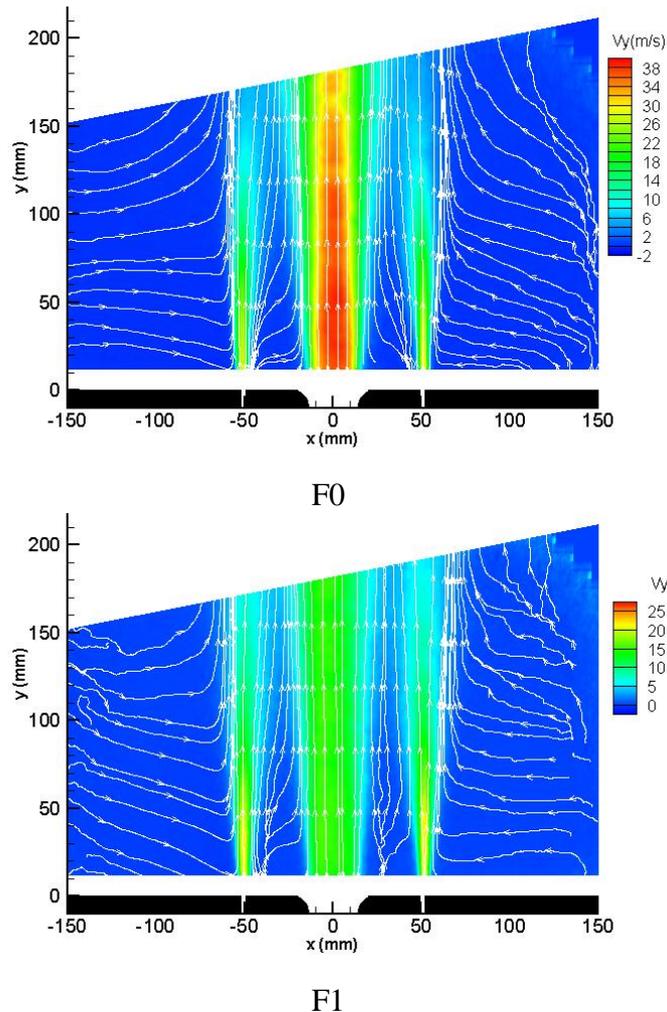


Figure 105 Champs de vecteur vitesse axiale et lignes de courant PIV endoscopique.

Quel que soit le cas, l'étude des lignes de courant montre que le fluide qui se situe entre les jets est entraîné par eux, c'est-à-dire qu'elle met en évidence l'entraînement des gaz brûlés qui recirculent à vitesse quasi nulle, par les jets.

La Figure 106 présente les profils transversaux de la vitesse axiale,  $V_y$  (m/s), pour différentes hauteurs en sortie de brûleur pour le cas F0 (les profils transversaux sont donnés en annexe 3). Avant  $y=70\text{mm}$ , on retrouve la zone de convergence des jets (§IV.3.2-) : trois jets entourés de fluide à vitesse nulle. A  $y=70\text{mm}$ , les jets commencent à interagir entre eux : la vitesse inter-jet n'est plus nulle. A  $y=90\text{mm}$ , dans la zone de fusion, les trois jets ne peuvent plus être considérés comme indépendants. Enfin, vers  $y=160\text{mm}$ , il devient presque impossible de distinguer les 3 jets les uns des autres: la zone de combinaison est quasiment atteinte.

Une même évolution est globalement observée pour le cas F1 (Figure 107) et le cas F2 (Figure 108). Pour le cas sans préchauffage de l'air, on remarque que les trois jets ne sont pas encore complètement combinés à  $y=160\text{mm}$ . La zone de fusion s'étend un peu plus du fait de la moindre impulsion du jet d'air non préchauffé.

## IV. La combustion sans flamme au méthane

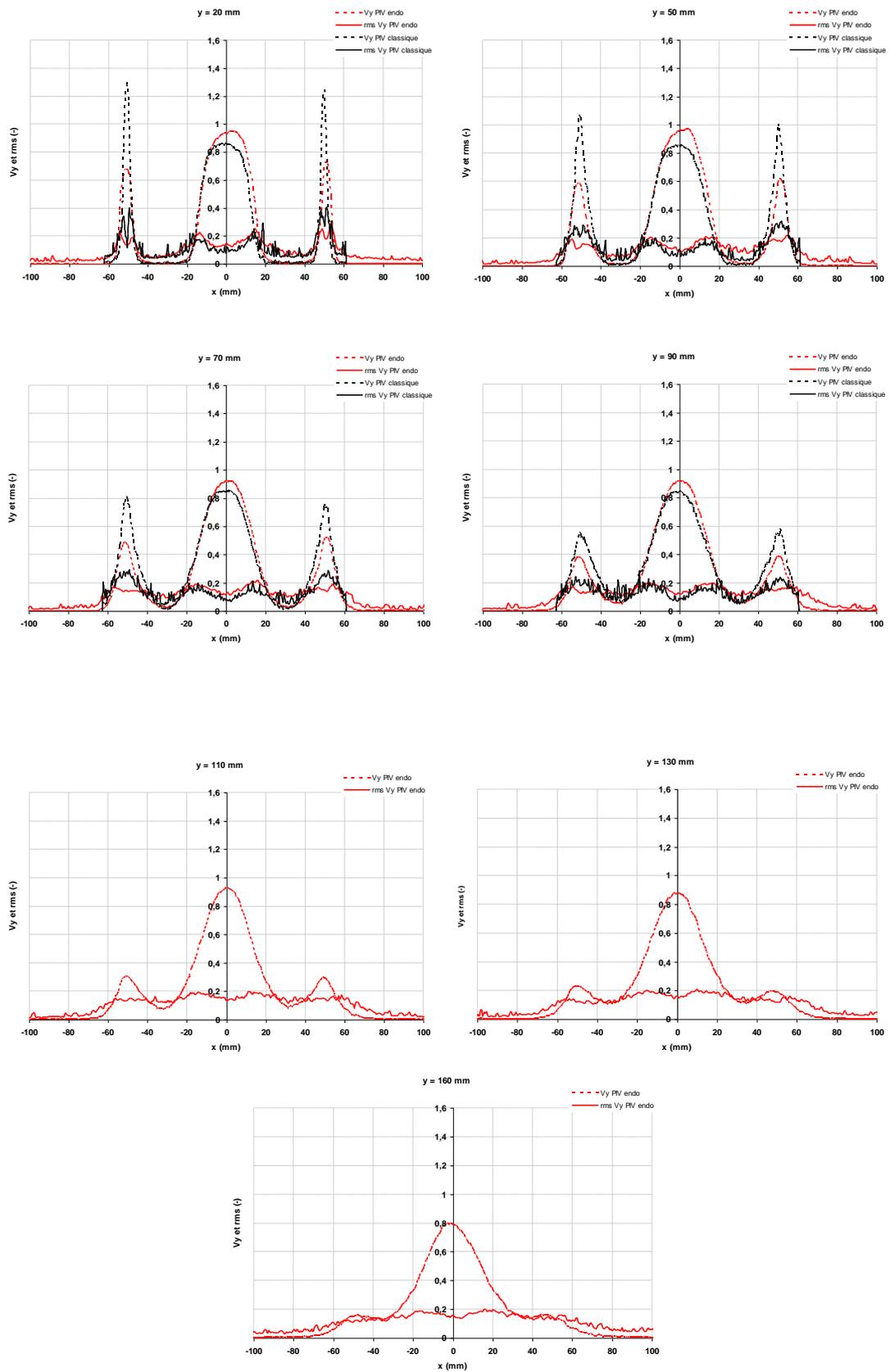


Figure 106 Profils de vitesse axiale adimensionnée pour différentes hauteurs en sortie de brûleur, cas de référence (F0).

## IV. La combustion sans flamme au méthane

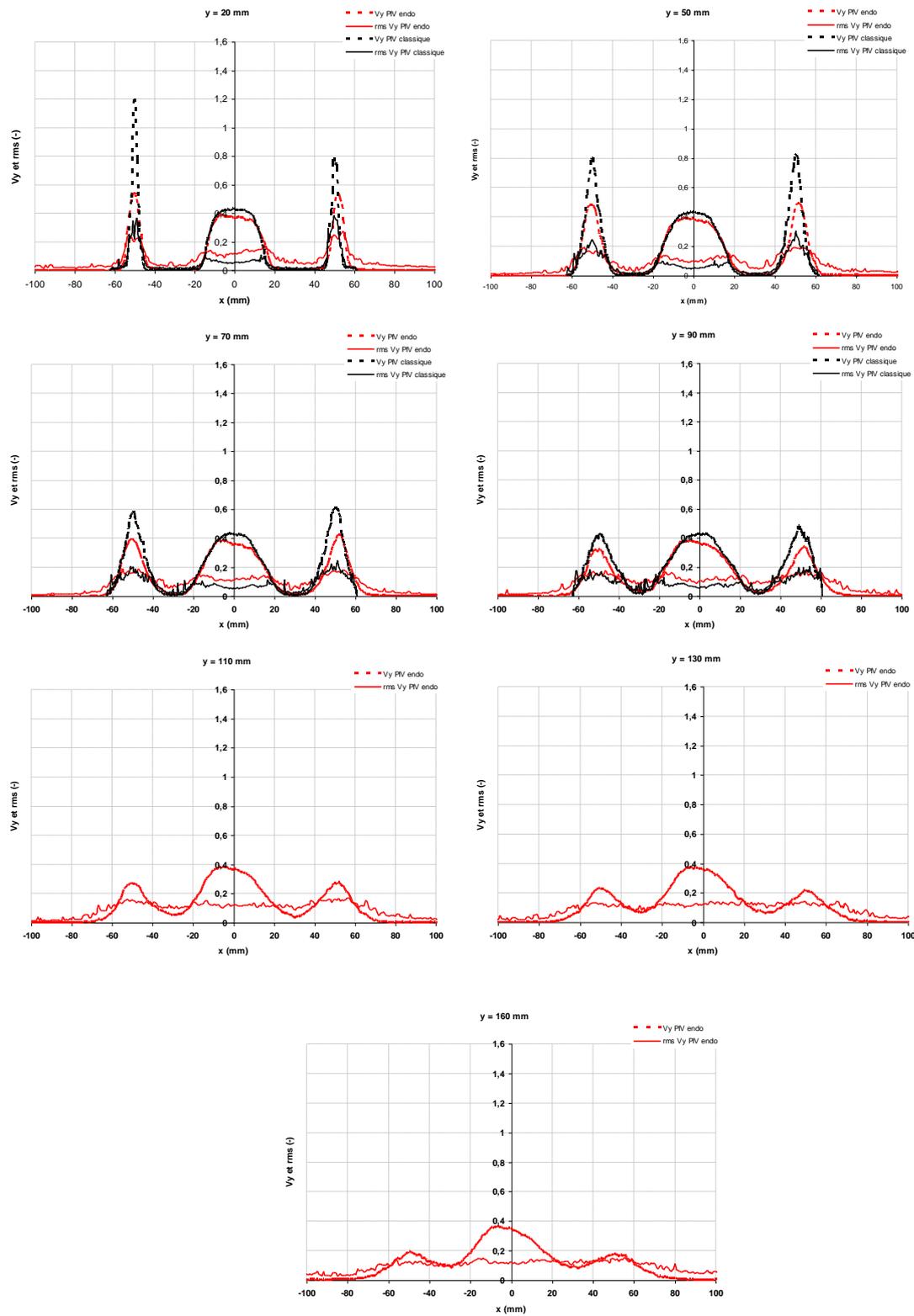


Figure 107 Profils de vitesse axiale adimensionnée à différentes hauteurs en sortie de brûleur pour le cas sans préchauffage de l'air (F1).

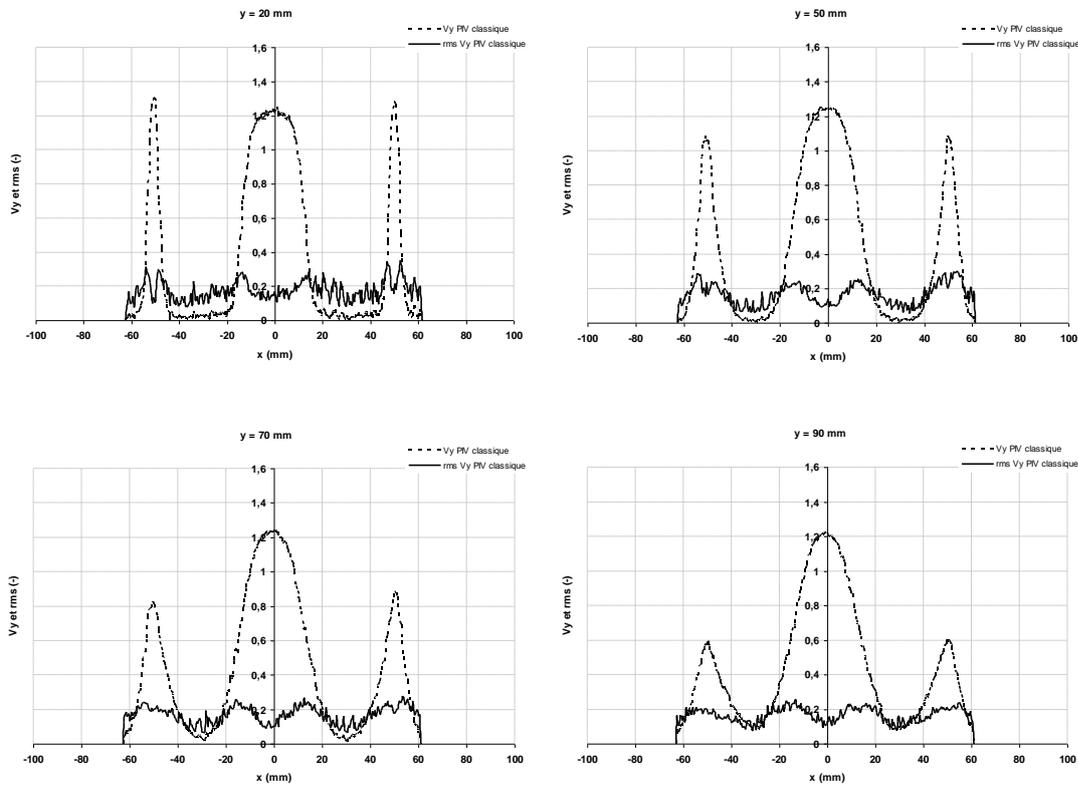


Figure 108 Profils de vitesse axiale adimensionnée, pour le cas avec un excès d'air  $\lambda=1.72$  (F2).

Pour le cas F2, à une hauteur comprise entre  $y=20$  et  $40$  mm, l'augmentation de la valeur de la vitesse au centre du jet de méthane provoque un étirement plus important qui éteint la flamme localement sur les bords externes des jets de méthane (cf. Figure 109).

Les profils transversaux de vitesse axiale (Figure 106 à Figure 108) permettent aussi de mettre en évidence la forte décroissance de la vitesse du jet de méthane à partir de  $y=40$ mm. Cette décroissance peut être observée grâce à l'étude du cône potentiel.

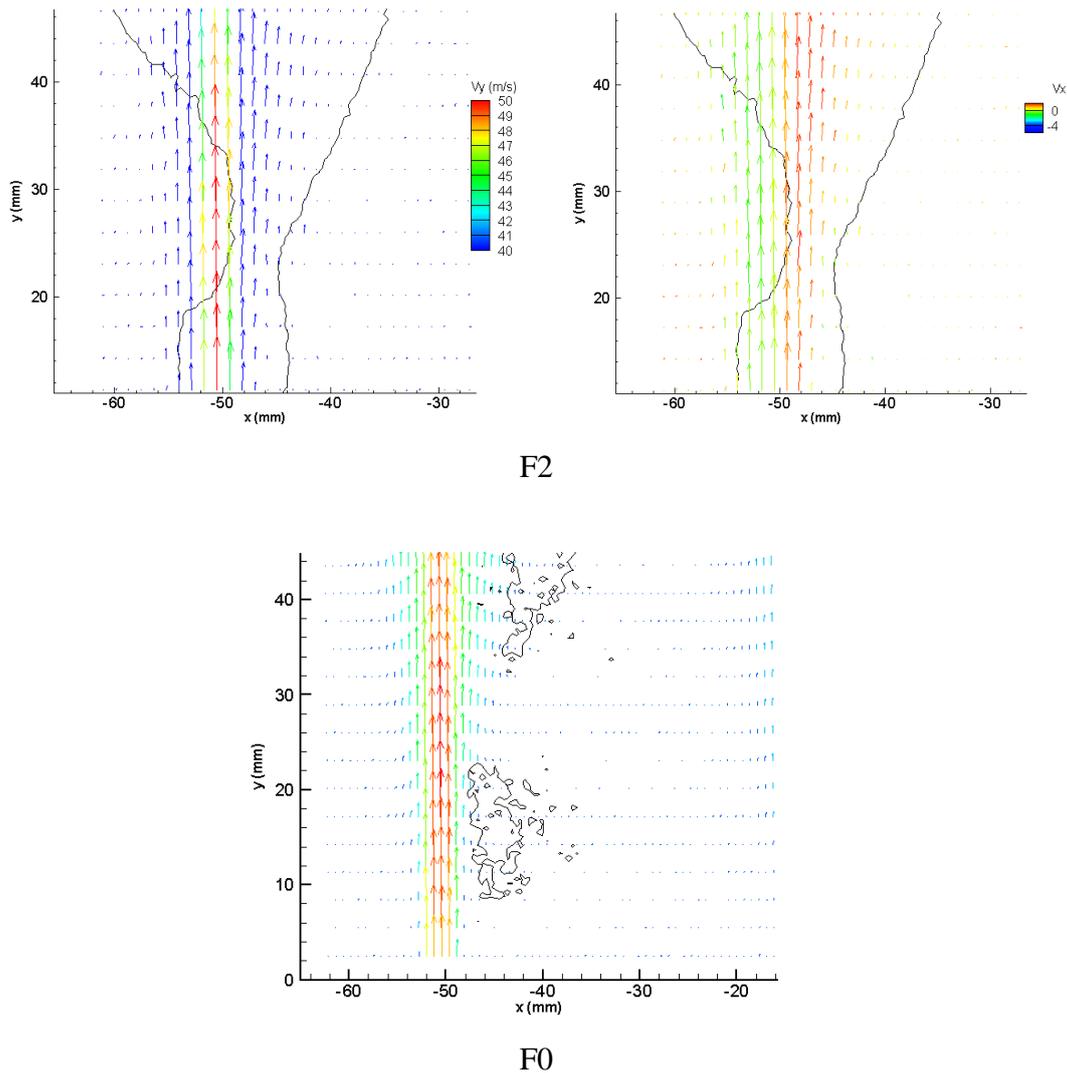


Figure 109 Superposition du champ de vitesse et de l'émission de chimiluminescence OH\*, cas F2, zoom sur l'extinction locale.

### IV.3.1- Cônes potentiels

La Figure 110 montre l'évolution de la vitesse axiale au centre du jet d'air pour les trois cas étudiés. On remarque que quelque soit le cas, la vitesse est constante jusqu'à une hauteur  $y=100\text{mm}$ . On se situe donc bien dans le cône potentiel du jet d'air.

Pour les deux cas avec préchauffage de l'air, la vitesse mesurée correspond à la vitesse théorique. Des mesures de vitesse réalisées sur les trois injecteurs, débitant de l'airensemencé non préchauffé (les parois du FOUR sont froides), et des simulations de l'écoulement non réactif dans l'installation du laboratoire (le jet d'air et les jets de méthane évoluent naturellement dans le four dont les parois sont à la température de 1300K) par GDF SUEZ avec le code CFX permettent de retrouver la vitesse théorique d'éjection du jet d'air. En revanche, en mode combustion sans flamme sans préchauffage de l'air, la vitesse réelle (17m/s) est plus importante que la vitesse théorique (14m/s, pour un débit d'air de  $23\text{m}^3(\text{n})/\text{h}$ ). Il est donc possible d'en conclure que la vitesse du jet d'air, dans le cas sans préchauffage,

correspond à un jet préchauffé à 85°C : le jet d'air peut être préchauffé à la traversée du réfractaire chaud.

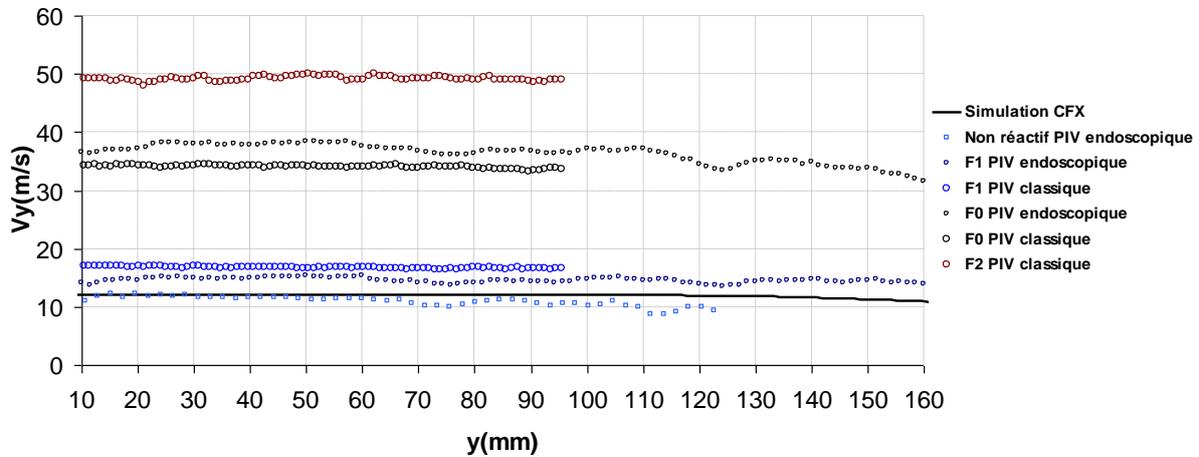


Figure 110 Vitesses axiales au centre du jet d'air pour les 3 cas étudiés.

La décroissance de la vitesse axiale au centre des jets de méthane montre que l'on ne se situe plus dans le cône potentiel du jet, et ce, quelque soit le cas étudié. En effet, la longueur

théorique du cône potentiel ( $Z_{cp}$ ) est  $\frac{Z_{cp}}{d_o} \approx 5.4 \sqrt{\frac{\rho_o}{\rho_e}}$  (Sautet-1992, Salentey-2002). Pour le jet

d'air non préchauffé, la longueur du cône potentiel est de 280mm, et lorsque l'on préchauffe le jet pour un débit constant, il diminue à 175mm. Expérimentalement, à partir d'une hauteur de 100mm, la vitesse au centre du jet d'air commence à décroître. Le raccourcissement de la longueur du cône potentiel est peut être due à de la forme divergente circulaire de la veine d'air, qui aurait tendance à ouvrir le jet de manière plus importante (Masson-2005). Ou alors, comme nous l'avons vu précédemment (Figure 95), à cette hauteur, nous observons le début d'interaction des jets, mais l'influence des jets de méthane sur le jet d'air étant suffisamment faible pour ne pas perturber le cône potentiel (Grandmaison-1998), le raccourcissement de ce dernier est la conséquence de la zone de combustion.

Le jet ne peut donc plus être considéré comme un jet libre non réactif. En effet, si l'on regarde le cas sans préchauffage de l'air, la vitesse axiale au centre du jet d'air est constante quelque soit la hauteur en sortie de brûleur. Ceci confirme bien l'hypothèse que c'est la présence de la zone de réaction qui modifie la longueur du cône potentiel pour les cas avec préchauffage de l'air et non pas l'interaction des jets.

La Figure 111 montre l'évolution de la vitesse axiale au centre du jet de méthane pour les trois cas étudiés. Il semble que la vitesse sur l'axe du jet augmente entre  $y=10$ mm et  $y=30$ mm environ. Pour le jet de méthane Est, du fait de l'inclinaison de la nappe laser, les mesures de vitesse ne sont valides qu'à partir de  $y=20$ mm.

Grâce à la PIV endoscopique, le domaine d'étude n'est plus restreint, en revanche, la résolution spatiale limite la précision des mesures. En effet, la résolution des jets de méthane est trop faible pour pouvoir mesurer correctement les valeurs des vecteurs vitesse dans les jets de combustible. La vitesse mesurée dans les jets de méthane est faible par rapport à la vitesse débitante théorique (39.4m/s pour F0), la résolution spatiale est probablement la principale cause. En effet, la taille de la fenêtre d'interrogation est de 2.86x5.7 mm<sup>2</sup> et l'épaisseur de la nappe laser de l'ordre de 1mm, alors que le diamètre du jet de méthane est de 3 mm. Les

mesures de vitesse par PIV endoscopique ne permettent pas de déterminer avec précision la vitesse au centre des jets de méthane puisque lors du calcul de corrélation, la fenêtre d'analyse englobe non seulement le jet de méthane, mais une partie des gaz brûlés environnant.

L'augmentation de la vitesse sur l'axe du jet de méthane en sortie de brûleur traduit une accélération du jet qui est probablement due à une diminution de la masse volumique du jet par préchauffage à la traversée de la céramique chaude du brûleur, mais aussi au contact des gaz brûlés environnant (cf. Figure 111). De plus, pour les cas avec préchauffage de l'air, F0 et F2, la présence de la flamme de diffusion autour des jets de combustible interagit avec le développement du jet. Le même comportement peut être observé à partir des mesures de vitesse par PIV endoscopique

De ce fait, la longueur expérimentale du cône potentiel pour le jet de méthane est difficile à estimer : en effet, en tenant compte de la masse volumique du jet ( $\rho=0.66 \text{ kg/m}^3$ ) et de la masse volumique du fluide environnant pris comme des gaz brûlés à la température de  $1050^\circ\text{C}$  ( $\rho=0.26 \text{ kg/m}^3$ ), la longueur théorique du cône potentiel est estimée à 26 mm, or le domaine d'étude débute seulement à  $y=10\text{mm}$ . Cependant, les mesures de vitesse axiale sur l'axe des jets de méthane, obtenues par PIV endoscopique (Figure 112) montre la même évolution. Il semble donc que le cône potentiel disparaisse à cause du préchauffage des jets de combustible à la traversée du réfractaire chaud.

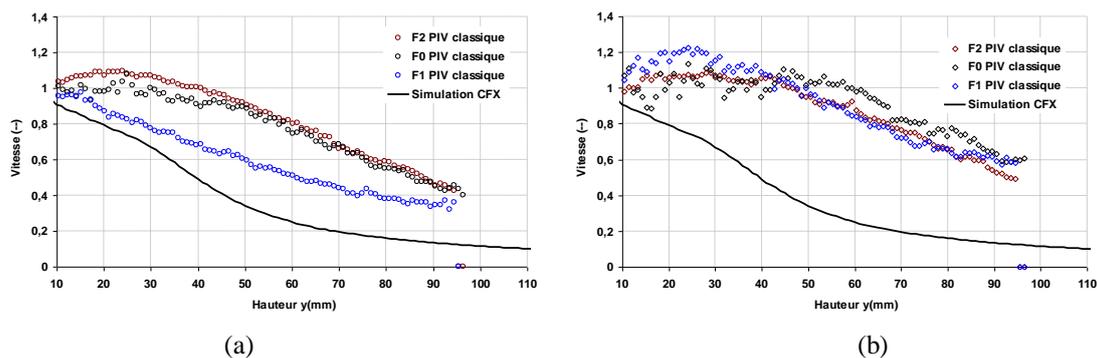


Figure 111 Vitesses axiales adimensionnées au centre des jets de combustible pour les 3 cas étudiés, (a) jet de méthane « Ouest », (b) jet de méthane « Est », PIV classique.

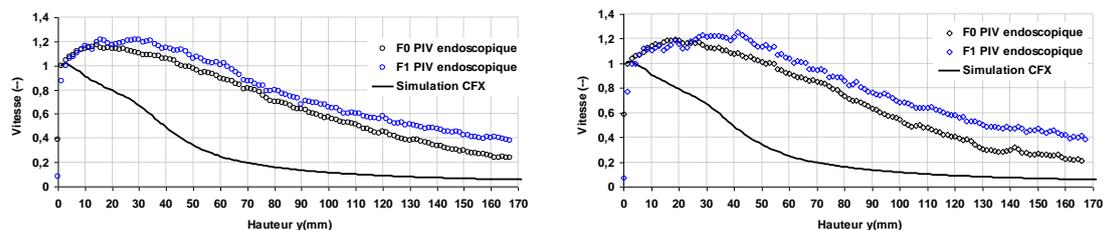


Figure 112 Vitesses axiales adimensionnées au centre des jets de combustible pour les cas F0 et F1, (a) jet de méthane « Ouest », (b) jet de méthane « Est », PIV endoscopique.

Les cartographies d'écart-type (rms) des grandeurs axiales et transversales sont présentées de la Figure 113 à la Figure 116. Elles permettent aussi de délimiter la position des bords de jet. En effet, les couches de mélange des jets sont définies par des zones de fortes fluctuations.

Pour les mesures de PIV endoscopique, les cartographies de rms suivant  $V_y$  et  $V_x$  (Figure 114 et Figure 116) présentent des valeurs élevées sur toute la hauteur du four, à partir de  $x=125 \text{ mm}$ . Ces fluctuations proviennent de la variation de l'épaisseur de la nappe laser dont le point de focalisation se situe après les jets dans cette région.

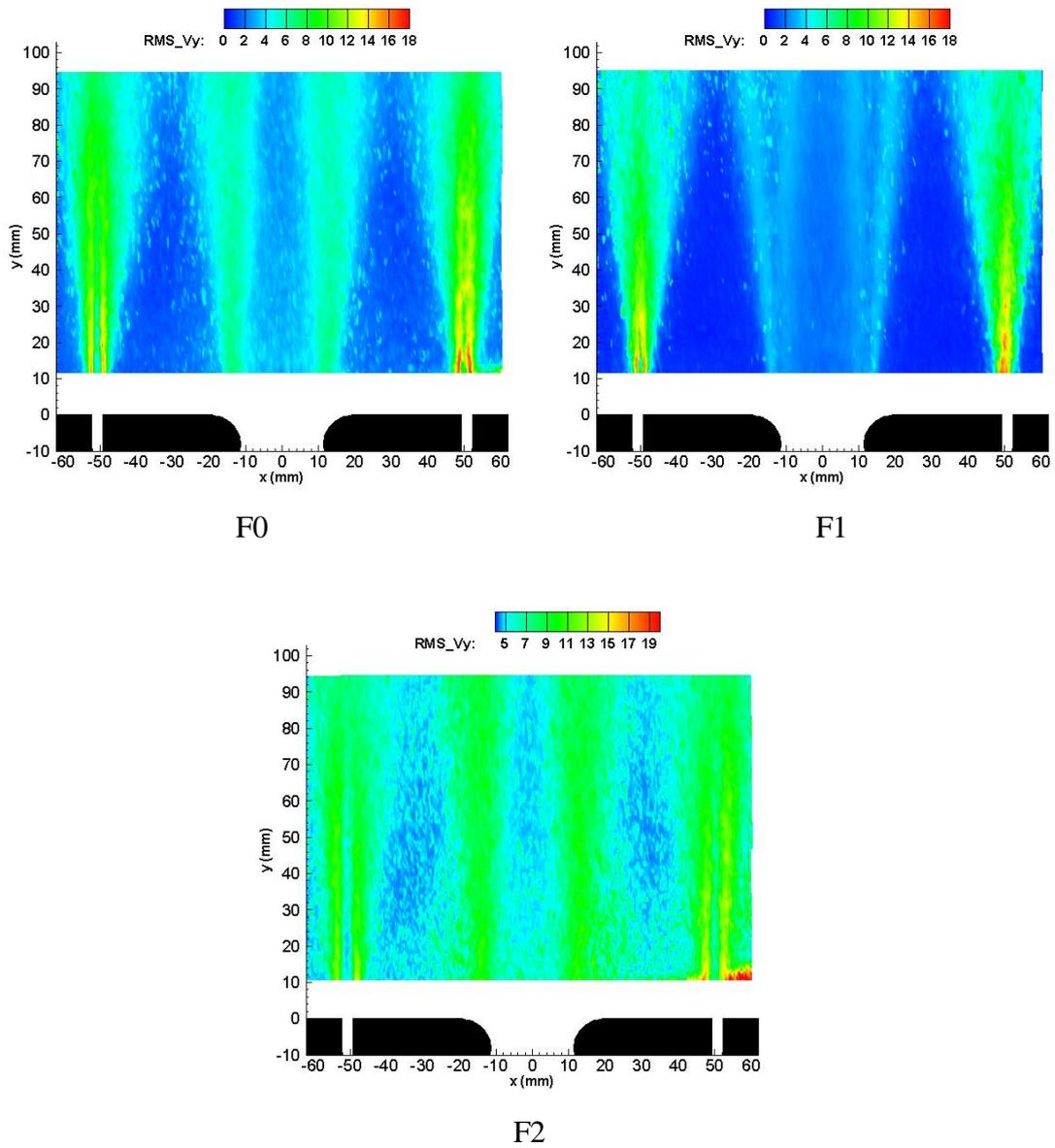


Figure 113 Champ d'écart type de la composante axiale de vitesses obtenus à l'aide de la PIV classique, rms  $V_y$  en m/s.

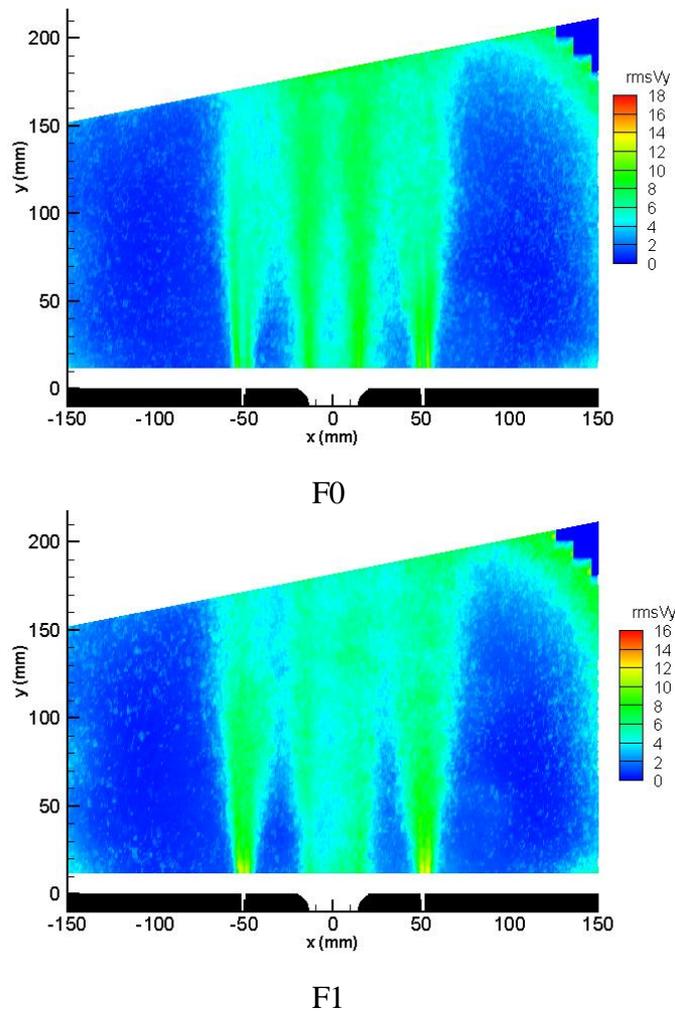


Figure 114 Champ d'écart type de la composante transversale de vitesses obtenus à l'aide de la PIV endoscopique, rms  $V_y$  en m/s.

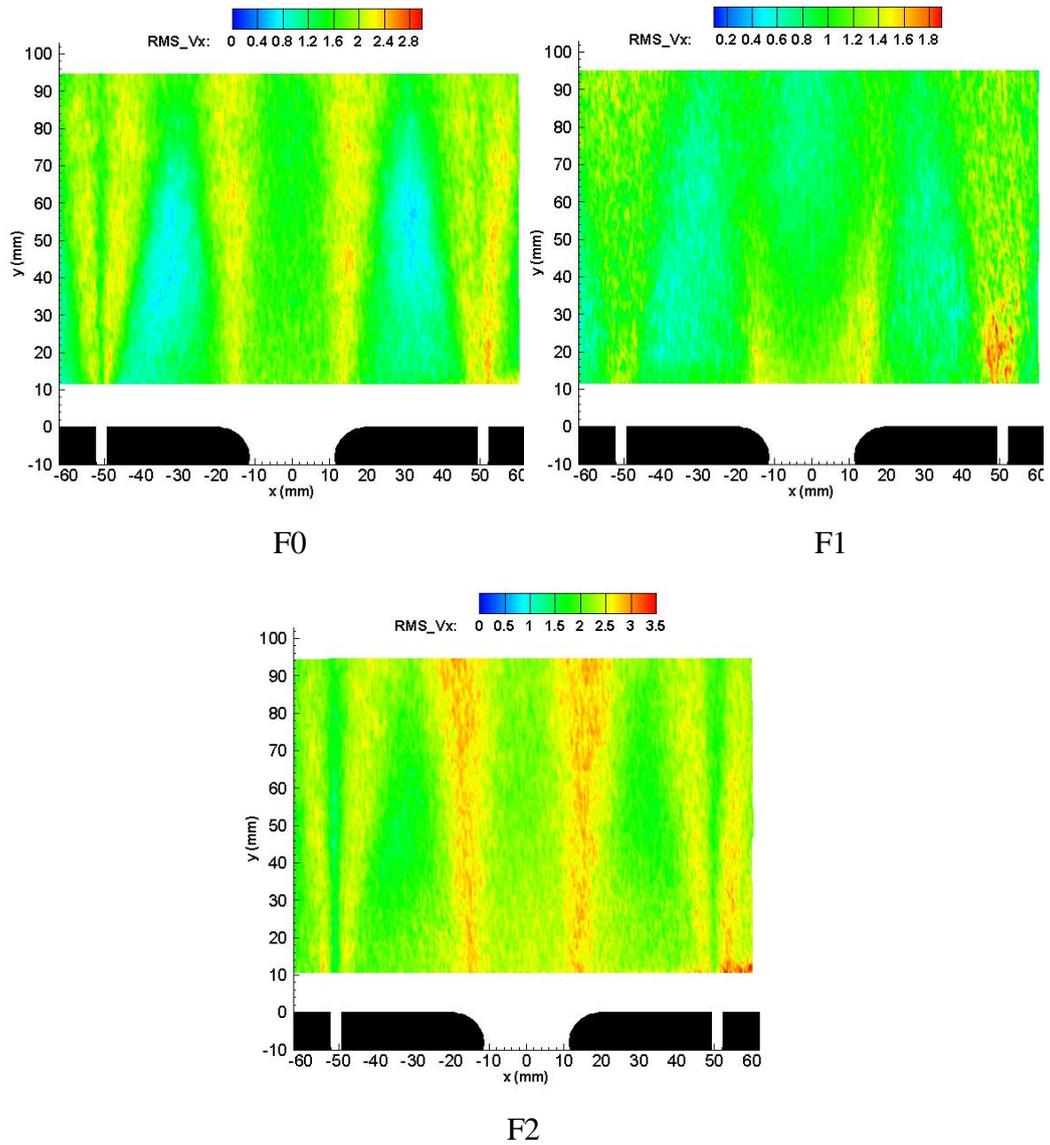


Figure 115 Champ d'écart type de la composante transversale de vitesses obtenus à l'aide de la PIV classique, rms  $V_x$  en m/s.

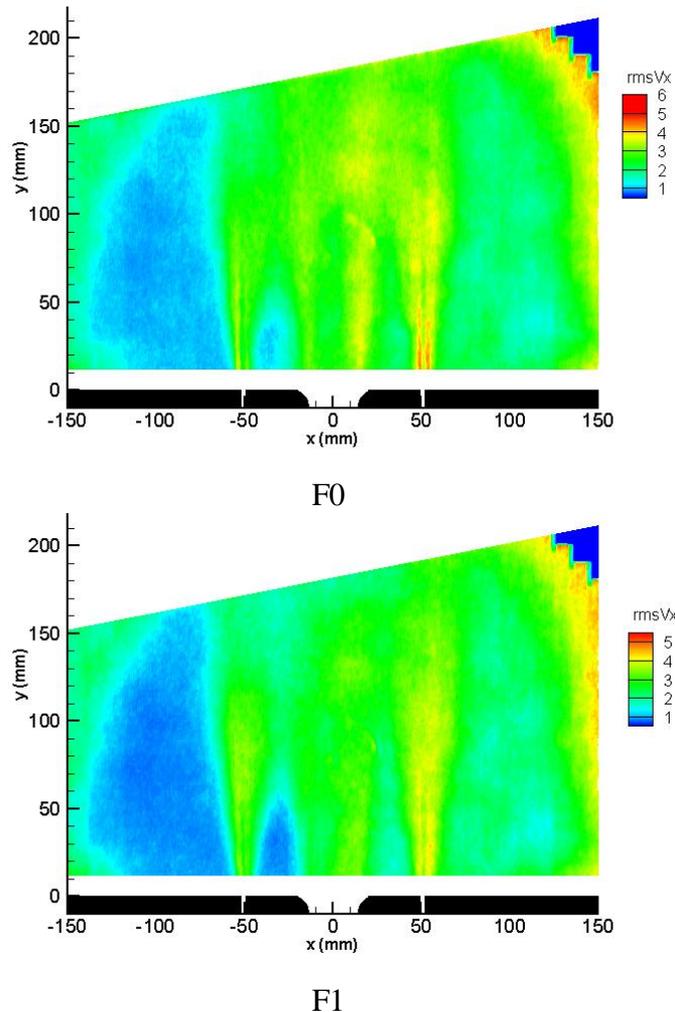


Figure 116 Champ d'écart type de la composante transversale de vitesses obtenus à l'aide de la PIV endoscopique, rms  $V_x$  en m/s.

### IV.3.2- Point de fusion, origine virtuelle et ouverture des jets

#### *Détermination théorique du point de fusion*

Théoriquement, il est possible d'estimer la position des points de fusion et de l'origine virtuelle des jets, à partir de la droite définissant l'ouverture d'un jet libre turbulent.

La Figure 117 représente deux jets, de diamètres différents, séparés d'une distance  $d$ . Dans le cas de l'installation du laboratoire, ces jets peuvent être considérés comme la représentation graphique du jet d'air et du jet de méthane, où,  $D_a$  est le diamètre d'injection de l'air ( $D_a=25\text{mm}$ ),  $D_g$  le diamètre d'injection du méthane ( $D_g=3\text{mm}$ ) et  $d$  la distance séparant les axes des deux injections ( $d=50.7\text{mm}$ ).

La droite passant par B1B2 définit l'ouverture du jet de méthane, et la droite A1A2 l'ouverture du jet d'air. Ces deux droites se coupent en un point  $(x^*, y^*)$  qui représente le point de fusion théorique des deux jets libres.

Les points A1 et B1 représentent respectivement l'origine virtuelle du jet d'air et du jet de méthane. Ils sont situés sur l'axe du jet en amont de la sortie de l'injection à une distance de 3 diamètres. Un jet dont l'ouverture est définie par la droite passant par l'origine virtuelle et le bord de l'injecteur possède un demi-angle d'ouverture de  $9.5^\circ$  (Beer et Chigier-1972, Monnot-1978).

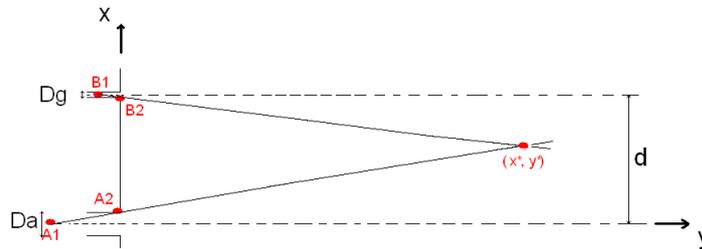


Figure 117 Schéma de la position théorique du point de fusion.

Un calcul rapide nous permet d'obtenir la position théorique de ces 3 points. On considère le jet d'air comme ayant un diamètre de 25mm sans divergent. Son origine virtuelle se situe à une hauteur de  $y=-75\text{mm}$ . L'origine virtuelle du jet de méthane est à  $y=-9\text{mm}$ . Enfin, le point de fusion des jets d'air et de méthane est localisé au point  $x^*=30.9\text{mm}$ ,  $y^*=110.1\text{mm}$ . La forme divergente circulaire d'un injecteur peut entraîner un décalage de l'origine fictive (Masson-2005). En effet, les simulations de l'écoulement non réactif réalisées par Masson avec Fluent, montrent que le diamètre apparent de l'injecteur semble plus grand lorsqu'il est pourvu d'un congé ( $\varnothing_{\text{apparent}}=37.5\text{ mm}$ ). C'est-à-dire que le jet s'ouvre plus rapidement et le point de fusion est décalé vers l'amont ( $y^*=91.35\text{mm}$ ).

### ***Détermination expérimentale du point de fusion***

On cherche à définir les points de fusion et l'origine virtuelle du jet d'air à partir du champ moyen de vitesse et à étudier leurs évolutions pour les 3 cas étudiés.

Les points de fusion sont définis par l'intersection de l'ouverture du jet d'air et du jet de méthane. Pour chaque jet, on trace les droites représentatives de cette ouverture. Ces droites sont réalisées par interpolation linéaire des points expérimentaux.

L'origine virtuelle du jet est, quant à elle, définie par le point de croisement des deux lignes délimitant l'ouverture du jet.

La question se pose de savoir où fixer la limite d'un bord de jet.

Lorsque l'on prend comme définition de l'ouverture du jet la droite pour laquelle  $U_y/U_{y0}=0.1$ , alors l'ouverture expérimentale du jet d'air est légèrement plus faible que l'ouverture théorique. De plus, dans ce cas, l'angle total d'ouverture du jet d'air est de seulement  $15^\circ$ . Cependant, si l'on prend comme définition  $U_y/U_{y0}=0.05$ , alors on trouve que l'ouverture expérimentale est plus légèrement plus grande que l'ouverture théorique. De plus, dans ce cas là, on trouve que l'origine fictive se trouve à  $-3.35D$  environ, et l'angle d'ouverture du jet est de  $19^\circ$ . Ces résultats sont en concordance avec les résultats de Masson (2005), et de Yimer et al qui montrent que l'origine virtuelle se situe entre 2 et 4 diamètres (Yimer-1996). Par la suite, on prendra donc le bord de jet comme étant défini par les droites  $U_y/U_{y0}=0.05$ .

La Figure 118 présente les champs de vitesse axiale obtenus pour les trois cas étudiés. L'ouverture théorique des jets est tracée en blanc, tandis que l'ouverture réelle est en noire.

L'ouverture réelle est définie par la distance au centre du brûleur pour laquelle la vitesse ne représente plus que 5% de la vitesse sur l'axe.

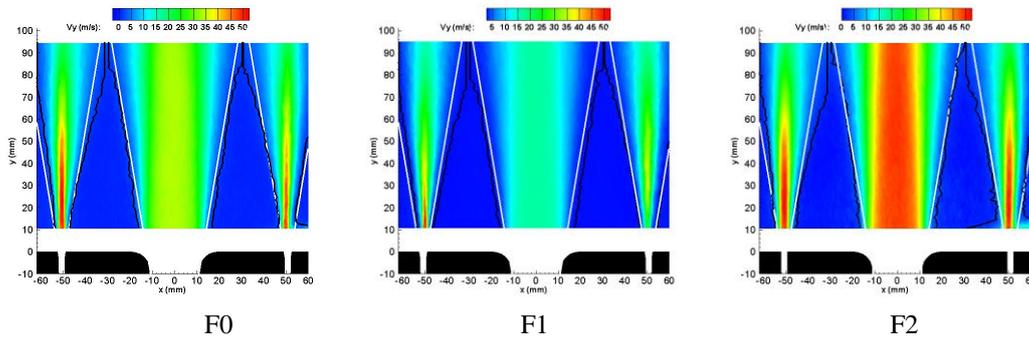


Figure 118 Ouverture réelle et ouverture théorique des jets pour les trois cas étudiés.

Le jet d'air expérimental est un peu plus ouvert que le jet d'air théorique. Cet effet est dû à la forme divergente de la veine d'air. Cependant, malgré le fait que le rapport d'échelle ait été conservé entre l'installation du laboratoire et l'installation semi-industrielle de GDF SUEZ, le faible rayon du divergent ( $R=11\text{mm}$ ) a un effet moindre sur l'ouverture du jet d'air que le congé présent sur le brûleur NFK d'origine.

Le jet de méthane n'est pas symétrique. La partie du jet qui est en contact avec les recirculations externes s'ouvre telle que la théorie du jet libre le prédit. En revanche, le demi-jet de méthane côté jet d'air s'ouvre rapidement à cause de l'entraînement par le jet d'air à grand diamètre et forte impulsion.

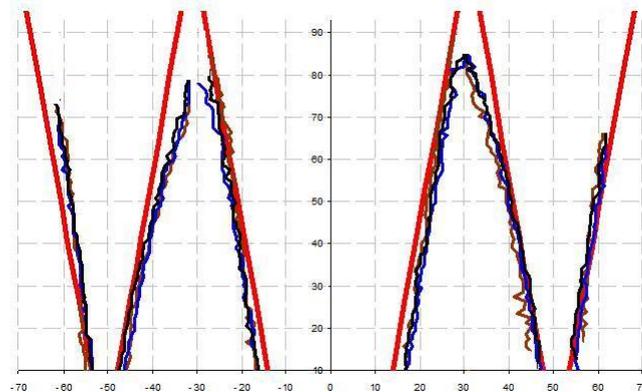


Figure 119 Ouverture réelle des jets, F0 (en noir), F1 (en bleu), F2 (en marron) et ouverture théorique (en rouge).

Les ouvertures réelles des jets, pour les trois cas étudiés sont données Figure 119. Elles se superposent parfaitement.

Ainsi, l'origine virtuelle du jet d'air et les points de mélange du jet d'air et des jets de méthane, dans la limite des conditions expérimentales de l'étude, semblent indépendants des conditions expérimentales et ne sont fonction que de la configuration du brûleur.

Le côté interne du jet de méthane s'ouvre plus qu'un jet libre à cause de la présence du jet d'air qui a tendance à l'entraîner. Yimer et Grandmaison ont déjà mis ce phénomène en évidence lors de l'étude de l'influence d'un jet de forte impulsion, « strong jet », se situant à côté d'un jet de diamètre et d'impulsion très inférieure, « weak jet » (Figure 120).

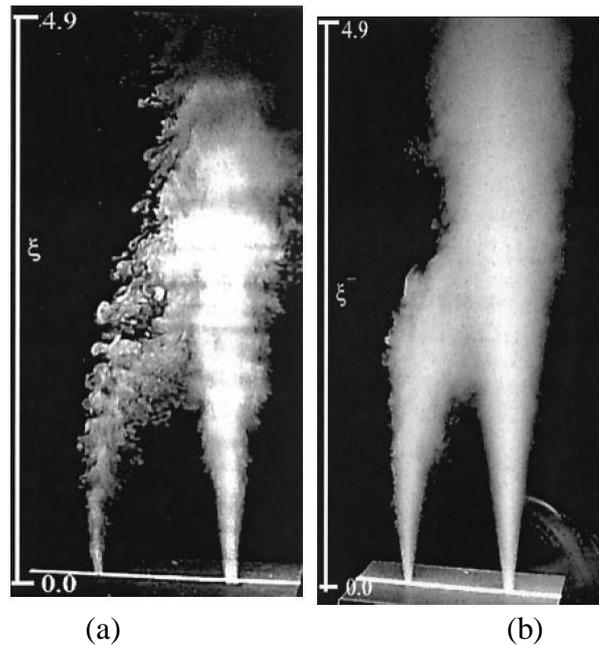


Figure 120 Interaction entre deux jets d'impulsion différentes, temps d'exposition (a) 2ms (b) 125ms (Yimer et Grandmaison-2001).

### Influence de la combustion sur la zone de fusion

Dans les cas avec préchauffage, l'impulsion du jet d'air est plus grande, il aura donc une influence plus importante sur la trajectoire des jets de méthane. Cependant, avant  $y=100\text{mm}$ , la position de leurs centres ne varie pas : la présence du jet d'air ne perturbe pas les jets de combustibles avant cette hauteur (Figure 121).

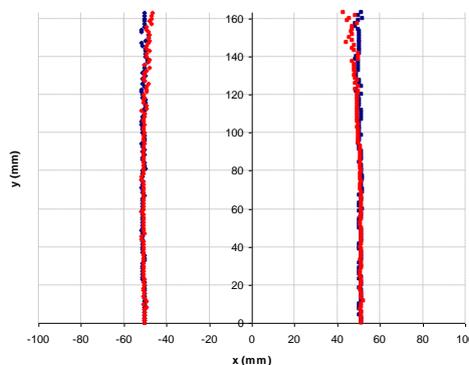


Figure 121 Position des centres des jets de méthane, F0 (en rouge) et F1 (en bleu) obtenus avec les champs de vitesse par PIV endoscopique.

Avant  $y=90\text{mm}$ , l'ouverture du jet de méthane n'est pas influencée par la présence du jet d'air. A partir de cette hauteur, le centre du jet de méthane est dévié vers le jet d'air du fait de la forte impulsion du jet d'air.

Pour les trois cas, avant  $70\text{mm}$ , les ouvertures des jets de méthane sont similaires entre elles et correspondent à l'ouverture théorique pour un jet libre. Pour les cas avec préchauffage de l'air nous avons vu qu'une réaction de combustion avait lieu entre les jets de méthane et les gaz brûlés environnant, le demi-angle d'ouverture devrait être réduit par rapport à celui d'un jet libre. En effet, de nombreux auteurs ont montré que lorsqu'une réaction avait lieu dans le jet, il entraînait moins les gaz environnant et donc il avait tendance à moins s'ouvrir (Ricou et

Spalding-1960, Becker et Yamazaki-1978, Han et Mungal-2001). Or nos mesures montrent que ce n'est pas le cas. La zone de combustion autour des jets de combustible est donc suffisamment faible pour ne pas perturber leurs trajectoires.

Les cartographies (Figure 105) et les profils de vitesse (Figure 106) montrent que la vitesse dans les gaz brûlés environnant (recirculations externes et fluide situé entre les jets) est quasiment nulle, ce qui permet de confirmer l'hypothèse de jets qui débouchent dans une atmosphère au repos.

Les jets de méthane et d'air sont donc entourés de gaz à vitesse très faible. De plus, ils ne commencent à interagir qu'à partir d'une hauteur proche de la position théorique du point de fusion. Enfin, la présence du jet d'air à forte impulsion influence peu la trajectoire du jet de méthane avant la hauteur  $y=100\text{mm}$ . L'air et le combustible pourraient donc être considérés comme des jets libres. Pour vérifier cette hypothèse, nous avons voulu savoir s'ils suivaient les propriétés de l'autosimilarité.

Les images de particules acquises par PIV « classique » sont spatialement 2 fois mieux résolues que celles obtenues par la PIV endoscopique. C'est pourquoi nous allons les utiliser en priorité pour déterminer les caractéristiques géométriques des jets dans la région, de  $120\text{mm}^2$  centrée sur l'injection d'air, avant la zone de réaction principale. Les champs de vitesse obtenus par PIV endoscopique, nous serviront pour appuyer nos constatations.

#### ***IV.3.3- Influence des vitesses sur la structure des jets***

Les profils d'auto similarité d'un jet sont obtenus par représentation graphique de  $\frac{U_y}{U_{y0}}$  en

fonction de  $\frac{X}{Y - Y_0}$  où  $U_y$  est la vitesse axiale,  $U_{y0}$  est la vitesse axiale sur l'axe du jet,

$Y_0$  est l'origine virtuelle du jet d'air,  $Y$  la hauteur à laquelle on trace le profil et  $X$  la distance au centre du jet (Pope-2000).

Pour un jet libre turbulent, les courbes  $\frac{U_y}{U_{y0}} = f\left(\frac{X}{Y - Y_0}\right)$  se superposent après le cône

potentiel du jet, ce qui correspond, pour notre configuration expérimentale, à une hauteur de  $175\text{mm}$  pour le jet d'air avec préchauffage,  $280\text{mm}$  pour le jet d'air sans préchauffage et  $26\text{mm}$  pour les jets de méthane.

La Figure 122 présente les courbes d'auto similarité du jet d'air pour les cas F0, F1 et F2.

Quelque soit le cas étudié, les courbes d'autosimilarité du jet d'air présentent un plateau pour lequel la vitesse est constante et égale à sa valeur initiale ( $U_y/U_{y0}=1$ ). Ce plateau montre la présence du cône potentiel que nous avons déjà mis en évidence au §IV.3.1-. Radialement, lorsque la distance au centre du brûleur augmente, on sort du cône potentiel ( $U_y/U_{y0}<1$ ), la vitesse décroît jusqu'à s'annuler en dehors du jet ( $U_y/U_{y0}=0$ ). La diminution de la largeur du plateau, avec l'augmentation de la distance axiale, traduit la forme conique de la zone potentielle.

A  $Y=70\text{mm}$ , on constate un retour à la similitude. C'est à dire que l'on a quasi superposition des courbes d'auto similarité même si le cœur potentiel n'est pas théoriquement fini et que la valeur sur l'axe reste effectivement constante (Figure 110).

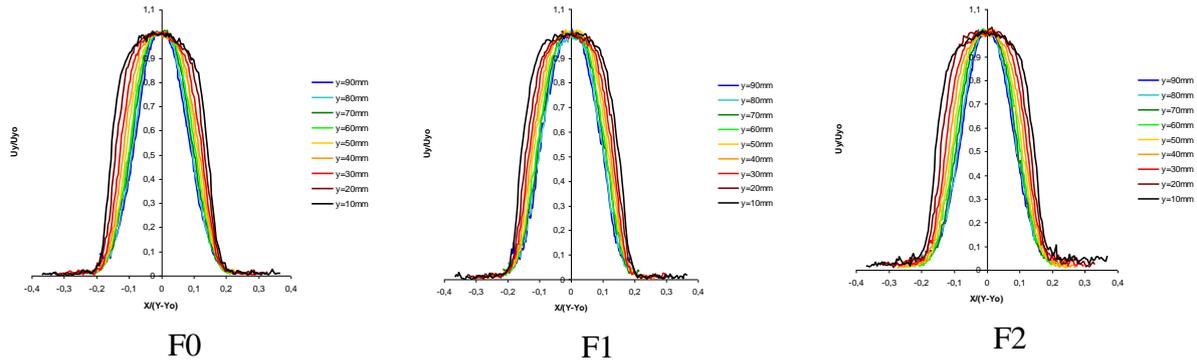


Figure 122 Recherche de similarité sur le jet d'air.

Sur la Figure 123, les courbes d'autosimilarité des 3 cas étudiés ont été superposées. A une hauteur donnée, les courbes se superposent parfaitement. L'évolution du jet ne dépend pas de la vitesse initiale mais seulement de la géométrie du brûleur.

***En sortie de brûleur, les conditions expérimentales n'influencent pas la structure du jet d'air.***

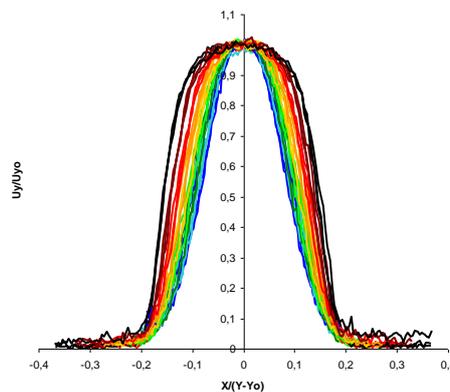


Figure 123 Superposition des profils de vitesse normalisée du jet d'air pour les 3 cas étudiés.

Sur la Figure 124 sont représentées les courbes d'autosimilarité du jet de méthane, chaque cas sur une figure, tandis que les profils de vitesse normalisée du jet de méthane pour les 3 cas étudiés sont présentés sur la même figure (Figure 125). Pour une hauteur donnée, et pour chacun des trois cas, les profils de vitesse sont tracés de la même couleur.

Pour le cas sans préchauffage de l'air (F1), sur la partie gauche du jet de méthane, en contact avec les gaz brûlés qui recirculent, on constate que, quelle que soit la hauteur (supérieure à 20mm) à laquelle on trace le profil de vitesse, les courbes sont superposées, ce qui correspond bien à la théorie d'un jet libre puisque les courbes se superposent au delà du cône potentiel. Pour la partie droite les profils se superposent moins, même après le cône potentiel. En effet, le jet d'air influence ce côté du jet de méthane qui ne se comporte alors plus comme un jet libre.

Pour les cas avec préchauffage de l'air, on retrouve cette même interaction entre la partie droite du jet de méthane et le jet d'air. En revanche, on constate sur la partie gauche que les courbes ne se superposent pas avant  $y=40\text{mm}$ . Une flamme de diffusion apparaît à cause de la présence d'oxygène dans les gaz recirculant. Cette flamme change donc les caractéristiques du jet de méthane qui ne peut plus être considéré comme un jet libre non réactif.

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

On remarque également que la flamme de diffusion autour des jets de méthane étant plus intense pour le cas F2 que pour le cas F0, son effet sur les profils de vitesse est plus important avant  $y=50\text{mm}$ .

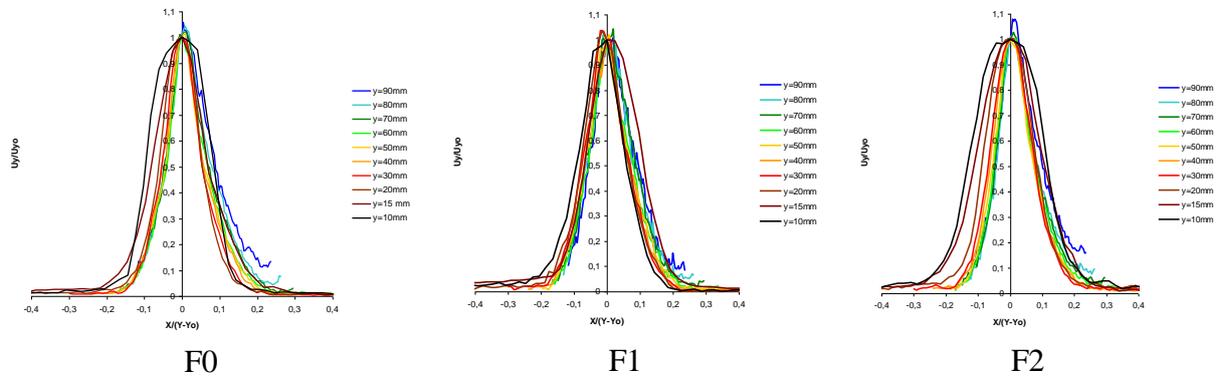


Figure 124 Recherche de similarité sur le jet de méthane.

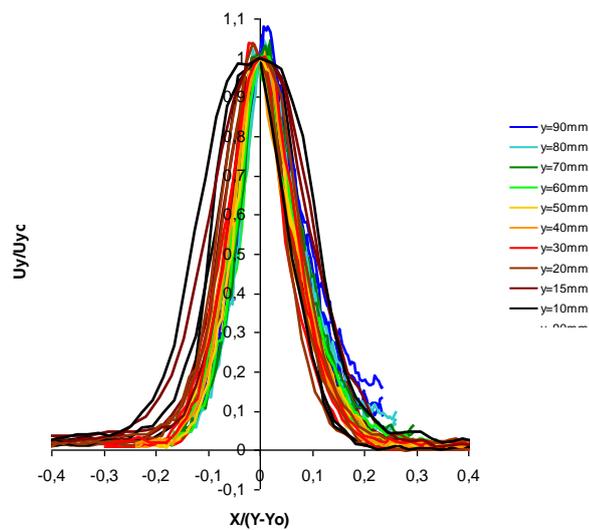


Figure 125 Superposition des profils de vitesse normalisée du jet de méthane pour les 3 cas étudiés.

### IV.3.4- Influence de la présence du jet d'air sur les jets de combustibles

Les cartographies (Figure 127 et Figure 128) et les profils de la composante transversale  $V_x$  permettent de mettre en évidence les phénomènes d'évasement des jets, d'entraînement du fluide ambiant par les jets, et la déviation des jets de méthane par le jet d'air, précédemment mis en évidence.

Pour cela, la Figure 126 présente le profil transversal  $V_x$  de la vitesse mesurée à  $y=25\text{mm}$ . Pour le jet de méthane situé à  $x=-50.7\text{mm}$ , on observe, à sa gauche, une zone dans laquelle  $V_x$  est positif, le fluide à la base du jet de méthane se déplace vers le jet : c'est le phénomène d'entraînement des gaz brûlés recirculant par le jet de combustible.

La zone suivante, pour laquelle  $V_x$  est négatif, signifie que le jet de  $\text{CH}_4$  se développe vers les gaz brûlés : c'est le phénomène d'évasement naturel du jet. Les deux mêmes phénomènes peuvent être observés pour la partie du jet de combustible côté jet d'air. Tout d'abord, la zone de  $V_x$  positif montre l'évasement du jet, cependant, dès  $y=40\text{mm}$ , la surface de cette zone augmente fortement : la présence du jet d'air dévie le jet de méthane. La zone pour laquelle  $V_x$  est négatif traduit l'entraînement du fluide se situant entre les jets par le jet de méthane. Ce fluide environnant est ensuite entraîné par le jet d'air (c'est la zone pour laquelle  $V_x$  redevient positif).

Enfin, la dernière zone de  $V_x$  négatif détermine l'évasement du jet d'air.

La même configuration aérodynamique est observée pour la partie droite du champ de vitesse.

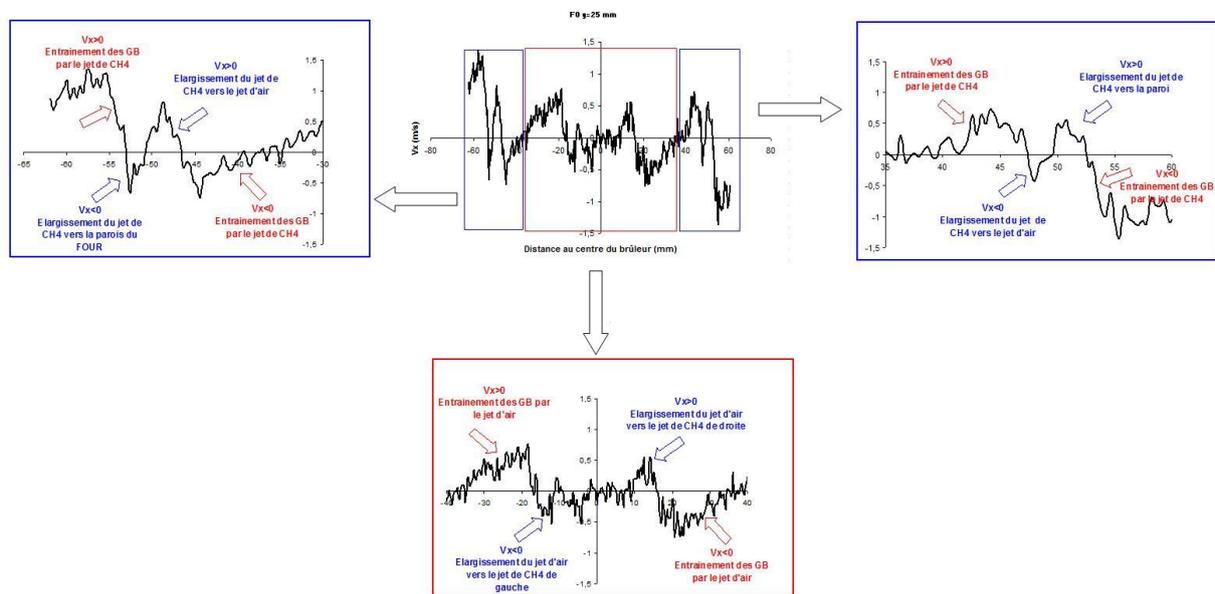


Figure 126 Evolution de la vitesse  $V_x$  sur un profil transverse à  $y=25\text{mm}$ .

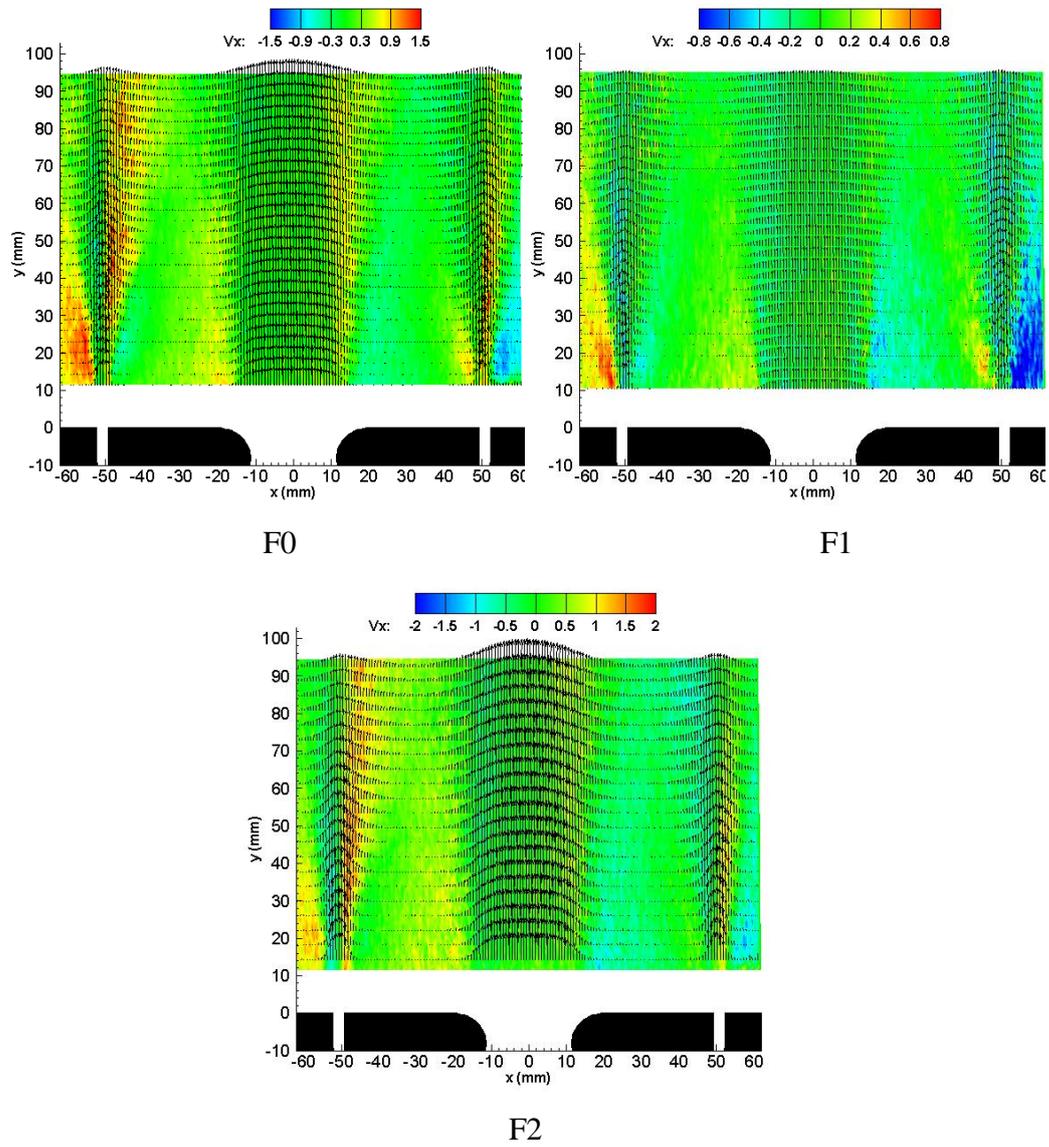
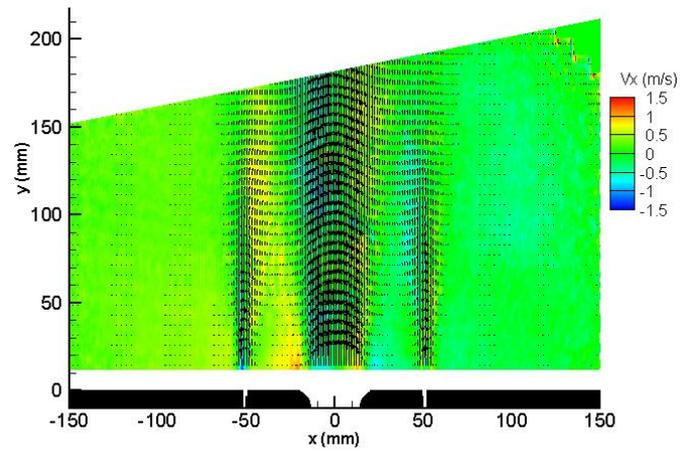
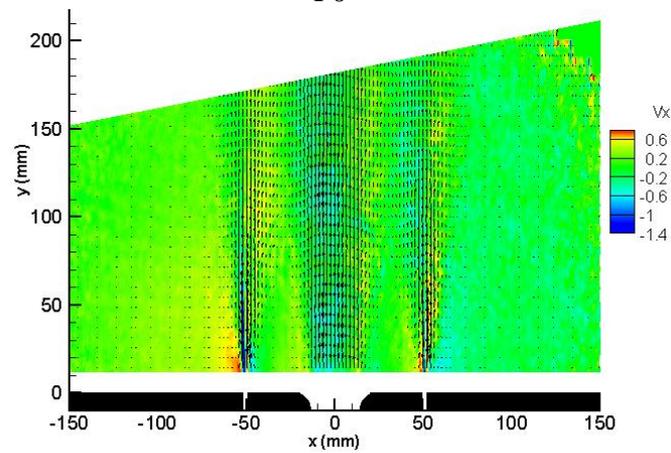


Figure 127 Champs de vitesse transverse  $V_x$  (en m/s) et vecteurs vitesse obtenus avec la technique de PIV classique.



F0



F1

Figure 128 Champs de vitesse transverse  $V_x$  (en m/s) et vecteurs vitesse obtenus avec la technique de PIV endoscopique.

### IV.3.5- Importance du mélange

Comme mis en évidence par Grandmaison, les jets de méthane sont déviés par le jet d'air quel que soit le cas. Cependant, les jets de méthane ne sont pas déviés de la même manière pour les trois cas. En effet, les valeurs absolues de la vitesse transverse  $V_x$  sont plus importantes pour le cas F2 que pour les cas F0 et F1, en effet, le jet d'air possède une impulsion plus grande, il a donc tendance à plus entrainer les jets de méthane.

De plus, dans les couches de cisaillement du jet d'air, les fluctuations sont plus importantes, ce qui traduit un meilleur mélange entre le jet d'air et les gaz brûlés environnant.

Le préchauffage du jet d'air permet d'augmenter son impulsion et donc d'atteindre un meilleur taux de mélange.

La rms de la composante tangentielle présente logiquement des valeurs importantes sur les bords de jets, et principalement sur les bords des jets de méthane, ce qui traduit la présence d'une couche de cisaillement très turbulente entre les jets et l'environnement, qui permet un mélange entre les jets et le fluide environnant.

La Figure 129 présente la vitesse axiale ainsi que sa rms, pour le cas F0, pour deux positions dans le four :  $y=10\text{mm}$  (juste en sortie de brûleur) et  $y=165\text{mm}$  (hauteur la plus élevée que nous ayons pu mesurer). Dans les couches de mélanges de jets de méthane et d'air, il est possible d'observer des fluctuations de vitesse de 40% proche du brûleur et de 60% à  $y=165\text{mm}$ . Les couches de mélanges sont donc fortement turbulentes. Özdemir et Peters ont mesuré des fluctuations du même ordre de grandeur dans la couche de mélange du jet de méthane (28% en  $y=12.5\text{ mm}$  au voisinage de la sortie du brûleur et 53%  $y=412.5\text{mm}$  juste avant la sortie de leur installation de combustion diluée). Puisque les fluctuations sont importantes, le temps turbulent est faible, par ailleurs, la dilution des jets par les produits de combustion recirculant augmente le temps chimique. L'hypothèse d'une chimie rapide n'est plus valide puisque, dans ce cas, le temps chimique est du même ordre de grandeur que le temps turbulent (Özdemir & Peters-2001).

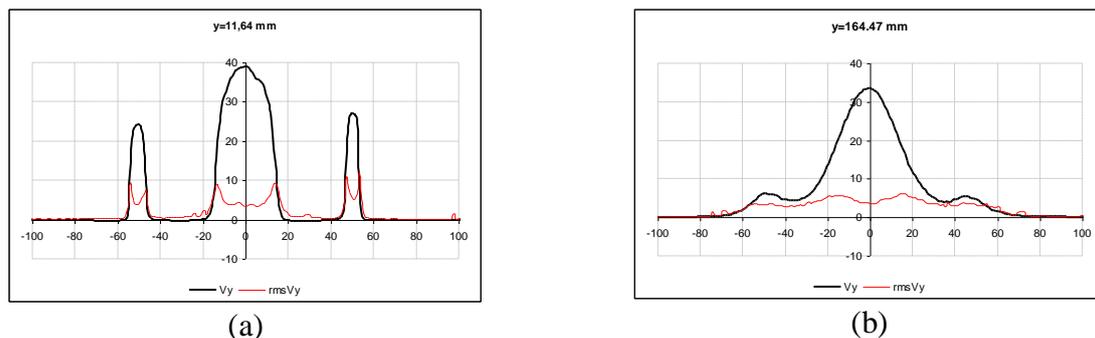


Figure 129 Profils de vitesse moyenne et écart type transverse pour les hauteurs  $y=11.64\text{mm}$  (a) et  $y=164.47\text{mm}$  (b), cas de référence F0.

Pour le cas sans préchauffage de l'air (F1), l'évolution de la vitesse transversale ( $V_x$ ) est similaire au cas de référence (F0) mais les valeurs de  $V_x$  sont plus faibles alors que le débit de combustible est constant, ce qui pourrait être dû à la diminution du préchauffage du jet de méthane à la traversée du brûleur. De plus la déviation du jet de méthane provoquée par la présence du jet d'air est moins importante dans le cas sans préchauffage de l'air (parce que l'impulsion du jet est plus faible).

Dans les couches de mélange des jets de combustible, les fluctuations de vitesse sont du même ordre de grandeur pour les trois cas étudiés. En revanche, dans les couches de mélange du jet d'air, les fluctuations de vitesse sont plus faibles pour le cas sans préchauffage de l'air (F1) puisque celui-ci a une vitesse au moins 3 fois moins importante que pour les cas F0 et F2. La viscosité turbulente ( $\nu_t$ ) permet de quantifier le taux de mélange : elle est définie par le produit de la longueur de mélange et des fluctuations de vitesse (Pope, 2000). Plus les fluctuations de vitesse sont importantes, plus la viscosité turbulente est grande et plus le taux de mélange est élevé. Ainsi, pour le cas sans préchauffage de l'air, les plus faibles fluctuations de vitesse vont être défavorables au mélange.

##### *Analyse des structures tourbillonnaires des jets*

Lors des mesures à l'échelle semi industrielle sur une même géométrie de brûleur, Masson avait observé une zone de recirculation entre les jets (Masson-2005). Nous avons souhaité déterminer si la zone de réaction était aussi stabilisée par un effet bluff-body.

Les lignes de courant du champ de vitesses moyen mettent en évidence la morphologie de l'écoulement. Comme nous l'avons vu précédemment, on peut constater un fort entraînement de chacun des jets (Figure 105). Entre ceux-ci, l'écoulement à vitesse quasi-nulle se comporte comme s'il émanait d'une ligne source et était ensuite entraîné par les jets, avec un plus fort entraînement vers le jet central d'air. L'étude des lignes de courant sur le champ moyen ne permet pas d'observer directement une zone de recirculation interne moyenne, comme mise en évidence par Masson (Masson-2005).

On pourrait toutefois avoir une ou plusieurs zones de recirculation interne instantanée fortement fluctuante qui ne seraient pas observable en moyenne. Pour cela nous allons chercher à identifier les tourbillons présents au sein de l'écoulement.

Le rotationnel de la vitesse,  $\omega_z$ , est utilisé pour localiser les tourbillons présents au sein d'un écoulement (cf. III.5-).

La Figure 130 présente une cartographie du rotationnel de la vitesse, calculée sur un champ instantané. L'étude des 300 champs instantanés permet de mettre en évidence les couches de cisaillement des jets d'air et de méthane, mais pas de confirmer ou d'infirmer la présence d'une zone de recirculation entre les jets.

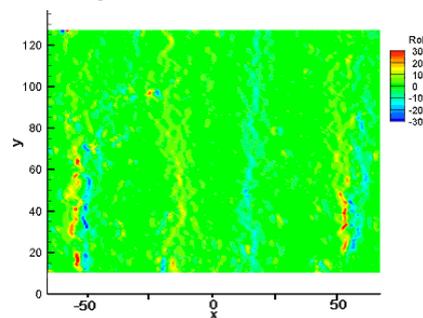
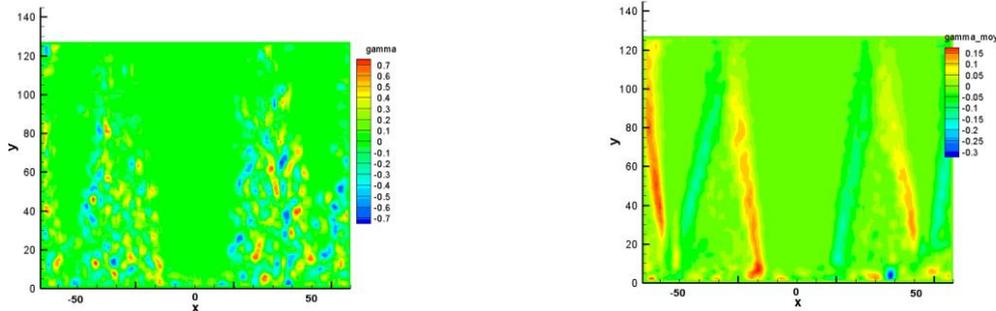


Figure 130 Rotationnel de la vitesse, champ instantané cas F0.

Cependant, l'utilisation du rotationnel pour localiser le centre des noyaux tourbillonnaires est rendue délicate à cause de la proximité des jets de méthane et d'air par rapport aux tourbillons.

La Figure 131 représente les cartographies de la fonction scalaire  $\Gamma$ , instantanée (a) et moyennée (b), (cf. III.5-). A chaque instant, on observe un grand nombre de tourbillons dans la région comprise entre les jets d'air et de méthane, preuve d'un certain degré de turbulence locale qui favorise le mélange. Toutefois, la cartographie moyenne ne montre pas de zone de recirculation interne qui serait issue d'une forte probabilité de présence d'un tourbillon comme cela a pu être observé sur des brûleurs bluff-body ou à swirl (Susset-2002).



(a) Fonction scalaire  $\Gamma$  sur un champ instantané

(b) Fonction scalaire  $\Gamma$  moyennée sur les 300 champs instantanés

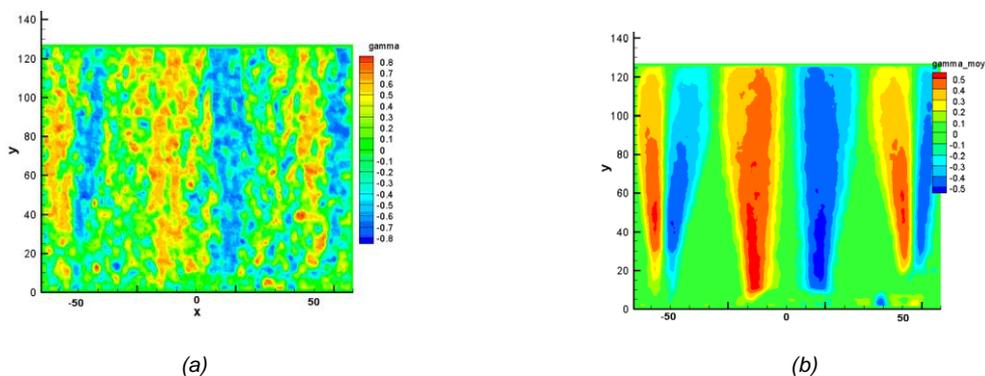
Figure 131 Fonction scalaire  $\Gamma$  (a) champ instantané, (b) moyenne des 300 champs instantanés, cas F0.

La Figure 132 représente les cartographies des fonctions scalaire  $\Gamma_2$ , instantanée (a) et moyennée (b). On observe un grand nombre de tourbillons dans les couches de cisaillement des jets d'air et de méthane. On détecte bien les tourbillons convectés par l'écoulement mais on ne détecte toujours pas de zone de recirculation interne.

Un grand nombre de tourbillons a été détecté (> 300 pics détectés en moyenne par champ instantané) dans la zone inter-jets à basse vitesse. Ces tourbillons favorisent le mélange réactifs injectés - gaz brûlés recirculant.

Cependant, l'absence de zone de recirculation interne indique que la flamme se stabilise dans la couche de mélange des jets à partir de leur convergence et fusion et non pas dans une zone de recirculation interne comme cela avait paru être le cas pour l'installation semi-industrielle de combustion sans flamme de GDF SUEZ (Masson-2005).

Dans les conditions normales, on retrouve alors une structure de flamme non prémélangée liftée. La distance entre la sortie du brûleur et la base de la zone de réaction principale assure une dilution suffisante de chacun des réactifs par les gaz brûlés recirculant pour atteindre le régime de combustion sans flamme.



(a)

(b)

Figure 132 Fonction scalaire  $\Gamma_2$  (a) : champ instantané (b) moyenne des 300 champs instantanés, cas F0.

## *Evolution des débits*

### *Débits volumiques*

A partir des mesures de vitesse, il est possible de déterminer les débits volumiques avec la méthode décrite dans la partie traitement des résultats (cf. III.5-). Le jet d'air est supposé axisymétrique. Le plan de mesure de vitesse par PIV étant constitué des 3 jets, le débit du jet d'air, par cette méthode est certainement sous-estimé avant la zone de recirculation externe (Masson-2005). Les jets de méthane ne sont pas axisymétriques puisque l'ouverture du jet côté jet d'air est plus importante du fait de la présence du jet d'air à forte impulsion (cf. IV.3.2-). Le débit est estimé sur chaque demi jet : la partie côté gaz brûlés et la partie côté jet d'air, à partir des mesures de PIV classique. En effet, la faible résolution des champs de vitesse dans les jets de méthane obtenue par PIV endoscopique ne permet pas de calculer leur débit de manière suffisamment précise.

### *Débits massiques*

En pratique, la masse volumique dépend de la composition et de la température du mélange dans le jet pour une section donnée.

Dans le domaine compris entre  $y=45$  et 140 mm, la vitesse, la température et les concentrations des espèces, ont été mesurées. Il est possible de calculer la masse volumique locale (III.5-) et donc de déterminer un débit massique.

Ces résultats sont comparés à une configuration de jet turbulent non réactif dans un environnement de gaz brûlés à la température des parois et à vitesse quasi nulle. Pour un jet turbulent pleinement développé, l'évolution longitudinale du taux d'entraînement est linéaire (Ricou & Spalding-1961, Han & Mungal-2001). Une équation théorique du débit total normalisé par le débit initial a été proposée par Ricou et Spalding:

$$\frac{\dot{m}_T}{\dot{m}_0} = \frac{\dot{m}_0 + \dot{m}_e}{\dot{m}_0} = Ke + 1 = C_{el} \sqrt{\frac{\rho_s}{\rho_0}} \cdot \frac{y}{D_0} + 1$$

Où  $D_0$  est le diamètre de l'injecteur,  $\rho_s$  : la masse volumique du fluide environnant, pour nous, les gaz brûlés pris à la température de parois,  $\rho_0$  : la masse volumique du réactif à la température initiale ( $T_0=300K$  pour le méthane et  $T_0=838K$  pour le jet d'air dans les conditions nominales). Le paramètre  $d^* = D_0 \sqrt{\frac{\rho_0}{\rho_s}}$  peut alors être considéré comme un diamètre équivalent qui induirait une évolution similaire aux taux d'entraînement pour un jet débouchant dans une atmosphère à iso-densité.

Ricou et Spalding proposent de fixer le coefficient  $C_{el}$  à 0.32 quelque soit la hauteur. Han et Mungal, quant à eux, ont déterminé expérimentalement, la valeur de la constante  $C_{el}$  en

fonction de l'abscisse réduite ( $x/d^*$ ) pour un jet de méthane en combustion dans un coflow d'air (mesures en réactif) et un jet d'air dans un coflow d'air (mesures en non réactif). La Figure 133 montre l'évolution de le coefficient  $C_{el}$  en fonction de la distance au brûleur : elle augmente tant que  $x/d^* < 35$  ensuite, elle se stabilise à  $C_{el}=0.32$ .

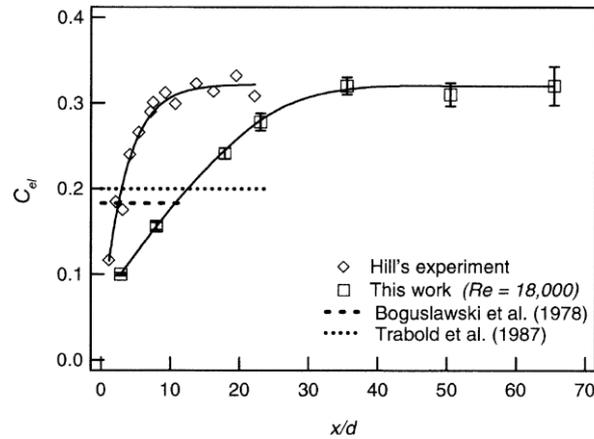


Figure 133 Evolution de la constante  $C_{el}$  en fonction de la distance au brûleur (Han et Mungal-2001).

A partir de la courbe ci dessus (courbe obtenue avec les mesures expérimentales représentées par des carrés), il est possible de déterminer l'équation d'évolution du coefficient  $C_{el}$ .

- $C_{el} = 0.32$  si  $x/d^* > 35$  et
- $C_{el} = 0.079 + 6.7 \cdot 10^{-3} \left(\frac{x}{d^*}\right) + 5 \cdot 10^{-4} \left(\frac{x}{d^*}\right)^2 - 3.5 \cdot \left(\frac{x}{d^*}\right)^3 + 1.2 \cdot 10^{-6} \left(\frac{x}{d^*}\right)^4 + 2.6 \cdot 10^{-8} \left(\frac{x}{d^*}\right)^5 + 2.5 \cdot 10^{-10} \left(\frac{x}{d^*}\right)^6$  si  $x/d^* < 35$

Les débits volumiques et massiques sont représentés sur les Figure 134 à Figure 139 pour les jets d'air et de méthane, ainsi que les évolutions théoriques calculés à l'aide de la formule de Ricou et Spalding ( $C_{el}=0.32$ ) et de Han et Mungal ( $C_{el}$  variable).

Pour F0, les vitesses mesurées dans le jet d'air par PIV endoscopique sont supérieures à celles mesurées par PIV classique, cet écart se retrouve sur le calcul du débit volumique ( $75\text{m}^3/\text{h}$  à  $y=35\text{mm}$  pour la PIV endoscopique et  $72\text{m}^3/\text{h}$  pour la PIV classique), cependant, il peut être considéré comme minime et se situe dans l'intervalle d'incertitude des mesures et de leur traitement ( $\pm 5\%$ ). C'est pourquoi, nous pouvons qu'en même considérer que, pour les cas F0 et F1, les débits massiques et volumiques déterminés à partir des mesures de vitesse obtenues par PIV endoscopique, sont du même ordre de grandeur et présentent la même évolution que les débits calculés à partir des mesures de vitesse obtenues par PIV classique. On voit que globalement les évolutions du débit volumique d'un jet d'air pour les cas F0 et F1 sont plutôt linéaires. Ce qui ne semble pas être le cas pour les conditions à fort excès d'air.

Pour les cas F0 et F1, les débits volumique et massique présentent une évolution similaire dans la région où les concentrations ont été mesurées. Pour ces cas, l'évolution locale de la masse volumique doit rester faible et n'a quasiment pas d'influence sur l'évolution globale qui a lieu dans la zone mesurée.

Pour le cas F2, le débit volumique présente un changement de pente à partir de  $y=50\text{mm}$ , alors que la pente du débit massique reste constante. La présence de la flamme de diffusion autour des jets de  $\text{CH}_4$  provoque une diminution de la masse volumique du jet et donc une augmentation plus importante du débit volumique que du débit massique. La présence de la flamme de diffusion pourrait aussi expliquer la différence des valeurs absolues des débits massiques expérimentaux et théoriques pour le cas F2.

Les droites représentant le débit massique du jet d'air, pour les trois cas, présentent la même évolution entre elles, et elles sont aussi une évolution similaire aux courbes théoriques pour  $C_{el}$  variable. En effet, il est possible d'observer que, avant le point de fusion des jets, la pente du débit théorique déterminé par la méthode de Han et Mungal correspond à la pente de la droite représentant les valeurs expérimentales ce qui n'est pas le cas du modèle de Ricou et Spalding avec un coefficient constant. Ce modèle, en prenant  $C_{el}$  variable, permet donc de mieux prédire l'évolution du débit massique du jet en fonction de la hauteur.

Le jet d'air entraîne fortement les gaz brûlés environnant. A  $y=90\text{mm}$ , le débit massique du jet atteint  $0.010\text{ kg/s}$  pour F0 et F1, les jets d'air ont entraîné environ 1.5 fois leur débit initial.

Pour le cas sans préchauffage de l'air, on peut aussi remarquer qu'à partir de  $10\text{mm}$ , le débit d'air dans le jet atteint la valeur de  $30\text{m}^3/\text{h}$  alors que l'on attend un débit de  $23\text{m}^3/\text{h}$ . Ce débit réel plus important pourrait être expliqué par un léger préchauffage du jet d'air au passage de la céramique chaude du brûleur avant d'entrer dans le four. Cette différence de débit correspondrait à un jet d'air préchauffé à  $85^\circ\text{C}$  (Cf. §IV.3.1-).

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

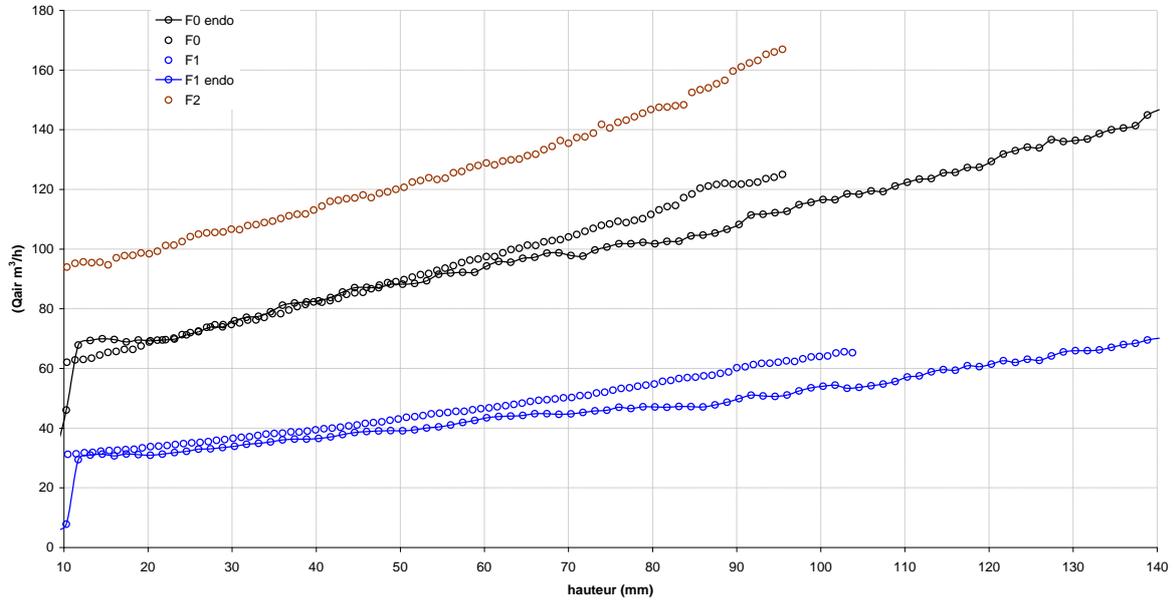


Figure 134 Evolution du débit volumique du jet d'air en fonction de la hauteur en sortie de brûleur, en noir : F0, en bleu : F1 et en marron : F2. En trait plein : débit estimé avec les mesures de vitesse obtenues par PIV endoscopique, en point : débit estimé avec les mesures de vitesse obtenues par PIV classique.

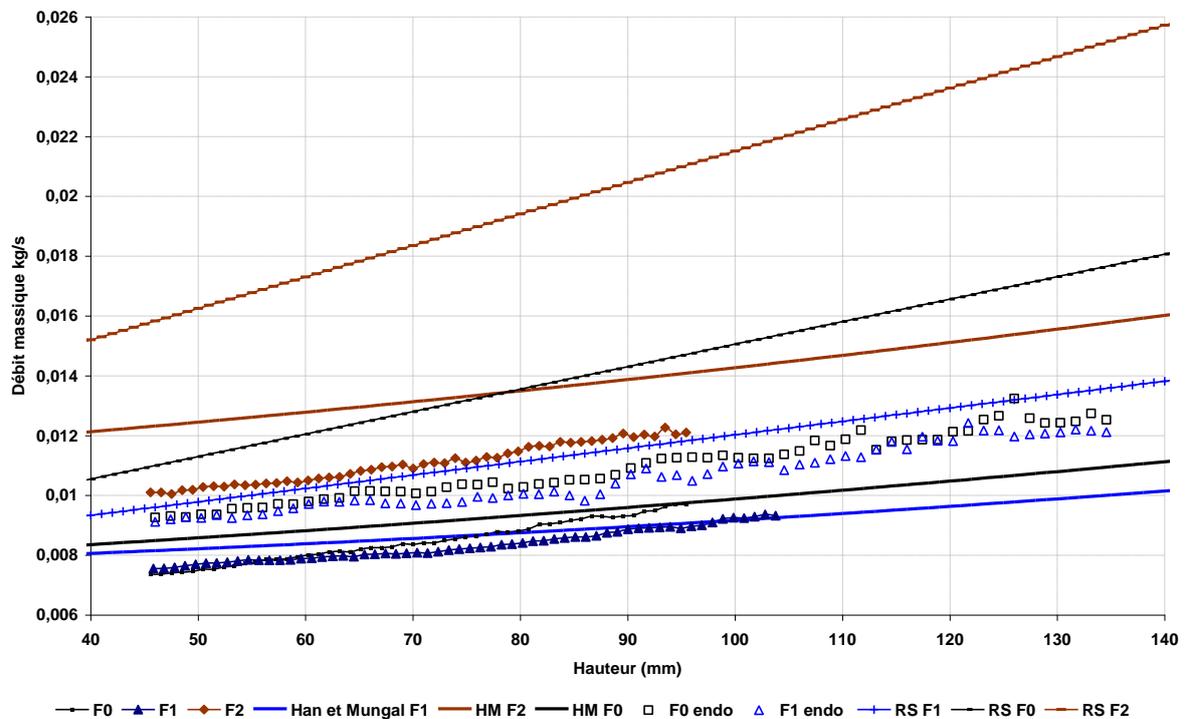


Figure 135 Evolution du débit massique du jet d'air en fonction de la hauteur en sortie de brûleur, en noir : F0, en bleu : F1 et en marron : F2. En trait plein : débit estimé par les méthodes de Ricou et Spalding (RS) et de Han et Mungal (HM).

La Figure 136 et la Figure 137 présentent respectivement l'évolution du débit volumique et du débit massique expérimental en fonction de la hauteur, pour le jet de méthane.

Sur cette figure, les évolutions théoriques du débit massique déterminées par les méthodes de Han et Mungal et de Ricou et Spalding sont aussi représentées.

Les débits volumiques et massiques présentent la même tendance. De plus, même si la valeur du débit expérimental loin de l'injecteur est plus proche de celle calculée par la méthode de Ricou et Spalding, le débit volumique, en sortie d'injecteur présente la même évolution que le débit théorique déterminé par la méthode de Han et Mungal. Compte tenu des incertitudes sur les valeurs absolues des débits obtenues par le traitement des données expérimentales, c'est la méthode de Han et Mungal qui semble rester la mieux adaptée pour décrire l'évolution du débit le long des jets. En comparant les évolutions des débits pour les trois cas, on peut observer que les débits massiques des jets de méthane pour les cas avec air préchauffé sont plus grands que le débit massique du cas F1 sans préchauffage de l'air. Or lorsqu'une zone de combustion est présente, l'entraînement du jet diminue et donc son débit. En effet, plusieurs auteurs ont étudié l'effet de la combustion sur l'entraînement d'un jet libre. Ricou et Spalding (1960) affirment que le taux d'entraînement peut être réduit jusqu'à 30% en présence d'une zone de réaction. Becker et Yamazaki (1978), quand à eux, mesurent des taux d'entraînement réduit de 50% par rapport à un jet non réactif ( $C_{ei}=0.16$ ). Enfin, Han et Mungal (2001) mesurent des taux d'entraînement jusqu'à 60% inférieurs ( $C_{ei}=0.13$ ). L'effet inverse de celui attendu est donc observé dans notre étude. Cette différence peut provenir de l'effet de l'interaction de jets mitoyens.

La Figure 138 et Figure 139 présentent respectivement l'évolution des débits volumique et massique expérimentaux en fonction de la hauteur, pour le demi jet de méthane côté gaz brûlés et le demi jet de méthane côté jet d'air.

Pour le demi jet côté jet d'air et le demi jet côté gaz brûlés (Figure 139), on observe deux effets différents. Côté gaz brûlés, les débits massiques pour les cas F0 et F2 sont quasi identiques alors que le débit pour le cas F1 est plus important. En effet, les deux cas F0 et F2 présentent une zone de combustion entre le jet de méthane et les gaz brûlés environnant, cette zone de combustion freine l'augmentation de débit du jet. A contrario, côté jet d'air, plus l'impulsion du jet d'air est importante, plus le débit massique du jet de combustible augmente. Finalement, l'effet de la zone de combustion autour des jets de combustible, pour les cas avec préchauffage de l'air, est contrebalancé par l'effet de l'impulsion du jet d'air sur le débit total du jet de méthane. Les débits volumiques présentent les mêmes évolutions que les débits massiques pour le demi jet côté jet d'air, en revanche, côté gaz brûlés, les débits volumiques ne permettent pas de mettre en évidence la diminution du débit du jet de  $CH_4$  pour les cas avec préchauffage due à la présence de la zone de combustion.

Plus la hauteur en sortie de brûleur augmente et plus le débit massique du jet augmente. A partir de  $y=70$ mm environ, l'augmentation de débit semble être moins importante. De même, l'étude des débits massiques des jets de méthane montre que plus l'impulsion du jet d'air est importante, plus le débit du jet de méthane est grand. En  $y=90$ mm, le jet de méthane a entraîné environ 4 fois son débit initial (le débit volumique du jet de méthane côté jet d'air est 16 fois plus important que le débit d'éjection).

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

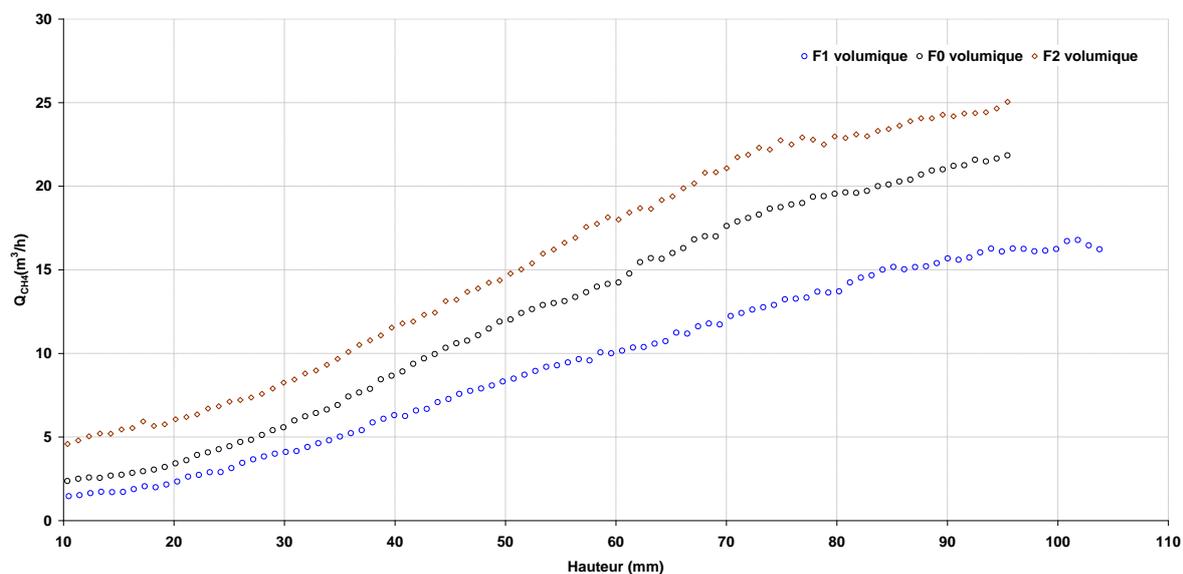


Figure 136 Evolution du débit volumique du jet de méthane en fonction de la hauteur en sortie de brûleur, en noir : F0, en bleu : F1 et en marron : F2.

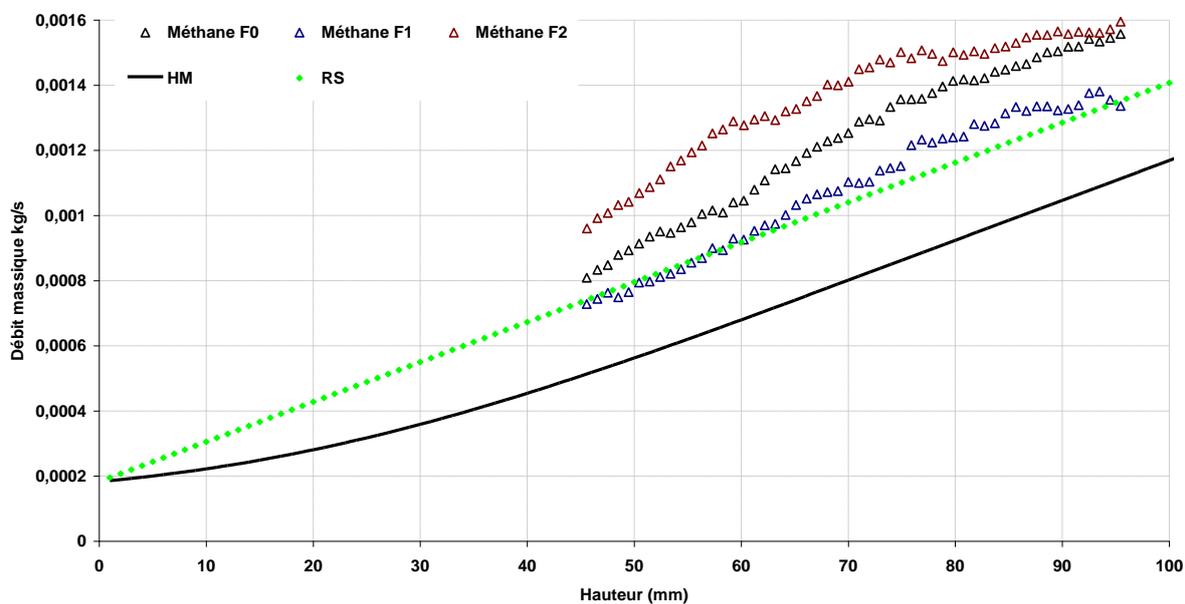


Figure 137 Evolution du débit massique du jet de méthane en fonction de la hauteur en sortie de brûleur, en noir : F0, en bleu : F1 et en marron : F2. En pointillé vert : débit estimé par les méthodes de Ricou et Spalding (RS) et de Han et Mungal (HM) en trait pleins.

Le débit du jet de méthane côté jet d'air est plus grand que côté gaz brûlés et ne présente pas une évolution linéaire. La proximité du jet d'air perturbe l'expansion du jet de méthane qui ne peut plus être considéré comme un jet libre. Le Tableau 13 résume les débits massiques et le taux d'entraînement des demi-jets de méthane côté jet d'air et côté gaz brûlés à 90mm du brûleur là où débute la zone de réaction principale. A cette hauteur, le débit du jet côté jet d'air est 2 à 4 fois plus important que le débit côté gaz brûlés (2.3 pour F1, 3.39 pour F0 et 3.94 pour F2).

	Débit de CH <sub>4</sub> , Côté air (kg/s)	Ke (Côté air)	Débit de CH <sub>4</sub> , Côté GB (kg/s)	Ke (Côté GB)
F0	0.00117	5.85	0.000345	1.725
F1	0.00093	4.65	0.000397	1.985
F2	0.00124	6.21	0.000315	1.575

Tableau 13 Débit massique et taux d'entraînement en y=90mm, pour les 3 cas.

Pour le cas sans préchauffage de l'air, comme pour le cas de référence, l'évolution du débit massique du jet de méthane côté air n'est pas linéaire, en y=90mm, sa valeur initiale est multipliée par 4.65, à cause de la présence du jet d'air qui a tendance à l'entraîner. Cependant, à cette hauteur, il est 20% plus faible que pour le cas de référence : l'impulsion moins grande dans le cas sans préchauffage diminue son influence sur le jet de méthane.

Le débit du jet de méthane côté gaz brûlés recirculant, a une augmentation linéaire jusqu'à y=70mm, puis l'augmentation de débit se ralentit du fait de la déviation du jet à cause de la présence du jet d'air. Cependant, le jet reste fortement dilué puisque en y=90mm, il a entraîné 2 fois son débit massique initial.

Pour le cas F2, le débit du jet de méthane côté air est de 0.00124 kg/s pour y=90mm. L'écart de débit entre y=90mm et le débit initial est le même que pour le cas de référence. Le jet de méthane est donc fortement dilué par les gaz brûlés avant d'interagir avec le jet d'air.

Comme pour le cas de référence, à partir de y=70mm, le jet de méthane côté gaz brûlés n'augmente plus à cause de la réaction sur le bord externe du jet.

De même, l'étude des débits massiques des jets de méthane montre que plus l'impulsion du jet d'air est importante, plus le débit du jet de méthane est grand. En y=90mm, le jet de méthane a entraîné environ 6 fois son débit initial.

*Les mesures de vitesse montrent que les 3 jets commencent à interagir à la même hauteur, quelle que soit la température de préchauffage de l'air. Le débit croissant traduit l'entraînement des gaz environnant (les gaz brûlés recirculant à vitesse quasi nulle) par les différents jets. Il est possible de prédire l'ordre de grandeur du débit de gaz brûlés entraînés par le jet d'air avec une corrélation de jet libre. Le jet d'air peut donc être considéré comme un jet libre.*

*Le processus d'entraînement de chacun des jets permet sa dilution et son chauffage par les produits de combustion chauds qui recirculent dans le four.*

*Cette dilution peut être mise en évidence par les mesures de concentrations dans le four.*

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

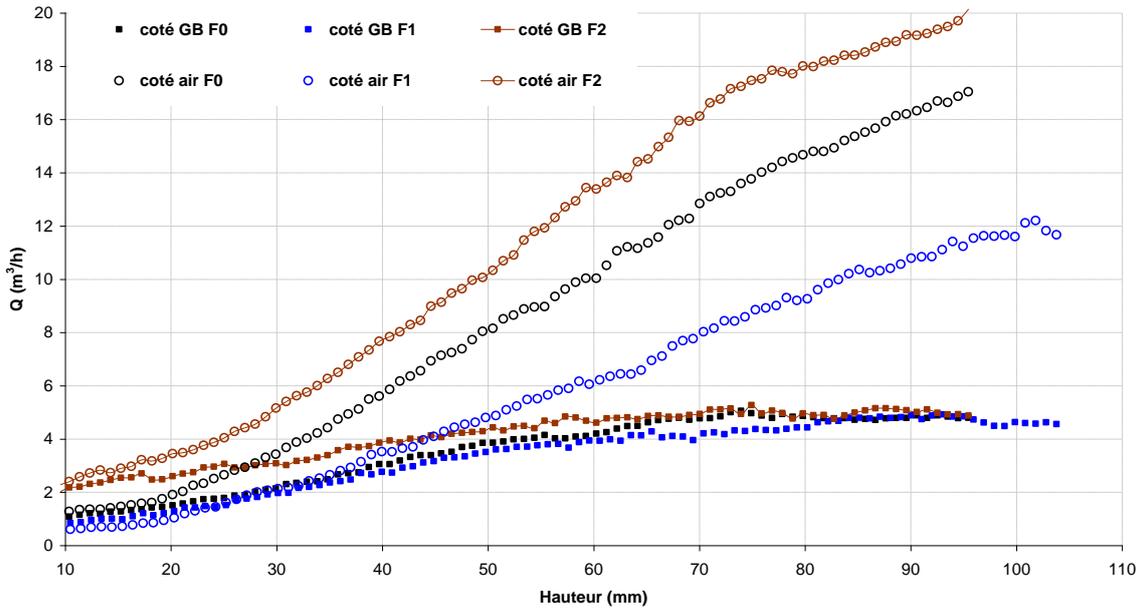


Figure 138 Evolution du débit volumique du jet de méthane en fonction de la hauteur en sortie de brûleur, en noir : F0, en bleu : F1 et en marron F2.

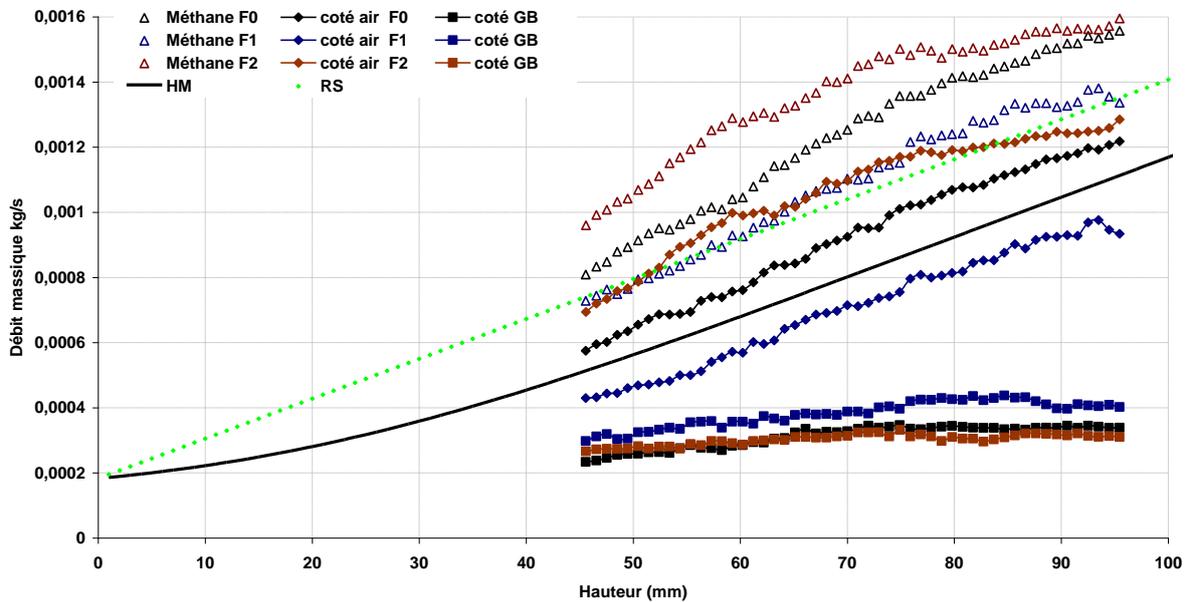


Figure 139 Evolution du débit massique du jet de méthane en fonction de la hauteur en sortie de brûleur, en noir : F0, en bleu : F1 et en marron : F2. En trait plein : débit estimé par les méthodes de Han et Mungal (HM).

## IV.4- Concentrations

La Figure 142 présente les champs de concentration moyenne d'espèces stables obtenues pour les trois cas étudiés. La concentration en oxygène dans les gaz recirculant est supérieure à la concentration théorique à cause de la légère dépression au sein du FOUR. Les entrées d'air ont été estimées à 10% pour F0, 4.2% pour F1 et 3% pour F2 (cf. IV.2-).

Les cartographies d'espèces montrent que, quelque soit le cas, dans la région proche brûleur nous avons un mélange entre  $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CH}_4$  et  $\text{N}_2$ . Entre les jets de méthane et d'air, les valeurs en  $\text{CO}_2$  sont les mêmes que celles des recirculations, ce qui met en évidence la présence de gaz brûlés dans la zone inter-jets. Les mesures de concentrations mettent en évidence un mélange d'air, de méthane et de gaz brûlés avant réaction. Les jets sont fortement dilués par les gaz brûlés environnant avant d'interagir entre eux.

Pour le cas F1, l'absence de production de CO montre seulement la présence de mélange entre le jet d'air, les jets de combustible et les gaz brûlés. En fait, on a juste un mélange ternaire non réactif avec la même déflexion centripète du jet de méthane par le jet d'air dans la zone proche brûleur. Aucune zone de réaction n'est donc présente dans la région proche brûleur pour le cas sans préchauffage de l'air F1. La zone de réaction se situe à partir de  $y=400\text{mm}$  (cf. Figure 95).

L'imagerie de chimiluminescence du radical  $\text{OH}^*$  est superposé au champ de concentration en CO. Pour les cas F0 et F2, la présence de CO permet de confirmer les zones de réaction observées par imagerie de chimiluminescence  $\text{OH}^*$ . Pour le cas F0, à partir de  $y=80\text{mm}$ , la concentration en CO est faible, mais elle permet de mettre en évidence le début de la zone de réaction. Elle s'intensifie à partir de  $y=100\text{mm}$  et devient rapidement supérieure à la valeur limite mesurable (5000 ppm) ce qui révèle une zone de réaction intense. Toutefois cette réaction peut être aussi intensifiée par l'intrusivité de la sonde. Autour des jets de combustible, la zone de réaction secondaire est mise en évidence par la production de CO, néanmoins, cette production reste peu importante et confirme la faible intensité de combustion précédemment mise en évidence par le faible signal de  $\text{OH}^*$  (cf. Figure 95). Pour  $y>80\text{ mm}$ , la production de CO s'accompagne d'une augmentation de la concentration de  $\text{CO}_2$  du fait de l'oxydation du CO.

Pour le cas F2, la production en CO devient rapidement importante ( $>5000\text{ ppm}$ ) ce qui révèle deux zones de réaction intenses même autour du jet de méthane dès la sortie du brûleur.

En revanche, pour le cas F1, du fait de l'absence de zone de réaction (pas de signal de chimiluminescence  $\text{OH}^*$  mesurable seulement le signal résiduel dans l'UV dû aux parois à haute température), la production de CO est quasiment inexistante. Les faibles concentrations de CO mesurées (de l'ordre de 20 ppm) peuvent provenir de l'intrusivité de la sonde dans la couche de mélange.

Les  $\text{NO}_x$  sont produits dans les zones de réaction principalement par voie thermique. La présence de  $\text{CO}_2$  entre les jets avec la même concentration que dans les fumées, nous a permis d'en déduire que dans la région inter-jets nous avons des gaz brûlés qui recirculent. Nous devrions donc retrouver des  $\text{NO}_x$  avec la même concentration que pour les gaz brûlés (28 ppm), or la concentration en  $\text{NO}_x$  est plus faible dans cette région (15-20 ppm). Ce phénomène, qualifié d'auto-recombustion du NO par Masson (2005) est confirmé par Nicolle et Dagaut (Nicolle-2005, Nicolle et Dagaut-2006).

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

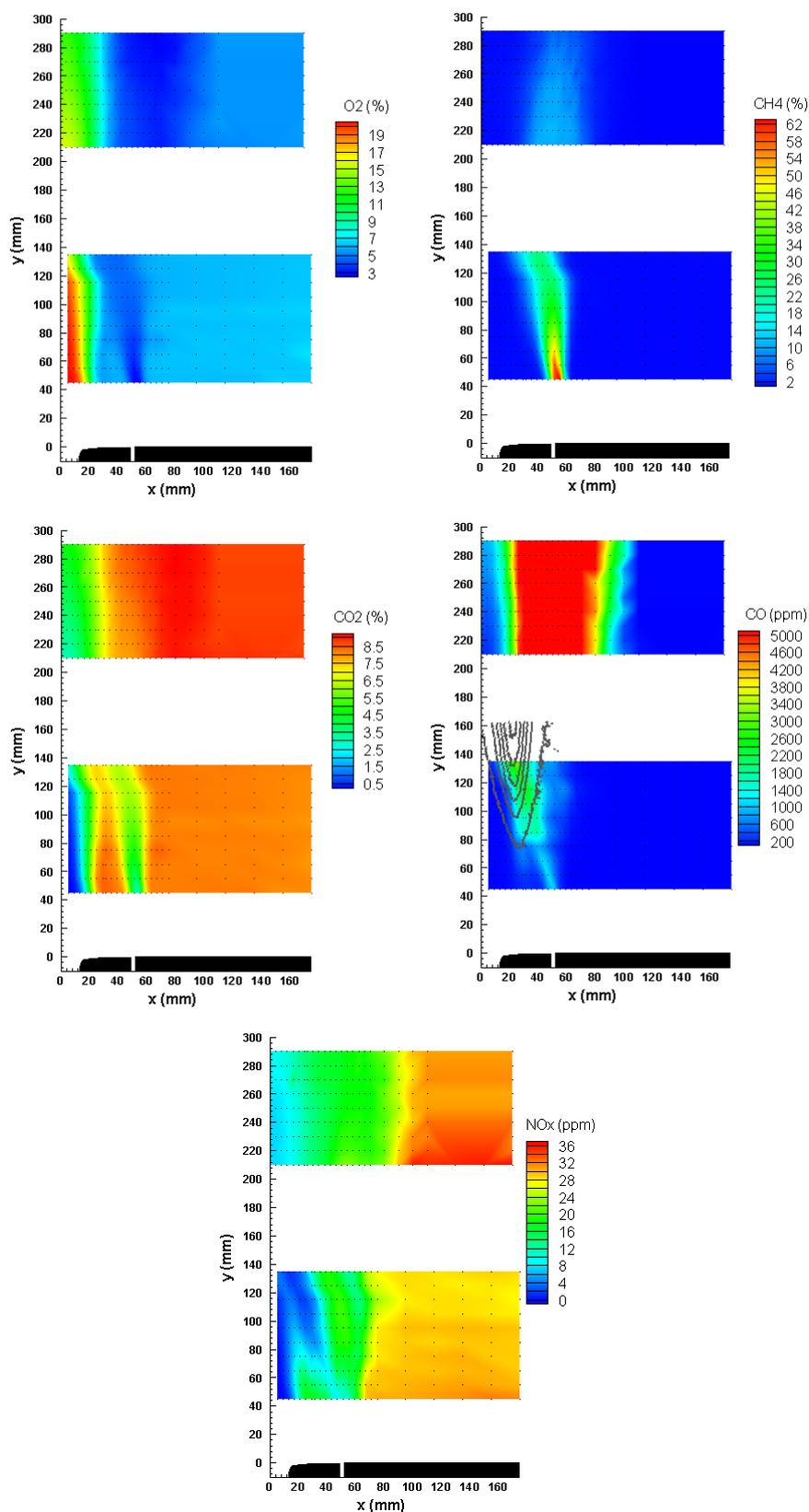


Figure 140 Concentrations moyennes en O<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>, CO, et NO<sub>x</sub> pour le cas F0. La position des points de mesure est représentée par des points noirs. Les contours de l'émission de chimiluminescence du radical OH\* sont représentés en gris sur la cartographie de CO.

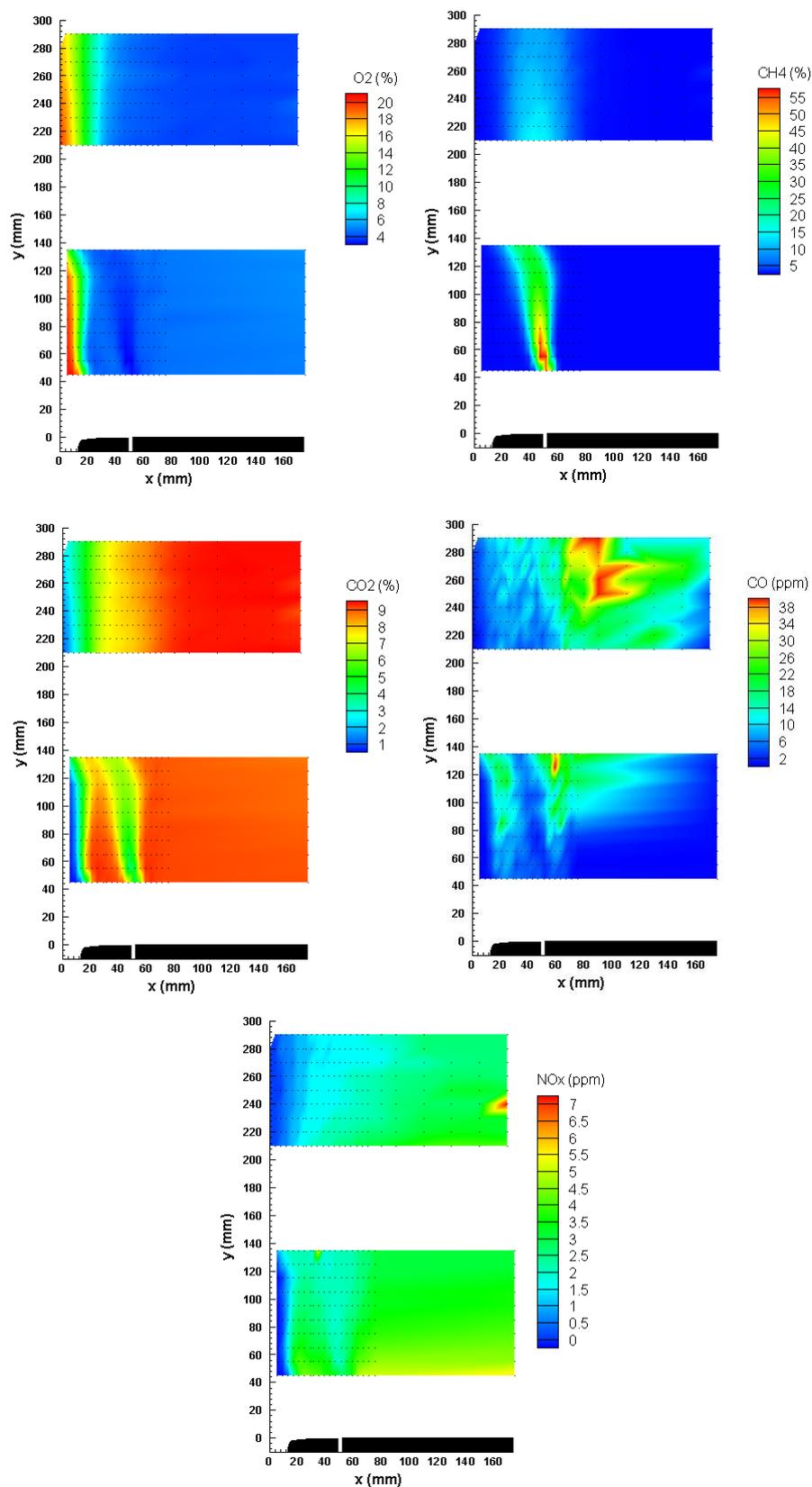


Figure 141 Concentrations moyennes en O<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>, CO, et NO<sub>x</sub> pour le cas F1. La position des points de mesure est représentée par des points noirs.

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

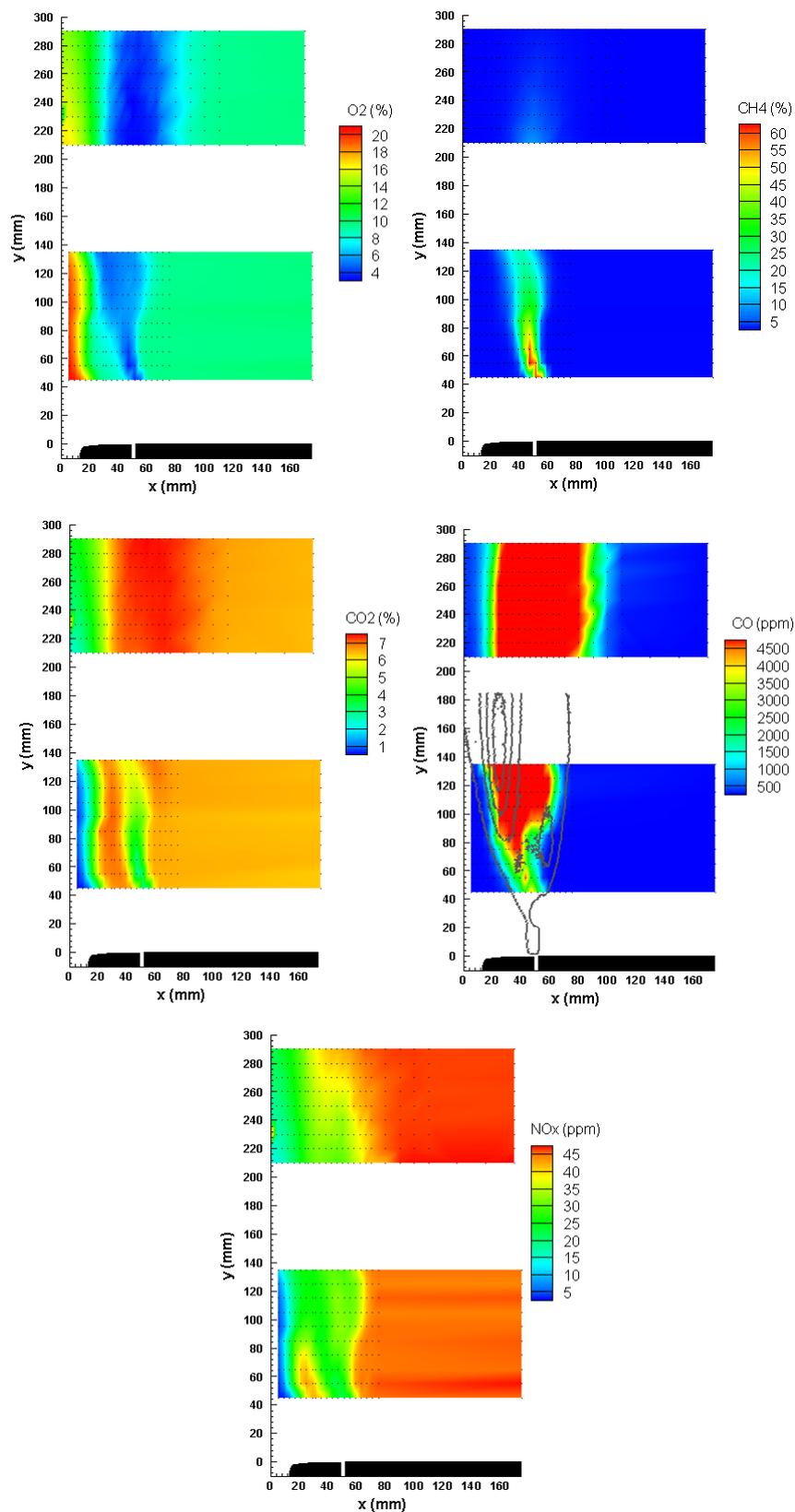


Figure 142 Concentrations moyennes en O<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>, CO, et NO<sub>x</sub> pour le cas F2. La position des points de mesure est représentée par des points noirs. Les contours de l'émission de chimiluminescence du radical OH\* sont représentés en gris sur la cartographie de CO.

Pour le cas sans préchauffage de l'air, les concentrations d'oxydes d'azote sont très faibles dans la zone de recirculation externe (3 ppm) et du même ordre de grandeur que la valeur mesurée en cheminée (3.6 ppm). La production de NO est plus en aval dans la région où a été observée la zone de réaction.

De plus, même si les valeurs en NOx sont plus importantes pour le cas F2 que pour les cas F0 et F1, elles restent tout de même faibles (de l'ordre de 50 ppm).

Le champ de concentration d'O<sub>2</sub> obtenu pour le cas dans préchauffage de l'air F1 permet de voir l'ouverture du jet d'air qui se développe plus en aval que pour le cas de référence F0. En effet, aucune déviation centripète n'est observée, puisqu'il n'y a pas de réaction de combustion dans cette zone. Pour le cas F1, la concentration en O<sub>2</sub> décroît peu, contrairement aux cas avec préchauffage F0 et F2 pour lesquels l'oxygène est consommé lors de la réaction de combustion et dont la concentration sur l'axe décroît dès y=130mm.

Les champs de CH<sub>4</sub> et d'O<sub>2</sub> permettent de mettre en évidence la déflexion centripète du jet de méthane par le jet d'air dans la zone proche brûleur. Cette déflexion avait déjà été mise en évidence par les champs de vitesses (Figure 121). Lorsqu'on s'éloigne du brûleur (y>210 mm) le profil transversal de concentration de CH<sub>4</sub> se décale vers l'extérieur du fait de la consommation du combustible dans la zone de réaction. Ce décalage n'est plus visible pour le cas F1 car la réaction débute plus en aval. Pour le cas F2, à partir de y=210 mm, quasiment tout le méthane a déjà été consommé par la réaction.

Dans la seconde zone d'étude, qui se situe après y=210mm, la concentration de CH<sub>4</sub> est plus importante pour le cas sans préchauffage de l'air F1 que pour les cas F0 et F2. En effet, comme aucune zone de combustion n'est présente, le CH<sub>4</sub> n'est pas consommé. Une petite quantité de CH<sub>4</sub> est présente jusque sur l'axe du jet d'air, ce qui montre un mélange important entre les jets et les gaz brûlés.

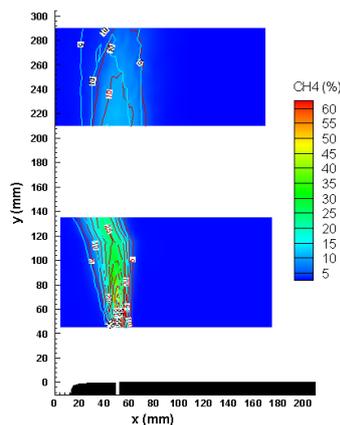


Figure 143 Concentration en méthane pour le cas F0 (en contour rouge) et le cas F1 (en contour bleu).

## IV.5- Champs thermiques

La caractérisation du champ de température pour ce régime de combustion est extrêmement importante pour la compréhension du déroulement du processus de la réaction chimique.

La Figure 144 présente les répartitions de température moyenne et d'écart-type pour les trois cas étudiés. Une augmentation très rapide de la température du jet de méthane peut être observée alors que le jet de combustible n'est pas préchauffé. En effet, pour le cas F0, dès  $y=35\text{mm}$ , la température au centre du jet atteint  $T=670^\circ\text{C}$  et la température en périphérie du jet est de  $T=940^\circ\text{C}$ , respectivement  $704^\circ\text{C}$ , et  $1140^\circ\text{C}$  pour le cas F2. Alors que la température de  $900^\circ\text{C}$  est atteinte à  $y = 100\text{mm}$  (resp.  $70\text{mm}$ ) au centre du jet de méthane, cette même valeur n'est mesurée au centre du jet d'air qu'à  $y = 225\text{mm}$  (resp.  $245\text{mm}$ ), malgré le préchauffage de l'air.

Même dans le cas F1, pour lequel aucune réaction n'est présente autour des jets de combustible, l'augmentation de température des jets de méthane provoque une diminution de la masse volumique du jet et donc une accélération de celui-ci (accélération déjà mise en évidence par les mesures de vitesse cf. IV.3.1-).

Les gaz brûlés permettent de préchauffer les jets de méthane avant que la réaction puisse avoir lieu dans les couches de mélange des jets de méthane et d'air. L'importance de ce préchauffage permettant un « pré-conditionnement » des jets, a aussi été mise en évidence par Mancini et Weber (Mancini-2007, Mancini et Weber-2007).

La cartographie de température nous permet de mettre de nouveau en évidence les zones de réactions déterminées par imagerie de chimiluminescence  $\text{OH}^*$  (Figure 95).

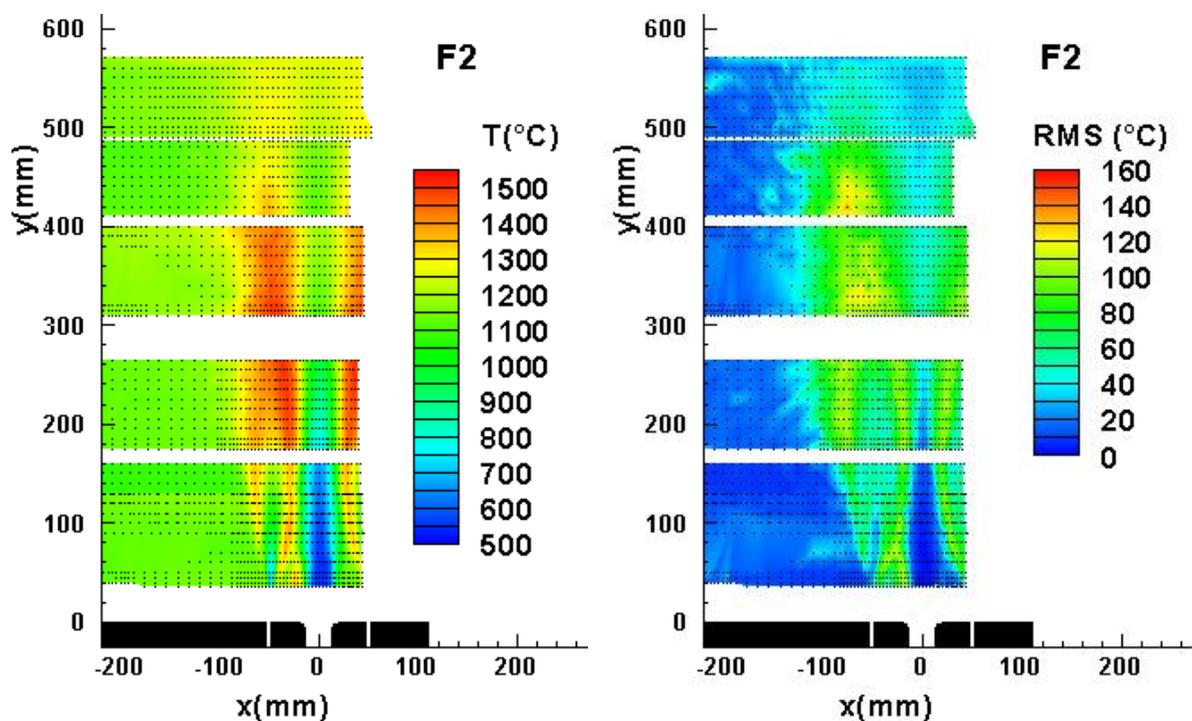
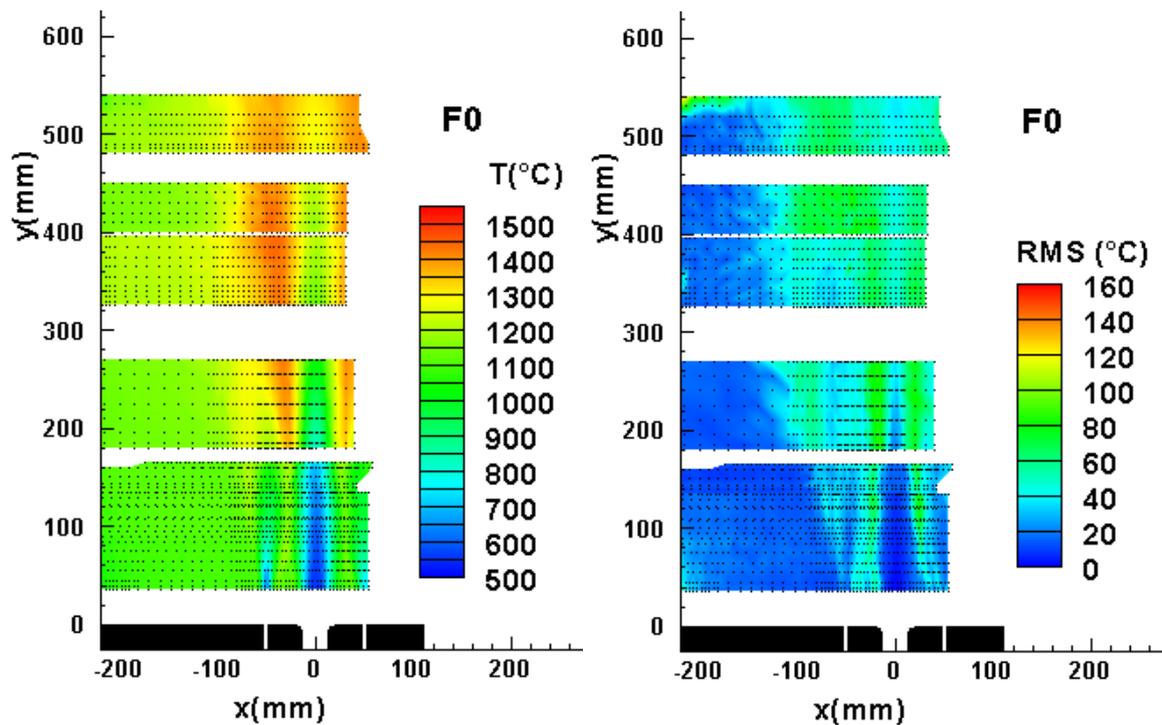
Pour le cas F0, la zone de réaction secondaire débute avant  $40\text{mm}$  et se situe autour du jet de méthane. On remarque une faible élévation de température dans cette zone: la température moyenne est de l'ordre de  $1100^\circ\text{C}$  pour un écart-type maximum de  $50^\circ\text{C}$ .

La zone de réaction secondaire fusionne avec la zone de réaction principale entre  $265 < y < 335 \text{ mm}$ . On retrouve bien la zone principale dans la couche de mélange des jets de réactifs à partir de  $y = 110\text{mm}$ . Comme attendu au vu des images de chimiluminescence de  $\text{OH}^*$ , on observe une plus forte élévation de température dans cette zone et de fortes fluctuations. Les maxima atteints sont  $1443^\circ\text{C}$  pour la température moyenne et  $80^\circ\text{C}$  pour l'écart-type.

Pour le cas F0, la variation de température entre le maximum atteint et la température des parois est de  $350^\circ\text{C}$ , quant au gradient de température entre le maximum de température et la température de préchauffage de l'air, il est de  $880^\circ\text{C}$ .

Pour le cas F2, on retrouve les mêmes structures des zones de réaction que pour le cas F0, avec toutefois, de plus fortes intensités de combustion dans les deux zones. La température moyenne atteint  $1333^\circ\text{C}$  dans la zone secondaire autour du jet de méthane, qui débute à  $y=50\text{mm}$ . Le maximum de température mesuré est de  $1444^\circ\text{C}$  au centre de la zone principale. Les fluctuations sont aussi plus fortes, de l'ordre de  $100\text{--}120^\circ\text{C}$ .

Pour les cas avec préchauffage de l'air (F0 et F2), on note également des valeurs élevées des moyennes et écart-type de température à la base du jet d'air sur son bord gauche mais pas sur son bord droit. Ceci est clairement un effet de l'intrusivité du thermocouple dans l'écoulement. La sonde se déplaçant de la gauche vers la droite dans cette région, elle dévie le jet de méthane vers le bord gauche du jet d'air, et induit une réaction qui n'existerait pas sans la présence du thermocouple. Ce même phénomène est également présent sur les mesures du cas F1 mais à un niveau très faible. Suivant ce sens de déplacement de la sonde, ce phénomène n'existe pas sur le bord droit du jet d'air où aucune élévation de température ni d'écart-type n'est mesurée. La bonne symétrie des mesures observées en dehors de cette région, montre que ce biais expérimental, même si il existe toujours, a un effet moindre sur les mesures.



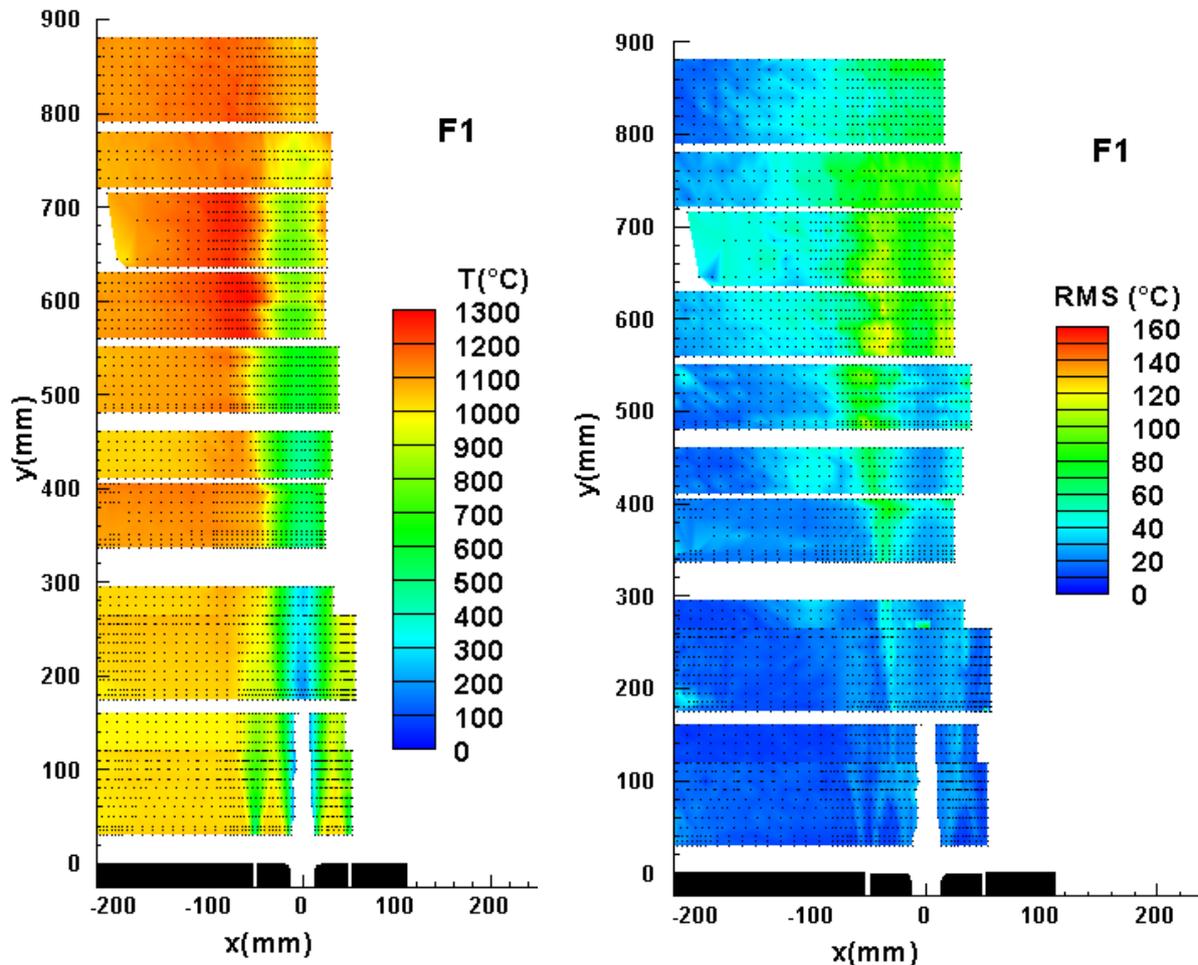


Figure 144 Champs de température et de rms pour les trois cas étudiés. La position des points de mesure est représentée par des points noirs.

Pour les deux cas avec préchauffage de l'air, les fluctuations de température diminuent vers  $y=500\text{mm}$ . C'est à cette hauteur que l'imagerie de chimiluminescence a montré une diminution importante du signal. La réaction s'achève donc vers  $y=500\text{mm}$ .

Le thermocouple de type B ne permettant pas de mesurer des températures en dessous de  $100^{\circ}\text{C}$ , le jet d'air non préchauffé ne peut donc pas être caractérisé en sortie de brûleur pour le cas F1. L'absence de zone de réaction en sortie de brûleur, révélée par l'imagerie de chimiluminescence  $\text{OH}^*$ , est confirmée par les mesures de température : aucune élévation nette de température autour du jet de méthane ni dans la couche de mélange entre jet d'air et jet de méthane n'est observée. En revanche, une augmentation progressive de la température des jets, du fait du mélange avec les gaz brûlés recirculant à haute température, peut être notée. Même l'intrusivité du thermocouple ne permet pas de provoquer une réaction sur le bord gauche du jet d'air. De la même manière que pour le cas de référence, des fluctuations de température importantes indiquent la présence de zones de réaction. Pour le cas sans

préchauffage de l'air, les fluctuations de température apparaissent vers  $y=400\text{mm}$ , elles s'amplifient jusqu'à atteindre leur valeur maximale vers  $y=600\text{mm}$ , ce qui confirme la position du début de réaction mis en évidence par le faible signal de chimiluminescence  $\text{OH}^*$  (Figure 100).

Pour le cas F1, l'oxydation complète du combustible a donc lieu autour de  $y=650\text{ mm}$ , où des fluctuations de température relativement importantes peuvent être observées. Le maximum de température moyenne est de  $1266^\circ\text{C}$  à la position ( $x = -80\text{mm}$  ;  $y = 685\text{mm}$ ). On a donc une différence de température entre la température des parois et le maximum de température de  $266^\circ\text{C}$  et un gradient de température entre la température de préchauffage de l'air et le maximum de température de  $1241^\circ\text{C}$ . Ces conditions opératoires correspondent quasiment à un cas "ultime" pour lequel la température des parois, i.e. la température de la charge, est atteinte en suivant un gradient quasiment toujours positif comme aussi illustré par Wüning par des mesures de température sur l'axe (Figure 145). Le faible niveau de fluctuation de température (inférieur à 10%) montre clairement l'absence de front de flamme au sens régime de flammelle.

L'absence de pic important de température locale explique les faibles formations de  $\text{NO}$  par voie thermique et ainsi la très faible valeur des émissions de  $\text{NO}_x$  mesurées en sortie : 4 ppm @ 3%  $\text{O}_2$ , proche de la concentration à l'équilibre dans les gaz brûlés.

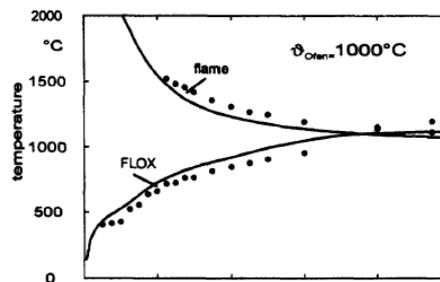


Figure 145 Profils axiaux de température, combustion classique et combustion sans flamme (Wüning-1997).

Cavaliere décrit la combustion sans flamme comme étant définie par de faibles maxima et de faibles gradients de température entre la température de préchauffage de l'air et le maximum de température dans le four (Cavaliere-2004). Dans le cas sans préchauffage de l'air, le maximum de température est moins important que pour le cas F0. Mais le gradient entre la température de préchauffage de l'air et le maximum de température est 1.5 fois plus grand que dans le cas nominal ( $\Delta T=1241^\circ\text{C}$  pour  $T=25^\circ\text{C}$  et  $\Delta T=880^\circ\text{C}$  pour  $T=565^\circ\text{C}$ ). Dans les deux cas, le gradient entre le pic de température et la température des parois est de  $300^\circ\text{C}$ . L'utilisation de ce gradient de température et de la valeur du maximum de température pour définir la combustion sans flamme semble être plus appropriée.

On définit une température réduite  $\Theta$  telle que:

$$\theta = \frac{T - T_{\text{CH}_4}}{T_{\text{fumées}} - T_{\text{CH}_4}}$$

Avec  $T$  la température moyenne au point de mesure,  $T_{\text{CH}_4}$  la température initiale du jet de combustible et  $T_{\text{fumées}}$  la température des fumées.

La température adimensionnée est présentée Figure 146. Elle prend pour valeur  $\theta = 1$  dans les fumées et  $\theta = 0$  dans le jet de méthane. Elle est supérieure à 1 lorsque la température est

supérieure à la température des fumées et permet donc de mettre en évidence les zones de température susceptibles de produire du NO par voie thermique.

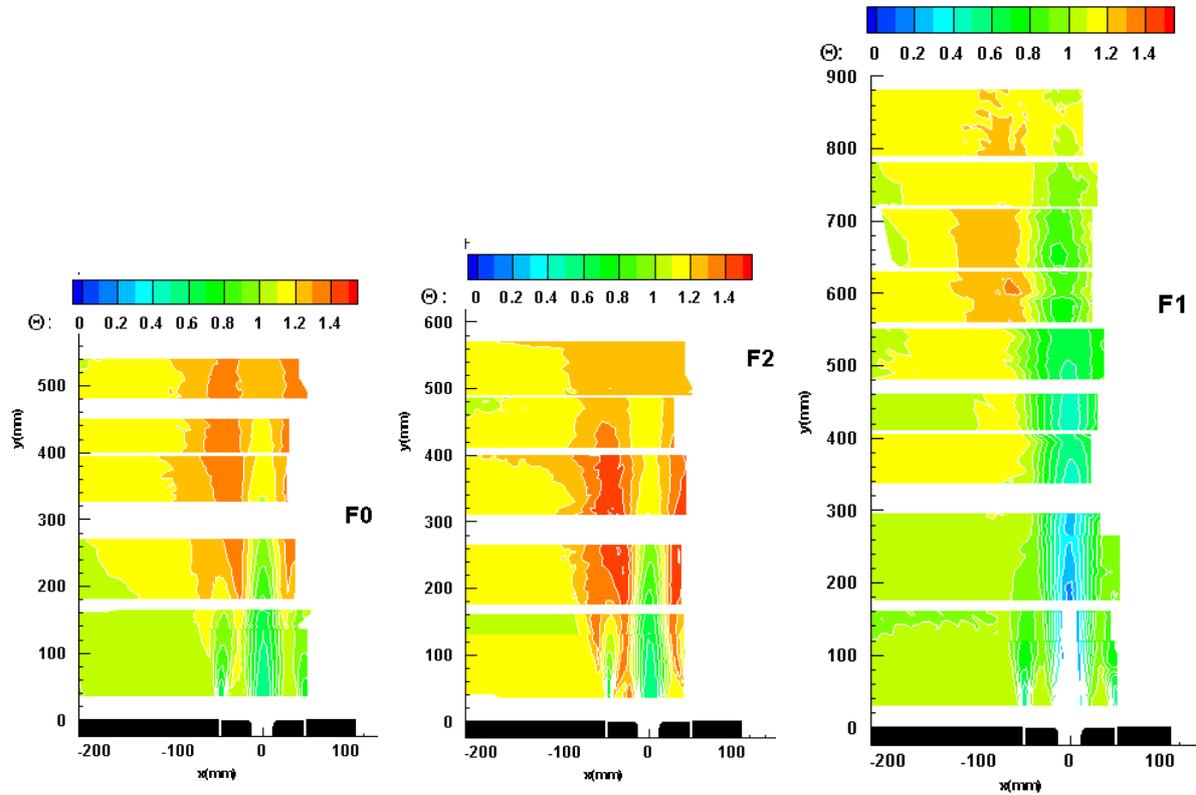


Figure 146 Répartition de la température réduite pour les trois cas étudiés.

Pour le cas sans préchauffage de l'air, et pour une hauteur inférieure à  $y=620$  mm, la température réduite est inférieure à 1. Pour une hauteur supérieure à  $y=620$  mm, elle est de l'ordre de 1.1. On est donc en présence d'une zone de réaction mais l'élévation de température reste très faible. Pour les deux cas avec préchauffage de l'air, la température réduite permet de mettre en évidence la zone de réaction très intense. On peut remarquer que pour le cas avec un fort excès d'air (F2), la combustion est plus précoce, plus intense et la zone de combustion est moins grande que pour le cas nominal (F0).

Pour atteindre le régime de combustion sans flamme, on va donc chercher à minimiser la valeur maximale de la température réduite et la taille des zones de réaction où  $\Theta$  est supérieure à 1.

## IV.6- Structure et allumage des zones de réaction

Les Figure 147 à Figure 149 présentent les évolutions transversales des fonctions de distribution du signal de température, pour trois positions axiales : la première se situe au niveau du point de fusion des jets déterminés à l'aide des mesures de vitesse ( $y=90\text{mm}$ ), la deuxième, dans la zone de combustion ( $y=400\text{mm}$  pour les cas F0 et F2, et  $y=580\text{mm}$  pour F1), enfin, la dernière, dans les gaz brûlés ( $y=540\text{mm}$  pour F0 et F2, et  $y=880\text{mm}$  pour F1). La fonction de distribution représente la répartition des valeurs de température au point de mesure. Sa forme dépend donc des valeurs du signal instantané de température. Les fonctions de distribution fines et centrées sur une valeur de température sont caractéristiques d'une zone présentant peu de variation temporelle. C'est le cas dans les gaz brûlés.

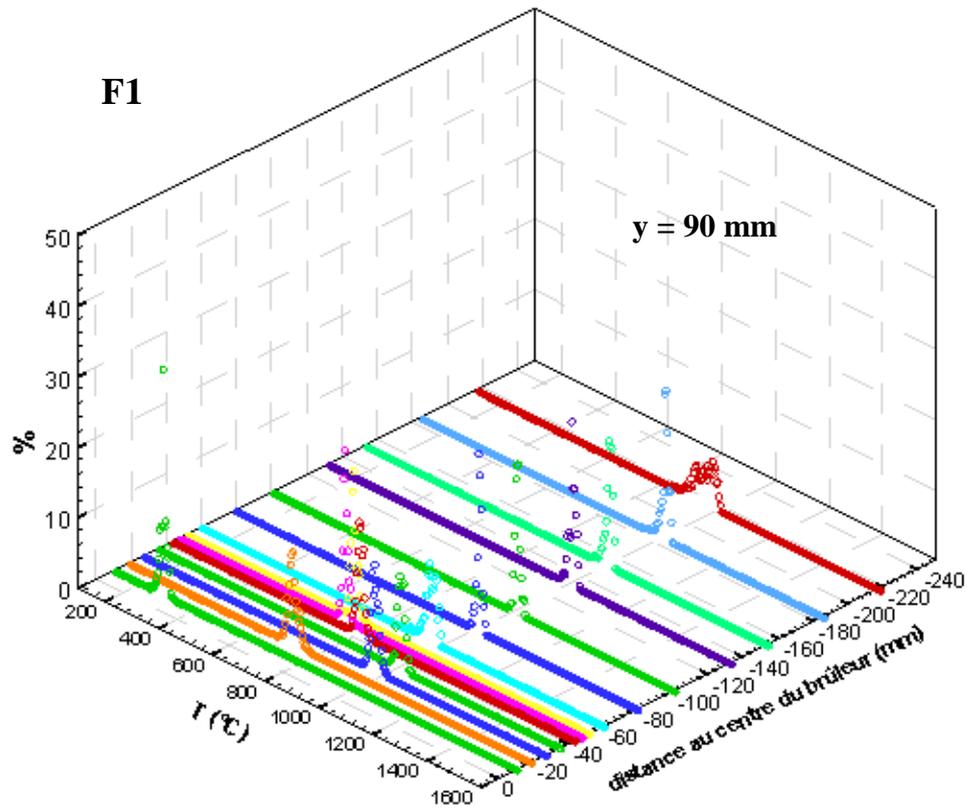
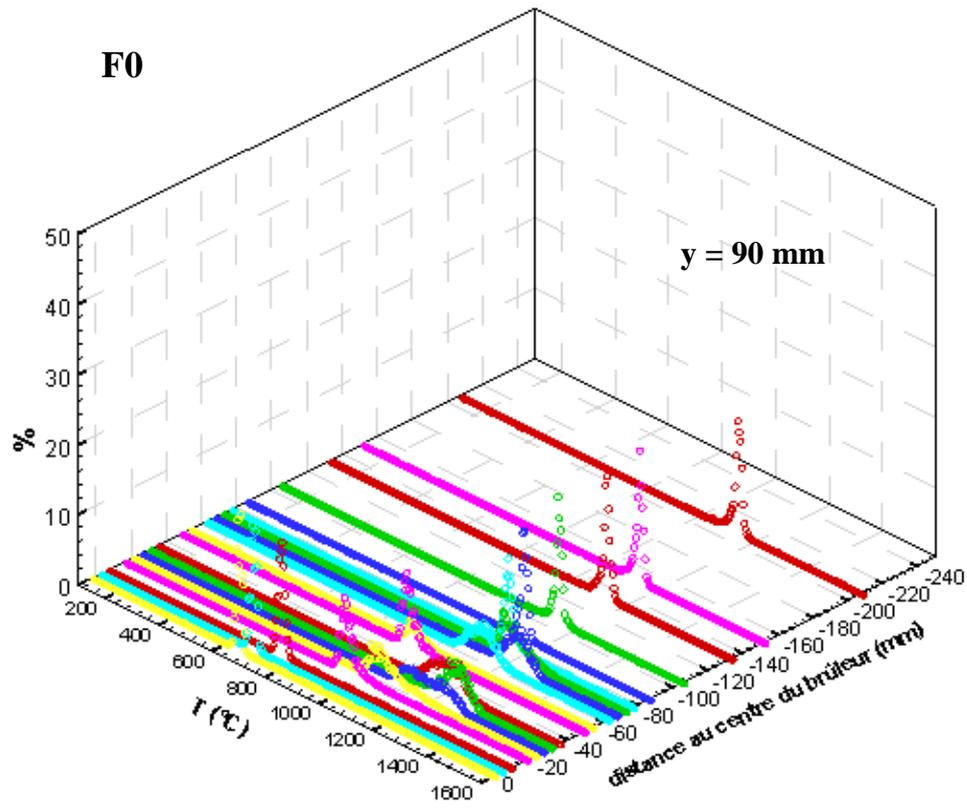
Une distribution bi-modale caractériserait une zone de réaction instable présentant un signal de température fluctuant entre gaz brûlés et gaz frais comme cela a déjà été observé dans une flamme turbulente de brûleur bluff-body (Neveu-1994). Dans notre cas, l'absence d'une telle distribution bi-modale montre que les zones de réaction ne sont pas minces. Le centre du jet d'air ( $x=0\text{mm}$ ) présente une forme gaussienne centrée sur la valeur moyenne de température. Elle a tendance à s'élargir en fonction de la distance au brûleur. De plus, son centre se décale vers les hautes températures et elle a tendance à s'élargir lorsque la distance axiale par rapport au brûleur augmente.

A  $y=90\text{mm}$  le signal de température, entre les jets et dans la couche de mélange du jet de combustible avec les produits de combustion présente une forme gaussienne élargie centrée autour d'une température supérieure à la température des gaz brûlés, ce qui met en évidence la présence d'une zone de combustion avec des fluctuations de température. Pour le cas sans préchauffage de l'air, à  $y=90\text{mm}$ , le signal de température ne présente qu'une forme de gaussienne très étroite, quelque soit la distance au brûleur, ce qui révèle une absence de fluctuation importante de température et donc de zone de réaction.

Dans la zone de combustion, pour les cas avec préchauffage de l'air, l'augmentation de la température ainsi que l'augmentation de la largeur de la gaussienne entre les jets révèlent la présence de la zone de réaction.

Contrairement aux cas avec préchauffage de l'air, la répartition des signaux de température, pour le cas sans préchauffage de l'air (F1), dans la zone de combustion ( $y=580\text{mm}$ ) montre que la température des recirculations est atteinte sans pic de température, par préchauffage progressif des jets. De plus, l'élargissement de la gaussienne met en évidence des fluctuations de température importantes dans la zone de combustion.

Enfin, dans la zone de gaz brûlés, quelque soit le cas, la température ne varie quasiment plus. Cependant, la gaussienne représentant le signal temporel de température, reste plus large dans la zone centrale où se situe le jet principal après combinaison.



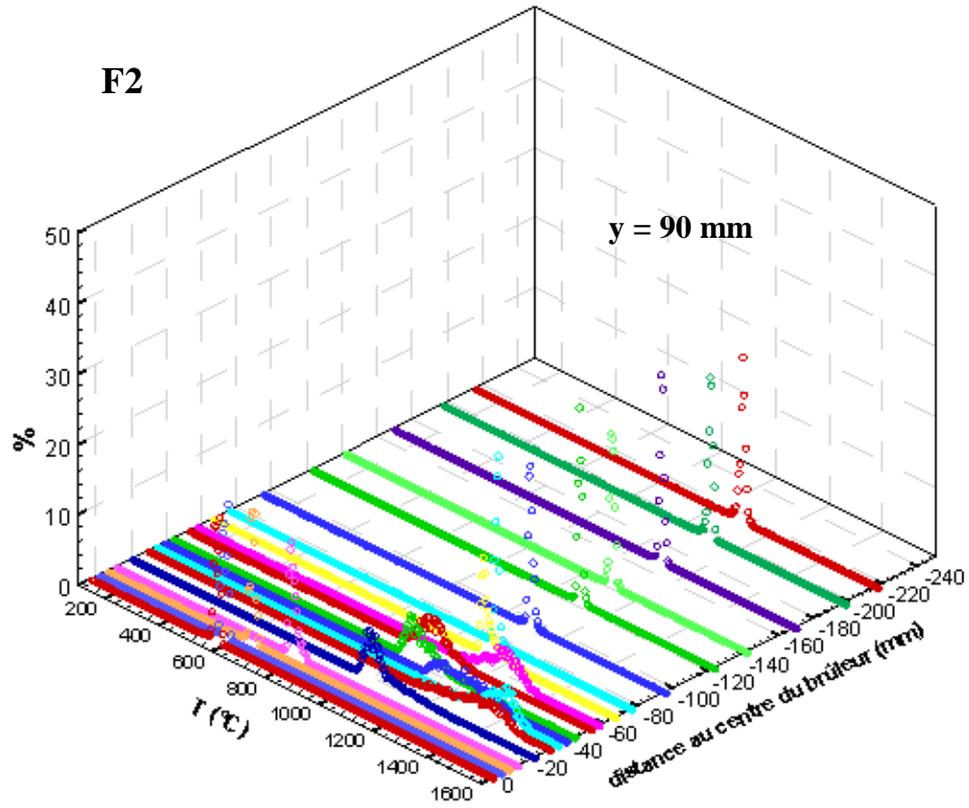
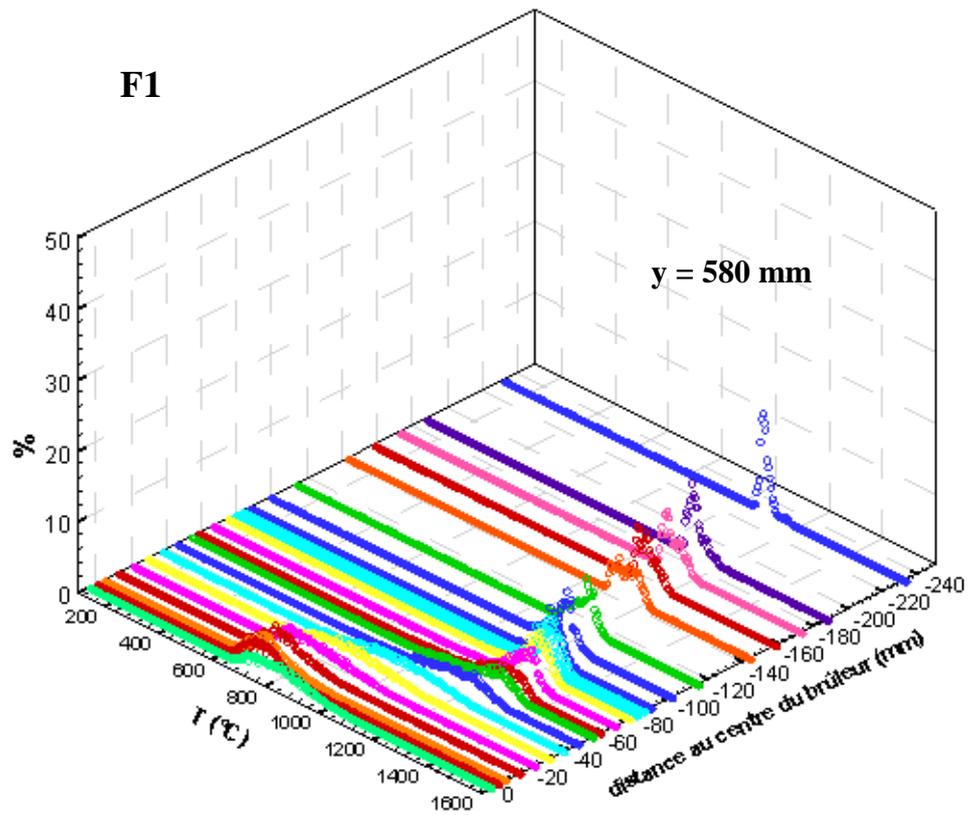
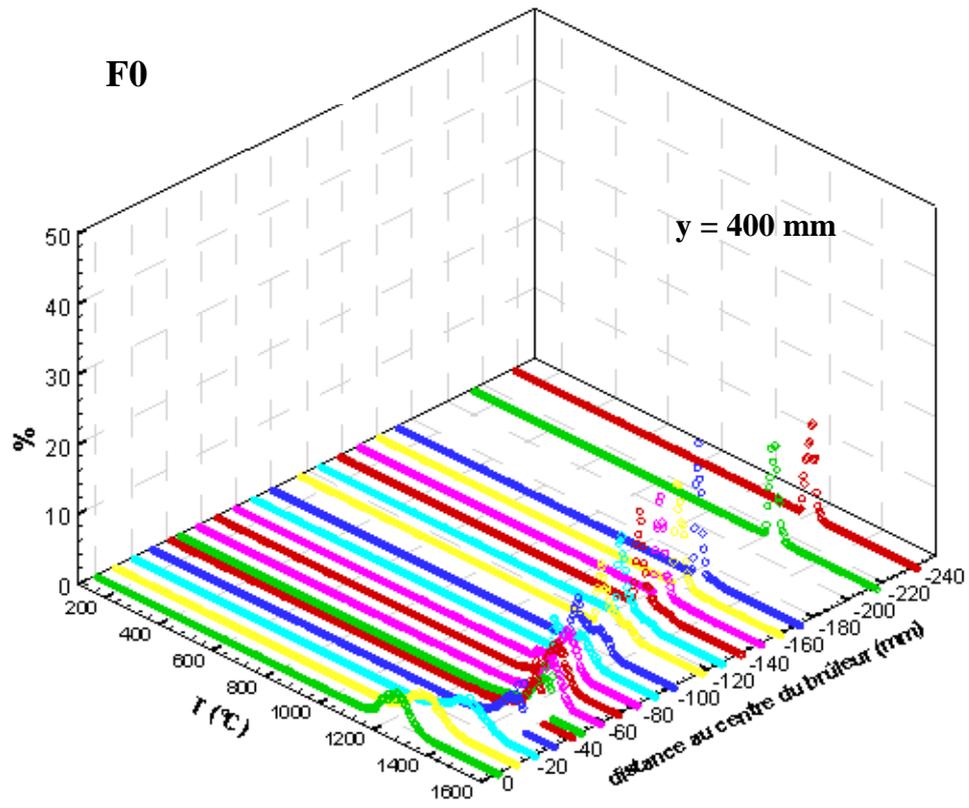


Figure 147 Evolution transversale des fonctions de distribution du signal de température pour la position  $y=90\text{mm}$ , dans la zone de fusion des jets.



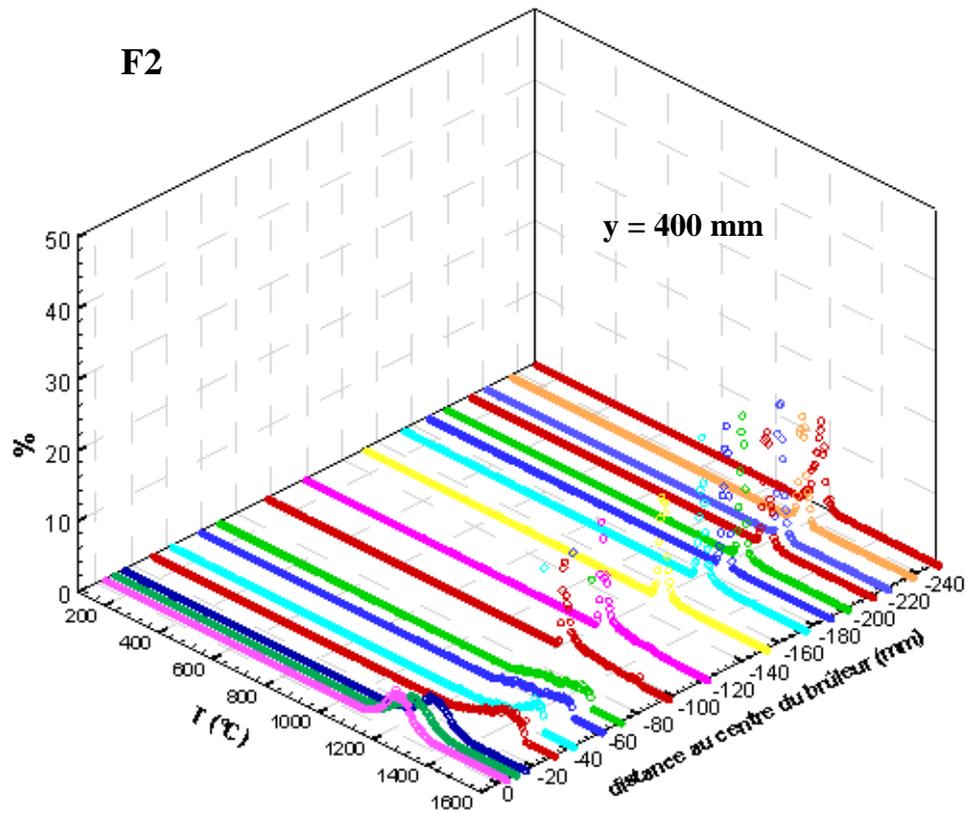
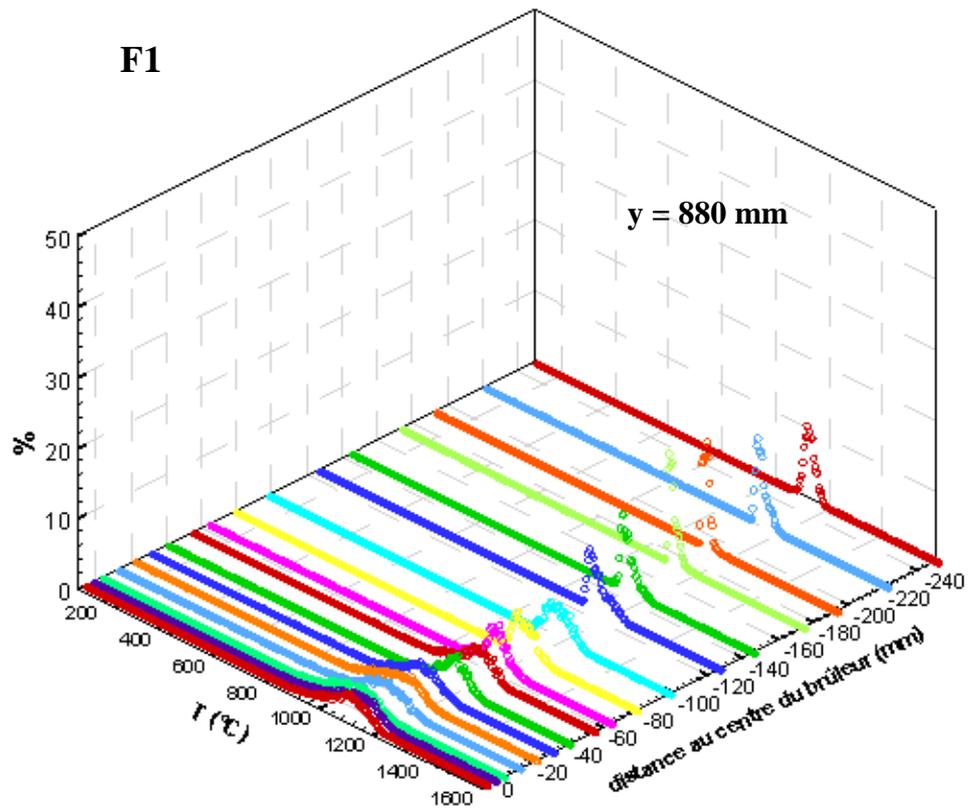
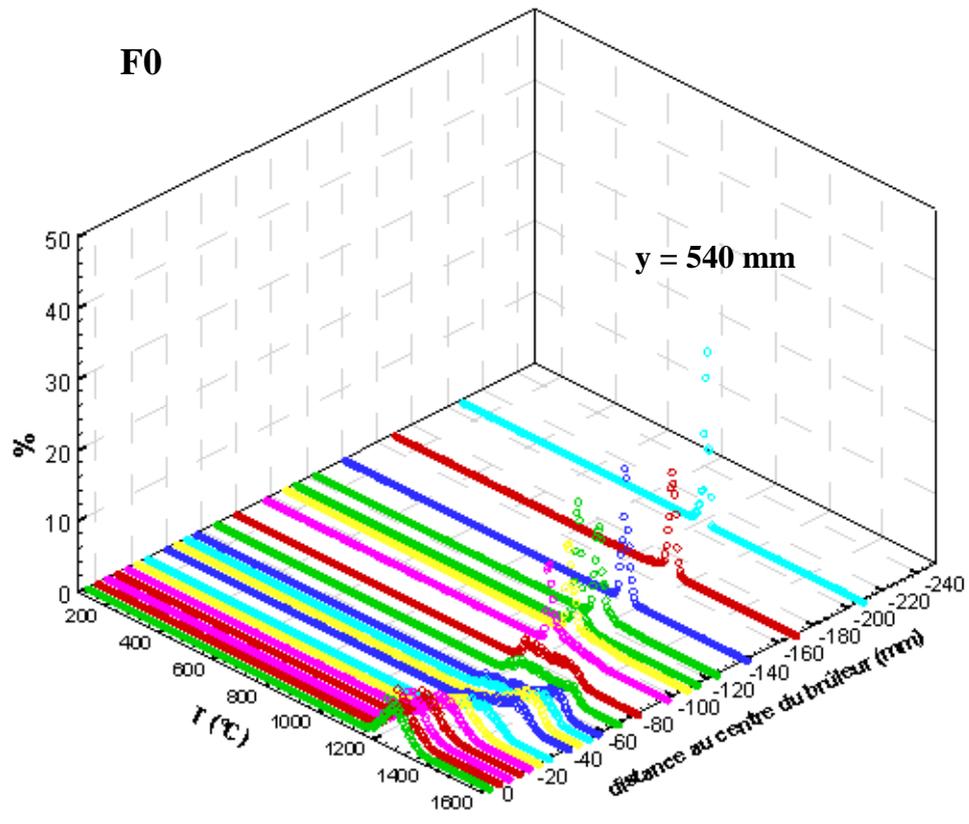


Figure 148 Evolution transversale des fonctions de distribution du signal de température pour la position dans les zones de réaction principales.



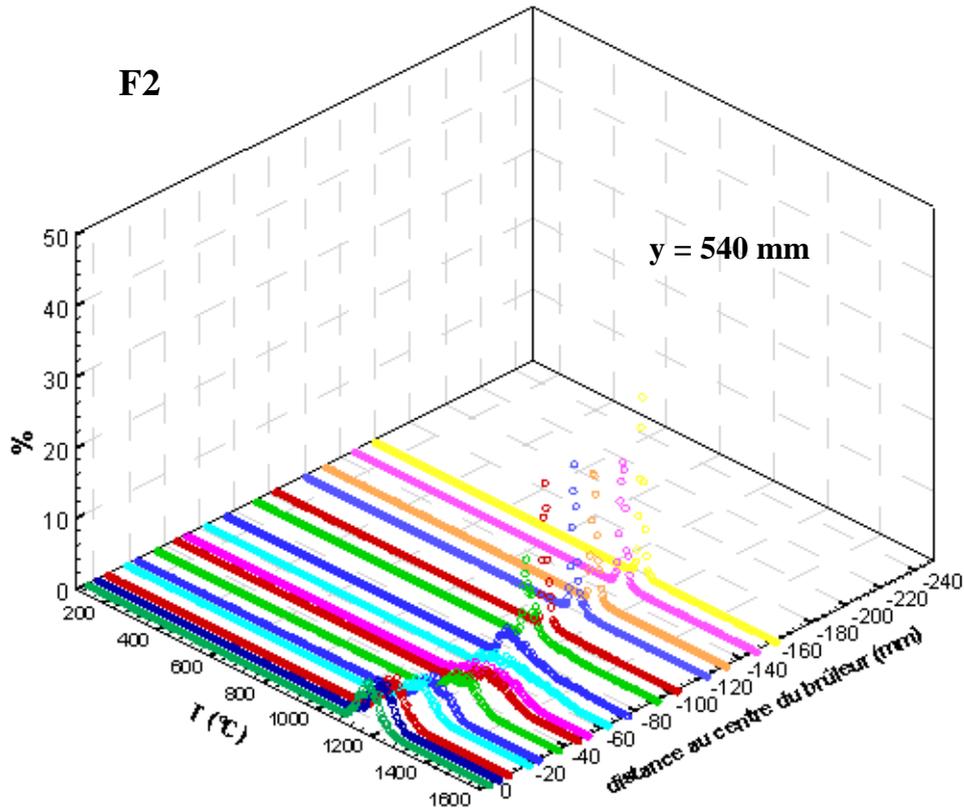


Figure 149 Evolution transversale des fonctions de distribution du signal de température après la zone de réaction principale.

Les mesures de vitesse par PIV ont permis de déterminer la position à partir de laquelle les jets interagissaient entre eux: c'est le point de fusion. Il se trouve entre les jets d'air et de méthane à une hauteur de  $y=90\text{mm}$ , quel que soient les conditions initiales, ie, la température de préchauffage du jet d'air et le taux d'aération. Cependant, dans le cas sans préchauffage de l'air, la combustion ne débute pas au point de fusion. Dans le paragraphe suivant, nous allons mettre en évidence les différences entre les trois cas et expliquer pourquoi la réaction ne débute pas au point de confluence pour le cas sans préchauffage de l'air.

Pour le cas de référence (F0), à la hauteur  $y=90\text{mm}$  et à la distance  $x=-21\text{mm}$  du brûleur, point situé dans la couche de mélange du jet d'air, après le début d'interaction avec le jet de combustible, la répartition de la température est bimodale. La courbe, Figure 150, montre deux pics de température : un pic important autour de  $1000^\circ\text{C}$  qui représente la température du mélange non réactif entre l'air et les gaz brûlés qui recirculent, et un pic d'amplitude plus faible autour de  $1150^\circ\text{C}$ , qui semble révéler une zone de réaction intermittente.

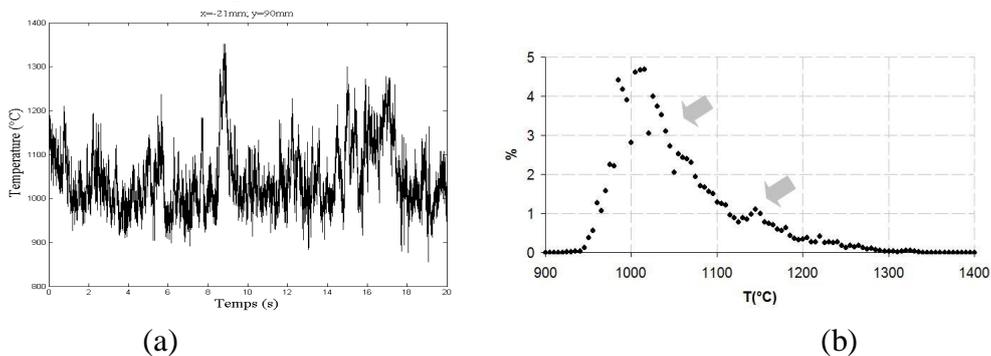


Figure 150 Signal de température (a) et sa répartition (b) au point  $x=-21\text{mm}$ ,  $y=90\text{mm}$  pour le cas F0.

L'imagerie rapide des zones de réaction (III.3-), résolue en temps, permet de suivre l'évolution des zones de réaction en sortie de brûleur.

L'allumage des zones de réaction en combustion peut se faire de deux manières :

- par auto-allumage, c'est-à-dire que la combustion débute toujours dans la même zone parce que les conditions propices sont réunies ou
- par propagation, c'est-à-dire que la zone de combustion débute en aval et s'étend ensuite à l'écoulement amont.

Malgré le faible signal, les séries d'images de la Figure 151 mettent plutôt en évidence le phénomène d'auto allumage. Les flèches jaunes permettent de suivre l'évolution spatiale d'une poche de gaz qui s'auto enflamme et est ensuite convectée par l'écoulement.

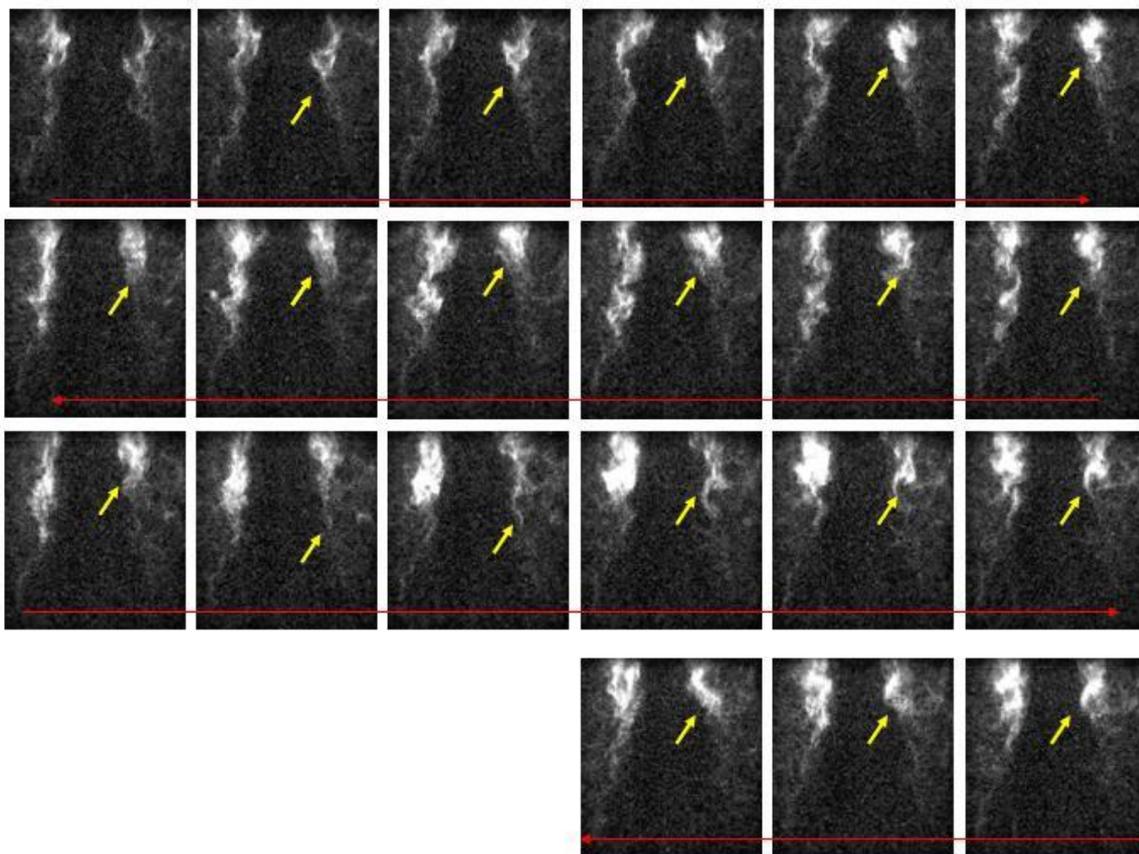


Figure 151 Suivi temporel d'images instantanées de chimiluminescence OH\*, cas F0, chaque image est séparée par  $\Delta T=0.71\text{ms}$ . Les flèches rouges indiquent le sens de lecture.

Le même phénomène a été observé sur d'autres installations différentes avec un jet de combustible dans un coflow de gaz brûlés chauds. Cette configuration de brûleur est très utilisée pour étudier les effets de la dilution par des produits de combustion. Gordon et al. avec des mesures simultanées de température et de LIF sur OH et sur CH<sub>2</sub>O sur la flamme de Cabra, ainsi que Oldenhof et al. avec de l'imagerie rapide des zones de réaction sur le brûleur DJHC (Delft Jet-in-hot-Coflow), en ont déduit que le mélange s'auto enflammait (Gordon-2008, Oldenhof-2009).

### IV.7- Cinétique de la combustion sans flamme

A partir des données expérimentales présentées précédemment, il est possible de déterminer la valeur de la température et des concentrations pour la position où les jets commencent à interagir. Les cartographies de concentration, de température, de richesse et de dilution, pour les trois cas, autour du point de fusion des jets sont données Figure 152 à Figure 154. Les résultats obtenus pour le point ( $x= 29\text{mm}$ ;  $y=90\text{mm}$ ) sont résumés Tableau 14.

Pour le cas F0, à 90mm du brûleur, hauteur se situant juste au début de la zone de réaction principale, la température du mélange est supérieure à la température d'auto-inflammation du méthane et les concentrations en oxygène et en méthane sont faibles, les réactifs sont donc fortement dilués par des inerts (le taux d'entraînement est déjà de 2.5).

Pour le cas F2, les concentrations en  $\text{O}_2$ ,  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  sont les mêmes que pour le cas de référence F0. La température est plus élevée et la forte concentration de CO révèle que, tout comme pour F0, la combustion a déjà commencé.

Pour le cas F1 sans préchauffage de l'air, au point de fusion, la température du mélange, ( $T=963^\circ\text{C}$ ) est supérieure à la température d'auto-inflammation du méthane dans l'air. Cependant, l'imagerie  $\text{OH}^*$  et les mesures de concentrations en CO ont montré que la zone de combustion ne débutait pas à cette hauteur. La température du mélange, en ce point, n'est pas à l'origine de l'absence de zone de réaction.

	T (K)	$\text{O}_2$ (%vol)	$\text{CO}_2$ (%vol)	CO (ppm)	NOx (ppm )	$\text{CH}_4$ (%vol)	$\text{H}_2\text{O}$ (%vol)	dilution
F0	1421	5,4	6,7	1401,4	3,5	3,0	13,5	2,49
F1	1236	3,9	7,3	9,7	2,2	4,0	14,7	3,40
F2	1553	5,6	6,5	4673,8	25,0	3,4	13,1	2,32

Tableau 14 Caractéristiques au point de fusion ( $x= 29\text{mm}$ ;  $y=90\text{mm}$ ) pour les trois cas F0, F1 et F2.

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

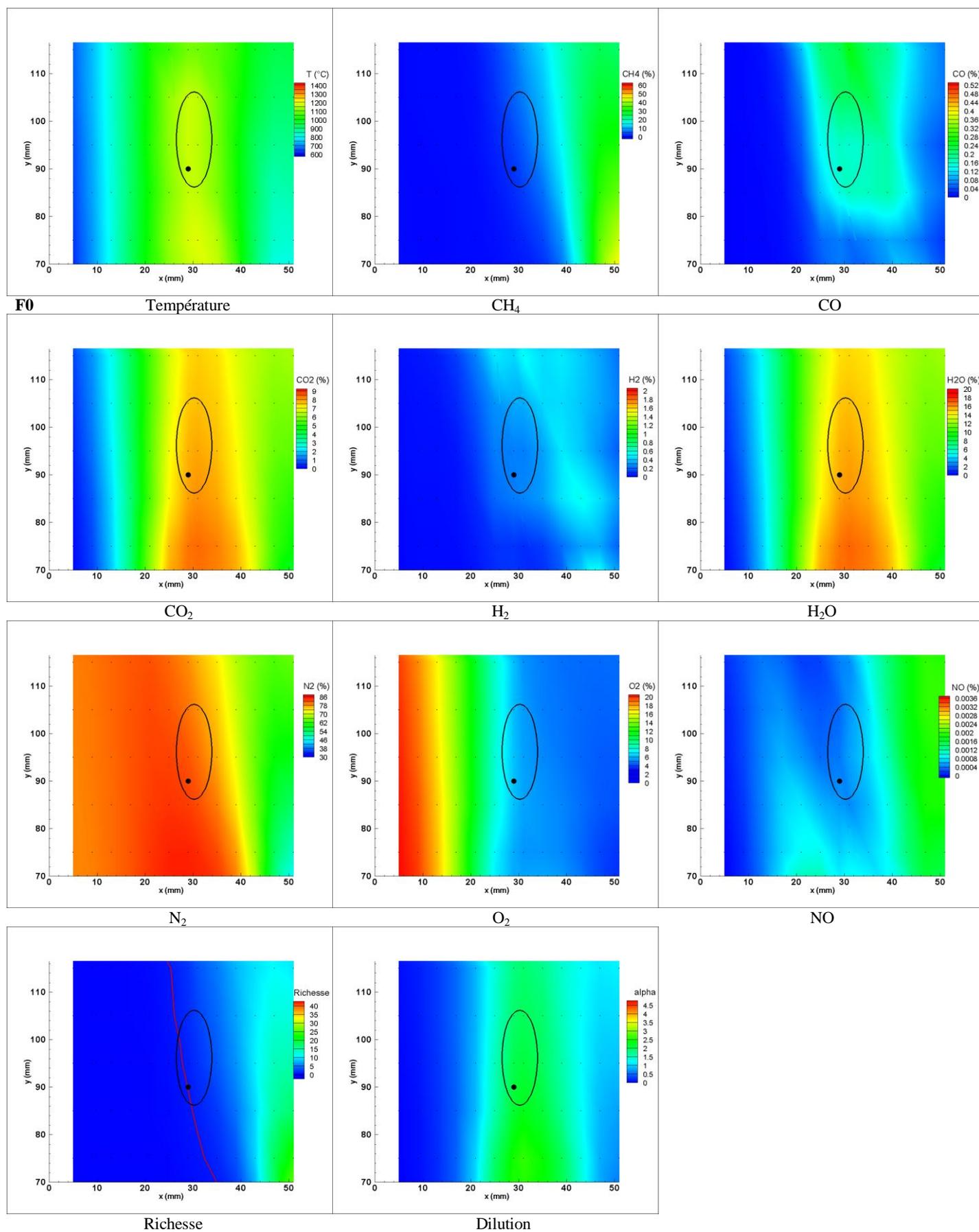


Figure 152 Température, concentrations des espèces, richesse (la ligne rouge représente la stoechiométrie) et dilution autour du point de fusion des jets (représenté par l'ellipse noire), cas F0. Point noir : point de fusion théorique des jets.

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

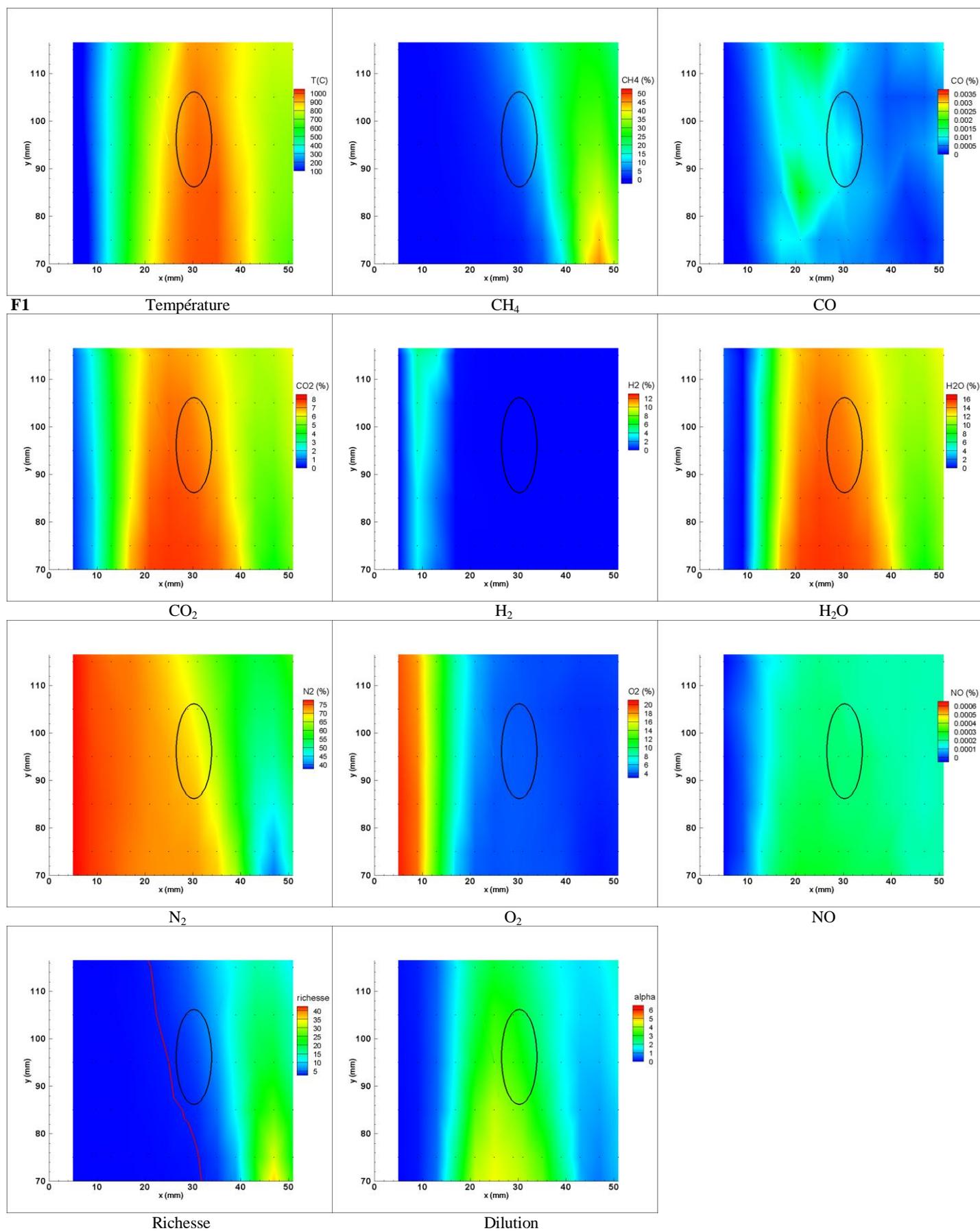


Figure 153 Température, concentration des espèces, richesse (la ligne rouge représente la stœchiométrie) et dilution autour du point de fusion des jets (représenté par l'ellipse noire), cas F1.

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

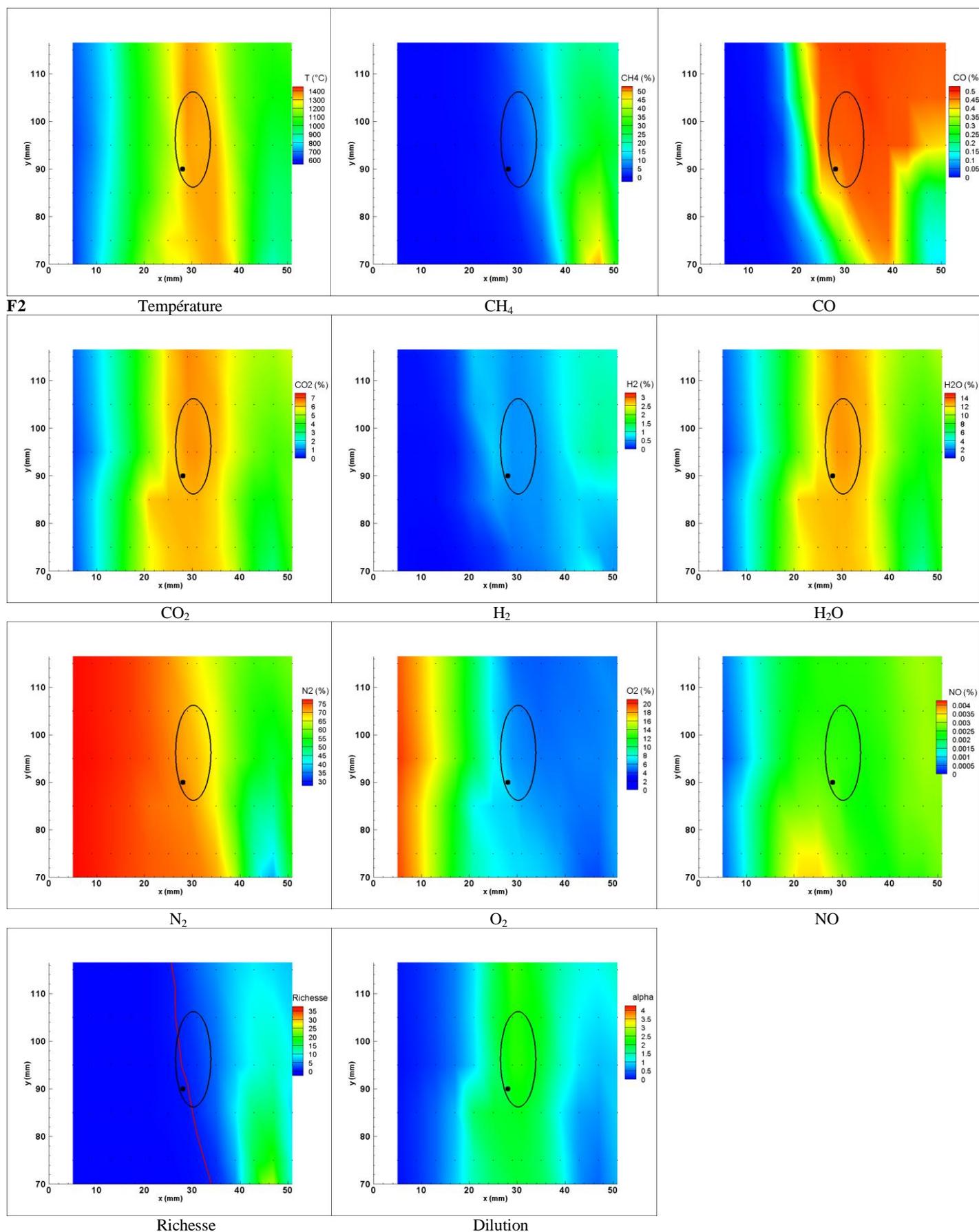


Figure 154 Température, concentration des espèces, richesse (la ligne rouge représente la stœchiométrie) et dilution autour du point de fusion des jets (représenté par l'ellipse noire), cas F2. Point noir : point de fusion théorique des jets.

Zabetakis et al. ont montré que, plus un mélange, à température et à pression ambiante, contenait d'inertes, plus ses limites d'inflammabilité diminuaient (Figure 155 -b). Le domaine d'inflammabilité du mélange dépend fortement de la composition chimique du diluant. De même, Liao (Figure 155 -c) a déterminé le domaine d'inflammabilité du méthane, dilué par des produits de combustion, il est évident que lorsque la dilution augmente la limite haute se réduit fortement. Par exemple, pour une fraction volumique de diluant  $\phi_r=0.3$  (calculée comme le rapport entre le volume de diluant ajouté et le volume total), la limite supérieure n'est plus qu'à 10% au lieu de 15%. Les mesures de température, concentration et vitesse ont permis de déterminer les débits massiques de jets de méthane et d'air : au point de fusion, le jet d'air a entraîné 1.5 fois son débit massique initial et le jet de méthane 6 fois (Figure 135 et Figure 139). En ce point, les réactifs sont donc fortement dilués par des inertes.

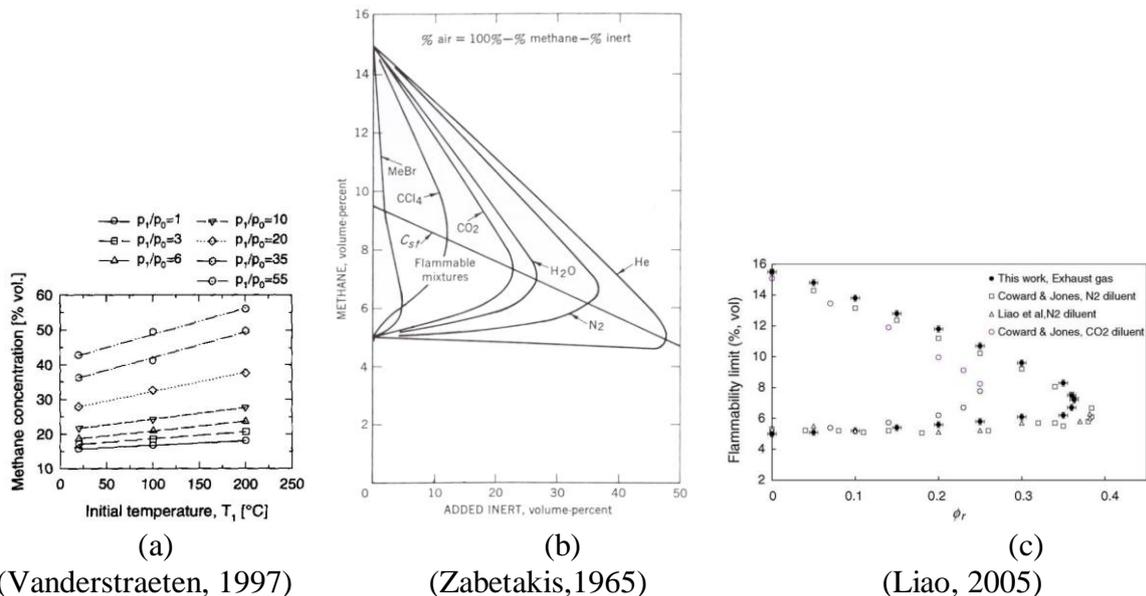


Figure 155 Limite supérieure d'inflammabilité du méthane dans l'air en fonction de la température du mélange et de la pression (Vanderstraeten-1997) et limite d'inflammabilité de différents mélanges de méthane / air / gaz inerte à 25°C et à la pression atmosphérique (Zabetakis-1965), limite d'inflammabilité du méthane et de l'air en fonction de la dilution par des gaz brûlés (points noirs), (Liao-2005).

Vanderstraeten a étudié la limite supérieure d'inflammabilité du méthane dans l'air en fonction de la température et de la pression du mélange, ses résultats sont résumés sur la Figure 155 (a) : plus la température du mélange augmente, plus la limite haute d'inflammabilité, déterminée par la concentration maximale en CH<sub>4</sub>, est grande. Les données expérimentales n'existent pas pour un mélange à 900°C, mais la limite haute d'inflammabilité est déjà à 18% pour T=200°C, on peut supposer qu'elle va continuer à augmenter avec la température. De plus, Cavaliere affirme que dans le cas d'une combustion diluée, comme les temps de résidence sont beaucoup plus longs que pour une combustion classique, la zone pour laquelle aucune réaction n'est possible, diminue (Cavaliere-2001).

#### IV. La combustion sans flamme au méthane

Même si en certains endroits la composition du mélange ne se situe pas dans les limites d'inflammabilité, la ligne stœchiométrique existe tout de même. La Figure 156 montre la position locale moyenne de la ligne stœchiométrique pour les trois cas étudiés. Les températures maximales et les émissions du radical OH\* ont bien lieu sur celle-ci pour les cas F0 et F2. Dans le cas sans préchauffage de l'air, le mélange devrait s'auto enflammer bien en aval du point de fusion lorsque les bonnes conditions sont réunies.

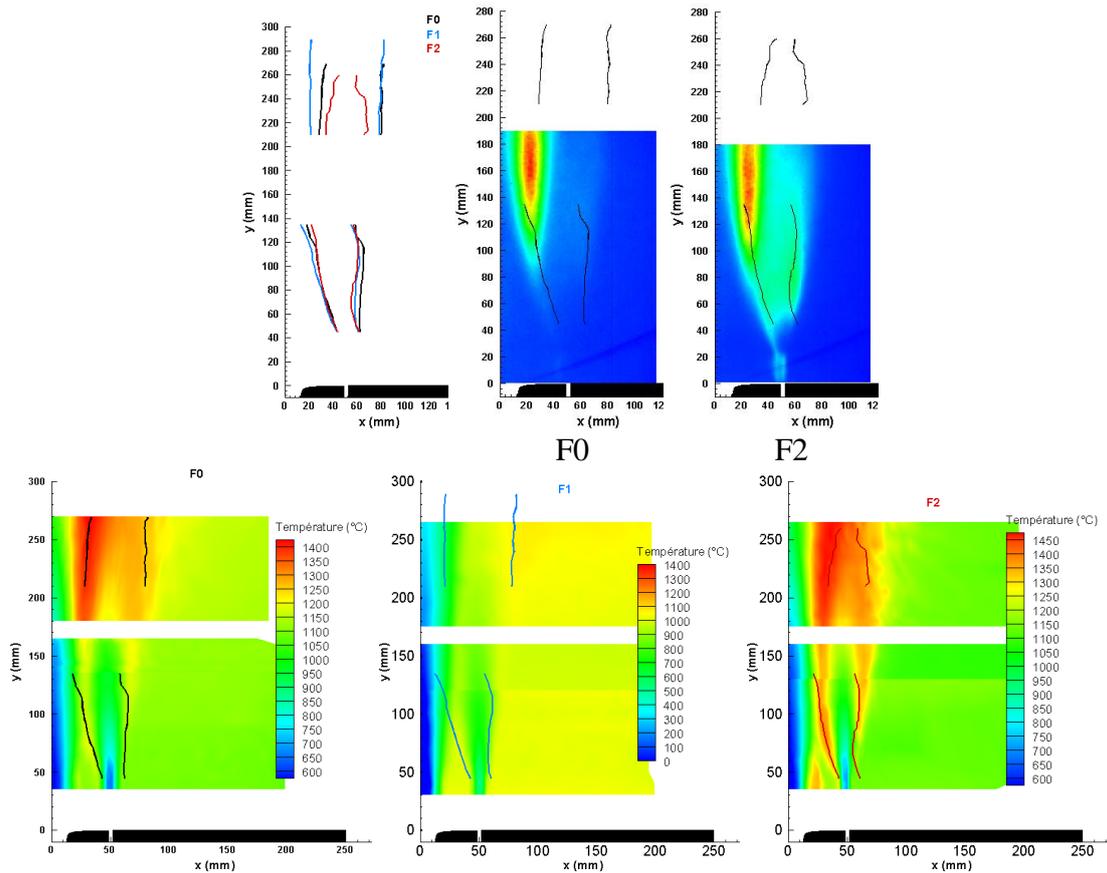


Figure 156 Position de la ligne stœchiométrique superposée à l'imagerie de chimiluminescence OH\* (en haut) et aux champs de température (en bas).

L'influence de la dilution sur les limites d'inflammabilité est supérieure à celle de la température du mélange. Par conséquent, en combustion diluée, et même pour des températures du mélange importantes, le domaine d'inflammabilité est peu étendu, il sera toujours supérieur à 5% et inférieur à 15%.

L'effet de la dilution sur la vitesse de flamme laminaire est représentée Figure 157. La vitesse de flamme laminaire calculée avec le logiciel Cantera® (cantera.org) qui utilise le mécanisme cinétique GRI-3.0 (berkeley.edu), pour un mélange méthane-air avec un excès d'air de 18% est représentée en fonction de la température initiale du mélange, sans dilution (en rouge), pour une dilution  $\alpha=2$  (en noir) et  $\alpha=4$  (en bleu). L'augmentation de la température du mélange augmente la vitesse de flamme laminaire. A contrario, la dilution diminue celle-ci.

La dilution par des inertes va donc également diminuer la vitesse de flamme laminaire qui passe à  $T=1200\text{K}$  de  $6.24\text{ m/s}$  à  $1.88\text{ m/s}$  pour  $\alpha=4$ .

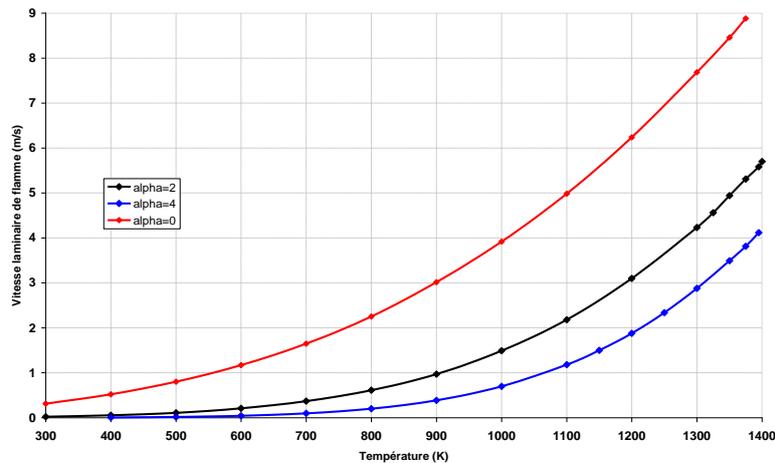


Figure 157 Evolution de la vitesse de flamme laminaire en fonction de la température initiale du mélange méthane-air avec un excès d'air de 18%, en fonction de la température initiale, pour différents taux de dilution, (Cantera®).

La Figure 158 montre l'évolution de la température adiabatique d'un mélange méthane-air avec un excès d'air de 18%, en fonction de sa température initiale et de sa dilution, calculée aussi avec le logiciel Cantera®. Les courbes noires représentent l'évolution de la température si le mélange n'est pas dilué, pour les températures initiales  $T=1200\text{K}$  et  $T=1400\text{K}$ , les courbes rouges (resp. jaunes) représentent l'évolution de la température lorsque le mélange est dilué par 2 (resp. 4) fois son volume initial en inertes (gaz brûlés issus de la combustion du méthane et de l'air). Le délai d'auto-inflammation est le temps nécessaire au mélange pour s'auto enflammer. Lorsque le mélange s'auto enflamme, il passe quasi instantanément de sa température initiale à sa température finale beaucoup plus élevée. Le délai d'auto-inflammation est donc le temps écoulé jusqu'à la brusque augmentation de température. Si la dilution diminue fortement la température maximale atteinte par le mélange, celle-ci est moins influencée par la température initiale pour de faibles dilutions. Au point de fusion, le mélange est dilué par plus de 2 fois son volume d'inertes (Tableau 14). Alors que la température adiabatique serait de l'ordre de  $2800\text{K}$ , sans dilution, elle a diminué à moins de  $2100\text{K}$  pour  $\alpha=2$ . Un décalage similaire est observé pour les températures atteintes dans la flamme.

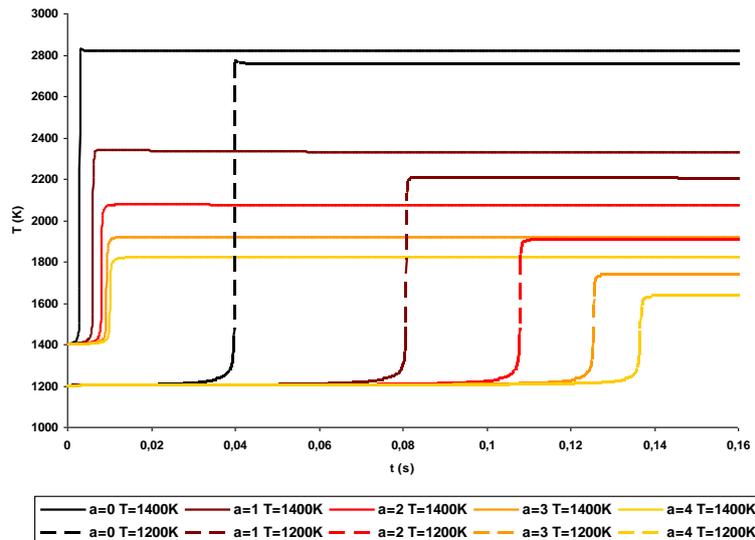


Figure 158 Délai d'auto-inflammation en fonction de la dilution des réactifs par des inertes et de la température du mélange, calculs réalisés avec Cantera®.

De plus, le délai d'auto inflammation augmente avec la dilution. Plus la température du mélange est faible, plus l'augmentation du délai d'auto inflammation due à la dilution est grande. Enfin, plus la température du mélange est faible, plus le délai d'auto inflammation est grand. En effet, en considérant un mélange méthane air dilué par 2 fois son volume initial, si la température initiale du mélange est 1400K, celui-ci mettra 0.0097s pour atteindre sa température finale, tandis que si le mélange est à 1200K, il atteindra sa température finale en 0.1086s, soit un temps plus de 10 fois plus grand.

Dans le cas sans préchauffage de l'air, au point de fusion, le mélange est à 1200K environ, même si l'impulsion plus faible du jet d'air, permet d'augmenter le temps de résidence, ce n'est pas suffisant pour que le mélange ait le temps de s'auto-enflammer. En effet, pour le cas sans préchauffage de l'air, le délai d'auto inflammation est 10 fois plus long que pour le cas avec préchauffage de l'air, alors que la vitesse n'est que 3 fois moins grande. C'est donc l'augmentation du délai d'auto-inflammation qui va générer le décalage vers l'aval de la zone de réaction principale.

*Le jet d'air de forte impulsion crée une zone de recirculation naturelle des gaz brûlés au sein du four. Ces derniers sont entraînés par les jets, provoquant leur dilution et leur préchauffage. Lorsque la flamme de diffusion existe autour des jets de combustible, elle les conditionne et permet d'assurer une couche de mélange, entre réactifs, très diluée et avec une température suffisante pour s'auto-enflammer.*

## IV.8- Conclusions

La combustion sans flamme appliquée aux brûleurs régénératifs est un régime de combustion qui permet de diminuer la consommation de combustible en utilisant la chaleur des gaz brûlés pour chauffer l'air de combustion tout en assurant des émissions très faibles de polluants.

L'étude paramétrique de l'influence du taux d'aération et de la température de préchauffage de l'air sur le régime de combustion sans flamme a montré une augmentation de la production de NOx avec l'augmentation de la température de préchauffage ou l'augmentation du taux d'aération. En parallèle, l'augmentation du taux d'aération provoque l'augmentation de l'intensité des zones de réaction, sans en favoriser une. La diminution de la température de

préchauffage de l'air provoque un décalage du début de la zone de réaction très en aval dans le four.

Cette étude paramétrique a permis d'isoler trois cas, F0, F1 et F2, qui ont été étudiés de manière détaillée grâce à des mesures de vitesse, de température et de concentrations.

Les mesures de vitesse par PIV ont permis de déterminer plusieurs caractéristiques de l'écoulement tel que le cône potentiel et l'ouverture des jets. Le taux d'aération et la température de préchauffage de l'air n'ont pas d'effet sur les caractéristiques géométriques des jets. Celles-ci sont seulement dépendantes de la configuration du brûleur. L'absence de zone de recirculation interne indique que la zone de réaction principale se stabilise dans la couche de mélange des jets au début de leur interaction.

Les jets n'interagissant pas entre eux avant le point de fusion, ils se diluent massivement avec les gaz brûlés recirculant à la température des parois par les processus d'entraînement de jets turbulents. Les mesures de concentrations réalisées par sonde de prélèvement, ont confirmé l'extrême dilution des réactifs par les gaz brûlés avant leur interaction.

Les mesures de température par thermocouple à fil fin ont mis en évidence les mêmes zones de réaction que les mesures de chimiluminescence OH\*. La résolution temporelle des mesures de température a aussi permis de mettre en évidence des zones de réaction assez larges présentant peu de pic et de fluctuations de température.

De plus, l'étude de la localisation des zones de réaction par imagerie rapide tend à laisser supposer que la combustion sans flamme est pilotée par un processus d'auto-allumage du mélange dilué dans la zone de fusion des jets.

Enfin, l'étude cinétique combinée aux mesures expérimentales montre que c'est le délai d'auto-inflammation qui pilote l'allumage de la zone de combustion. En effet, pour le cas sans préchauffage de l'air, l'augmentation du délai d'auto-inflammation ne permet pas au mélange de brûler dès le début de la zone de fusion des jets. Dans ce cas, on a une zone de réaction unique plutôt de type pré mélange qui débute très en aval du brûleur. On s'approche alors d'un régime "ultime" de combustion sans flamme sans aucun pic de température au delà de la température des fumées (proche de la température des parois), tout en assurant une oxydation complète du combustible (Figure 145). Les émissions de NOx, correspondant aux concentrations à l'équilibre de gaz brûlés sont alors les plus réduites possibles (inférieures à 10 ppm @ 3%O<sub>2</sub>).

## Chapitre V: La combustion sans flamme à l'hydrogène

*L'effet de la substitution d'une partie du méthane par de l'hydrogène, sur les zones moyennes de réaction, les températures des parois et des fumées, et les concentrations dans les fumées, a été étudiée. Les résultats ont montré que le régime de combustion sans flamme pouvait être atteint quelque soit la composition du combustible, même avec de l'hydrogène pur, avec et sans préchauffage de l'air, et ce, sans changement de la géométrie du brûleur. De plus, l'étude de l'influence du diamètre des injections de combustible confirme le rôle prépondérant de l'impulsion des jets réactifs dans le phénomène de dilution par les gaz brûlés.*

Les expériences multi fluides ont été réalisées en faisant varier la composition du combustible. Le combustible considéré est un mélange méthane-hydrogène. La proportion volumique d'hydrogène varie de 0 à 100%.

La température de préchauffage de l'air ainsi que le taux d'aération et la puissance ont été fixés.

L'étude porte sur l'évolution de la température des parois, des zones de réaction et sur la température et la composition des fumées.

L'évolution des zones de réaction en fonction de la composition du combustible, de la température de préchauffage de l'air et du taux d'aération a été étudiée grâce à l'imagerie de chimiluminescence du radical OH\*. Le montage expérimental utilisé est celui décrit paragraphe III.3-. La température des parois est mesurée à l'aide des thermocouples S du FOUR. Enfin, la concentration des fumées (O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> et les imbrûlés) a été enregistrée avec l'analyseur HORIBA EXSA 1500.

L'influence de l'hydrogène a été testée dans 3 conditions différentes de températures de préchauffage de l'air (25°C et 565°C) et de puissance (P=18.6 kW et P=20 kW), elles sont résumées sur le Tableau 15. Pour les cas tests F'0 et F'1, les mesures ont été réalisées avec

deux diamètres d'injection de combustible,  $d=3\text{mm}$  et  $d=5\text{mm}$ . La surpression dans le four est assurée (et vérifiée avec un micro manomètre électronique) en diminuant la section de la cheminée.

Cas-tests	P (kW)	$\lambda$ (taux aération)	Tair (°C)
F'0	18.6	1,18	565
F'1	18.6	1,18	25
P20	20	1,1	565

Tableau 15 Conditions opératoires.

Expérimentalement, les mesures ont été réalisées à partir du FOUR en fonctionnement au méthane pur. Lorsque la température des parois, la température et la concentration des fumées sont stables, l'émission du radical  $\text{OH}^*$  est enregistrée par chimiluminescence. Ensuite, on augmente le pourcentage volumique d'hydrogène dans le mélange combustible (par pas de 10%), après stabilisation des températures et des concentrations, on enregistre les images de chimiluminescence  $\text{OH}^*$ . La même procédure est répétée jusqu'au fonctionnement à l'hydrogène pur. Pour le cas F'0, plusieurs séries de mesures ont été réalisées dans un ordre aléatoire de manière à vérifier l'influence de l'ordre des mesures sur l'imagerie des zones de réaction ainsi que sur les concentrations des espèces présentes dans les fumées.

Pour les cas à l'hydrogène pur, le four a fonctionné pendant 30 à 60min sans présenter de problème de fonctionnement particulier même pour la puissance de 20kW.

Pour chaque condition expérimentale, la moyenne est calculée à partir de 300 images instantanées. Le gain d'intensification de la caméra est fixé à 250 et le temps d'exposition varie de 1 à 1000ms pour les cas sans préchauffage de l'air. Il est important de souligner que l'émission des zones de réaction, autour de 310nm est faible, elle est parasitée par l'émission des parois. Une partie du signal est perdue du fait de l'utilisation de la lame séparatrice. De plus, l'environnement chaud (juste derrière le hublot, la température avoisine les  $100^\circ\text{C}$ ) peut empêcher le module Peltier du capteur de la caméra de refroidir correctement. Dans ce cas, le bruit numérique du capteur devient important, ce qui accroît le bruit de fond sur l'image.

Les Figure 159 et Figure 160 répertorient le pouvoir calorifique inférieur (PCI : énergie thermique libérée par la réaction de combustion d'un kilogramme de combustible), le pouvoir comburivore ( $V_a$  : volume d'air nécessaire à la combustion théorique d'une unité de combustible,  $1\text{m}^3(\text{n})$ ), la masse volumique et la viscosité cinématique, ainsi que les débits et les vitesses des jets d'air et de combustible, en fonction du pourcentage volumique d'hydrogène. Les valeurs sont données dans des tableaux en annexe 5.

La vitesse et le débit du jet de combustible croissent exponentiellement avec le pourcentage d'hydrogène jusqu'à être 3 fois plus important lorsque l'installation fonctionne à l'hydrogène pur (en méthane pur, la vitesse d'éjection du combustible est de  $39.5\text{m/s}$  tandis qu'elle atteint  $131\text{m/s}$  en hydrogène pur). Le PCI et le pouvoir comburivore sont divisés par 3 en hydrogène pur par rapport à un fonctionnement au méthane pur. En parallèle, pour garder une puissance et un taux d'aération constant, le débit (et donc la vitesse) du jet d'air diminue puisque la quantité d'oxygène nécessaire pour la combustion décroît. Enfin, la masse volumique diminue et la viscosité cinématique augmente avec le pourcentage d'hydrogène dans le combustible.

## V. La combustion sans flamme à l'hydrogène

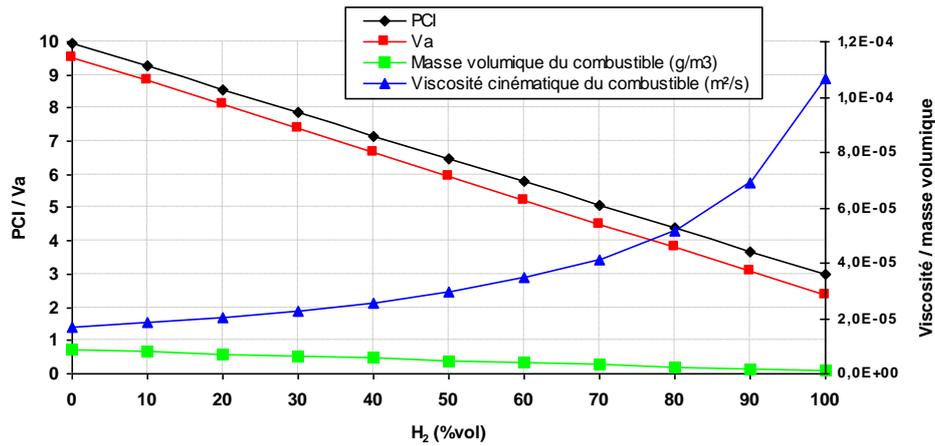


Figure 159 PCI, Va, masse volumique et viscosité cinématique en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le mélange combustible.

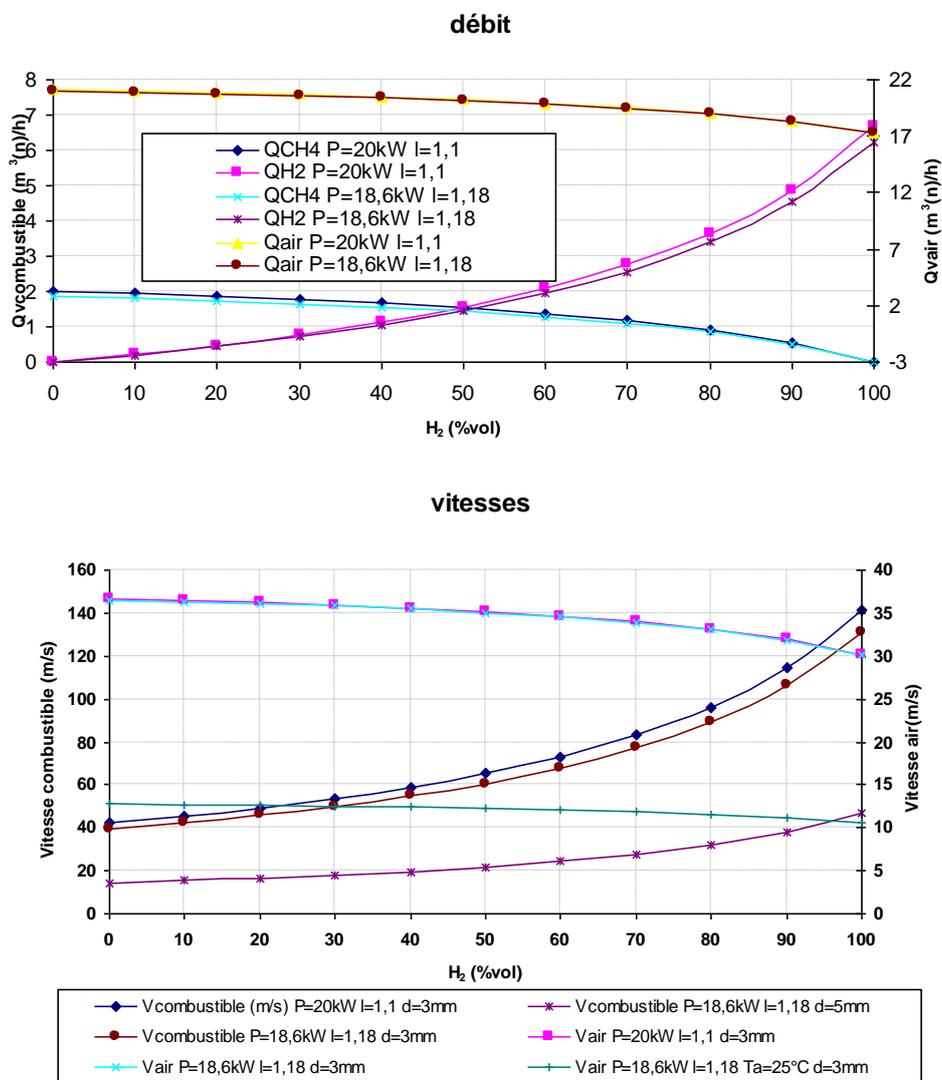


Figure 160 Débits et vitesses débitantes des jets d'air et de combustible, en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le combustible.

## V.1- Combustion sans flamme des mélanges CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> avec préchauffage de l'air

### V.1.1- Influence de l'ajout d'hydrogène sur la structure et la position des zones de réaction

La Figure 162 présente les images moyennes de chimiluminescence obtenues pour le préchauffage de l'air T=565 °C et le taux d'aération λ=1.18, en fonction du pourcentage volumique d'hydrogène dans le combustible. A partir de ces images moyennes, il est possible d'évaluer le niveau du signal d'émission des zones de réaction et des parois. Leurs évolutions, sont tracées sur le graphique Figure 161.

L'ajout d'hydrogène provoque une modification du rayonnement des parois et donc du signal de fond sur l'imagerie moyenne de chimiluminescence, c'est pourquoi ce rayonnement moyen est soustrait à l'évolution du signal des zones de réaction principale et secondaire.

L'intensité de la zone de réaction principale augmente de manière très importante dès qu'on ajoute 10% d'hydrogène dans le combustible. En effet, l'intensité moyenne dans la zone de réaction principale est triplée dès l'ajout de seulement 10% d'hydrogène. Ensuite à partir de 30% d'H<sub>2</sub> elle diminue, elle est probablement liftée vers le haut du fait des fortes vitesses (à 40% d'H<sub>2</sub>, la vitesse du jet de combustible atteint 60m/s).

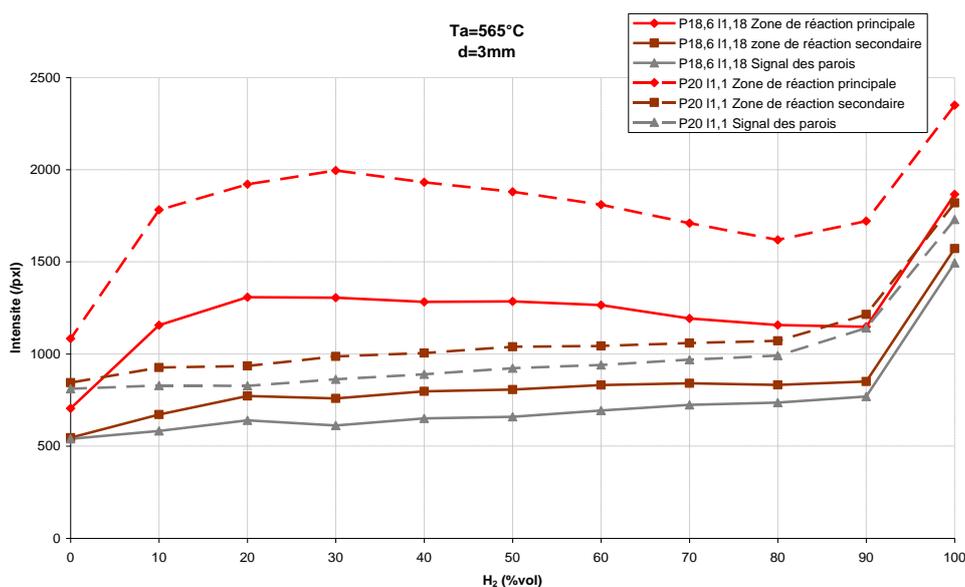


Figure 161 Evolution de l'intensité des zones de réaction et du signal des parois en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le mélange combustible, Ta=565°C.

En revanche, la zone de réaction secondaire (entre les jets de combustible et l'oxygène présent dans les gaz recirculant) devient nettement discernable dès l'ajout de 10% d' $H_2$  et son intensité croît avec le pourcentage d'hydrogène: la réactivité du mélange combustible est augmentée par l'ajout d'hydrogène, en effet, l'hydrogène est un composé nettement plus réactif que le méthane (la vitesse de flamme laminaire de l'hydrogène dans l'air est 6 fois plus grande que la vitesse de flamme laminaire du méthane, cf. I.3-).

A 10% d' $H_2$ , il est possible d'observer une extinction locale de la zone de réaction secondaire en sortie de brûleur probablement du fait d'un fort étirement entre le jet de combustible à grande vitesse et les gaz brûlés environnant à vitesse quasi nulle. Cette extinction locale disparaît pour 10% d' $H_2$ : malgré l'augmentation de la vitesse du jet de combustible (+7m/s), le mélange est suffisamment réactif pour empêcher l'extinction locale de la flamme par étirement.

Finalement, en fonctionnement à l'hydrogène pur, le rayonnement des parois est très intense, et l'intensité des zones de réaction continue à augmenter.

La zone de réaction principale est décalée vers le haut par les fortes vitesses d'injection qui contrebalancent la plus forte réactivité du mélange à forte concentration en hydrogène. Cependant, la combustion obtenue présente les mêmes caractéristiques globales que la combustion sans flamme au méthane pur et le régime de combustion reste très dilué.

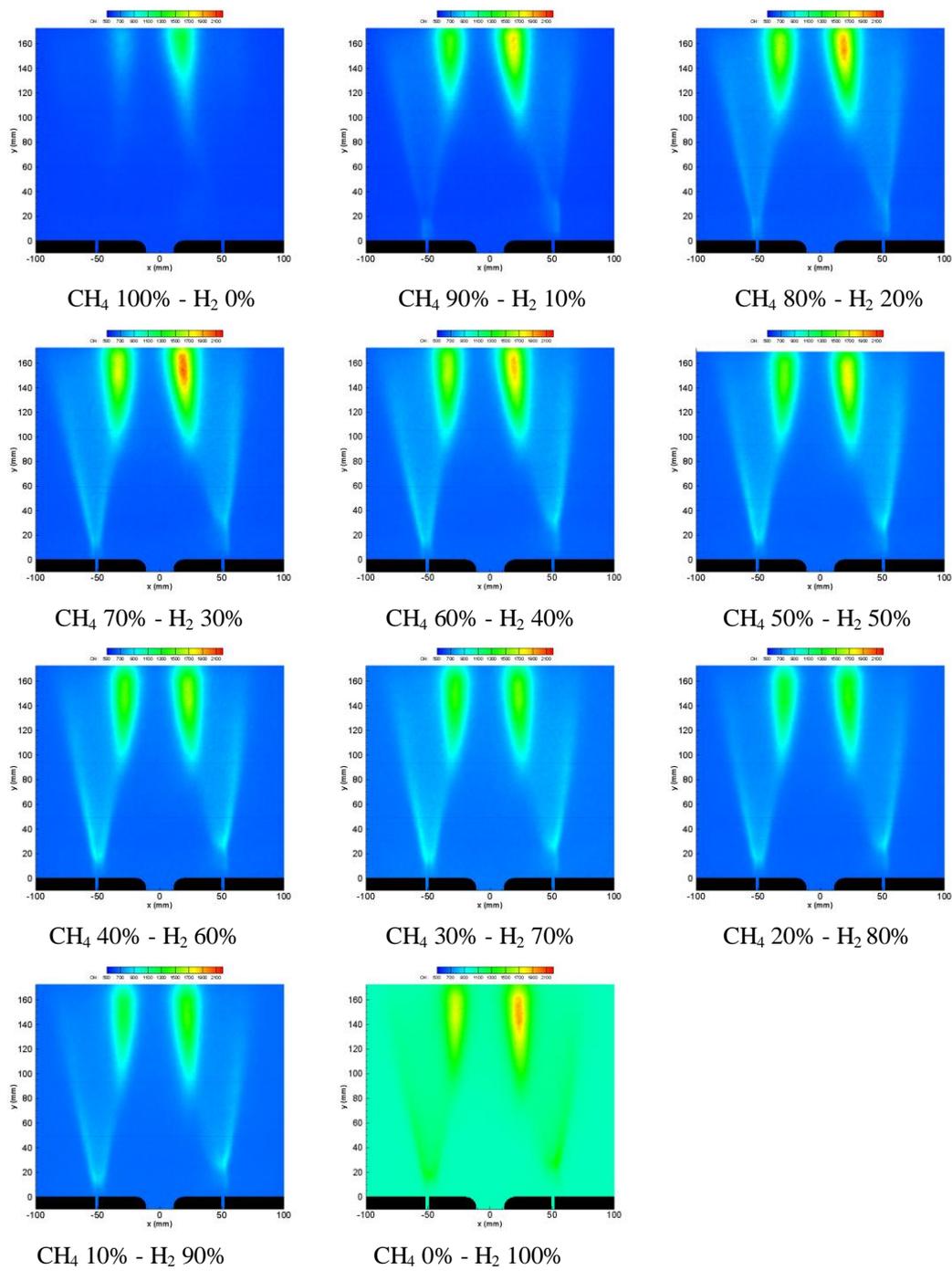


Figure 162 P=18.6kW  $\lambda=1.18$  Ta=565°C, diamètre injecteur de combustible =3mm.

### V.1.2- Influence de l'ajout d'hydrogène sur les températures et les concentrations des fumées

L'évolution de la température des fumées en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le mélange combustible est représentée Figure 163. La température des fumées augmente en fonction du pourcentage d'H<sub>2</sub>. Ces fumées, lorsqu'elles recirculent, viennent chauffer les parois du FOUR. C'est pourquoi, la température des parois augmente avec le pourcentage d'hydrogène. De même, le signal des parois s'intensifie lorsque le pourcentage d'H<sub>2</sub> croît : leur rayonnement dans le visible étant proportionnel à la température du réfractaire. La variation de température des parois ( $\Delta T=50-55^{\circ}\text{C}$ ) est la même que la variation de température des fumées.

La Figure 164 résume les concentrations en NO<sub>x</sub>, O<sub>2</sub> et CO<sub>2</sub> mesurées dans les fumées en fonction du pourcentage volumique d'hydrogène dans le combustible. Sur la même figure, les concentrations théoriques dans les fumées, pour une combustion complète, sont représentées en tirets.

La concentration en O<sub>2</sub> mesurée augmente avec le pourcentage d'hydrogène.

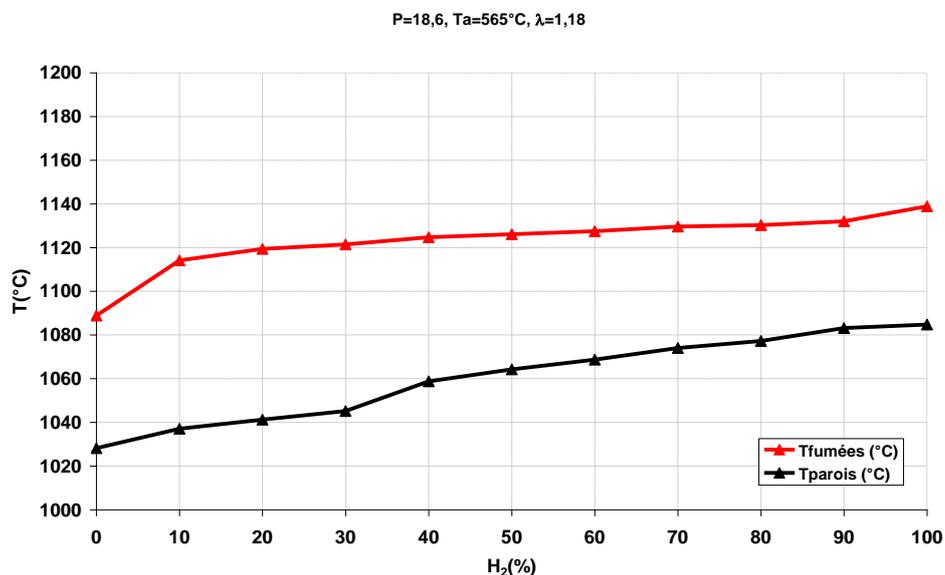


Figure 163 Température des parois et des fumées, P=18.6kW, Ta=565°C λ=1.18, d=3mm

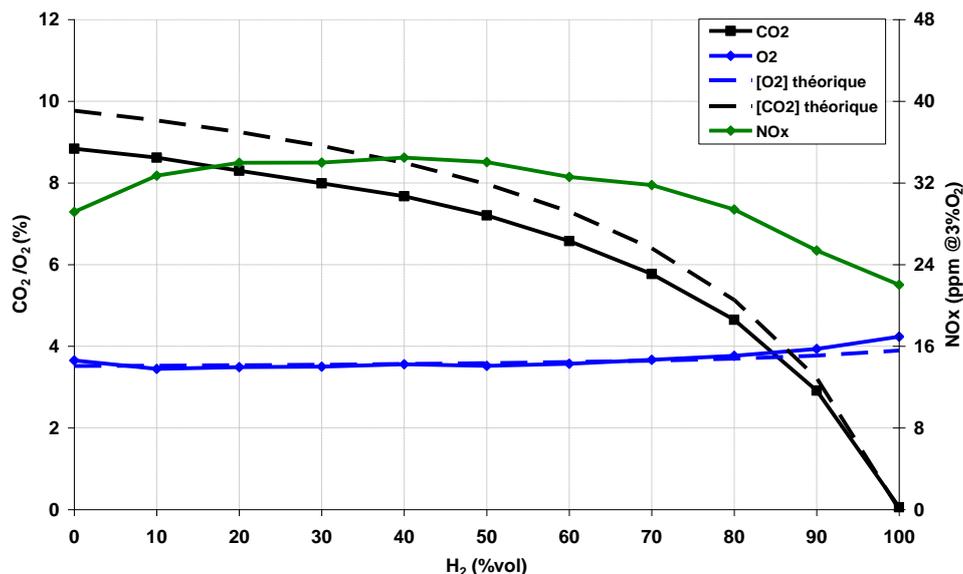


Figure 164 Concentration des fumées, P=18.6kW, Ta=565°C λ=1.18, d=3mm

La concentration en CO<sub>2</sub> dans les fumées diminue lorsque l'on augmente le pourcentage d'hydrogène. En effet, en augmentant le pourcentage d'hydrogène, on diminue celui de méthane, donc le combustible contient moins d'atome de carbone, la réaction de combustion produit moins de CO<sub>2</sub> (cf. I.3-). On observe une différence entre les valeurs mesurées et les valeurs théoriques. Cet écart a été retrouvé en dépit de plusieurs séries de mesures, et de la vérification de l'étalonnage de l'analyseur. Il semble dû à un dysfonctionnement de l'analyseur de CO<sub>2</sub>.

La concentration en NO<sub>x</sub> augmente légèrement jusqu'à 40%, puis diminue jusqu'à 100%. On retrouve les mêmes évolutions que celles mises en évidence par imagerie de chimiluminescence. D'abord, une augmentation intense des zones de réaction qui laissent supposer une augmentation du NO thermique. Ensuite, après 40%, les zones de réaction se déplacent plus en aval : le régime de combustion est de plus en plus dilué. Les émissions de NO<sub>x</sub> diminuent légèrement malgré la plus forte réactivité du mélange à forte teneur en H<sub>2</sub>.

Même si le PCI diminue lorsque H<sub>2</sub> augmente, le débit et la réactivité du combustible sont suffisamment importants pour provoquer une augmentation de la température des fumées (et donc une augmentation de la température dans les zones de combustion). Cependant, la combustion est suffisamment diluée pour éviter la création de point très chaud et donc la formation d'oxydes d'azote. En effet, lorsque le combustible contient de l'hydrogène, la vitesse de flamme laminaire augmente (Ilbas-2006, Huang-2006) : la combustion est plus stable (la vitesse de flamme laminaire et les limites d'inflammabilité augmentent (Wierzbka,-2000)). La dilution par le CO<sub>2</sub> (présent dans les gaz brûlés qui recirculent) diminue la vitesse de flamme laminaire (Natarajan-2007), ce qui permet de contrebalancer l'effet de l'ajout d'hydrogène tant que le brûleur ne fonctionne pas à l'hydrogène pur.

La Figure 165 et la Figure 166 représentent respectivement l'évolution du volume des fumées (sèches et humides) et l'évolution du taux de recirculation des gaz brûlés dans le FOUR en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le combustible.

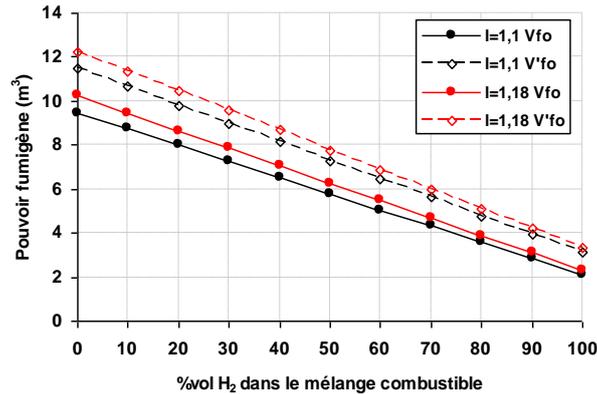


Figure 165 Pouvoir fumigène : volume des fumées sèches et humides.

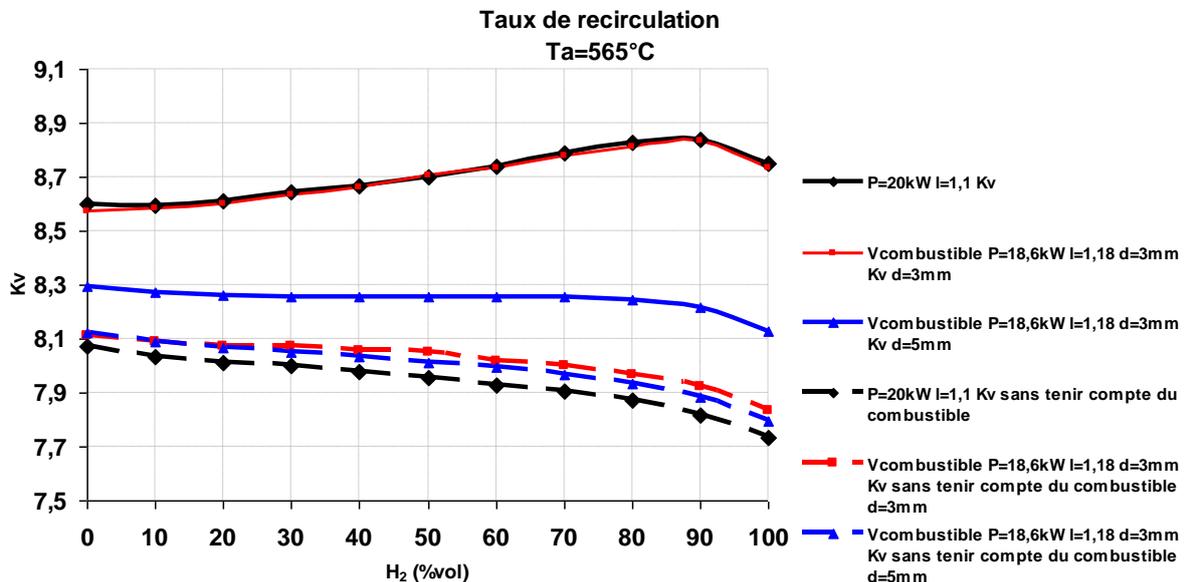


Figure 166 Evolution du taux de recirculation dans le four en fonction du pourcentage volumique d'hydrogène dans le mélange combustible, en tenant compte et sans tenir compte de l'impulsion du jet de combustible avec préchauffage de l'air de combustion.

La combustion à l'hydrogène produit plus d'eau que la combustion au méthane pur (le volume d'eau produit par la combustion d' 1m<sup>3</sup> de méthane est de 12.24 m<sup>3</sup> représentant 16.3% du volume des fumées, tandis que le volume d'eau produit par la combustion d' 1m<sup>3</sup> d'hydrogène est 3.31m<sup>3</sup>, ce qui représente 30.2% du volume des fumées, cf. annexe 4), cependant, le volume des fumées, qu'il soit calculé à partir des fumées sèches ou humides, décroît lorsque le pourcentage d'hydrogène augmente.

La diminution du volume de fumées permet de réduire les pertes de chaleur puisque pour une puissance constante, le volume à chauffer est moindre. La température des parois augmente, ce qui laisse supposer que la combustion dans le FOUR s'intensifie, elle dégage plus de chaleur : la température locale augmente donc en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le combustible. L'ajout d'hydrogène réduit l'énergie rayonnée par la zone de réaction. En effet, l'augmentation du volume d'hydrogène réduit la formation de CO<sub>2</sub>. L'augmentation du

volume d'eau dans les fumées, et donc l'augmentation de l'énergie rayonnée due à cette espèce n'est pas suffisante pour contrebalancer la diminution du rayonnement due à la diminution du CO<sub>2</sub> (Choudhuri, 2003). La température locale augmente donc non seulement du fait de la forte énergie spécifique de l'hydrogène mais aussi à cause de la réduction des pertes par rayonnement (Parente, 2008) et de la réduction des pertes de chaleur dans les fumées.

Le taux de recirculation (Figure 166) est plutôt stable (compris entre 8.6 et 8.9) même s'il présente une légère augmentation due à l'augmentation de l'impulsion des jets de combustibles. L'impulsion du jet d'air décroît lorsque le pourcentage d'H<sub>2</sub> dans le mélange augmente puisque le débit d'air diminue, de même l'impulsion des fumées diminue parce que leur volume et leur masse volumique diminuent. En revanche, l'impulsion des jets de combustibles augmentent puisque leur vitesse est multipliée par trois lors du fonctionnement à l'hydrogène pur. Finalement, les diminutions des impulsions des jets d'air et des fumées sont contrebalancées par l'augmentation de l'impulsion du jet de combustible (qui ne peut pas être considérée comme négligeable): le taux de recirculation varie donc peu en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le mélange combustible.

Remarque :

- Aucune zone de réaction n'est visible à l'œil, cependant, pour le cas à l'hydrogène pur, le réfractaire autour des injections de combustible devient très lumineux, ce qui laisse supposer une zone de réaction très intense et attachée aux injecteurs. Il est donc probable que cette zone de réaction serait visible à l'œil (une flamme d'hydrogène bleue très pale), en l'absence de rayonnement des parois du four, comme déjà observé dans des études précédentes (Villani-2006, Slim-2005).
- Les mêmes évolutions, que ce soit en termes de concentration et de température (Figure 161 et Figure 168) ou en termes de position, d'intensité et de structure des zones de réaction (Figure 169), peuvent être observées pour une puissance de 20kW et un taux d'aération de 1.1.

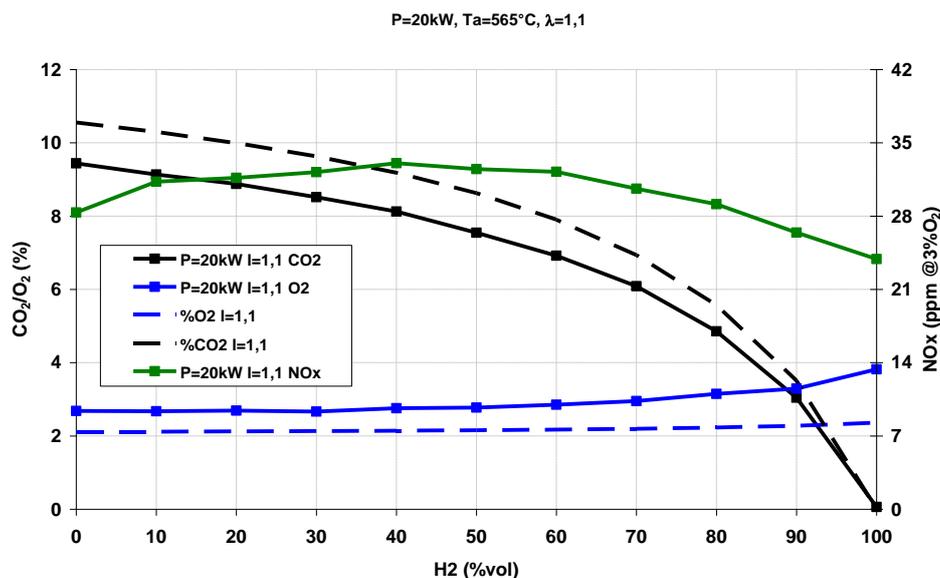


Figure 167 Concentrations des fumées, P=20kW, Ta=565°C, λ=1.1, d=3mm

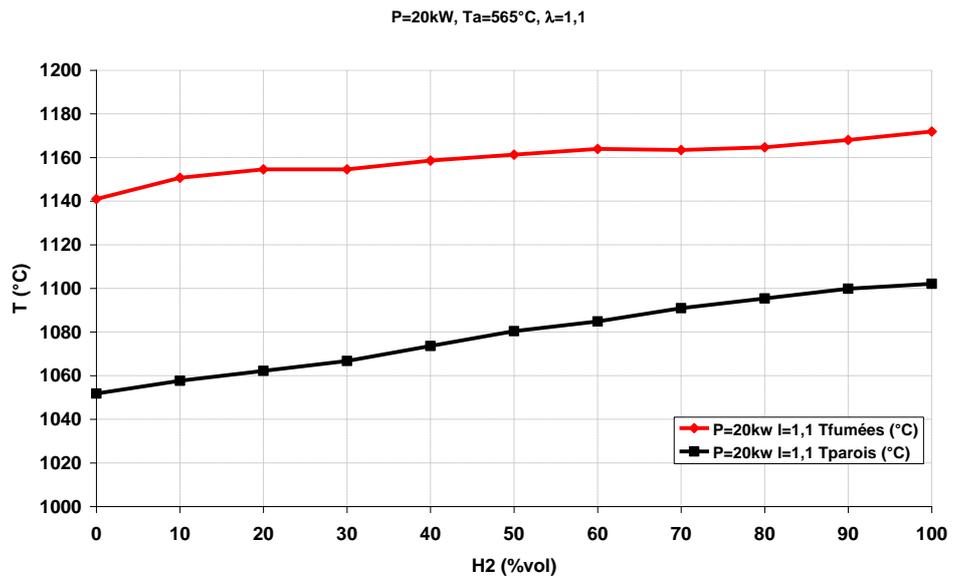


Figure 168 Température des parois et des fumées, P=20kW, Ta=565°C, λ=1.1, d=3mm

## V. La combustion sans flamme à l'hydrogène

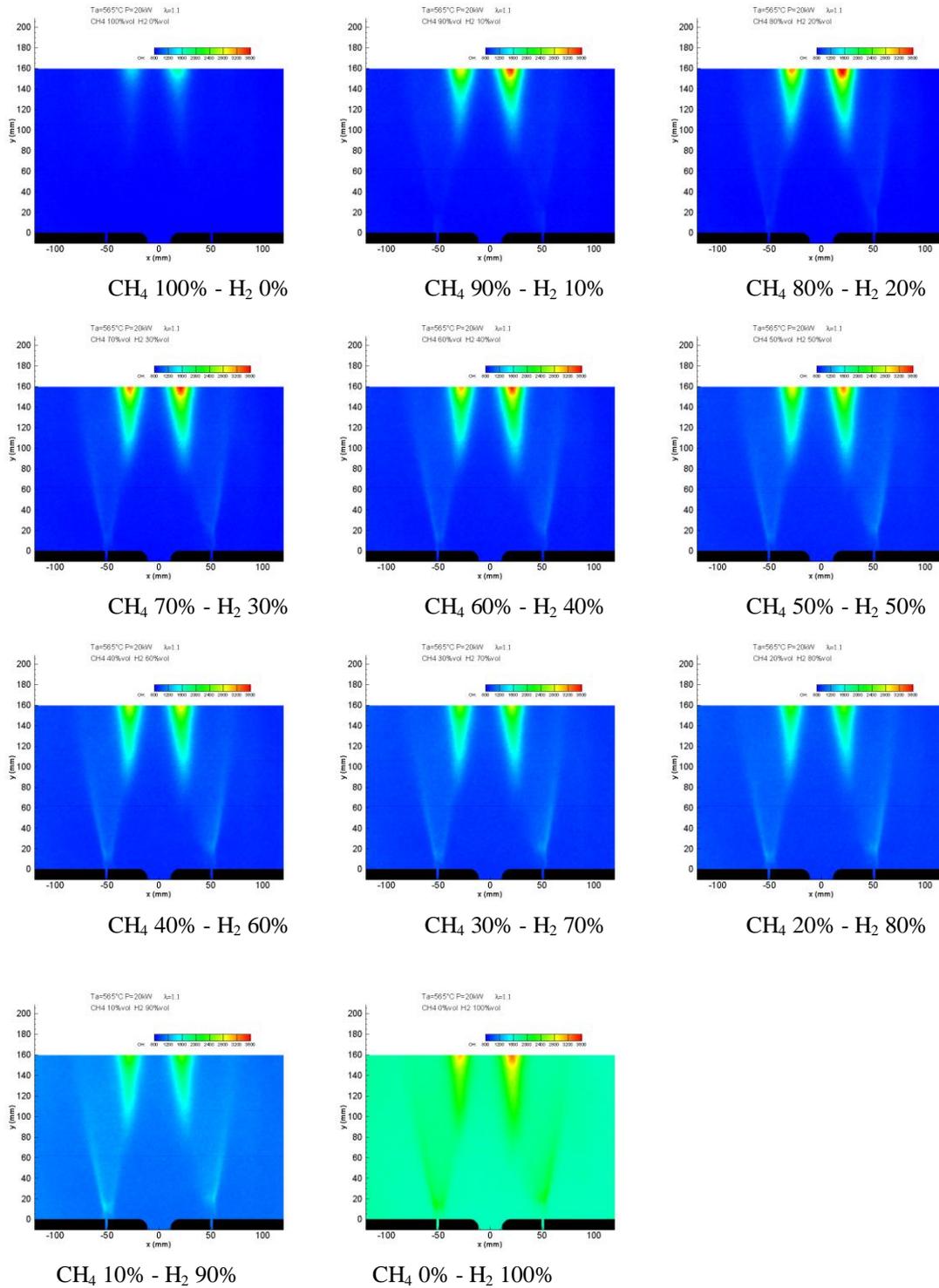


Figure 169  $P=20\text{kW}$ ,  $\lambda=1.1$ ,  $d=3\text{mm}$ .

## V.2- Cas sans préchauffage de l'air

### V.2.1- *Structure et position des zones de réaction*

La Figure 170 présente les images moyennes de chimiluminescence du radical OH\* pour le cas sans préchauffage de l'air et un taux d'aération  $\lambda=1.18$ . Nous avons vu précédemment (IV.1.2-) que lorsque le combustible est du méthane pur, aucun signal n'est détecté en sortie de brûleur.

A partir de CH<sub>4</sub> 90% H<sub>2</sub> 10%, des zones de réaction commencent à apparaître autour des jets de combustible avec l'oxygène présent dans les gaz recirculant.

Dès lors que le combustible contient au moins 20% d'hydrogène, il est possible d'observer plusieurs zones de réaction qui peuvent être assimilées aux zones de réaction mises en évidence au paragraphe (IV.1-) lors de l'étude de la combustion sans flamme au méthane pur : la zone de réaction principale qui se situe à la confluence des jets de combustible et de comburant, et la zone de réaction secondaire autour des jets de combustible, avec l'oxygène présent dans les gaz recirculants. L'ajout d'hydrogène dans le combustible permet d'atteindre plus rapidement les conditions locales d'inflammabilités, puisque les limites d'inflammabilité sont repoussées grâce à l'addition d'hydrogène (Wierzba-2000) et l'énergie minimale nécessaire pour allumer diminue lorsque le combustible contient de l'hydrogène (Das-1995). De ce fait, au point de fusion des jets, et ce malgré l'absence de préchauffage du jet d'air, les conditions nécessaires à l'apparition d'une zone de réaction sont réunies, ce qui n'était pas le cas avec le méthane pur, cependant, cette zone de réaction reste d'intensité très faible.

La zone de réaction principale s'intensifie jusqu'à CH<sub>4</sub> 70% H<sub>2</sub> 30%, puis son intensité diminue. En effet, du fait des fortes vitesses la zone de réaction doit être liftée en aval du brûleur. La zone de réaction secondaire devient de plus en plus intense ainsi que le rayonnement des parois.

Plus on augmente le pourcentage d'hydrogène, plus le délai d'auto-inflammation diminue, en parallèle, le domaine d'inflammabilité s'étend avec l'augmentation du volume d'hydrogène. L'intensité dans la zone de réaction secondaire augmente avec l'hydrogène et se stabilise autour de 60%. Cette combustion autour des jets de combustible permet de chauffer le mélange combustible.

L'ajout d'hydrogène provoque donc une modification importante des zones de réaction. Il est intéressant de noter que d'un point de vue massique, l'ajout d'hydrogène dans le combustible représente une très faible proportion puisque la masse volumique de l'hydrogène est faible ( $\rho=0.08\text{kg/m}^3$ ). Cependant, même une faible variation massique de la composition du combustible provoque des changements structuraux importants des zones de réaction.

## V. La combustion sans flamme à l'hydrogène

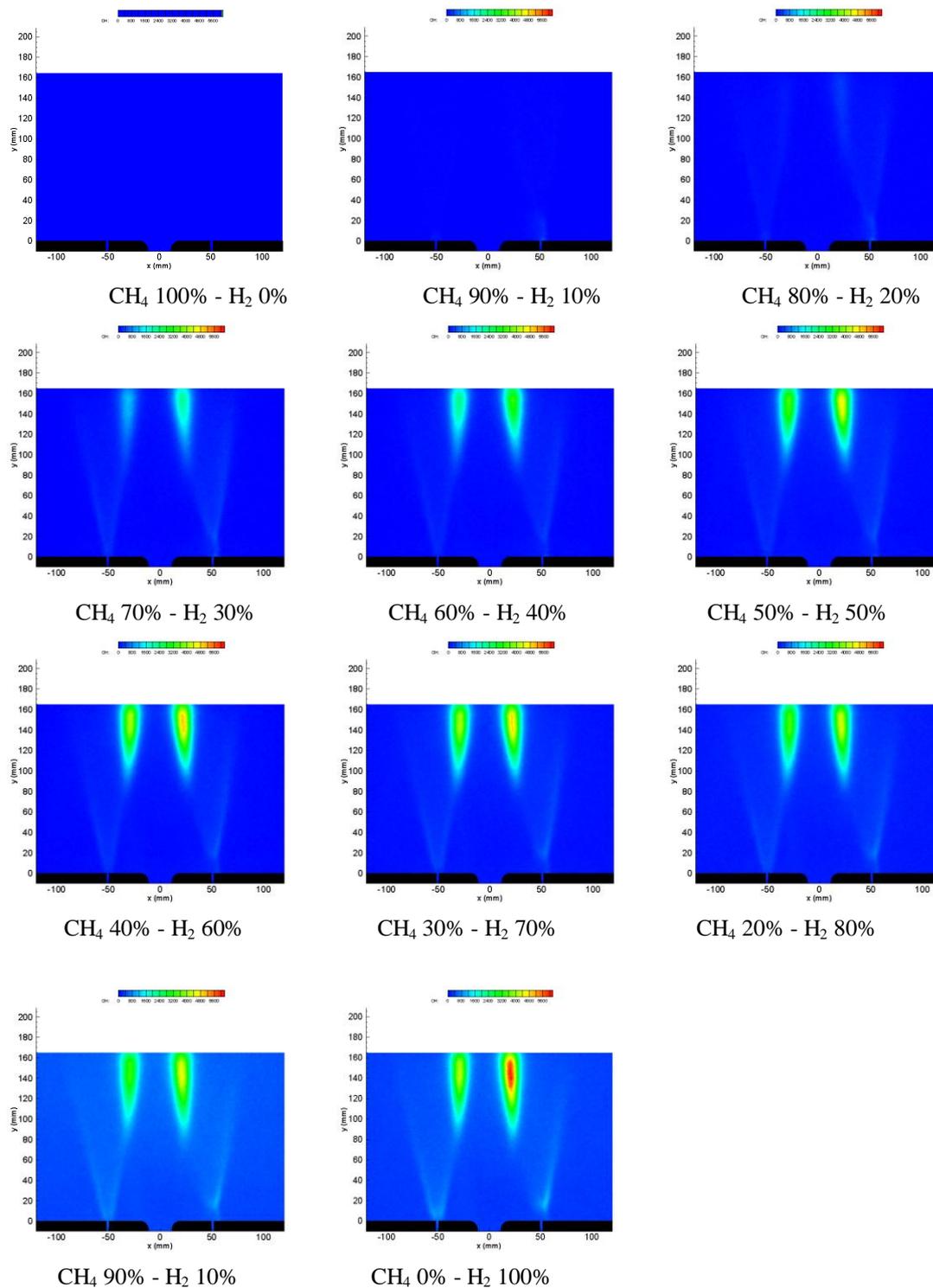


Figure 170 Images moyennes de chimiluminescence  $\text{OH}^*$ ,  $P=18.6\text{ kW}$ ,  $\lambda=1.18$   $T_a=25^\circ\text{C}$ .

## V. La combustion sans flamme à l'hydrogène

Sur le graphique Figure 171, les températures des fumées et des parois sont tracées en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le combustible. Sur le graphique Figure 172 l'évolution de l'intensité des zones de réaction (zone de réaction principale, secondaire et émission des parois) a été représentée. La température des fumées diminue jusqu'à CH<sub>4</sub> 60%-H<sub>2</sub> 40% et augmente ensuite lorsque le pourcentage d'hydrogène dans le combustible continue à croître.

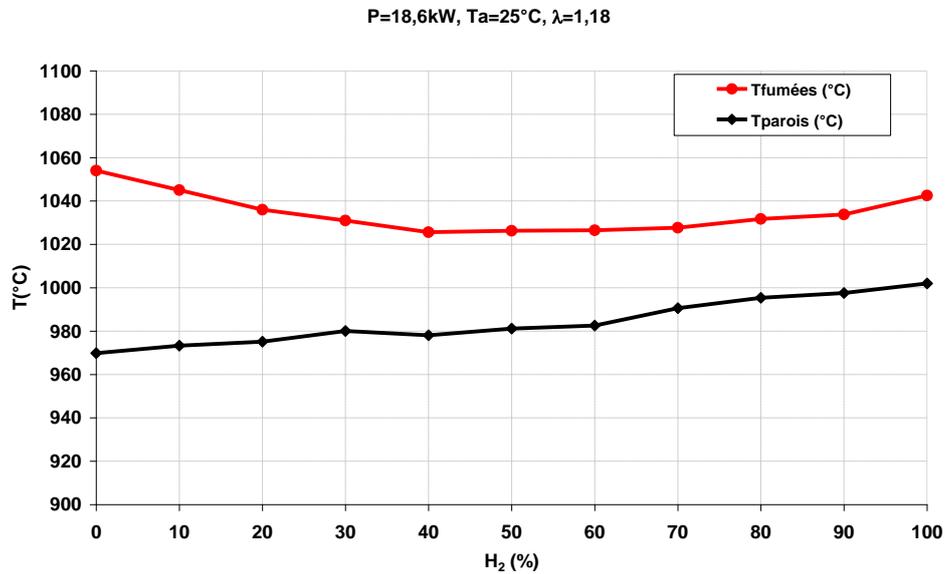


Figure 171 Température des parois et des fumées, P=18.6kW, Ta=25°C, λ=1.18, d=3mm.

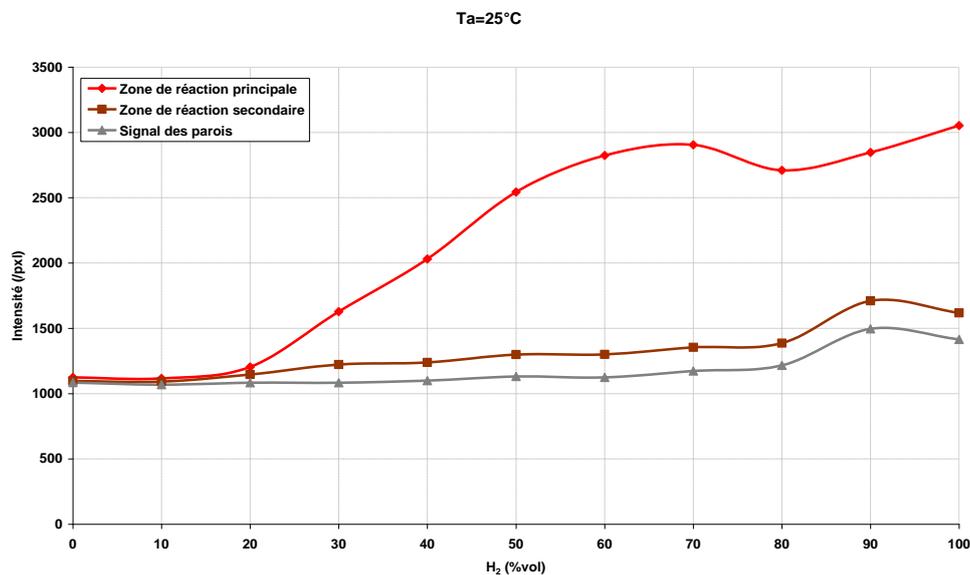


Figure 172 Evolution de l'intensité des zones de réaction et du signal des parois en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le mélange combustible, P=18.6kW, λ=1.18, Ta=25°C d=3mm.

Lors du fonctionnement au méthane pur, la zone de réaction se situe à mi-hauteur du four. Les fumées sont créées près de la cheminée, elles ont peu le temps de se refroidir, en cédant de la chaleur aux gaz environnant et à la paroi, avant d'être évacuées (la température des fumées est

mesurée en sortie de cheminée). Lorsque le pourcentage d'hydrogène croît jusqu'à 40%, la zone de réaction se rapproche du brûleur, les fumées ont donc plus de temps pour céder une partie de leur chaleur, c'est pourquoi, elles sont moins chaudes. Ensuite, lorsque le pourcentage volumique d'hydrogène continue à augmenter jusqu'à 100%, les zones de combustion sont de plus en plus intenses et les pertes par rayonnement diminuent, ce qui traduit une augmentation de la température dans ces zones et donc une augmentation de la température des fumées.

La température des parois augmente avec le pourcentage volumique d'hydrogène dans le combustible, ce qui provoque une augmentation du rayonnement visible du réfractaire : la couleur orangée des parois devient de plus en plus intense. Cependant, malgré la modification des températures (parois, fumées) et de la structure des zones de réaction, aucune zone de combustion n'est visible à l'œil.

### ***V.2.2- Influence de l'hydrogène sur la concentration des fumées***

La Figure 173 représente l'évolution des concentrations en CO<sub>2</sub> et NO<sub>x</sub> dans les fumées en fonction du pourcentage volumique d'hydrogène dans le combustible. Le pourcentage de CO<sub>2</sub> émis diminue avec le pourcentage d'hydrogène. En effet, la quantité de méthane disponible pour produire du CO<sub>2</sub> diminue. La concentration des NO<sub>x</sub> croît de 5ppm (pour le méthane pur) à 14ppm (pour 50% d'hydrogène dans le combustible), puis elle diminue jusqu'à 6ppm pour le cas à l'hydrogène pur. L'augmentation de la concentration en NO<sub>x</sub> pour les mélanges contenant jusqu'à 60% d'hydrogène semble être liée à la structure des zones de réaction. En effet, l'imagerie de chimiluminescence (Figure 171) met en évidence une zone de réaction principale qui augmente en intensité (en valeur globale, ce qui est représenté par la courbe noire et aussi en valeur maximale, directement représenté en rouge sur la cartographie) jusqu'à 60% d'hydrogène. Puisque la zone de réaction se rapproche du brûleur, la dilution des jets avant combustion est moins importante, localement la température est élevée ce qui provoque cette légère augmentation des NO<sub>x</sub>.

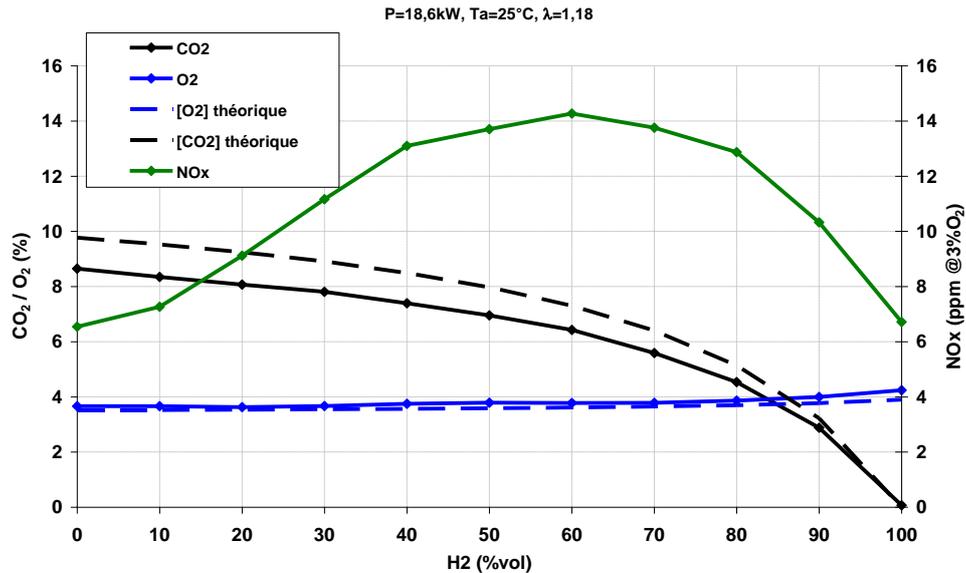


Figure 173 Concentration des fumées, P=18.6kW, Ta=25°C, λ=1.18, d=3mm

Pour le brûleur de l'installation pilote du CORIA fonctionnant avec des mélange CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> en régime de combustion sans flamme, avec un taux d'aération λ=1.18 et sans préchauffage de l'air, la production de NOx reste inférieure à 15ppm. Les émissions de NOx, très faibles et bien en dessous des installations « classiques » de combustion, montrent que le régime de combustion obtenu, quelque soit le pourcentage d'hydrogène dans le combustible, reste un régime de combustion dilué qui ne présente pas de pic important de température, tout comme pour le cas avec préchauffage de l'air.

Lorsque l'on atteint 100% d'hydrogène, on n'observe plus d'émission de CO, de CO<sub>2</sub> et peu de NOx, il n'y a pas non plus d'imbrulés.

La combustion sans flamme à l'hydrogène pur, et en l'absence de préchauffage de l'air n'émet plus de polluant.

La Figure 166 présente le taux de recirculation du FOUR en régime de combustion sans flamme, en fonction du pourcentage volumique d'hydrogène dans le combustible. Le taux de recirculation dans le four varie peu, il se situe toujours proche de 5.5 (même s'il a tendance à augmenter) quelque soit le pourcentage d'hydrogène dans le combustible. Derudi et al ont montré qu'un taux de dilution plus important était nécessaire pour atteindre le régime de combustion sans flamme lorsque de l'hydrogène était ajouté au combustible. Cette limite est de  $K_{vmin}=7$  pour CH<sub>4</sub> 70%-H<sub>2</sub> 30% et de  $K_{vmin}=9$  pour CH<sub>4</sub> 60% - H<sub>2</sub> 40%. Parente et al sont arrivés à la même conclusion : une modification des brûleurs existant est nécessaire afin de pouvoir atteindre le régime de combustion sans flamme. Dans notre étude, la géométrie du brûleur n'a pas été modifiée, le taux de recirculation croit peu, et le régime de combustion sans flamme peut qu'en même être atteint. Cependant, notre installation est géométriquement plus proche d'une installation industrielle que le brûleur de laboratoire de Milan : les parois sont éloignées du brûleur, et l'augmentation de l'impulsion des jets de combustible permet d'augmenter légèrement le taux de recirculation.

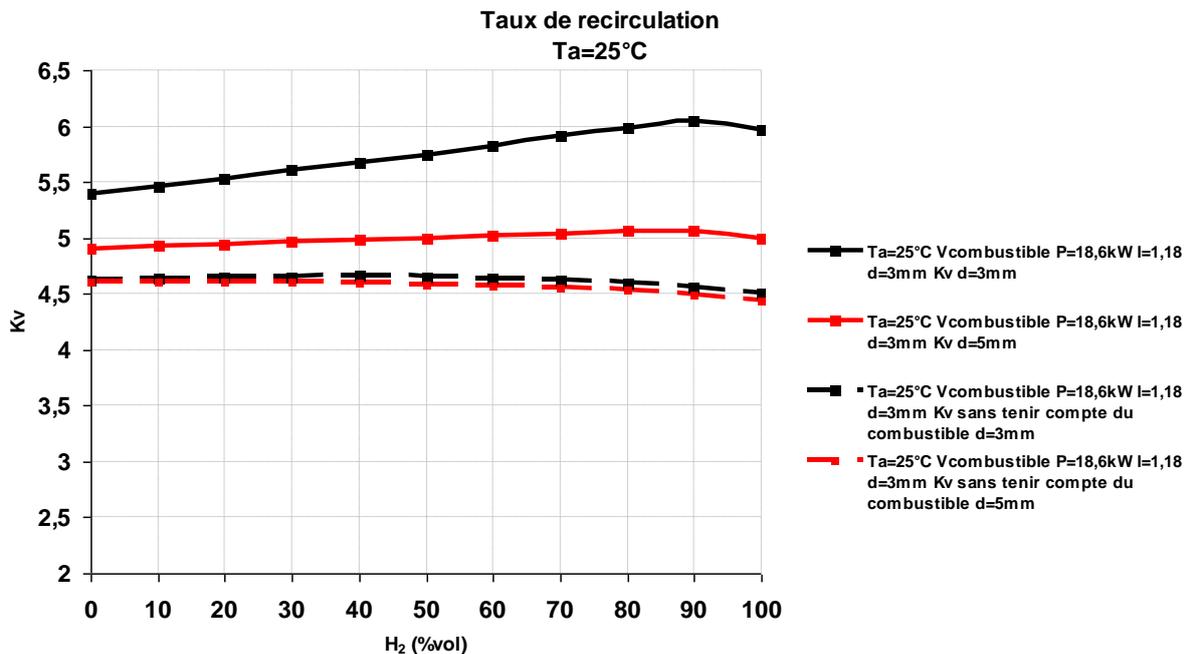


Figure 174 Evolution du taux de recirculation dans le four en fonction du pourcentage volumique d'hydrogène dans le mélange combustible, en tenant compte et sans tenir compte de l'impulsion du jet de combustible.

### V.3- Influence du diamètre d'injection du combustible

Lorsque le four fonctionne avec de l'hydrogène pur, la vitesse du combustible est de 140m/s. Ces fortes vitesses sont susceptibles de provoquer une déstabilisation de la combustion. Afin de diminuer la vitesse d'éjection, des essais ont été effectués avec une nouvelle série d'injecteurs de diamètre 5mm. Dans cette configuration, avec de l'hydrogène pur, la vitesse des jets de combustible est de 47m/s, vitesse se rapprochant de la vitesse des jets de méthane pur.

Pour le cas au méthane pur, la structure des zones de réaction ne change pas : deux zones de réaction autour des jets de combustible et après le point de fusion des jets, pour le cas avec préchauffage de l'air, et pas de zone de combustion décelable proche du brûleur pour le cas sans préchauffage de l'air. En revanche, la concentration des fumées est modifiée par le changement d'injecteur. On observe des émissions de NO<sub>x</sub> plus importantes, et dans le cas avec préchauffage de l'air, il est possible d'observer quelques flammes de manière intermittente. Lorsque le pourcentage d'hydrogène augmente, pour le cas avec préchauffage de l'air, l'intensité dans la zone de réaction principale diminue jusqu'à 80% d'hydrogène. Pour 100% d'hydrogène, l'augmentation de la réactivité du combustible provoque une zone de réaction plus intense au point de fusion. L'intensité dans la zone de réaction secondaire augmente avec le pourcentage d'hydrogène.

Pour le cas sans préchauffage de l'air, dès 10% d'hydrogène on observe l'apparition des deux zones de réaction pour lesquelles l'intensité ne cesse d'augmenter avec le pourcentage d'hydrogène.

Que ce soit avec ou sans préchauffage de l'air, les concentrations en cheminées présentent la même évolution (mais avec des valeurs plus importantes) que pour les injecteurs de 3mm. De même on retrouve l'écart inexplicé entre les concentrations mesurées en O<sub>2</sub> et CO<sub>2</sub> et les

concentrations théoriques, alors que la combustion est complète car aucune émission de CO n'est mesurée.

En conclusion, l'augmentation du diamètre des injecteurs n'apporte pas de gain en terme de stabilisation et est plutôt défavorable au mélange puisque la vitesse et le taux de turbulence des jets de combustibles diminuent, le taux d'entraînement des jets diminue lui aussi et donc de ce fait, la dilution des jets par les gaz brûlés recirculant. La combustion est donc moins diluée, et plus d'oxydes d'azote sont produits.

## V. La combustion sans flamme à l'hydrogène

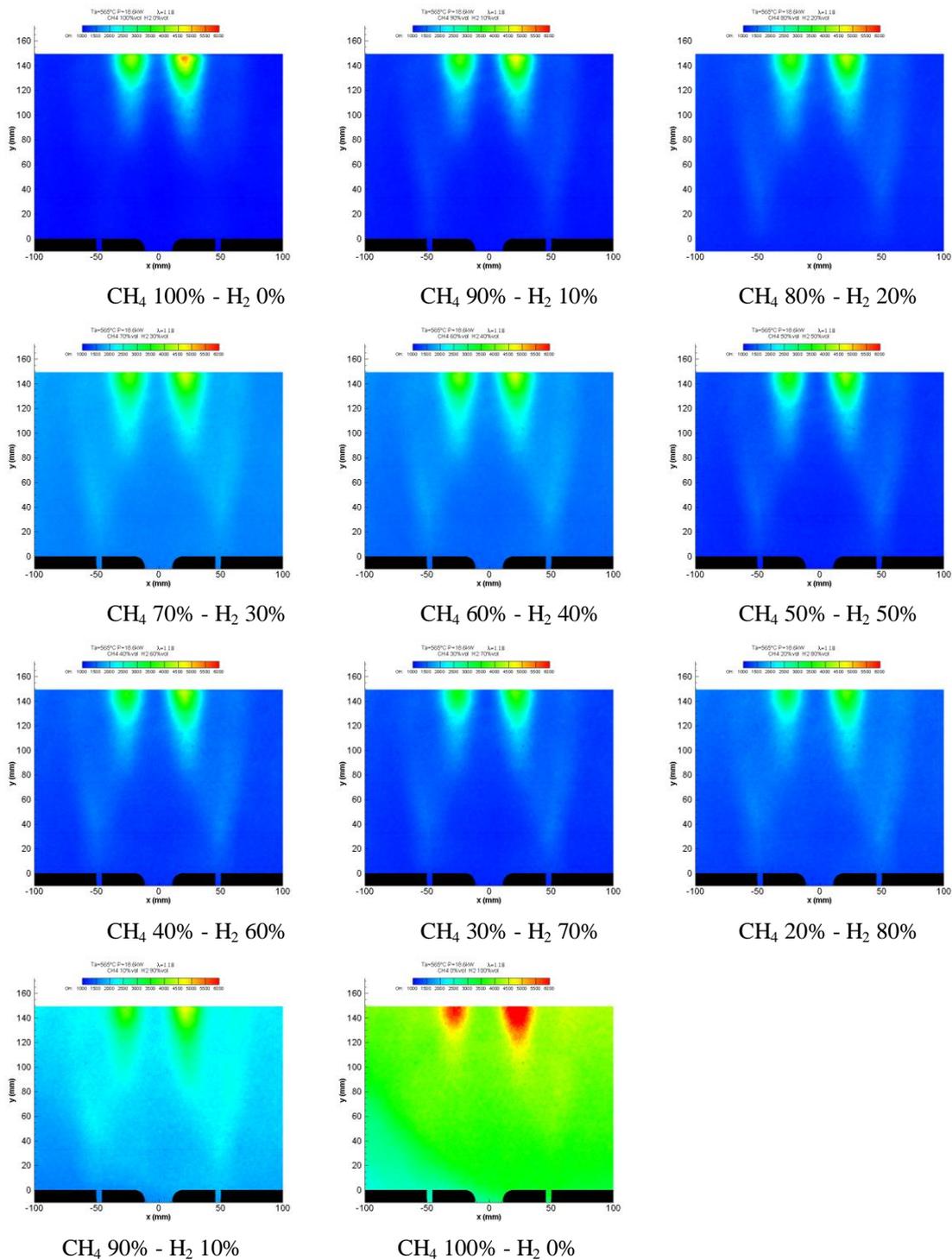


Figure 175 Images moyennes de chimiluminescence  $\text{OH}^*$ , cas avec préchauffage de l'air  $F'0$ , diamètre d'injection de combustible = 5mm.

## V. La combustion sans flamme à l'hydrogène

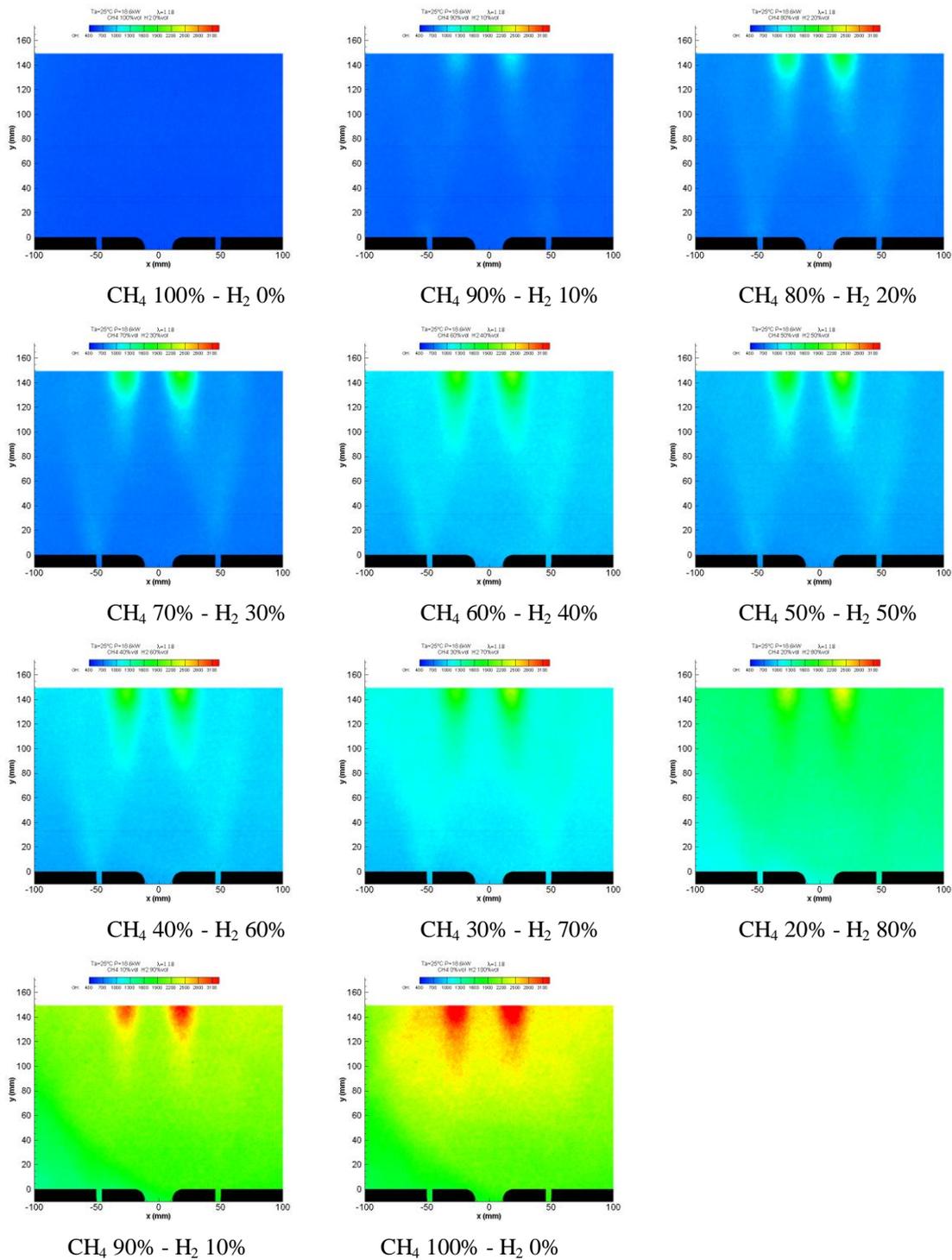


Figure 176 Images moyennes de chimiluminescence OH\*, cas sans préchauffage de l'air, F<sup>1</sup>, diamètre d'injection de combustible = 5mm.

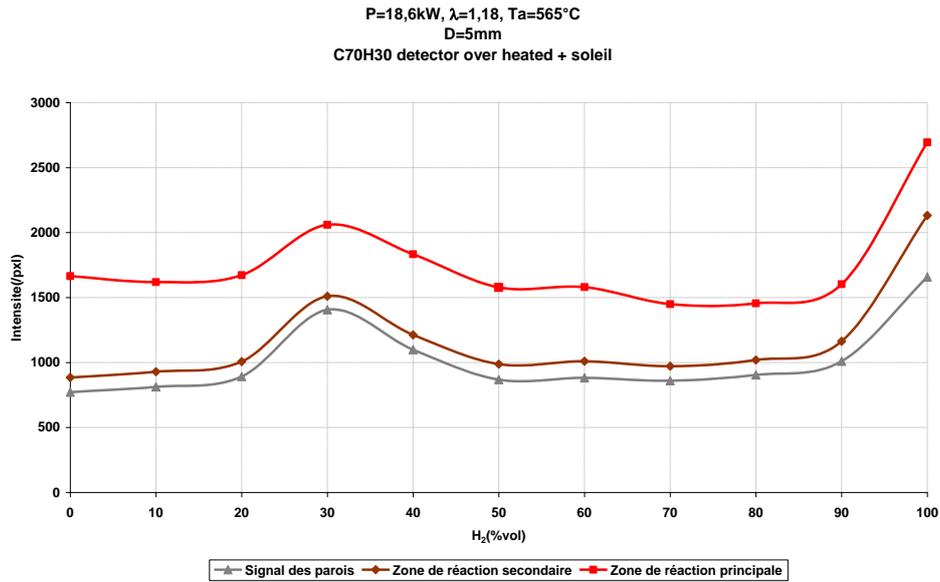


Figure 177 Evolution de l'intensité des zones de réaction et du signal des parois en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le mélange combustible, Ta=565°C, diamètre d'injection 5mm.

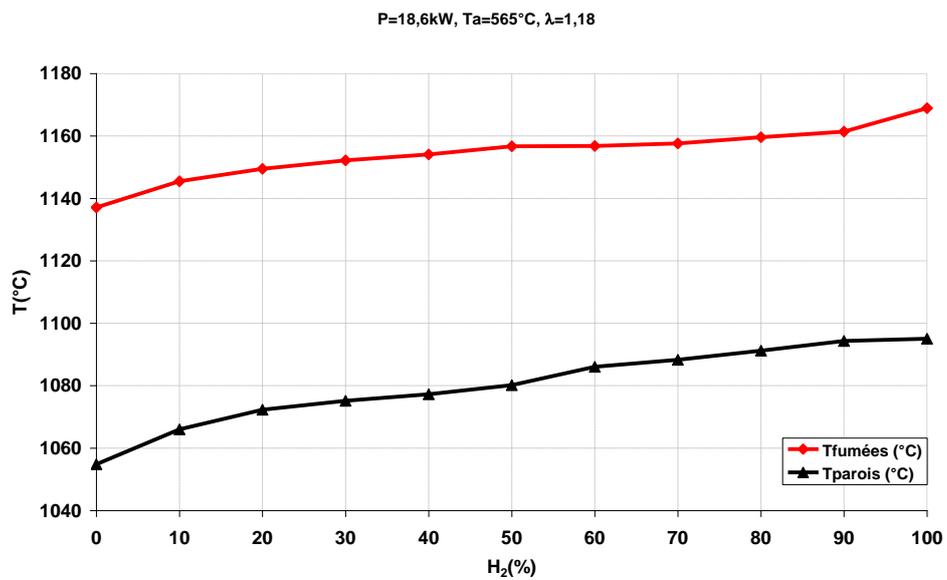


Figure 178 Température des parois et des fumées, P=18.6kW, Ta=565°C,  $\lambda=1.18$ , d=5mm.

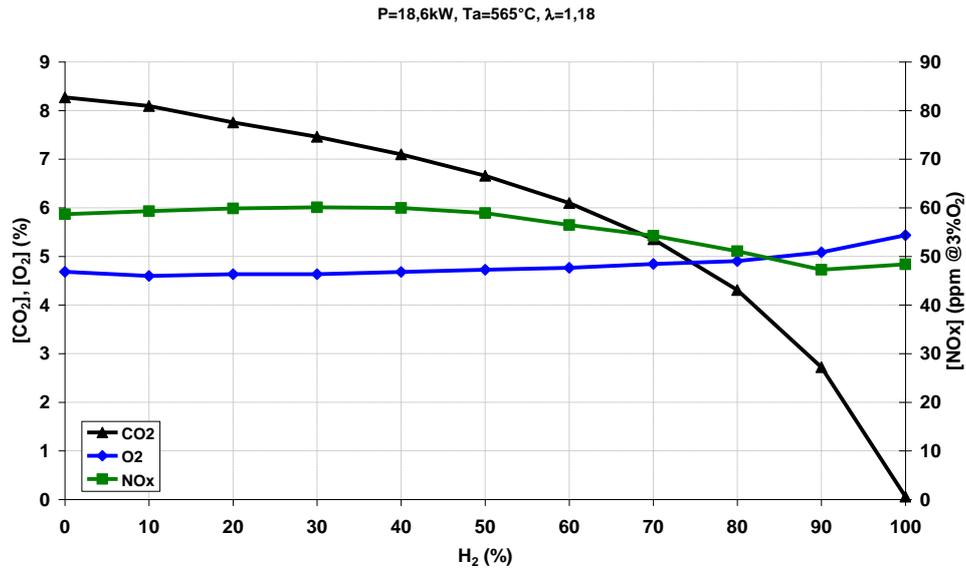


Figure 179 Concentrations des fumées, P=18.6kW, Ta=565°C, λ=1.18, d=5mm.

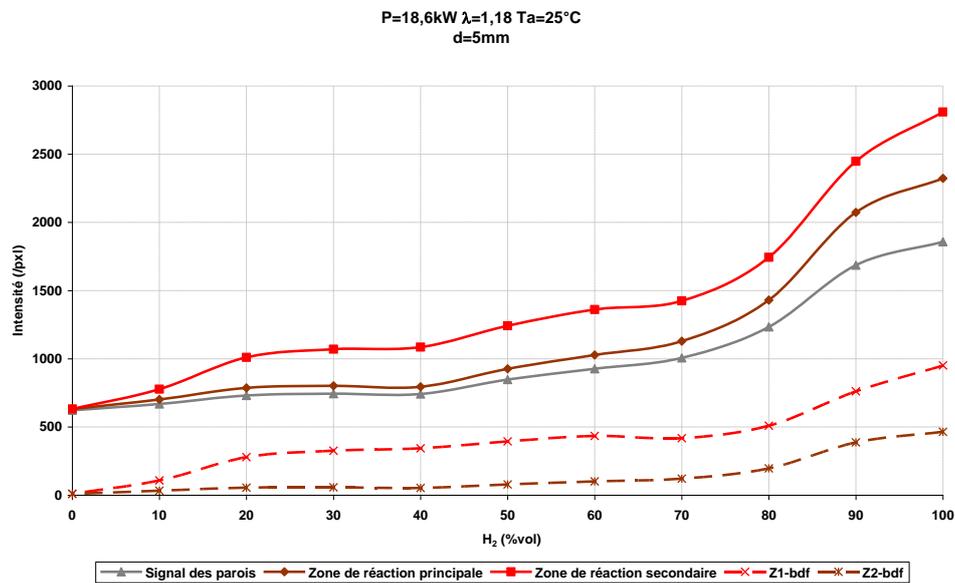


Figure 180 Evolution de l'intensité des zones de réaction et du signal des parois en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le mélange combustible, P=18.6kW, λ=1.18, Ta=25°C, diamètre d'injection du combustible 5mm.

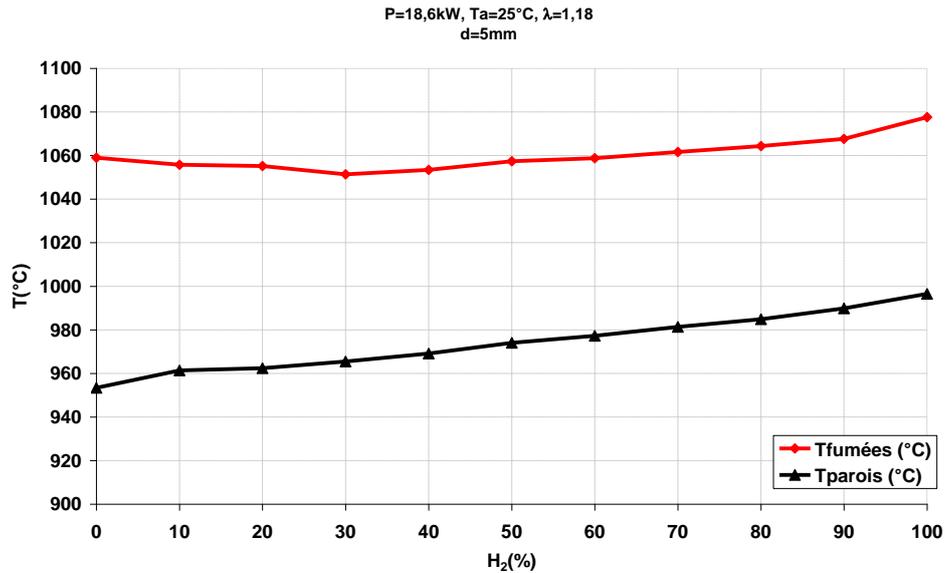


Figure 181 Température des parois et des fumées, P=18.6kW, Ta=25°C, λ=1.18, d=5mm.

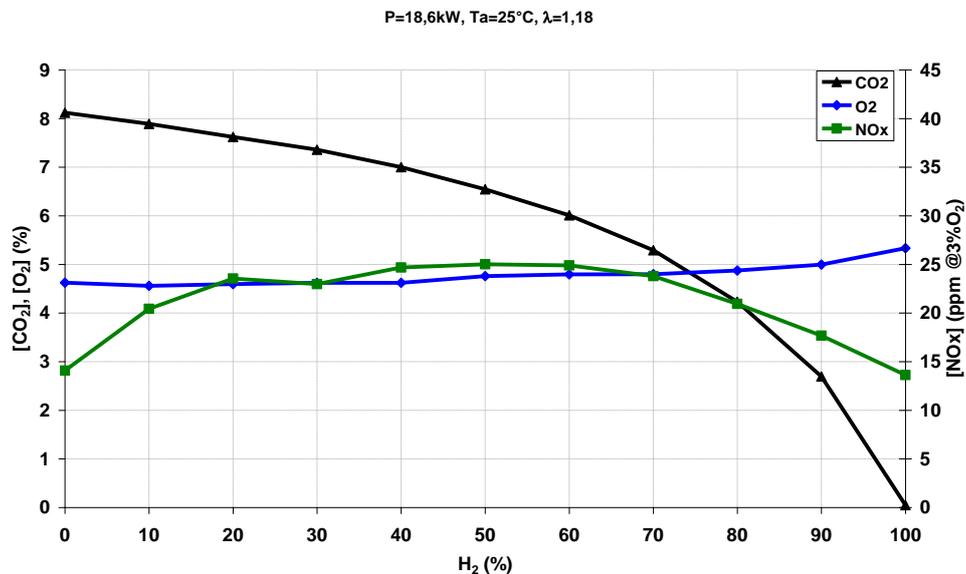


Figure 182 Concentrations des fumées, P=18.6kW, Ta=25°C, λ=1.18, d=5mm.

## V.4- Conclusions

L'ajout d'hydrogène change radicalement la structure des zones de réaction en l'absence de préchauffage de l'air. En effet, la température et le mélange au point de confluence des jets d'air et de méthane pur ne sont pas suffisants pour enflammer le mélange. Une zone de combustion unique, entre le jet d'air et de méthane pur, plutôt de type prémélange peut être observée en aval du brûleur. Dès lors que de l'hydrogène est ajouté au méthane, des zones de réaction semblables à celles observées pour les cas avec un préchauffage de l'air supérieur à

400°C, peuvent être mises en évidence : une zone de réaction autour des jets de combustible et une zone de réaction principale à partir du point de fusion des jets.

Pour les cas avec préchauffage de l'air, l'ajout d'hydrogène ne change pas la structure ni la position des zones de réaction, mais leur intensité est modifiée, et la zone de réaction autour des jets de combustible est plus stable du fait de l'ajout d'hydrogène.

Le taux de recirculation naturel des fumées dans la chambre de combustion est globalement stable puisque l'augmentation des jets de combustible est contrebalancée par la diminution de l'impulsion du jet d'air. L'utilisation de l'hydrogène dans notre configuration ne nécessite pas de changement de géométrie du brûleur, ni de changement de la configuration du FOUR.

Les émissions polluantes diminuent, jusqu'à atteindre, pour le cas sans préchauffage de l'air, un niveau d'émission en CO<sub>2</sub> et en NO<sub>x</sub> quasiment nul. Dans ces conditions, l'installation pilote se rapproche d'un four à « zéro émission ». Ces résultats ont reçu un des prix de Techniques Innovantes pour l'Environnement 2008 par l'ADEME.



## *Chapitre VI:* **Conclusions et perspectives**

Le dioxyde de carbone et les oxydes d'azote sont pour une part importante émis par les procédés industriels. Or le CO<sub>2</sub> est un des principaux gaz à effet de serre et les NO<sub>x</sub> sont nocifs pour la santé et l'écosystème. C'est pourquoi il est très important de pouvoir limiter la formation de ces deux polluants.

La combustion sans flamme est un régime de combustion innovant permettant d'allier économie de combustible et réduction des émissions polluantes. Ce régime de combustion est donc très prometteur compte tenu du contexte environnemental actuel.

La combustion sans flamme est déjà utilisée en industrie, principalement dans des usines de sidérurgie. Cependant, comme tout nouveau mode de combustion, ses propriétés physico-chimiques restent loin d'être entièrement comprises. C'est pourquoi, les études dans ce domaine sont de plus en plus actives.

Cette étude expérimentale réalisée au CORIA en collaboration avec GDF SUEZ visait donc à mieux comprendre les phénomènes qui régissent la combustion sans flamme, en utilisant une installation pilote de laboratoire.

Dans un premier temps, trois cas ont été isolés pour la combustion sans flamme au méthane. Ces trois cas sont représentatifs de la combustion diluée et présentent des caractéristiques différentes. Le premier cas, appelé F0 ou cas de référence, est le cas qui se rapproche le plus des conditions de fonctionnement des brûleurs régénératifs utilisés en industrie : c'est-à-dire avec un léger excès d'air, et une température de préchauffage de l'air importante. Le second cas, appelé F1, est le cas sans préchauffage de l'air. Dans ces conditions, il n'y a pas de récupération de la chaleur des installations, mais la production de NO<sub>x</sub> est très faible. Enfin le cas avec un fort excès d'air, présente une émission de NO<sub>x</sub> plus importante, et est une limite du régime de combustion sans flamme.

L'analyse des champs de vitesse mesurés par PIV, des champs de concentration par sonde de prélèvement, des températures par thermocouple à fil fin et l'imagerie des zones de réaction par chimiluminescence OH\* a permis de mettre en évidence deux comportements différents selon que l'air est préchauffé au non.

Lorsque l'air est préchauffé, la zone de réaction principale a lieu dans la couche des mélanges des jets de combustible et du jet d'air, au point de fusion des jets. L'élévation de température la plus importante a lieu dans cette zone de réaction, elle reste tout de même faible par rapport à une combustion classique. Deux autres zones de réaction ont aussi été observées autour des jets de combustibles, entre le combustible et l'oxygène présent dans les gaz brûlés qui recirculent. L'étude aérodynamique de la combustion sans flamme a montré que ce régime de combustion dilué était atteint par des processus de mélange des réactifs avec les gaz brûlés recirculant grâce à la géométrie du brûleur. Les injections à fortes impulsions entraînent les gaz brûlés chauds environnant, diluant et préchauffant ainsi les jets avant combustion.

Lorsque l'air n'est pas préchauffé, la zone de combustion unique se déplace très en aval du brûleur et est plutôt de type prémélange. Dans ces conditions, l'augmentation de température est progressive, dans les jets et dans les couches de mélange, sans jamais présenter de pic local important de température. La formation de NO par voie thermique est ainsi minimisée.

Des projets tels que les projets Futuregen ou ZEP platform lorsqu'ils verront le jour permettront de produire de l'hydrogène à partir du charbon ou du gaz naturel sans émettre de polluant (le CO<sub>2</sub> sera capturé puis stocké en sous sol). De l'hydrogène en quantité importante pourrait alors être disponible pour les procédés industriels, qui devront donc être capables de s'adapter à ce nouveau vecteur d'énergie.

Des expériences avec de l'hydrogène en substitution à une partie ou à la totalité du méthane ont été réalisées, avec et sans préchauffage de l'air de combustion. Ces essais ont non seulement porté sur la faisabilité et sur la stabilité du régime de combustion sans flamme avec des mélanges méthane-hydrogène ou avec de l'hydrogène pur, mais aussi, sur l'évolution de la structure et de la position des zones de réaction, et sur l'évolution des températures et des concentrations des fumées.

Ces expériences ont permis de mettre en évidence que le régime de combustion sans flamme pouvait être atteint, dans l'installation du laboratoire, même avec de l'hydrogène pur, et ce, sans changement de géométrie du brûleur. La forte dilution naturelle des jets avec les produits de combustion permet de limiter les émissions de NO<sub>x</sub>, qui restent faibles, même avec de l'hydrogène pur et des températures de parois et de fumées qui augmentent. De plus, en l'absence de préchauffage de l'air, et pour de l'hydrogène pur, les émissions de NO<sub>x</sub> sont inférieures à 6ppm et ni dioxyde de carbone, ni monoxyde de carbone, ni suies, ni imbrûlés carbonés ne sont produits.

La combustion sans flamme à l'hydrogène, alliée à une unité de production d'hydrogène permettrait de produire et d'utiliser de l'énergie sans aucune émission polluante rejetée dans l'atmosphère et sans nécessairement, de changement important de la géométrie des brûleurs ou des chambres de combustion.

Ces travaux de thèse ont permis de mettre en évidence l'importance des conditions locales dans la zone de confluence des jets d'air et de combustible. Il serait donc intéressant d'étudier de manière détaillée la zone d'allumage et de stabilisation de la zone de réaction principale. Des mesures simultanées de scalaires et de vitesse ainsi qu'une caractérisation spatio-temporelle dans cette zone permettraient de mieux comprendre les phénomènes physico-chimiques se produisant. L'étude de l'influence du mélange combustible par substitution d'hydrogène au méthane a démontré que le régime de combustion sans flamme pouvait être atteint sans changement de géométrie du brûleur. Ces résultats laissent supposer que l'utilisation d'autres types de combustibles serait possible. C'est pourquoi, il serait intéressant d'étudier ce régime de combustion avec, par exemple, des combustibles issus de la biomasse ou par d'autres sources.

Enfin, la combustion sans flamme pourrait être envisagée dans d'autres types d'installations, par exemple les chaudières industrielles de production de vapeur. Cependant, dans cette configuration, une partie de l'enthalpie des fumées sera utilisée pour chauffer l'eau, les gaz recirculant seront donc moins chauds et le préchauffage des jets moins important. Il serait alors intéressant d'étudier la stabilité de la combustion sans flamme dans ce type d'installation.



# ANNEXES

## Annexe 1 : Paramètres pour la correction de mesures de température

Les résultats présentés dans cette partie ont été calculés avec le programme de correction des mesures de température, par convection et rayonnement (des parois et des gaz environnant), développé sous Matlab®. Les corrections sont réalisées dans la gamme de température comprise entre 100 et 1800°C, correspondant à la gamme de mesure du thermocouple B.

Plusieurs hypothèses sur les valeurs des conditions initiales ont dûes être émises pour pouvoir développer le programme de correction. Ce sont les mêmes hypothèses que celles incluses dans le logiciel A3T (qui permet d'acquérir et de post traiter les mesures de température).

La corrélation de Kramer (1946) permet de déterminer le nombre de Nusselt, pour une soudure cylindrique, si la vitesse de l'écoulement au point de mesure se situe dans la gamme  $0.01 < Re < 10000$ . Dans ces conditions  $Nu = 0.42 Pr^{0.2} + 0.57 Re^{0.5} Pr^{0.33}$ .

La conductivité thermique des gaz ( $\lambda_g$  en  $W.m^{-1}.K^{-1}$ ) est supposée identique à la conductivité de l'air. Elle dépend de la température du milieu (T en °C) et est exprimée par :

$$\lambda_G(T) = 1,86102.10^{-12} \times T^3 - 1,86466.10^8 \times T^2 + 8,32555.10^5 \times T + 5,57995.10^3$$

La viscosité dynamique des gaz ( $\mu_g$ , en Pa/s) utilisée pour le calcul du nombre de Reynolds dans la corrélation de Kramer est considérée comme identique à celle de l'air, et est fonction de la température (en °C). Elle suit la relation suivante :

$$\mu_G(T) = 1,88499.10^{-15} \times T^3 - 1,24586710^{-11} \times T^2 + 4,81722.10^{-8} \times T + 5,09485.10^{-6}$$

La densité des gaz ( $\rho_c$ ) utilisée pour le calcul du nombre de Reynolds dans la corrélation de Kramer est calculée à partir de la loi des gaz parfaits.

Le nombre de Prandt (Pr) utilisé pour la corrélation de Kramer est constant et égal à 0,7.

Le thermocouple de type B à une capacité thermique  $C_p$  (J/K/Kg) de la forme :

$$C_p = c_0 + c_1 T + c_2 T^2 + c_3 T^3 + c_4 T^4 + c_5 T^5 + c_6 T^6$$

Avec T en °C et

$$\begin{aligned} c_0 &= 1.446522 \cdot 10^2 & c_1 &= 3.034005 \cdot 10^{-2} & c_2 &= 4.567347 \cdot 10^{-6} & c_3 &= -5.34417 \cdot 10^{-16} \\ c_4 &= -1.639217 \cdot 10^{-19} & c_5 &= 6.785466 \cdot 10^{-23} & c_6 &= 6.462349 \cdot 10^{-27} \end{aligned}$$

On suppose que la densité du platine est indépendante de la température, la densité du thermocouple est :  $\rho_c = 22740 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ .

L'émissivité du thermocouple non revêtu est de la forme :

$$\varepsilon_c = c_0 + c_1 T + c_2 T^2 + c_3 T^3 + c_4 T^4 + c_5 T^5 + c_6 T^6$$

Avec T en °C et

$$\begin{aligned} c_0 &= 1.77673 \cdot 10^2 & c_1 &= 1.28396 \cdot 10^{-4} & c_2 &= -1.63237 \cdot 10^{-8} & c_3 &= 1.068361 \cdot 10^{-12} \\ c_4 &= -1.966 \cdot 10^{-22} & c_5 &= 3.902022 \cdot 10^{-26} & c_6 &= -5.522026 \cdot 10^{-30} \end{aligned}$$

Les tables de conversion entre la force électromotrice mesurée et la température correspondante proviennent du National Institute of Standards and Technology. De ces tables, on peut extraire des polynômes, valables sur des plages de température fixées. Pour le thermocouple de type B, il est très difficile en pratique de mesurer des températures inférieures à 200°C, puisque les f.e.m. correspondantes sont extrêmement faibles par rapport au bruit électromagnétique.

On aura ainsi 4 polynômes dont les coefficients sont donnés ci dessous :

$$T = c_0 + c_1 \cdot \text{fem} + c_2 \cdot \text{fem}^2 + c_3 \cdot \text{fem}^3 + c_4 \cdot \text{fem}^4 + c_5 \cdot \text{fem}^5 + c_6 \cdot \text{fem}^6 + c_7 \cdot \text{fem}^7 + c_8 \cdot \text{fem}^8$$

| Unités: T en °C Fem en mV |
|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|
| Degré: 6                  | Degré: 8                  | Degré: 8                  | Degré: 8                  |
| c0: 6,54072030E-001       | c0: 9,84232100E+001       | c0: 2,13150700E+002       | c0: 2,13150700E+002       |
| c1: 2,45958517E+003       | c1: 6,99715000E+002       | c1: 2,85105000E+002       | c1: 2,85105000E+002       |
| c2: -1,87516994E+004      | c2: -8,47653000E+002      | c2: -5,27428900E+001      | c2: -5,27428900E+001      |
| c3: 1,36823801E+005       | c3: 1,00526400E+003       | c3: 9,91608000E+000       | c3: 9,91608000E+000       |
| c4: -6,93880851E+005      | c4: -8,33459500E+002      | c4: -1,29653000E+000      | c4: -1,29653000E+000      |
| c5: 1,95081752E+006       | c5: 4,55085400E+002       | c5: 1,11958700E-001       | c5: 1,11958700E-001       |
| c6: -2,21528552E+006      | c6: -1,55230400E+002      | c6: -6,06252000E-003      | c6: -6,06252000E-003      |
| c7:                       | c7: 2,98867500E+001       | c7: 1,86617000E-004       | c7: 1,86617000E-004       |
| c8:                       | c8: -2,47428600E+000      | c8: -2,48785900E-006      | c8: -2,48785900E-006      |
| c9:                       | c9:                       | c9:                       | c9:                       |
| c10:                      | c10:                      | c10:                      | c10:                      |

### *Influence de l'émissivité des parois*

La Figure 183 représente l'émissivité de certains matériaux en fonction de la température. Pour le FOUR du CORIA, les parois sont en fibre céramique, leur émissivité peut être déterminée à partir de la courbe (c). Dans nos conditions de fonctionnement, c'est-à-dire pour une température de parois de 1300K environ, l'émissivité des fibres céramiques est comprise entre 0.54 et 0.7.

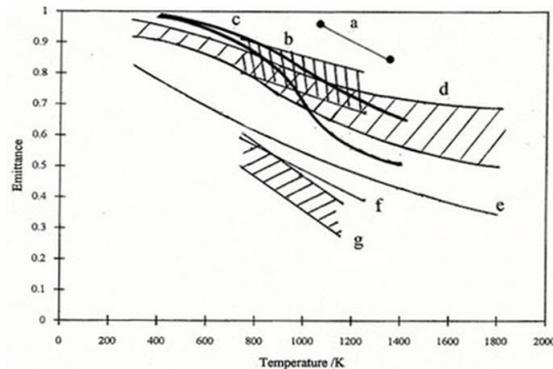


Fig. 1 Normal total emissivity of refractory materials based on aluminium and silicon oxides:

- (a) carborundum-based high emissivity coating (8,9);
- (b) permeable ceramic materials (10);
- (c) ceramic fibres (normal, 6 and parallel, 6);
- (d) silica bricks (14);
- (e)  $Al_2O_3$  mean line from Fig. 2;
- (f) ceramic fibre board (11);
- (g) light weight refractory (8,9).

Figure 183 Emissivité des matériaux en fonction de leur température (source IFRF).

Les courbes Figure 184 montrent l'écart entre la température mesurée et la température corrigée pour un écoulement de vitesse comprise entre 0 et 100 m/s, au sein d'une enceinte dont les parois possèdent une émissivité de 0.54 et 0.7.

L'émissivité influe sur l'écart de température principalement pour des faibles températures et des faibles vitesses. Pour des vitesses supérieures à 1m/s et quelle que soit la température mesurée, l'écart reste inférieur à 4%.

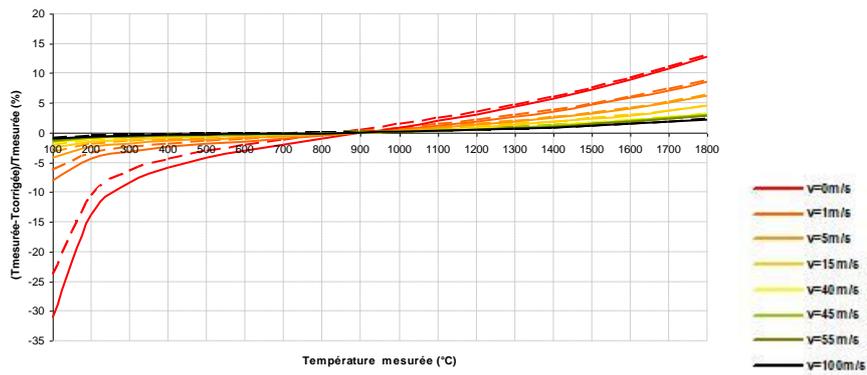


Figure 184 Ecart entre la température mesurée et la température corrigée (en %) pour une vitesse d'écoulement comprise entre 0 et 100m/s et pour une émissivité de parois  $\epsilon=0.54$  (en pointillés) et  $\epsilon=0.7$  (en traits pleins).

### Influence de la température des parois

La Figure 185 montre la gamme de correction possible en fonction des vitesses de l'écoulement pour des températures de parois comprises entre 20°C (traits en pointillés) et 2000°C (traits pleins). Pour les parois à 20°C,  $\epsilon=1$  tandis que pour les parois à 2000°C, nous pouvons conserver la valeur moyenne :  $\epsilon=0.62$ .

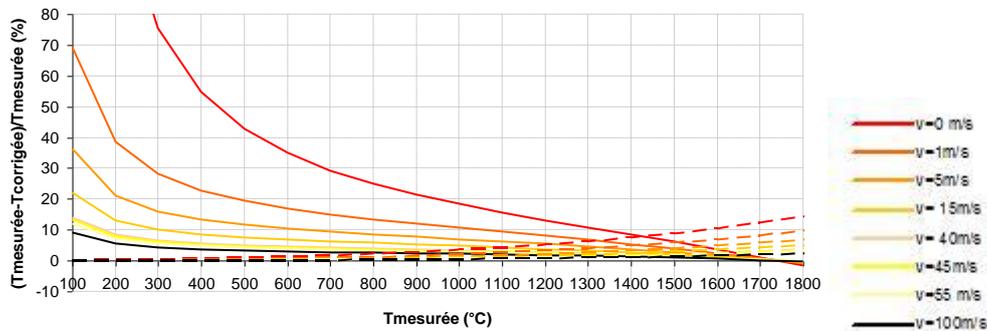


Figure 185 Ecart entre la température mesurée et la température corrigée (en %) pour une vitesse d'écoulement comprise entre 0 et 100m/s et pour une température de parois  $T_w=20°C$  (en pointillés) et  $T_w=2000°C$  (en traits pleins).

Il est évident que la température des parois influence la correction de température. Celle-ci est plus importante lorsque la température mesurée a une valeur beaucoup plus faible ou beaucoup plus importante que la température des parois.

Dans notre configuration, la température des parois varie, selon les cas, entre 950°C et 1050°C, la température la plus élevée provoque la correction par rayonnement la plus importante, c'est pourquoi, dans les calculs, la température des parois sera prise égale à 1050°C.

### *Influence de la l'émissivité et de la température des gaz environnant*

Les mesures d'émissivité sont calculées en considérant l'écoulement principalement constitués des produits de combustion du méthane, aux températures de 300K (resp. 1800K), d'émissivité  $\varepsilon=0.22$  (resp.  $\varepsilon=0.12$ ), (Source IFRF). Les résultats obtenus sont donnés Figure 186. Les courbes se superposent parfaitement : l'émissivité et la température des gaz environnant n'a pas d'influence sur la correction de température.

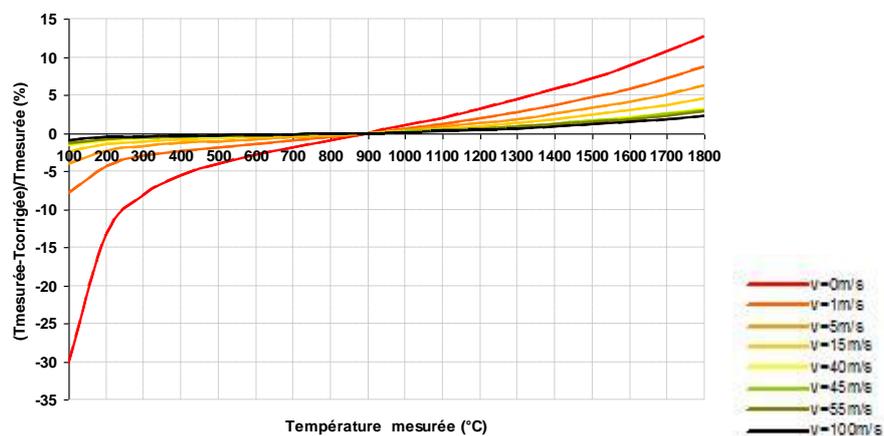


Figure 186 Influence des gaz environnant sur la correction de température : en trait plein :  $\varepsilon=0.12$  température des gaz  $T=1800\text{K}$  ; en pointillés  $\varepsilon=0.22$ , température des gaz  $300\text{K}$ .

## Annexe 2 : Température des parois et des fumées

Les différents éléments constituant le FOUR sont amenés à être changer, au fur et à mesure des expérimentations, soit par usure, soit pour améliorer l'installation. Les graphiques Figure 187 montrent l'évolution de la température moyenne des parois et de la température des fumées, en fonction des mesures, intrusives ou non, et des changements majeurs apportés à l'installation. La température moyenne des parois et des fumées, dans le cas des mesures non intrusives, restent constante au fil des changements des composants de l'installation.

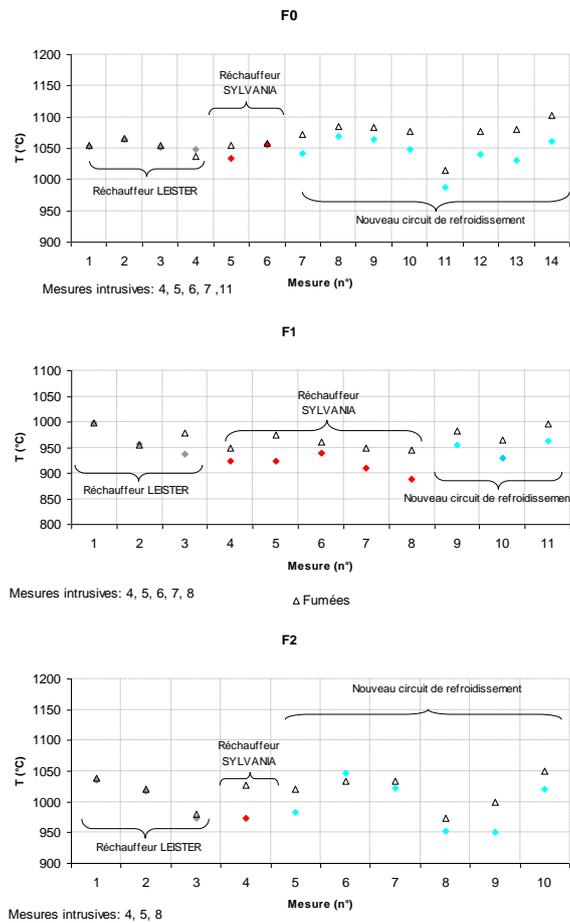


Figure 187 Température des parois (losanges) et des fumées (triangles). Les losanges gris représentent les points de mesure réalisés avec le réchauffeur LEISTER, les losanges rouges : réchauffeur SYLVANIA et ancien circuit de refroidissement, losanges bleus ; réchauffeur SYLVANIA et nouveau circuit de refroidissement.

## Annexe 3 : Profils de vitesse transversale $V_x$

### Cas F0

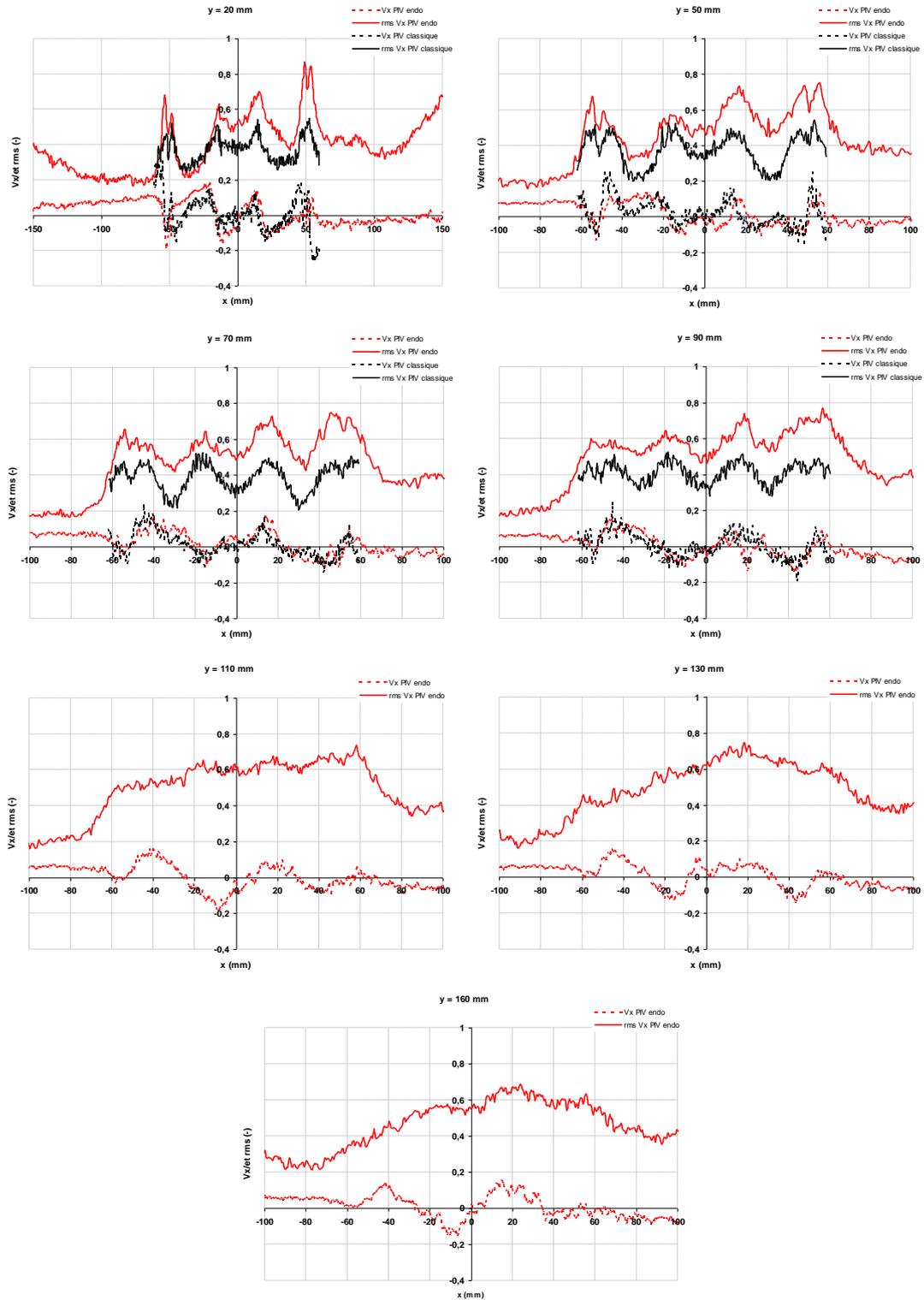


Figure 188 Profils de vitesse transversale adimensionnée pour différentes hauteurs en sortie de brûleur, cas de référence (F0).

## Cas F1

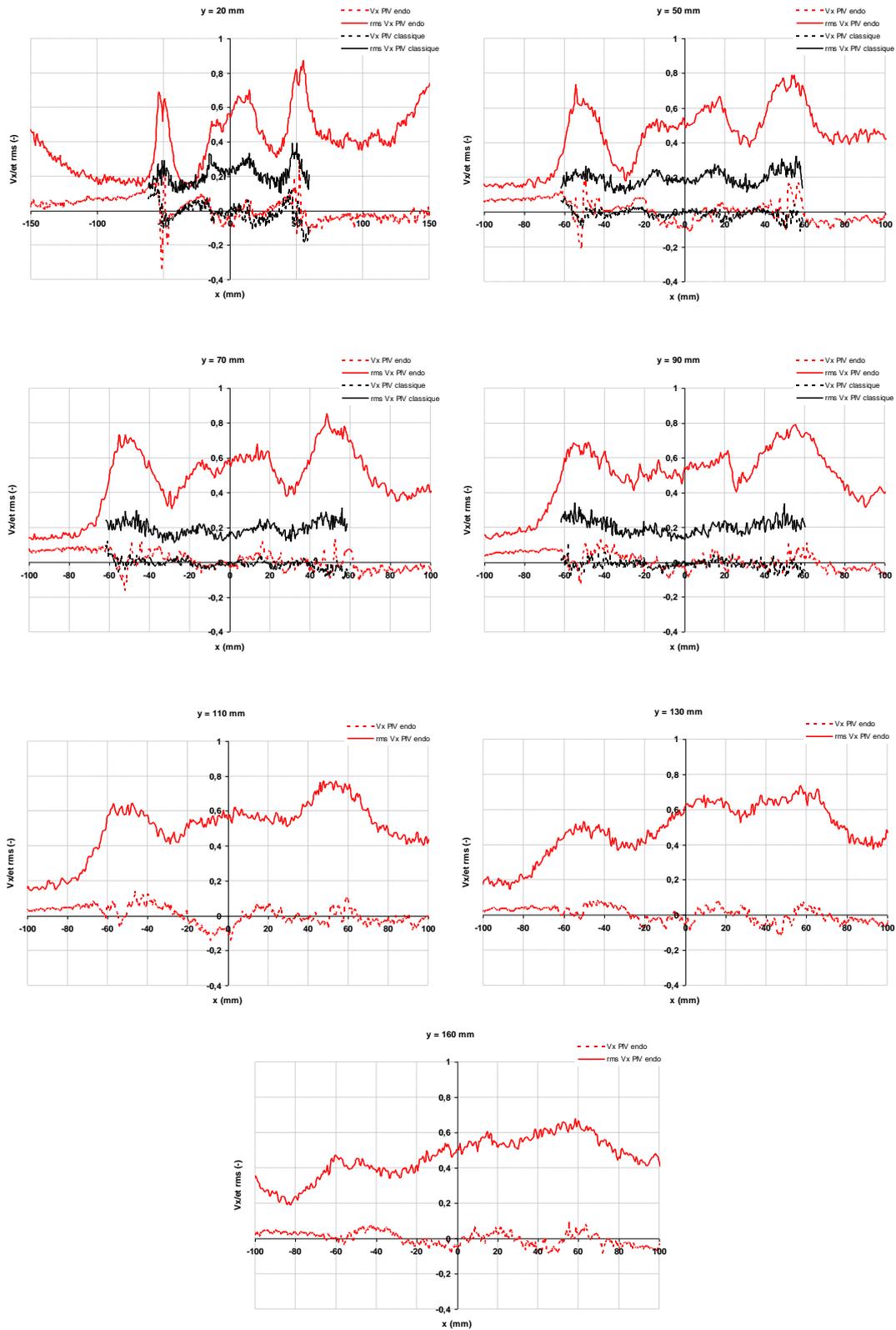
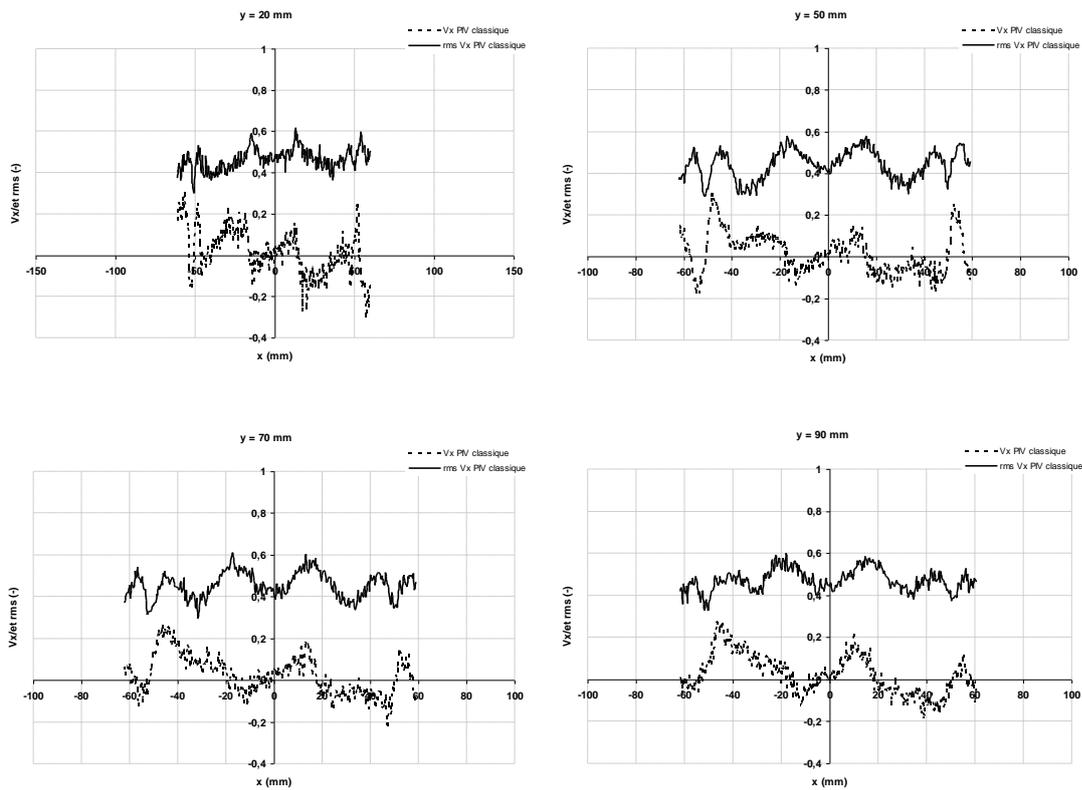


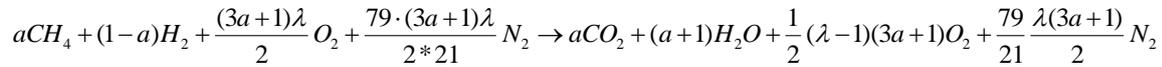
Figure 189 Profils de vitesse transversale adimensionnée à différentes hauteurs en sortie de brûleur pour le cas sans préchauffage de l'air (F1).

## Cas F2

Figure 190 Profils de vitesse transversale adimensionnée pour le cas avec un excès d'air  $\lambda=1.72$  (F2).

## Annexe 4 : Composition et volume des fumées

L'équation de combustion d'un mélange méthane-hydrogène en fonction du pourcentage d'hydrogène dans le mélange (1-a) et du taux d'aération ( $\lambda$ ) est :



A partir de cette équation de combustion, il est possible de calculer la composition théorique des fumées (on suppose que la combustion est complète).

Le pouvoir fumigène est défini par le volume total de gaz sortant de la cheminée lors de la combustion d'1 m<sup>3</sup> de mélange combustible. Le pouvoir fumigène sec ne prend pas en compte le volume d'eau dans les fumées. Le volume de chaque produit de combustion est :

$$V_i = \frac{X_i n_i M_i}{\rho_i}$$

Où  $X_i$  est la fraction molaire des produits de combustion,  $\rho_i$  est la masse volumique dans les conditions normales de chacun des produits de combustion de fraction molaire  $X_i$ ,  $n_i$  est le nombre de mole, et  $M_i$  est la masse molaire.

Le volume de fumée sèche est  $V_{fo} = \sum V_i = \sum \left( \frac{X_i n_i M_i}{\rho_i} \right)$ , sans prendre en compte le volume de l'eau.

Les tableaux ci après, résument la composition théorique et volume des fumées pour les mélanges hydrogénés. Le pouvoir fumigène n'est pas fonction de la température des fumées, mais du taux d'aération.

%CH <sub>4</sub> /H <sub>2</sub>	Nb mole CH <sub>4</sub> /H <sub>2</sub>	Fumées sèches					humides			
		Vol CO <sub>2</sub> (m <sup>3</sup> )	Vol N <sub>2</sub> (m <sup>3</sup> )	Vol O <sub>2</sub> (m <sup>3</sup> )	%O <sub>2</sub> dry	%CO <sub>2</sub> dry	Vfo (m <sup>3</sup> )	H <sub>2</sub> O (m <sup>3</sup> )	V'fo (m <sup>3</sup> )	%H <sub>2</sub> O
100	41,23	1,00	8,88	0,3600	3,5%	9,8%	10,2	2,00	12,24	16,3
90	41,23	0,90	8,21	0,3330	3,5%	9,5%	9,4	1,90	11,35	16,7
80	41,23	0,80	7,55	0,3060	3,5%	9,2%	8,7	1,80	10,45	17,2
70	41,23	0,70	6,88	0,2790	3,5%	8,9%	7,9	1,70	9,56	17,8
60	41,24	0,60	6,21	0,2520	3,6%	8,5%	7,1	1,60	8,67	18,5
50	41,24	0,50	5,55	0,2250	3,6%	8,0%	6,3	1,50	7,77	19,3
40	41,24	0,40	4,88	0,1980	3,6%	7,3%	5,5	1,40	6,88	20,3
30	41,25	0,30	4,22	0,1710	3,6%	6,4%	4,7	1,30	5,99	21,7
20	41,26	0,20	3,55	0,1440	3,7%	5,1%	3,9	1,20	5,10	23,6
10	41,28	0,10	2,89	0,1170	3,8%	3,2%	3,1	1,10	4,20	26,2
0	41,32	0,00	2,22	0,0900	3,9%	0,0%	2,3	1,00	3,31	30,2

Figure 191 Composition et volume des fumées théoriques, taux aération  $\lambda = 1.18$

%CH <sub>4</sub> /H <sub>2</sub>	Nb mole CH <sub>4</sub> /H <sub>2</sub>	Fumées					sèches		humides		
		Vol CO <sub>2</sub> (m <sup>3</sup> )	N <sub>2</sub> (m <sup>3</sup> )	Vol O <sub>2</sub> (m <sup>3</sup> )	% O <sub>2</sub> dry	%CO <sub>2</sub> dry	Vfo (m <sup>3</sup> )	H <sub>2</sub> O (m <sup>3</sup> )	V'fo (m <sup>3</sup> )	%H <sub>2</sub> O	
100	41,23	1,00	8,28	0,2000	2,1%	10,6%	9,5	2,00	11,48	17,4	
90	41,23	0,90	7,66	0,1850	2,1%	10,3%	8,7	1,90	10,64	17,9	
80	41,23	0,80	7,03	0,1700	2,1%	10,0%	8,0	1,80	9,80	18,4	
70	41,23	0,70	6,41	0,1550	2,1%	9,6%	7,3	1,70	8,97	19,0	
60	41,24	0,60	5,79	0,1400	2,1%	9,2%	6,5	1,60	8,13	19,7	
50	41,24	0,50	5,17	0,1250	2,2%	8,6%	5,8	1,50	7,30	20,6	
40	41,24	0,40	4,55	0,1100	2,2%	7,9%	5,1	1,40	6,46	21,7	
30	41,25	0,30	3,93	0,0950	2,2%	6,9%	4,3	1,30	5,63	23,1	
20	41,26	0,20	3,31	0,0800	2,2%	5,6%	3,6	1,20	4,79	25,0	
10	41,28	0,10	2,69	0,0650	2,3%	3,5%	2,9	1,10	3,95	27,8	
0	41,32	0,00	2,07	0,0500	2,4%	0,0%	2,1	1,00	3,12	32,1	

Tableau 16 Composition et volume des fumées théoriques, taux aération  $\lambda = 1.1$ 

%CH <sub>4</sub> /H <sub>2</sub>	nb mole CH <sub>4</sub> /H <sub>2</sub>	Fumées				sèches		humides		
		Vol CO <sub>2</sub> (m <sup>3</sup> )	Vol N <sub>2</sub> (m <sup>3</sup> )	Vol O <sub>2</sub> (m <sup>3</sup> )	Vfo (m <sup>3</sup> )	Vol H <sub>2</sub> O (m <sup>3</sup> )	V'fo (m <sup>3</sup> )	%H <sub>2</sub> O		
100	41,23	1,00	12,94	1,4400	15,4	2,00	17,38	11,5		
90	41,23	0,90	11,97	1,3320	14,2	1,90	16,10	11,8		
80	41,23	0,80	11,00	1,2240	13,0	1,80	14,82	12,1		
70	41,23	0,70	10,03	1,1160	11,8	1,70	13,55	12,6		
60	41,24	0,60	9,06	1,0080	10,7	1,60	12,27	13,0		
50	41,24	0,50	8,09	0,9000	9,5	1,50	10,99	13,7		
40	41,24	0,40	7,12	0,7920	8,3	1,40	9,71	14,4		
30	41,25	0,30	6,15	0,6840	7,1	1,30	8,43	15,4		
20	41,26	0,20	5,18	0,5760	6,0	1,20	7,15	16,8		
10	41,28	0,10	4,21	0,4680	4,8	1,10	5,87	18,7		
0	41,32	0,00	3,24	0,3600	3,6	1,00	4,60	21,8		

Tableau 17 Composition et volume des fumées théoriques, taux aération  $\lambda = 1.72$

### Annexe 5 : Caractéristiques des jets en fonction de la composition du combustible

% CH <sub>4</sub> / % H <sub>2</sub>	100	90	80	70	60	50	40	30	20	10	0
PCI	9,95	9,254	8,558	7,862	7,166	6,47	5,774	5,078	4,382	3,686	2,99
Va	9,54	8,822	8,104	7,386	6,668	5,95	5,232	4,514	3,796	3,078	2,36
Viscosité cinématique (m <sup>2</sup> /s) comburant	9,16E-05										
Viscosité cinématique (m <sup>2</sup> /s) combustible	1,66E-05	1,83E-05	2,03E-05	2,27E-05	2,57E-05	2,95E-05	3,45E-05	4,14E-05	5,17E-05	6,88E-05	1,07E-04

**P=20kW**

**λ=1,1 Ta=565°C d=3mm**

Qo gaz (m <sup>3</sup> (n)/h)	2,01	2,16	2,34	2,54	2,79	3,09	3,46	3,94	4,56	5,43	6,69
Qo CH4 (m <sup>3</sup> (n)/h)	2,01	1,95	1,87	1,78	1,67	1,55	1,39	1,18	0,91	0,54	0,00
Qo H2 (m <sup>3</sup> (n)/h)	0,00	0,22	0,47	0,76	1,12	1,55	2,08	2,76	3,65	4,88	6,69
V gaz (m/s)	42,39	45,58	49,28	53,65	58,86	65,19	73,05	83,06	96,25	114,42	141,06
Qo Air (m <sup>3</sup> (n)/h)	21,09	20,97	20,83	20,67	20,47	20,23	19,93	19,56	19,06	18,37	17,36
Vair (m/s)	36,64	36,43	36,19	35,90	35,56	35,14	34,63	33,97	33,10	31,91	30,16
Rho-mélange-combustible	0,72	0,65	0,59	0,53	0,47	0,40	0,34	0,28	0,22	0,15	0,09
Tfumées (°C)	1141	1150,7	1154,6	1154,6	1158,6	1161,3	1163,9	1163,4	1164,7	1168	1171,9
Rho_fumées	0,240	0,238	0,236	0,235	0,234	0,232	0,230	0,227	0,224	0,219	0,212
impulsion du jet d'air Ga	0,278	0,274	0,271	0,267	0,261	0,255	0,248	0,239	0,227	0,211	0,188
impulsion des fumées Ge	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001
Kv sans tenir compte du combustible	8,1	8,0	8,0	8,0	8,0	8,0	7,9	7,9	7,9	7,8	7,7
impulsion du jet de combustible Gf	1,7E-02	1,8E-02	1,9E-02	2,0E-02	2,1E-02	2,3E-02	2,4E-02	2,5E-02	2,6E-02	2,6E-02	2,4E-02
Ga/Gf	16,4	15,3	14,3	13,3	12,3	11,3	10,4	9,4	8,6	8,0	8,0
Kv (en tenant compte de Gf)	8,6	8,6	8,6	8,6	8,7	8,7	8,7	8,8	8,8	8,8	8,7
Re combustible	7651	7467	7287	7090	6873	6632	6352	6017	5589	4988	3966
Re comburant	10001	9944	9878	9799	9706	9593	9452	9272	9036	8710	8233

**P=18,6kW** **$\lambda=1,18$   $T_a=565^\circ\text{C}$   $d=3\text{mm}$** 

% CH <sub>4</sub> / % H <sub>2</sub>	100	90	80	70	60	50	40	30	20	10	0
Qo gaz (m <sup>3</sup> (n)/h)	1,87	2,01	2,17	2,37	2,60	2,87	3,22	3,66	4,24	5,05	6,22
Qo CH4 (m <sup>3</sup> (n)/h)	1,87	1,81	1,74	1,66	1,56	1,44	1,29	1,10	0,85	0,50	0,00
Qo H2 (m <sup>3</sup> (n)/h)	0,00	0,20	0,43	0,71	1,04	1,44	1,93	2,56	3,40	4,54	6,22
V gaz (m/s)	39,42	42,39	45,83	49,89	54,74	60,62	67,93	77,24	89,51	106,41	131,18
Qo Air (m <sup>3</sup> (n)/h)	21,04	20,92	20,78	20,62	20,42	20,18	19,89	19,51	19,01	18,33	17,32
Vair (m/s)	36,55	36,34	36,10	35,82	35,48	35,06	34,55	33,89	33,03	31,84	30,09
Rho-mélange-combustible	0,72	0,65	0,59	0,53	0,47	0,40	0,34	0,28	0,22	0,15	0,09
Tfumées (°C)	1141	1144,9	1147,9	1145,8	1148	1145	1148,9	1147,85	1148,5	1147,9	1155,4
Rho_fumées	0,24	0,24	0,24	0,24	0,24	0,24	0,23	0,23	0,23	0,22	0,22
impulsion du jet d'air Ga	0,28	0,27	0,27	0,27	0,26	0,25	0,25	0,24	0,23	0,21	0,19
impulsion des fumées Ge	1,04E-03	1,04E-03	1,03E-03	1,01E-03	9,97E-04	9,75E-04	9,53E-04	9,21E-04	8,81E-04	8,26E-04	7,54E-04
Kv sans tenir compte du combustible	8,11	8,09	8,07	8,07	8,05	8,05	8,02	8,00	7,97	7,92	7,84
impulsion du jet de combustible Gf	0,01	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02
Ga/Gf	18,83	17,64	16,47	15,30	14,15	13,01	11,91	10,87	9,92	9,20	9,18
Kv (en tenant compte de Gf)	8,57	8,58	8,60	8,64	8,66	8,71	8,73	8,78	8,81	8,83	8,73
Re combustible	7116	6945	6777	6593	6392	6167	5907	5596	5198	4639	3688
Re comburant	9977	9920	9854	9776	9683	9570	9429	9250	9015	8690	8214

**P=18,6kW** **$\lambda=1,18$   $T_a=565^\circ\text{C}$   $d=5\text{mm}$** 

	<b>100</b>	<b>90</b>	<b>80</b>	<b>70</b>	<b>60</b>	<b>50</b>	<b>40</b>	<b>30</b>	<b>20</b>	<b>10</b>	<b>0</b>
<b>% CH<sub>4</sub> / % H<sub>2</sub></b>											
<b>Qo gaz (m<sup>3</sup>(n)/h)</b>	1,87	2,01	2,17	2,37	2,60	2,87	3,22	3,66	4,24	5,05	6,22
<b>Qo CH4 (m<sup>3</sup>(n)/h)</b>	1,87	1,81	1,74	1,66	1,56	1,44	1,29	1,10	0,85	0,50	0,00
<b>Qo H2 (m<sup>3</sup>(n)/h)</b>	0,00	0,20	0,43	0,71	1,04	1,44	1,93	2,56	3,40	4,54	6,22
<b>V gaz (m/s)</b>	14,19	15,26	16,50	17,96	19,71	21,82	24,46	27,81	32,22	38,31	47,23
<b>Qo Air (m<sup>3</sup>(n)/h)</b>	21,04	20,92	20,78	20,62	20,42	20,18	19,89	19,51	19,01	18,33	17,32
<b>Vair (m/s)</b>	36,55	36,34	36,10	35,82	35,48	35,06	34,55	33,89	33,03	31,84	30,09
<b>Rho-mélange-combustible</b>	0,72	0,65	0,59	0,53	0,47	0,40	0,34	0,28	0,22	0,15	0,09
<b>Tfumées (°C)</b>	1137,1	1145,5	1149,5	1152,2	1154,1	1156,7	1156,8	1157,6	1159,6	1161,4	1168,9
<b>Rho_fumées</b>	0,24	0,24	0,24	0,24	0,24	0,23	0,23	0,23	0,23	0,22	0,21
<b>impulsion du jet d'air Ga</b>	0,28	0,27	0,27	0,27	0,26	0,25	0,25	0,24	0,23	0,21	0,19
<b>impulsion des fumées Ge</b>	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
<b>Kv sans tenir compte du combustible</b>	8,12	8,09	8,07	8,05	8,03	8,01	7,99	7,97	7,93	7,88	7,79
<b>impulsion du jet de combustible Gf</b>	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01
<b>Ga/Gf</b>	52,30	49,01	45,74	42,49	39,29	36,15	33,09	30,19	27,56	25,56	25,50
<b>Kv (en tenant compte de Gf)</b>	8,29	8,27	8,26	8,26	8,26	8,25	8,26	8,26	8,25	8,22	8,13
<b>Re combustible</b>	4269	4167	4066	3956	3835	3700	3544	3358	3119	2783	2213
<b>Re comburant</b>	9977	9920	9854	9776	9683	9570	9429	9250	9015	8690	8214

**P=18,6kW** **$\lambda=1,18$   $T_a=25^\circ\text{C}$   $d=3\text{mm}$** 

% CH <sub>4</sub> / % H <sub>2</sub>	100	90	80	70	60	50	40	30	20	10	0
Qo gaz (m <sup>3</sup> (n)/h)	1,87	2,01	2,17	2,37	2,60	2,87	3,22	3,66	4,24	5,05	6,22
Qo CH4 (m <sup>3</sup> (n)/h)	39,42	42,39	45,83	49,89	54,74	60,62	67,93	77,24	89,51	106,41	131,18
Qo H2 (m <sup>3</sup> (n)/h)	1,87	1,81	1,74	1,66	1,56	1,44	1,29	1,10	0,85	0,50	0,00
V gaz (m/s)	0,00	0,20	0,43	0,71	1,04	1,44	1,93	2,56	3,40	4,54	6,22
Qo Air (m <sup>3</sup> (n)/h)	21,04	20,92	20,78	20,62	20,42	20,18	19,89	19,51	19,01	18,33	17,32
Vair (m/s)	12,78	12,71	12,62	12,52	12,40	12,26	12,08	11,85	11,55	11,13	10,52
Rho-mélange-combustible	0,72	0,65	0,59	0,53	0,47	0,40	0,34	0,28	0,22	0,15	0,09
Tfumées (°C)	1054	1045	1036	1031	1025,6	1026,3	1026,5	1027,7	1031,7	1033,8	1042,5
Rho_fumées	0,26	0,26	0,26	0,26	0,26	0,26	0,25	0,25	0,25	0,24	0,23
impulsion du jet d'air Ga	0,10	0,10	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,08	0,08	0,07	0,07
impulsion des fumées Ge	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Kv sans tenir compte du combustible	4,62	4,64	4,65	4,65	4,66	4,65	4,64	4,62	4,59	4,56	4,50
impulsion du jet de combustible Gf	0,01	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02
Ga/Gf	6,58	6,17	5,76	5,35	4,95	4,55	4,17	3,80	3,47	3,22	3,21
Kv (en tenant compte de Gf)	5,40	5,46	5,53	5,60	5,68	5,75	5,83	5,91	5,98	6,04	5,97
Re combustible	7116	6945	6777	6593	6392	6167	5907	5596	5198	4639	3688
Re comburant	3489	3469	3445	3418	3386	3346	3297	3234	3152	3038	2872

**P=18,6kW** **$\lambda=1,18$   $T_a=25^\circ\text{C}$   $d=5\text{mm}$** 

% CH <sub>4</sub> / % H <sub>2</sub>	100	90	80	70	60	50	40	30	20	10	0
<b>PCI</b>	9,95	9,254	8,558	7,862	7,166	6,47	5,774	5,078	4,382	3,686	2,99
<b>Va</b>	9,54	8,822	8,104	7,386	6,668	5,95	5,232	4,514	3,796	3,078	2,36
<b>Qo gaz (m<sup>3</sup>(n)/h)</b>	1,87	2,01	2,17	2,37	2,60	2,87	3,22	3,66	4,24	5,05	6,22
<b>Qo CH4 (m<sup>3</sup>(n)/h)</b>	14,19	15,26	16,50	17,96	19,71	21,82	24,46	27,81	32,22	38,31	47,23
<b>Qo H2 (m<sup>3</sup>(n)/h)</b>	1,87	1,81	1,74	1,66	1,56	1,44	1,29	1,10	0,85	0,50	0,00
<b>V gaz (m/s)</b>	0,00	0,20	0,43	0,71	1,04	1,44	1,93	2,56	3,40	4,54	6,22
<b>Qo Air (m<sup>3</sup>(n)/h)</b>	21,04	20,92	20,78	20,62	20,42	20,18	19,89	19,51	19,01	18,33	17,32
<b>Vair (m/s)</b>	12,78	12,71	12,62	12,52	12,40	12,26	12,08	11,85	11,55	11,13	10,52
<b>Rho-mélange-combustible</b>	0,72	0,65	0,59	0,53	0,47	0,40	0,34	0,28	0,22	0,15	0,09
<b>Tfumées (°C)</b>	1059	1055,8	1055,2	1051,4	1053,4	1057,4	1058,8	1061,6	1064,3	1067,6	1077,6
<b>Rho_fumées</b>	0,26	0,26	0,25	0,25	0,25	0,25	0,25	0,25	0,24	0,24	0,23
<b>impulsion du jet d'air Ga</b>	0,10	0,10	0,09	0,09	0,09	0,09	0,09	0,08	0,08	0,07	0,07
<b>impulsion des fumées Ge</b>	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
<b>Kv sans tenir compte du combustible</b>	4,61	4,61	4,61	4,61	4,60	4,58	4,57	4,55	4,53	4,49	4,43
<b>impulsion du jet de combustible Gf</b>	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01
<b>Ga/Gf</b>	18,29	17,14	16,00	14,86	13,74	12,64	11,57	10,56	9,64	8,94	8,92
<b>Kv (en tenant compte de Gf)</b>	4,90	4,92	4,94	4,97	4,98	5,00	5,02	5,04	5,06	5,06	5,00
<b>Re combustible</b>	4269	4167	4066	3956	3835	3700	3544	3358	3119	2783	2213
<b>Re comburant</b>	3489	3469	3445	3418	3386	3346	3297	3234	3152	3038	2872

;

## BIBLIOGRAPHIE

**Adolfi J.B., Ellul C., Frinking F., Santos S.**, “Experimental Results from the HEC-EEC Furnace and Burners Firing Coke Oven Gas”, An IFRF Members Research Project, 2005.

<http://www.afH2.org/>

**Bauer P.**, “Etude expérimentale d’un régime de combustion diluée dans une configuration à contre-courant”, Doctorat de l’Université de Poitiers, 2006.

**Becker H.A, Booth B.D.**, “Mixing in the interaction zone of two free jets”, AIChE J. 21:949 (1975)

**Becker H.A, Yamazaki S.**, “Entrainment, Momentum Flux and Temperature in Vertical Free Turbulent Diffusion Flames”, Combustion and Flame 33:123-149 (1978)

<http://www.me.berkeley.edu/gri-mech/>

**Bertolo M., Sayre A.N., Dugue J., Weber R.**, "Scaling Characteristics of Aerodynamics and Low-NO<sub>x</sub> Properties of Industrial Natural Gas Burners, The Scaling 400 Study, Part V: the 4MW Test Results, IFRF, The Netherlands, 1993; also GRI-94/0187, 1994

**Beér J.M., Chigier N.A.**, "Combustion aerodynamics", Applied Science and Publisher Ltd., 1972

**Borghi R., Destriau M.**, "la combustion et les flammes", Editions TECHNIP, 1995

**Bozzeli J.W., Dean A.M.**, Int. J. Chem. Kin. 27 :1097-1109 (1995)

**Bradley D., Matthews K.J.**, "Measurement of gaz temperatures with fine wire thermocouples", Journal Mechanical Engineering Science, Vol 10 n°4, 1968, pp229-305

**Brune M.**, "Optimization of the Energy Efficiency of Thermal Process Plants- Experimental investigations at GWI test furnace", Second ETA-Meeting, 2001

**Cabra R., Chen J.-Y., Dibble R.W., Karpetis A.N., Barlow R.S.**, "Lifted methane-air jet flames in a vitiated coflow", Combustion and Flame, Vol 143, 2005, pp 491-506

[HTTP://WWW.CANTERA.ORG/](http://www.cantera.org/)

**Cavaliere A., De Joannon M.**, "Mild Combustion", Progress in Energy and Combustion Science, Vol. 30, 2004, pp. 369-366.

**Cavaliere A., De Joannon M., Ragucci R.**, "Physical and chemical aspects of the mild combustion. Examples related to gas turbine combustion", 4th International Symposium on High Temperature Air Combustion and Gasification, ENEA, Rome, 2001

**Cavigiolo A., Galbiati M.A., Effuggi A., Gelosa D., Rota R.**, Combust. Sci. Technol. 175:1347-1367 (2003).

**Chase M.W, Davies A., et al.**, "JANAF Thermochemical Tables", American Chemical Society, American institute of Physics, 1985

**Choudhuri A.R., Gollahalli S.R.**, « Characteristics of hydrogen–hydrocarbon composite fuel turbulent jet flames», International Journal of Hydrogen Energy 28 (2003) 445–454

**Coelho P.J., Peters N.**, "Numerical Simulation of a Mild Combustion Burner", Combustion and Flame, Vol 124, 2001, pp 503-518

**Coppens F.H.V., Alexander A., Konnov A.**, "The effects of Hydrogen Enrichment on Propagation Speeds in Adiabatic Flat and Cellular Premixed Flames of CH<sub>4</sub>+O<sub>2</sub>+CO<sub>2</sub>", 21<sup>st</sup> ICDERS, Poitiers, France, 2007.

**Coppens F.H.V., De Ruyck J., Konnov A.**, « The effects of composition on burning velocity and nitric oxide formation in laminar premixed flames of CH<sub>4</sub>+H<sub>2</sub>+O<sub>2</sub>+N<sub>2</sub> », Combustion and Flame, Vol 149, 2007, pp409-417.

**Curtet R.**, "Confined jets and recirculated phenomena with cold air", Combustion and Flame, Vol 2, 1958, pp 383-411

**Dagaut P., Lecomte F., Chevaller S., Cathonnet M.**, Combust Sci. Technol. volume 139: 29-363

**Dally, B. B., Riesmeier, E., Peters, N.**, "Effect of fuel mixture on moderate and intense lox oxygen dilution combustion", Combustion. and Flame (2004)volume 137 :418–431

**Das L.M.**, "Hydrogen-Oxygen reaction mechanism and its implication to hydrogen engine combustion", J. Hydrogen Energy Vol. 21. No. 8, pp. 70. 715. 1996.

**Derudi M., Villani A., Rota R.**, "Sustainability of mild combustion of hydrogen-containing hybrid fuels", Proceedings of the Combustion Institute 31 (2007) 3393-3400.

**Derudi M., Villani A., Rota R.**, "Mild Combustion of Industrial Hydrogen-Containing Byproducts", Ind. Eng. Chem. Res. 2007, 46, 6806-6811.

**Derudi M., Villani A., Rota R.**, "The Influence of Hydrogen-Containing Fuels on Mild Combustion Sustainability", Proc. European Combustion Meeting, Chania, Crete, 2007.

**Derudi M., Villani A., Rota R.**, "The Influence of Operating Parameters on Mild Combustion Sustainability", 30<sup>th</sup> Meeting on Combustion, Italie, 2007.

**De Soete G.**, "Kinetics of combustion and combustion related nitrogen chemistry", cours de Master2, EFE (Energie Fluide Environnement), 2004, Rouen.

**Donatini F., Schiavetti M., Gigliucci G., Gheri P., Monticelli M., Mangione R., Paulozza A., Riccardi J.**, "CFD simulation and experimental tests on a natural gas/hydrogen mixture-fired flameless combustor", ECCOMAS 2005, Lisbonne (Portugal), 2005.

**Energy Information Administration:** <http://www.eia.doe.gov>

**Etzkorn T., Muris S., Wolfrum J., Dembny C., Bockhorn H., Nelson P.F., Attia-Schahin A., Warnatz J.**, Proc. Combust. Inst. 24 925-932 (1992)

**Ferrand L.**, "Modélisation et expérimentation des fours de réchauffage sidérurgiques équipés de brûleurs régénératifs à oxydation sans flamme", Thèse, Ecole des mines de Paris, 2003.

**Flamme M., Boss M., Brune M., Lynen A., Heun J., Wüning J.A., Wüning J.G., Dittman H.J.**, Proc. International Gas Research Conference, San Diego, USA, 1998.

**Flamme M., Brune M., Konold U., AL-Halbouni A., Scherello A., Giese R.**, "Optimisation of the energy efficiency of industrial furnaces", 4th high temperature air combustion and gasification symposium, 26-30 novembre 2001, Rome, Italie.

<http://www.fluidat.com/>

**Fricker N., Williams A., Hampartsoumian E.**, "What data is available on the emissivity of firebrick and refractories as a function of temperature?", IFRF (International Flame Research Foundation) Online Combustion Handbook, Combustion File n°148, février 2003

**FutureGen Alliance:** <http://www.futuregenalliance.org>

**Galbiati A.M., Cavigiolo A., Effuggi A., Gelosa D., Rota R.**, "Mild combustion for Fuel NOx reduction", Combustion Science and Technology, Vol 176, 2004, pp 1035-1054

**Galletti C., Parente A. Tognotti L.**, "CFD Simulation of Mild combustion", Proc. European Combustion Meeting, Chania, Crete, 2007.

**Gasquet C., Witomski P.**, "Analyse de Fourier et applications" Edition Masson (1990).

**Gasunie**, “Physical properties of natural gas”, N.V Nederlandse Gasunie, juin 1988

**Glarborg P., Alzueta M.U., Dam-Johansen K., Miller J.A.**, *Combust. Flame* 115 :1-27 (1998)

**Graftieaux L., Michard M., Grosjean N.**, “Combining PIV, POD and vortex identification algorithms for the study of unsteady turbulent swirling flows”, *Measurement Science and Technology*, vol. 12, 2001, pp1422-1429.

**Grandmaison E.W., Yimer I., Becker H.A., Sobiesiak A.**, “The Strong-Jet/Weak-Jet Problem and Aerodynamic Modeling of the CGRI Burner”, *Combustion and Flame* 114:381-396 (1998)

**Going for the Green new Deal Arendal (GRID-Arendal):** <http://www.grida.no>

**Gordon R.L., Masri A.R., Mastorakos E.**, “Simultaneous Rayleigh temperature, OH- and CH<sub>2</sub>O-LIF imaging of methane jets in a vitiated coflow”, *Combustion and Flame* 155:181-195 (2008)

**Guo H., Liu F., Smallwood G.J., Gulder O.L.**, “A numerical study of the influence of the transport properties of inert diluents on soot formation in a coflow laminar ethylene/air diffusion flame”, *Proceedings of the Combustion Institute*, Volume 29, 2002/pp. 2359–2365

**Gupta A.K., Bolz S., Hasegawa T.**, “Effect of Preheat Temperature and Oxygen concentration on Flame Structure and Emission”, *Journal. of Energy Resources' Technology* (1999) vol 121(3) :209–216.

**Han D., Mungal M.G.**, “Direct Measurement of Entrainment in Reacting/ Non reacting Turbulent Jets”, *Combustion and Flame* 124:370-386, 2001

### **Handbook**

**Hasegawa T.**,”High temperature air combustion as a core technology in developing advanced industrial furnaces”. *Forum on high performance industrial furnace and boiler*, Tokyo, pp59-66, 1999

**Haworth N.L., Mackie J.C., Bacskay G.B.**, *J.Phys. Chem. A*, 107:6792-6803

**Heitor M.V., Taylor A.M.K.P, Whitelaw J.H.**, “Simultaneous velocity and temperature measurements in premixed flame”, *Experiments in Fluids*3, pp. 323-339, (1985)

**Heitor M.V., Moreira A.L.N.**, “Probes measurements of scalar properties in reacting flows” *Combusting flows diagnostics*, NATO ASI Series. Series E: Applied Sciences Vol. 207 pp79-136 (1992).

**Heitor M.V., Moreira A.L.N.**, “Thermocouples and sample probes for combustion studies” *Prog. Energy Combust. Sc.* 19:259-278 (1993).

**Honoré D.**, Advanced measurements in industrial combustion systems. In L. Vervisch, D. Veynante, J.P.A.J. Van Beeck (Eds) VKI Lecture Series "Turbulent Combustion", Von Karman Institute for Fluid Dynamics, Belgium, 2005.

**Honoré D., Rottier C., Godard G., Corbin F., Boukhalfa A.M.**, "Development of Endoscopic Particle Image Velocimetry For Application in High Temperature Furnace", 4<sup>th</sup> European Combustion Meeting, Wien, Austria (2009).

**Hottel H.C., Sarofim A.F.**, Radiative transfer, McGraw Hill Book Company New York, pp 200-253, (1967).

**Huang z., Zhang Y., Zeng K., Liu B., Wang Q., Jiang D.**, "Measurements of laminar burning velocities for natural gas-hydrogen-air mixture", Combustion and Flame 146 (2006):302-311.

**Ilbas M., Crayford A.P., Yilmaz I., Bowen P.J., Syred N.**, "Laminar-burning velocities of hydrogen-air and hydrogen-methane-air mixtures: An experimental study", International Journal of Hydrogen Energy 31 (2006) 1768 – 1779.

**Katsuki M., Hasegawa T.**, "The science and technology of combustion in highly preheated air", Proceeding of the Combustion Institute 27:3135 (1998)

**Kobayashi H.**, "Segregated Zoning Combustion", U.S Patent 5076779, 1991

**Korusoy E., Whitelaw J.H.**, "Extinction and relight in opposed flames", Experiments in Fluids 33 (2002) 75-89.

**Larass N.**, Caractérisation expérimentale des champs thermiques et dynamiques de la combustion dans une chaudière domestique, Thèse de l'Université de Rouen, 2000.

**Le Cong T., Dagaut P.**, "Experimental and Detailed Kinetic Modeling of the Oxidation of Natural Gas, Natural Gas/Syngas Mixtures and Effect of Burnt Gas Recirculation", 21th ICDERS, Poitiers France (2007)

**Lecordier B.**, "Etude de l'interaction de la propagation d'une flamme pré mélangée avec le champ aérodynamique par association de la tomographie laser et de la vélocimétrie par images de particules", Doctorat de l'université de Rouen, 1997.

**Levinsky H.B.**, "Limitations on H<sub>2</sub> addition to natural gas", Proceedings Natural Gas Technologies II Conference, GTI-04/0012:T04268, Gas Technology Institute, USA, 2004.

**Liao S.Y., Jiang D.M., Huang Z.H., Cheng Q, Gao J., Hu Y.**, "Approximation of flammability region for natural gas-air-diluents mixture", Journal of Hazardous Materials A125 (2005) 23-28

**Lin Y.F., Sheu M.J.**, "Interaction of parallel turbulent plane jet", AIAA (American Institute of Aeronautics and Astronautics.) journal, Vol 29, n°9, 1991, pp 1372-1373.

**Lupant D., Pesenti B., Evrard P., Lybaert P.**, Proc. European Combustion Meeting, Louvain la neuve, Belgium, 2005.

**Malte P.C., Pratt D.T.**, Combust. Sci. Technol., 9 : 221

**Mancini M.**, “Analysis of mild combustion of Natural Gas with preheated air”, PhD Thesis, 2007

**Mancini M., Schwöppe P., Weber R., Orsino S.**, “On mathematical modelling of flameless combustion”, Combustion and Flame, 150 (2007) 54-57

**Masson E.**, “Etude expérimentale des champs dynamiques et scalaires de la combustion sans flamme”, Doctorat de l’INSA de Rouen, 2005.

**Masson E., Maurel S., Porcheron L., Aguilé F., Meunier P., Quinqueneau A., Honoré D., Boukhalfa. A.**, Proc. 14th IFRF Members Conference, Noordwijkerhooft, The Netherlands, 2004.

**Masters J., Webb R.J., Davies R.M.**, “Use of modelling techniques in the design and application of recuperative burners” Journal of the Institute of Energy, 52 (413), pp196–204, 1979.

**Mazas A., Lacoste D., Fiorina B., Schuller T.**, “Effects of water vapor addition on the laminar burning velocity of methane oxygen-enhanced flames at atmospheric pressure”, Proc. European Combustion Meeting, Vienna, Austria, 2009.

**Mihalcea R.M., Baer D.S., Hanson R.K.**, “Diode laser sensor for measurements of CO, CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> in combustion flows”, Applied Optics vol.36, Issue 33, pp 8745-8752.

**Milani A., Saponaro A.**, "Diluted combustion technologies", IFRF (International Flame Research Foundation) Combustion Journal, Article n° 200101, Février 2001.

**Milani A., Wüning J.**, “What is the effect of flameless combustion on nox formation?”, IFRF Combustion Journal, 174, 2002.

**Milani A., Wüning J.**, “What is flameless combustion”, IFRF Combustion Journal, 171, 2002.

**Min J., Baillet F., Wyzgolik A., Domingues E., Talbaut M., Patte-Rouland B., Galizzi C.**, “Experimental Study of Non-Premixed CH<sub>4</sub>/Air Flames: Effect of CO<sub>2</sub> Addition and Reactant Preheating”, Proc. European Combustion Meeting, Vienna, Austria, 2009.

**Monnot G., Feugier A., Le Bouc F., Mauss F., Meyer C., Perthuis E., De Soete G.**, “La combustion dans les fours et les chaudières”, Publications de l’IFP, Collection « Science et Technique du Pétrole » n°22, Editions Technip, 1978.

**Mörtberg M.**, “Study of gas fuel jet burning in low oxygen content and high temperature oxidizer”, PhD Thesis, 2005

**Nakamachi I., Yasuzawa K., Miyahara T., Nagata T.** “Apparatus or Method for Carrying out combustion in furnace”, U.S Patent 4945841, 1990

**Narayanan K., Yang W., Blasiak W.**, “Development and tests of oxy-fuel combustion technology with aim of very deep CO<sub>2</sub> and NO<sub>x</sub> reduction”, KTH, 2005

**Natarajan J., Lieuwen T., Seitzman J.**, “Laminar flame speeds of H<sub>2</sub>/CO mixtures: Effect of CO<sub>2</sub> dilution, preheat temperature, and pressure”, *Combustion and Flame* 151 (2007) 104–119

**Neveu F.**, “Mesures simultanées de la température et de la vitesse dans une flamme turbulente non prémélangée méthane-air stabilisée par un brûleur de type « bluff-body »”, Doctorat de l’université de Rouen, 1994.

**Neveu F., Corbin F., Perrin M., Trinité M.**, *Rev. Gen. Therm.* 34:400-01 305-314 (1995)

**Nguyen Q.V., Edgar B.L., Dibble R.W.**, “Experimental and Numerical Comparison of Extractive and In Situ Laser Measurements of Non-Equilibrium Carbon Monoxide in Lean-Premixed Natural Gas Combustion”, *Combustion and Flame*, 100:395-406 (1995).

**Nicolle A.**, “Etude expérimentale et modélisation des aspects cinétiques de la combustion sans flamme”, Doctorat de l’université d’Orléans (2005).

**Nicolle A., Dagaut P.**, “Occurrence of NO-reburning in MILD combustion evidence via chemical kinetic modeling”, *Fuel*, 85 (2006) 2469-2478

**Oldenhof E., Tummers M.J., van Veer E.H., Roekaerts D.J.E.M.**, “Ignition kernel statistics of Delft Jet-in-hot-Coflow flames”, ECM 2009, Vienna (Autriche)

**Olschewski H.A., Troe J., Wagner H. Gg.**, *Ber. Bunsenges Phys. Chem.* 70 :450,1966

**Observatoire de l’énergie:** <http://www.industrie.gouv.fr/energie/sommaire.htm>

**Ozdemir I.B., Peters N.**, “Characteristics of the reaction zone in a combustor operating at mild combustion”, *Experiments in fluids*, 30: 683–695, 2001.

**Parente A., Galletti C., Tognotti L.**, “Effect of the combustion model and kinetic mechanism on the MILD combustion in an industrial burner fed with hydrogen enriched fuels”, *international journal of hydrogen energy* 33 (2008) 7553–7564.

**Paranthöen P., Petit C., Lecordier J.C.**, “The effect on the thermal prong-wire interaction on the response of a cold wire in gaseous flows (air, argon and helium)”, *J. Fluid Mech.*, Vol. 124, pp. 457-473

**Paranthöen P., Lecordier J.C.**, “Mesures de température dans les écoulements turbulents”, *Rev Gén Therm* (1996) 35, 283-308.

**Pesenti B., Evrard P., Sorriau O., Lybaert P.**, "NO<sub>x</sub> production and heat transfer from a self-regenerative flameless oxidation burner", European Combustion Meeting, 25-28 octobre 2003, Orléans, France

**Petit C. Gajan P. Lecordier J.C., Paranthöen P.**, « Frequency response of fine wire thermocouple » *J. Phys. E: Sci Instrum.* Vol. 15, pp. 760-764 (1982)

**Plessing T., Peters N., Wüning J.G.**, “Laseroptical investigation of highly preheated combustion with strong exhaust gas recirculation”, 27<sup>th</sup> Symposium on combustion, The Combustion Institute, 1998, pp3197-3204

**Poinsot T.**, “Analyse des instabilités de combustion de foyers turbulents pré mélangés”, Thèse de l’Université de Paris-Sud centre d’Orsay. (1987)

**Pope S.B.**, “Turbulent flows”, Cambridge University Press, 2000.

**Quinqueneau A., Touzet A., Oger M.**, “Experimental studies on regenerative industrial burners operating in the flameless oxidation mode”, Proc. 13th IFRF Members Conference, Noordwijkerhooft, The Netherlands, 2001.

**Ricou F.P., Spalding D.B.**, “Measurements of entrainment by axisymmetrical turbulent jets”, Fluid Mech., vol. 11, 1960, pp21-32

**Sabia P., Schiesswohl E., De Joannon M.R., Cavaliere A.**, “Numerical Analysis of Hydrogen Mild Combustion”, Turkish J. Eng. Env. Sci. 30 (2006), 127-134.

**Safta C., Madnia C.K.**, ‘Autoignition and structure of nonpremixed CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> flames: Detailed and reduced kinetic models”, Combustion and Flame 144 (2006) 64-73.

**Salentey L.**, “Etude expérimentale du comportement de brûleurs à jets séparés. Application à la combustion gaz naturel - oxygène pur”, Doctorat de l’université de Rouen, 2002.

**Sautet J.C.**, "Effet des différences de densités sur le développement scalaire et dynamique des jets turbulents", thèse, Université de Rouen, 1992.

**Scadron M.D., Warshawsky I.**, “Experimental determination on time constants and Nusselt numbers for bare-wire thermocouples in high velocity air streams and analytic approximation of conduction and radiation error” NACA TN 2599 (1952).

**Schoenung S.M., Hanson R.K.**, « CO and temperature measurements in a flat flame by laser absorption spectroscopy and probe techniques”, Combustion Science and Technology Vol. 24, Issue 5-6, 1981, pp 227-237.

**Shannon K.S., Butler B.W.**, “A review of error associated with thermocouple temperature measurement in fire environments”, Second international wildland fire ecology and fire management congress and fifth symposium on fire and forest meteorology, vols. 16-20. Orlando, FL. Boston, MA: American Meteorological Society; 2003. p.7B.4.3p

**Siegel R., Howell J.R.**, “thermal radiation heat transfer”, second edition, 1981.

**Sierens R., Rosseel E.**, “Variable Composition Hydrogen/ Natural Gas Mixtures for Increased Engine Efficiency and Decreased Emissions”, J. Eng. Gas Turbines Power, vol. 122, Issue 1, 135 (2000)

**Slim B.K., Pieters G.T., Last D., Tiekstra G., Levinsky H.B.**, “Gasunie Engineering and Technology Jet Driven Dilute Combustion-burner: Ultra-low NO<sub>x</sub> in Hi-temp furnaces”, NGT, Florida (USA), 2005

**Smith G.P.**, Luque J, Park C, Jeffries J.B, Crosley D.R., “Low pressure flame determinations of rate constants for OH(A) and CH(A) Chemiluminescence”, *Combustion & Flame* 131, n° 1, (2002) , pp. 59-69(11).

**de Soete G.**, *Rev. Gén. Therm. Fr.*, 330 :357, 1989

**Société française de chimie:** <http://www.sfc.fr>

**Susset A.**, “Développement de traitements d’images pour l’étude de la stabilisation de flammes turbulentes non-prémélangées générées par des brûleurs industriels modèles”, Doctorat de l’université de Poitiers, 2002.

**Susset A., Most J.M, Honoré D.**, *Exp. in Fluids* 40:70-79(2006).

**Szegö G.G., Dally B.B., Nathan G.J.**, “Operational characteristics of a parallel jet MILD combustion burner system”, *Combustion and Flame* 156 (2009) 429-438

**Tanaka R., Kishimoto K., Hasegawa T.**, (In Japanese), *Combustion Science and technology* 1(4):264-373 (1994)

**Thorne L.R., Branch M.CM, Chandler D.W., Kee R.J., Miller J.A.**, *Proc. Combust. Inst.* 21: 965:977 (1988)

**Vanderstraeten B., Tuerlinckx D., Berghmans J., Vliegen S., Van’t Oost E., Smit B.**, “Experimental study of the pressure and temperature dependence on the upper flammability limit of methane/air mixtures”, *Journal of Hazardous Materials* 56 (1997) 237-246.

**Verhelst S.**, “A Study of the Combustion in Hydrogen-Fuelled Internal Combustion Engines”; PhD thesis, Ghent University, Belgique

**Villani A., Derudi M., Rota R.**, “Mild Combustion of Pure Hydrogen and Hydrogen-Based Fuels”, 29<sup>th</sup> Meeting on Combustion, Italie, 2006.

**Wagner H.G.**, “Influence of operating conditions of soot and hydrocarbons in flames”, 3<sup>rd</sup> International Congress on Toxic combustion By-products, (1993)

**Weber R., Verlaan A.L., Orsino S., Lallemand N.**, “On emerging furnace design methodology that provides substantial energy savings and drastic reductions in CO<sub>2</sub> and NO<sub>x</sub> emissions” *Journal of the Institute of Energy*, n°72 :pp77–83, 1999.

**Weber R., Orsino S., Lallemand N., Verlan A.D.**, *Proc. Comb. Inst.* 28:1315 (2000)

**Wierzba I., Ale B.B.**, “Rich flammability limits of fuel mixtures involving hydrogen at elevated temperatures”, *International Journal of Hydrogen Energy* 25 (2000) 75-80.

**Willert C.E., Gharib M.**, “Digital Particle Image Velocimetry”, *Experiments in Fluids*, vol. 10, 1991, pp. 182–193.

**Wünning J.A., Wünning J.G.**, "Burners for flameless oxidation with low-NO<sub>x</sub> formation even at maximum air preheat", *Gas Wärme International*, Vol. 10, 1992, pp 438-444

**Wünning J.A., Wünning J.G.**, "Flameless oxidation to reduce thermal NO-formation", *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol 23, 1997, pp 81-84.

**Wyżgolik A.**, “Stabilisation d’une flamme non-prémélangée dans un écoulement de jets coaxiaux. Effets d’un champ acoustique”, Doctorat de l’Université de Rouen, 2008

**Yamauchi T.**, "Outline of high performance industrial furnace and boiler development project ", *Forum on high performance industrial furnace and boiler*, 8-9 mars 1999, Tokyo, pp 2-12.

**Yimer I., Becker H.A., Grandmaison E.W.**, “Development of Flow from Multiple-Jet Burners”, *The Canadian Journal of Chemical engineering*, vol. 74 (1996)

**Yimer I., Becker H.A., Grandmaison E.W.**, “The Strong-jet/Weak-jet Problem: New Experiments and CFD”, *Combustion and Flame* 124:481-502 (2001)

**Yule A.J., Taylor D.S., Chigier N.A.**, “On-line digital compensation and processing of thermocouple signals for temperature measurement in turbulent flames”, *AIAA 16<sup>th</sup> Aerospace Science Meeting* paper 78-30 (1978)

**Zabetakis M.G.**, "Flammability characteristics of combustible gases and vapours", U.S. Department of the interior, Bureau of Mines, *Bulletin 627*, 1965

**Zero Emission Fossil Fuel Power Plants (ZEP):** <http://www.zero-emissionplatform.eu>



---

## ETUDE EXPERIMENTALE DE L'INFLUENCE DES MELANGES GAZEUX SUR LA COMBUSTION SANS FLAMME

Une étude expérimentale de l'influence des mélanges gazeux sur le régime de combustion sans flamme a été menée sur l'installation pilote du CORIA, en collaboration avec GDF SUEZ. La première partie de cette étude a été consacrée à la caractérisation détaillée de ce régime de combustion particulier au méthane pur avec et sans préchauffage de l'air comburant. Des mesures locales de température et concentrations d'espèces stables ont été réalisées à l'aide de thermocouples à fil fin et sonde de prélèvement. Une attention particulière a aussi été portée au développement et l'adaptation de techniques d'imagerie sur ce type de four : l'imagerie de chimiluminescence OH\* pour la visualisation des zones de réaction et la PIV endoscopique afin d'obtenir des champs de vitesse de grandes dimensions malgré le fort confinement à haute température. L'analyse des résultats obtenus a permis de mettre en évidence le rôle principal de l'aérodynamique des jets turbulents de réactifs dans le four assurant l'obtention et la stabilisation de ce régime de combustion massivement diluée. Dans la seconde partie de cette étude, la faisabilité de l'utilisation d'hydrogène dans un four pilote fonctionnant en régime de combustion sans flamme a été démontrée. On retrouve toutes les caractéristiques intrinsèques à ce régime de combustion en termes de forte efficacité énergétique (lors du préchauffage de l'air) et très faibles émissions polluantes (CO et NOx) de ce régime massivement dilué, associé à la réduction des émissions de CO<sub>2</sub> avec l'augmentation de la teneur en hydrogène dans le combustible. En fonctionnement à l'hydrogène pur et sans préchauffage de l'air, le four n'émet plus aucune espèce carbonée et quasiment pas de NOx ; on se rapproche d'un four à "zéro émission".

**Mots-clés :** combustion sans flamme, four, NOx, efficacité énergétique, PIV endoscopique, hydrogène.

## AN EXPERIMENTAL STUDY OF THE INFLUENCE OF THE AERODYNAMIC MIXING ON FLAMELESS COMBUSTION REGIME

An experimental study of the influence of the aerodynamic mixing on flameless combustion regime has been carried out on the CORIA lab-scale facility with the collaboration of GDF SUEZ. A detailed characterisation of this innovating combustion mode, using pure methane as fuel, with and without air preheating is the first part of this study. Temperature and stable species concentrations measurements have been performed with fine wire thermocouple and sampling probe. Imaging techniques have been developed and adapted for in-furnace measurements: OH\* chemiluminescence imaging for reaction zone visualization and endoscopic PIV in order to obtain large dimensions velocity fields in spite of the confinement. The results enable us to put in evidence the leading role of aerodynamic of the turbulent jets to ensure the stabilisation of this massive diluted combustion regime.

The second part of this study concerns the use of hydrogen as fuel in the pilot furnace operating in flameless combustion regime. The main characteristics of this combustion regime have been found again: high efficiency and very low pollutant emissions (CO and NOx) associated to CO<sub>2</sub> emissions reduction while increasing content of hydrogen in the fuel. With pure hydrogen and without air preheating, the furnace produces no carbon-species and nearly no NOx, condition close to a "zero-emission" furnace.

**Keywords:** flameless combustion, furnace, NOx, energy efficiency, endoscopic PIV, hydrogen.